LABORATOIRE CHARLES FABRY
DE l'INSTITUT D'OPTIQUE
CNRS UMR 8501

UNIVERSITE PARIS XI
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

Mémoire en vue de l'obtention de
l'**Habilitation à Diriger des Recherches**,

présenté par

Gaétan Messin

SOURCES DE LUMIERE POUR L'INFORMATION QUANTIQUE

Soutenue à Palaiseau, le 10 juillet 2008, devant le jury composé de :

Jean-Michel Raimond	Rapporteur
Thomas Coudreau	Rapporteur
Ariel Levenson	Rapporteur
Elisabeth Giacobino	Examinateur
Philippe Grangier	Examinateur
John Rarity	Examinateur, Président du jury

Table des matières

Avant-propos **7**

1 Introduction **9**

2 Photons uniques et cryptographie quantique **11**
2.1 Introduction . . . 11
2.2 Dégroupement et groupement de photons . . . 13
2.2.1 Fonction de corrélation du second ordre . . . 13
2.2.2 Isoler un émetteur unique . . . 14
2.2.3 Dégroupement de photons . . . 19
2.2.4 Effets de groupement . . . 21
2.3 Sources de photons uniques déclenchées . . . 25
2.3.1 Principe . . . 25
2.3.2 Réalisation de sources déclenchées avec des nanocristaux . . . 26
2.3.3 Emission de photons uniques par un atome unique . . . 29
2.4 Cryptographie avec des photons uniques . . . 34
2.4.1 Protocole BB84 de cryptographie quantique . . . 34
2.4.2 Réconciliation et amplification de confidentialité . . . 36
2.4.3 Réalisation de BB84 . . . 36
2.5 Conclusion . . . 39
2.6 Articles . . . 41
2.6.1 *Optics Letters* **26**, 1891 (2001). . . . 43
2.6.2 *Physical Review Letters* **90**, 120601 (2003). . . . 47
2.6.3 *New Journal of Physics* **6**, 99 (2004). . . . 51
2.6.4 *New Journal of Physics* **6**, 92 (2004). . . . 59
2.6.5 *Science* **309**, 454 (2005). . . . 73

3 Paires de photons et téléportation **77**
3.1 Introduction . . . 77
3.2 Communications quantique par téléportation . . . 78
3.2.1 Principe de la téléportation quantique . . . 78
3.2.2 Téléportation avec des photons intriqués en polarisation . . . 79
3.2.3 L'architecture MIT/NU . . . 80
3.3 Cristaux $\chi^{(2)}$ polarisés périodiquement . . . 81
3.3.1 Photons jumeaux et conversion de fréquence . . . 81
3.3.2 Cristaux polarisés périodiquement . . . 82
3.3.3 Cristaux utilisés au MIT . . . 83
3.4 Description des expériences . . . 84

3.4.1 Paires de photons non dégénérés en fréquence . . . 84
3.4.2 Conversion de fréquence . . . 85
3.4.3 Paires de photons dégénérés en fréquence . . . 85
3.4.4 Source duale de paires intriquées en polarisation . . . 88
3.5 Conclusion . . . 89
3.6 Articles . . . 91
3.6.1 *Physical Review A* **69**, 013807 (2004). . . . 93
3.6.2 *Physical Review A* **69**, 041801(R) (2004). . . . 99

4 Emetteur unique et calcul quantique 103
4.1 Traitement quantique de l'information . . . 103
4.1.1 Bref historique . . . 103
4.1.2 Enjeux du traitement quantique de l'information . . . 104
4.1.3 Etat de l'art . . . 105
4.1.4 Intérêt des émetteurs de photons uniques . . . 106
4.2 Interférences à deux photons . . . 106
4.2.1 Coalescence . . . 107
4.2.2 Réalisation expérimentale . . . 108
4.2.3 Résultats expérimentaux . . . 109
4.3 Utilisation d'un émetteur unique comme bit quantique . . . 110
4.3.1 Atome unique comme bit quantique . . . 111
4.3.2 Intrication de deux émetteurs uniques . . . 113
4.4 Conclusion . . . 114
4.5 Articles . . . 115
4.5.1 *Nature* **440**, 779 (2006). . . . 117
4.5.2 *Nature Physics* **3**, 696 (2007). . . . 121

5 Projet : Vers des interfaces atome-champ 125
5.1 Contexte . . . 125
5.1.1 Problématique . . . 125
5.1.2 Savoir-faire du groupe d'Optique Quantique . . . 126
5.2 Sources de lumières pour les interfaces atome-champ . . . 127
5.2.1 Vide comprimé . . . 127
5.2.2 Perspectives . . . 128

Conclusion 131

A Compléments 133
A.1 Caractérisation du groupement et du dégroupement . . . 133
A.1.1 Fonction $g^{(2)}(\tau)$ . . . 133
A.1.2 Cas monomode transverse . . . 134
A.1.3 Lien entre fonction de corrélation et fluctuations . . . 134
A.1.4 Effet des pertes . . . 135
A.1.5 Mesure de la fonction de corrélation du second ordre . . . 135
A.1.6 Groupement et dégroupement de photons . . . 137
A.1.7 Dynamique de l'émetteur . . . 142
A.2 Caractérisation d'une source déclenchée . . . 144
A.2.1 Mesure de l'histogramme des coïncidences . . . 144
A.2.2 Signal attendu . . . 144
A.2.3 Fonction $C_N(k)$ . . . 145

A.2.4 Facteur de mérite et optimisation 146
A.3 Source de photons uniques annoncés 149

B Dossier administratif **151**
B.1 Curriculum Vitæ 151
B.1.1 Etat Civil 151
B.1.2 Titres Universitaires 151
B.1.3 Parcours 151
B.2 Enseignement, encadrement et autres activités 152
B.2.1 Activités d'enseignement 152
B.2.2 Encadrement de la Recherche 153
B.2.3 Autres activités liées à la recherche 155
B.3 Publications 159
B.3.1 Tableau récapitulatif 159
B.3.2 Articles 159
B.3.3 Communications 163

Bibliographie **167**

Avant-propos

L'objectif de ce document est de montrer ma capacité à diriger des recherches. J'y expose mes activités de recherche en tâchant de faire apparaître la cohérence de ces travaux, dont la clé de voûte est la notion de photon.

La succession de ces activités a été la suivante :

- J'ai effectué ma thèse intitulée « Luminescence, bruit et effets non linéaires dans les microcavités semi-conductrices » de septembre 1996 à juillet 2000, au Laboratoire Kastler Brossel (LKB) à Jussieu, dans le Groupe d'Optique Quantique, sous la direction d'Elisabeth Giacobino.
- Pendant l'année 2000-2001, je me suis consacré à l'étude de la photophysique de nanocristaux semi-conducteur à base de CdSe, dans le groupe d'Optique et Biologie du LKB à l'ENS. Cette recherche a été effectuée dans le cadre d'un poste d'ATER de l'Université Paris VI.
- Je suis ensuite parti un an aux Etats-Unis (septembre 2001 à août 2002). J'occupais un poste de « Post-Doctoral Associate » au Massachusetts Institute of Technology (MIT). Là-bas, je me suis intéressé à la production de paires de photons par amplification paramétrique.
- J'ai été nommé Maître de Conférences de l'Université Paris XI, rattaché à l'Institut d'Optique, en septembre 2002, puis titularisé en 2003. J'ai été promu au 4ème échelon en juillet 2007. Je bénéficie de la Prime d'Encadrement Doctoral et de Recherche depuis 2006. Je suis en délégation auprès du CNRS pour l'année en cours (sept. 2007 à août 2008).

  J'effectue mes activités de recherche au sein du groupe d'Optique Quantique dirigé par P. Grangier. Mes thèmes de recherche sont dans la lignée des activités de recherches que j'ai menées auparavant : je m'intéresse aux sources de lumières quantiques et à l'utilisation des aspects quantiques de l'interaction lumière-matière pour l'Information Quantique.

  Mes premières activités dans le groupe relevaient de la cryptographie quantique. J'ai ensuite travaillé sur des expériences de manipulation d'atomes uniques et leur application à l'optique quantique et à l'information quantique (sources de photons uniques, interférences à deux photons, transformation d'un atome unique en bit quantique). Je m'intéresse maintenant aux interfaces atome-champ, en commençant par la production d'impulsion de vide comprimé du champ avec des vapeurs atomiques. Cette nouvelle activité s'inscrit à long terme dans le cadre d'études visant à la réalisation de répéteurs quantiques pour les communications quantiques.

Ce manuscrit ne suit pas cet ordre chronologique. Après une introduction générale sur

l'optique quantique, je m'attache à décrire les aspects les plus marquants de mon activités, groupés par thèmes.

J'ai reporté en annexe quelques aspects techniques relatifs aux expériences que j'ai menées (annexe A). On trouvera, également en annexe, mon dossier administratif (annexe B) constitué d'un curriculum vitae, d'un résumé de mes activités d'enseignement, d'encadrement de la recherche et de mes autres activités liées à la recherche, ainsi que de la liste de mes publications.

Chapitre 1

Introduction

Bien que la notion de photon prenne ses racines dans les travaux du début du siècle dernier qui ont donné naissance à la mécanique quantique, les débuts de l'optique quantique sont bien plus tardifs. L'idée de Hanbury Brown et Twiss, en 1956, d'utiliser des interférences à deux photons pour mesurer le diamètre apparent des étoiles [1] va considérablement troubler les esprits[2] : comment deux photons provenant de deux sources distinctes peuvent-ils interférer ? La théorie de la cohérence quantique de la lumière et de la photodétection, à laquelle Glauber (Prix Nobel 2005) en 1963 et Mandel, Sudarshan et Wolf en 1964 apportent des contributions majeures [3, 4], répond à ce questionnement et donne des bases solides à l'optique quantique. Ces travaux permettent en particulier de bien comprendre l'observation, au moyen d'un interféromètre de Hanbury Brown et Twiss, du phénomène de groupement dans le flux lumineux émis par les sources thermiques [5]. Cela va contribuer, avec l'arrivée des lasers à la même période et l'amélioration constante des systèmes de détection fonctionnant en régime de comptage de photons, aux premières observations de la nature quantique de la lumière.

A la fin des années 60, des paires de photons sont obtenues par des cascades radiatives [6]. Elle permettront de réaliser les premiers tests des inégalités de Bell [7]. Par ailleurs, les lasers permettent, dès le début des années 60, l'observation d'effets non linéaires [8] qui sont mis à profit dans la décennie qui suit pour produire des photons jumeaux [9]. Toutes ces techniques de production de paires de photons conduisent, au milieu des années 80, à la réalisation des premières sources de photons uniques[10, 11].

Dans le même temps, l'utilisation des lasers et l'amélioration des détecteurs permettent la détection individuelle des photons dans la fluorescence d'atomes excités par laser. Cela conduit à l'observation d'effets purement quantiques tels que le dégroupement de photons [12]. Dans les années 80, avec les travaux de Brassard et Bennett, l'apparition des protocoles de cryptographie quantique [13] donne une motivation supplémentaire pour le développement de sources de photons uniques. Cette motivation sera encore renforcée avec la proposition en 2001 par Knill, Laflamme et Milburn d'un schéma de calcul quantique reposant sur l'optique linéaire [14]. Ce protocole utilise comme ressource centrale l'effet d'interférence à deux photons observé en 1987 par Hong, Ou et Mandel [15] (effet «HOM») entre photons uniques identiques.

Ainsi, sous la pression croissante du domaine émergent de l'information quantique, après la mise en évidence de dégroupement dans le fluorescence de différents émetteurs, de nombreux groupes de recherche se sont lancés dans le développement de sources de photons

uniques déclenchées avec un intérêt particulier pour les sources produisant des photons «limités par transformée de Fourier», c'est-à-dire susceptible de produire des effets d'interférence de type HOM avec un excellent contraste.

Les sources de paires de photons, que ce soient des cascades radiatives ou bien de la fluorescence paramétrique, ont connu le même surcroît d'intérêt à la suite des travaux de Bennett, Brassard *et al.* qui ont conduit à la téléportation quantique [16]. En effet, ces sources permettent de générer aisément les états intriqués qui sont au cœur du protocole de téléportation.

Plus largement, l'information quantique et ses protocoles de cryptographie, de téléportation et de calcul ont trouvé dans les sources quantiques de lumière un ensemble d'outils à très fort potentiel. Les sources de photons uniques déclenchées en font évidement partie, tout comme les sources de photons jumeaux, sur lesquelles reposent l'émission de photons annoncés ou la production de paires de photons intriqués en polarisation. Les sources quantiques de lumière ne cessent de trouver de nouvelles applications comme par exemple l'intrication conditionnelle d'émetteurs de photons uniques par la mesure conjointe des photons qu'elles émettent [17], l'augmentation d'intrication de faisceaux EPR [18] ou encore le stockage de photons uniques dans des vapeurs atomiques [19].

L'ensemble de mes activités de recherche s'inscrit dans ce mouvement. Mes travaux ont porté en grande partie sur les sources de photons uniques et les sources de paires de photons, ainsi que leurs applications à la cryptographie quantique, à la téléportation quantique et au calcul quantique. Mes travaux s'ouvrent maintenant sur la suite : variables continues, mémoires quantiques et téléportation d'états non classiques sont probablement les prochaines étapes.

Les trois chapitres qui suivent traitent des sources quantiques de lumière à quelques photons et l'application de ces sources aux trois grandes racines de l'information quantique qui sont la cryptographie quantique, la téléportation quantique et le calcul quantique. Vient ensuite un chapitre sur mon projet de recherche, qui a trait à la production d'états de la lumière pour l'information quantique en variables continues.

Chapitre 2

Sources de photons uniques et application à la cryptographie quantique

2.1 Introduction

Un état du champ lumineux ne contenant jamais plus d'un photon est difficile à produire. Contrairement à ce que l'on pourrait penser naïvement, il ne suffit pas d'atténuer une impulsion jusqu'à ce qu'elle contienne moins d'un photon en moyenne pour y parvenir. La caractéristique essentielle d'un photon unique est sans doute d'être insécable : un photon unique qui tombe sur une lame séparatrice ne peut *jamais* être détecté à la fois en transmission *et* en réflexion [20, 10]. En revanche, la probabilité qu'une impulsion atténuée se «coupe en deux» lorsqu'elle tombe sur une lame séparatrice n'est jamais nulle. En effet, une impulsion atténuée est poissonnienne, parce que les pertes ramènent toujours vers la statistique poissonnienne (voir annexe A.1.4). Ainsi, même si elle contient en moyenne bien moins de un photon, la probabilité P_2 d'avoir deux photons dans l'impulsion est approximativement égale à la moitié du carré de la probabilité P_1 d'en avoir un seul, soit $P_2 \simeq P_1^2/2$. Comme deux photons ont une chance sur deux d'être séparés, la probabilité de couper une impulsion atténuée en deux n'est jamais nulle et vaut $P_2/2 \simeq (P_1/2)^2$.

Historiquement, les premières sources de photons uniques sont des sources de photons *annoncés* qui utilisent la production de paires de photons jumeaux : un des photons de la paire est utilisé pour annoncer l'arrivée de l'autre (cf. annexe A.3). Ces photons jumeaux sont produits par fluorescence paramétrique, dont la première observation se confond avec l'origine des lasers [8], ou par cascade radiative, suite à la première observation d'une violation des inégalités de Bell par Clauser en 1972 avec ce type de dispositif [7]. Les sources de photons annoncés ont permis d'isoler pour la première fois des photons uniques en 1986 par Mandel *et al.* [11] et par Grangier *et al.* [10].

La quête d'une source de photon unique *déclenchée* (ou source de photons uniques «à la demande») prend forme en 1977, avec l'observation de dégroupement sur un jet dilué d'atomes de sodium excités par un laser à colorant [12]. La statistique d'émission restait poissonnienne à cause du mouvement des atomes. Il faudra attendre 1983 pour que soit observée une statistique sous-poissonnienne sur jet de sodium atténué [22]. En 1987, Walther

et al. améliore le procédé : l'émetteur, un ion, est immobilisé dans un piège de Paul et son mouvement est réduit par refroidissement laser [23]. L'idée de la source de photon unique est bien là : il «suffit» d'isoler un émetteur unique et de l'exciter de façon contrôlée. Mais ces expériences sont très difficiles. Plutôt que d'isoler un ion ou un atome, il apparaît rapidement plus facile d'isoler un objet beaucoup plus gros comme des molécules organiques dans des matrices cristallines [24, 25] ou du colorant dans des microcavités [26].

De Martini *et al.* est le premier à affirmer avoir réalisé une source déclenchée avec des molécules d'Oxazine 720 en microcavité [27]. En 1999, commence, avec les travaux de M. Orrit *et al.* [28] une longue série de réalisations de sources déclenchées (voir par exemple [29] pour une revue récente).

Pendant que la communauté des opticiens quantiques cherchait à observer un photon unique, Bennett et Brassard cherchaient à faire connaître leur protocole de cryptographie quantique dont l'élaboration avait commencé fin octobre 1979 et dont les racines se perdraient, selon Brassard, dans la fin des années soixante (voir la très distrayante et néanmoins très instructive référence [30]). Il leur faudra réaliser eux-même expérimentalement en 1992 leur protocole [31], péniblement publié en 1984 [13], pour finalement parvenir à attirer l'attention de la communauté scientifique [32]. Ce protocole, aujourd'hui célèbre et connu sous le nom de BB84, suppose, pour être inconditionnellement sûr, l'utilisation de photons uniques. Il constitue sans doute, avec d'autres développements de l'information quantique sur lesquels nous reviendrons au chapitre 4, la cause principale de l'essor considérable que connaît le domaine des sources de photons uniques déclenchées depuis 2000.

La voie des photons annoncés connaît elle aussi un développement très important ; ces sources présentent l'avantage de générer plus aisément des états intriqués et sont donc plus adaptées à la téléportation quantique, comme nous le verrons dans le prochain chapitre. En ce qui concerne la réalisation du protocole BB84 de cryptographie quantique avec des photons uniques, il est pratique de contrôler l'instant d'émission pour des questions de synchronisation. Cela rend les sources déclenchées mieux adaptées et c'est de ces sources dont il sera question dans ce chapitre.

Les principaux candidats explorés pour réaliser des sources déclenchées ont été, après les molécules qui présentaient des effets gênants de photo-blanchiment, différentes variétés d'atomes artificiels : boîtes quantiques uniques [33, 34], nanocristaux de CdSe colloïdaux [35, 36], centres colorés du diamant dans du massif [37, 38], puis sous forme de nanocristaux [39]. Des ions uniques piégés en cavité[40], des atomes uniques piégés en cavité[41, 42], des atomes uniques dans des pièges dipolaires [70][1] ou des ensembles atomiques [43] ont également été utilisés, mais il s'agit de dispositifs de grande complexité, peu adaptés à des applications telles que la cryptographie quantique.

Durant ces huit dernières années, je me suis intéressé au cas de nanocristaux colloïdaux de CdSe, puis aux nanocristaux de diamant à centres colorés et à l'utilisation de ces derniers pour la cryptographie quantique. Je me suis également intéressé à l'émission de photons uniques par des atomes neutres piégés uniques pour d'autres raisons (on reviendra dessus au chapitre 4). Je décris dans ce qui suit les différentes études menées sur ces émetteurs et leur transformation en sources de photons uniques. J'expliquerai, après une brève description de ce qu'est le protocole de cryptographie quantique BB84, l'application à la cryptographie quantique que nous avons fait de la source de photon uniques utilisant des nanocristaux de diamant.

[1] article reproduit en fin de chapitre, page 73.

2.2 Dégroupement et groupement de photons

2.2.1 Fonction de corrélation du second ordre

Nous nous intéressons dans cette partie aux phénomènes de groupement et dégroupement de photons. En effet, pour construire une source de photons uniques déclenchée, il «suffit» de disposer d'un émetteur qui présente un effet de dégroupement de photon total.

L'intérêt pour les phénomènes de groupement et dégroupement suit la formulation de la théorie de la cohérence quantique développée par Glauber dans les années soixante [3]. Ces effets sont, avec la fluorescence paramétrique, au centre des préoccupations de l'optique quantique depuis son origine. L'outil fondamental pour les étudier est l'interféromètre d'intensité introduit par Hanbury Brown et Twiss en 1956 dans le but de mesurer les diamètres des étoiles [1]. L'effet Hanbury Brown et Twiss, qui est une variété d'interférences à deux particules, n'est d'ailleurs pas étranger au développement de la théorie de la cohérence de Glauber.

On parle de groupement de photons lorsque dans un flux lumineux les photons ont tendance à se présenter par paquets ; le dégroupement correspond à la situation où les photons sont au contraire bien séparés les uns des autres. Lorsque l'on détecte un flux lumineux, le signal de photodétection est toujours accompagné d'un bruit que l'on peut attribuer à la distribution statistique d'arrivée des photons sur le détecteur. L'analyse de ce bruit doit donc permettre d'évaluer le groupement ou le dégroupement de photons.

La plupart des sources de lumière produisent des flux pour lesquels les fluctuations du signal de photodétection sont relativement bien décrites par une distribution poissonnienne de photons. C'est le cas des sources dominées par l'émission spontanée et composées d'un grand nombre d'émetteurs indépendants. De plus, les pertes sur un flux tendent à ramener sa statistique à la statistique de Poisson (cf. annexe A.1.4). Les lasers, qui sont dominés par l'émission stimulée sont généralement plus bruyants. Cela étant, la statistique du nombre de photons dans une cavité laser tend vers la statistique de Poisson lorsqu'ils fonctionnent très au-dessus du seuil et le coupleur de sortie qui présente généralement une transmission faible produit un effet identique à des pertes. Ainsi, il est difficile d'observer des fluctuations qui s'écartent notablement de la statistique de Poisson. La mesure directe du bruit sur un faisceau n'est donc pas bien adaptée à la mise en évidence des effets de groupements ou dégroupement.

En revanche, la mesure de la fonction d'autocorrélation de l'intensité, $\langle I(t)I(t+\tau)\rangle$ permet la mise en évidence de tels effets. De façon à s'affranchir des pertes, cette fonction est généralement normalisée, en régime stationnaire, par le carré de l'intensité moyenne :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(0)I(\tau)\rangle}{\langle I\rangle^2} \ . \tag{2.1}$$

Cette quantité est proportionnelle à la probabilité de détecter un photon à l'instant τ sachant que l'on a détecté un photon à $t = 0$ (voir Annexe A). Son comportement autour de $\tau = 0$ permet de définir le dégroupement : on parle de dégroupement de photons lorsque cette fonction présente un minimum local en zéro. Le dégroupement est dit total si $g^{(2)}(0) = 0$, autrement dit si dans un intervalle de temps suffisamment court on ne peut avoir plus d'un photon.

La mesure de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ a permis la mise en évidence dans les années soixante d'un effet de groupement de photons dans les sources thermiques [5] et une dizaine d'années

plus tard d'un effet de dégroupement de photons dans la fluorescence d'un faisceau dilué d'atomes [12]. L'origine du groupement est liée à la nature bosonique des photons : lorsque deux photons produits par une source thermique sont portés par des paquets d'ondes qui se recouvrent, la nécessité de symétriser l'état à deux photons est responsable d'un effet d'interférences constructives qui entraîne le groupement. Le dégroupement est obtenu en isolant un émetteur unique : lorsqu'un photon vient d'être émis, l'émetteur se retrouve dans son niveau fondamental et il faut un certain temps pour l'exciter à nouveau et émettre un autre photon.

La mesure de la fonction d'autocorrélation de l'intensité se fait généralement au moyen d'un interféromètre de Hanbury Brown et Twiss : la lumière à analyser est séparée en deux par une lame semi-réfléchissante et l'on compte le nombre de photo-détections simultanées de part et d'autre de la lame (cf. annexe A.1.5). Un photon unique ne peut se couper en deux sur une telle lame [20] et donc ne produit pas de coïncidence, contrairement au cas d'une impulsion de lumière «classique». Le dégroupement est donc la signature d'un état du champ pour lequel les photons arrivent un à un et donc indirectement de l'unicité de la source.

On trouvera rassemblées en annexe, §A.1, une description détaillée de la caractérisation du groupement et du dégroupement, avec une description des principales propriétés de la fonction d'autocorrélation du second ordre normalisée $g^{(2)}(\tau)$, une description de la technique de mesure avec un montage de type Hanbury Brown et Twiss, ainsi que des exemples caractéristiques de ce que l'on peut obtenir.

2.2.2 Isoler un émetteur unique

Afin d'observer une phénomène de groupement complet, il «suffit» d'isoler un émetteur unique et de le soumettre à une excitation continue pour laquelle il n'existe qu'un seul canal de désexcitation radiative. L'émetteur unique le plus simple auquel on puisse penser est un atome unique. Nous avons pu observer du dégroupement et même réaliser une source de photons uniques déclenchée avec un atome unique, mais cela conduit, comme nous le verrons, à un dispositif expérimental de grande complexité, inadapté à des applications comme la cryptographie quantique avec des photons uniques. C'est pourquoi de nombreux groupes de recherche se sont penchés sur l'utilisation de systèmes de taille plus importante, donc plus faciles à manipuler individuellement, et qui présentent une transition dipolaire permettant d'émettre des photons un à un. Je me suis intéressé à deux de ces systèmes : des nanocristaux de CdSe sous forme colloïdale et des centres colorés dans des nanocristaux de diamant. Dans les deux cas, ces objets sont déposés sur une lame de verre et on isole un émetteur unique optiquement, par microscopie confocale. Dans le cas d'un atome unique, les choses sont un peu plus compliquées, mais le principe reste le même : il s'agit de maintenir un atome unique au foyer d'un objectif de large ouverture numérique qui en collecte la fluorescence. J'expose dans ce qui suit les méthodes employées pour isoler un nanocristal unique de CdSe ou de diamant, puis celles employées pour isoler un atome de rubidium unique.

Nanocristaux de CdSe

Il s'agit de cristaux semi-conducteurs de forme sphérique d'une taille plus petite que le rayon de Bohr de l'excitons dans le même matériau massif (voir figure 2.1). Le confinement dans les trois directions de l'espace qui en résulte entraîne une modification notable de la densité d'état : contrairement à la plupart des autres systèmes à base de semi-conducteurs,

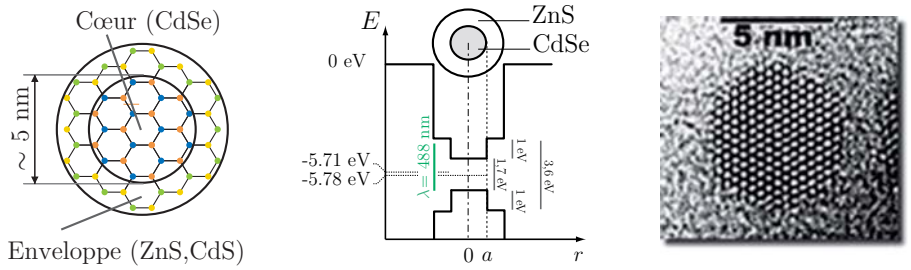


FIG. 2.1 – *A gauche : Structure des nanocristaux CdSe avec une coquille de ZnS. Au centre : Profil des potentiels électroniques de la bande de valence et de conduction dans un nanocristal. A droite : Image en microscopie électronique.*

cette densité d'état est totalement discrétisée. Cet aspect «atome artificiel» des nanocristaux a fait naître de nombreux espoirs quant à leur utilisation éventuelle comme source émettrice de photons uniques.

Pour le CdSe, le rayon de Bohr de l'exciton dans le massif a_0 est de 56Å. Les nanocristaux de CdSe ont un rayon a compris entre 10 et 30 Å. L'électron et le trou qui composent l'exciton sont donc confinés en-deçà de l'orbite de Bohr de l'exciton : c'est le régime de confinement fort dans lequel les effets de confinement quantique dominent l'interaction coulombienne entre porteurs, perturbative. Nous pensons que ce confinement est à l'origine d'effets Auger à plusieurs porteurs de charge qui interdisent la recombinaison radiative d'un éventuel bi-exciton (voir à ce propos notre article reproduit page 51) et garantissent ainsi l'émission de photons uniques.

Les nanocristaux de CdSe avec une coquille en ZnS que nous avons utilisés se présentent en solution, sous forme colloïdale, et sont obtenus par synthèse chimique. Leur diamètre est fixé par le processus de fabrication et détermine la longueur d'onde du maximum du pic d'émission. L'excitation se fait vers un quasi continuum du cristal, qui relaxe vers les niveaux excitoniques les plus bas pour émettre. C'est un cas typique d'émetteur *a priori* bien décrit par un système de deux niveaux sans cohérence. Dans notre cas, il s'agissait de nanocristaux de rayon $a \sim 18$Å, utilisable à température ambiante, correspondant à un maximum d'émission autour de 570 nm. L'excitation est possible dans toute la bande 350-600 nm, en particulier grâce aux raies à 488 ou à 514 nm d'un laser à Argon ionisé. Pour plus de détails sur ces nanocristaux et sur les expériences d'émission de photons uniques, on pourra consulter la thèse de Xavier Brokmann [47], qui a rejoint le groupe Optique et Biologie du LKB au moment où je terminais mon post-doctorat là-bas.

Pour les observer, on dépose à la tournette un peu de solution nanomolaire de nanocristaux diluées dans du butanol sur une lamelle de microscope. La solution est préalablement mélangée avec un polymère (PMMA) pour protéger le dépôt de l'oxydation et le fixer. On dispose alors d'une lame de verre sur laquelle la densité de nanocristaux est de l'ordre d'un par quelques microns carrés, ce qui permet de les observer individuellement en microscopie.

Centres N-V dans des nanocristaux de diamant

Je me suis intéressé aux centres N-V dans des nanocristaux de diamant à la suite des travaux pionniers d'Alexios Beveratos qui venait de terminer sa thèse sur le sujet [49] avec

une réalisation de source de photons uniques à la demande [58] et la première mise en œuvre du protocole BB84 de cryptographie quantique avec des photons uniques [59]. Je me suis contenté de reprendre, à mon arrivée à l'Institut d'Optique une expérience existante, avec pour objectif de transformer l'expérience de laboratoire en prototype de distribution de clé quantique. Je présente néanmoins dans ce manuscrit ces nanocristaux de diamant, les effets de groupement et dégroupement observés et la réalisation d'une source de photons uniques parce que d'une part j'ai utilisé ces émetteurs et d'autre part pour souligner la similitude avec les nanocristaux de CdSe.

Dans le diamant, l'appariement d'un carbone vacant (V) et d'un atome d'azote (N) forment un atome artificiel localisé dans la maille du cristal (cf. figure 2.2). A température ambiante, ils peuvent absorber et émettre sur une large bande spectrale dans le visible (centaine de nm), ce pourquoi on les appelle centres colorés (ou centres NV). Le niveau fondamental (triplet de spin, de symétrie ^3A, cf. [48]) et le niveau excité (de symétrie ^3E) sont, à cause des phonons, comparables à deux quasi-continuums vers le bas desquels relaxe le centre très rapidement de façon non radiative. Ainsi, les spectres d'absorption et d'émission sont symétriques par rapport à la raie à zéro phonon, située à 637nm. Notons enfin qu'un centre NV présente un état métastable (niveau ^1A) vers lequel il peut relaxer et rester piégé.

De façon à isoler plus facilement un émetteur unique, de la poudre de diamant constituée de cristaux sub-micrométriques est utilisée. Cette poudre est préalablement soumise à irradiation électronique pour créer en moyenne 1 centre N-V par grain de 30 nm. Après nettoyage et tri en taille par centrifugation pour sélectionner des cristaux d'environ 50 nm de diamètre, la poudre est diluée dans de l'isopropanol avec un polymère (PVP) pour éviter l'agrégation des cristaux.

Comme pour les nanocristaux de CdSe, le dépôt sur substrat se fait à la tournette. Ici encore, la densité de nanocristaux déposés est typiquement d'un pour quelques microns carrés. En revanche, pour augmenter l'efficacité de collection de la fluorescence, les nanocristaux de diamant ont été déposés sur un miroir plutôt que sur une lame de verre.

Observation d'un cristal unique

Que ce soit pour les nanocristaux de CdSe ou les nanocristaux de diamant, l'observation d'un cristal unique se fait au moyen d'un dispositif de microscopie confocale [50]. L'idée est de conjuguer la surface à observer avec un trou de filtrage. La surface est éclairée par une source d'excitation. Le trou détermine sur la surface un petit volume de collection de

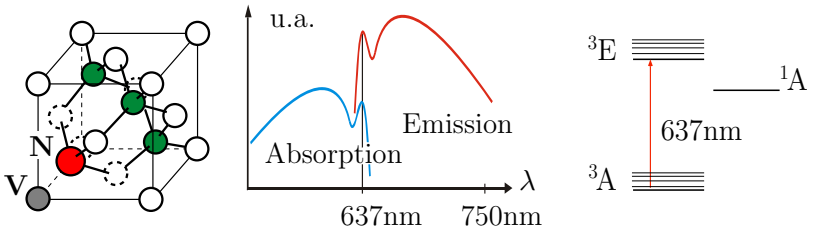


FIG. 2.2 – *Centre NV (Nitrogen-Vacancy) : défaut dans la maille du cristal de diamant. Spectre d'émission et absorption sont bien séparés ce qui permet une excitation au moyen d'un laser Argon.*

fluorescence : seule la lumière qui provient de ce volume est détectée. On obtient les images par balayage de l'échantillon, point par point, avec un très bon signal à bruit.

Dans le cas des nanocristaux de CdSe, le porte échantillon du microscope était monté sur un système de positionnement piézo-électrique piloté par ordinateur, comme représenté figure 2.3 au §2.2.3. La fluorescence était collectée par un objectif de grand ouverture ($ON = 1,4$) travaillant en immersion et était détectée par une photodiode à avalanche. Il était également possible d'utiliser sur ce montage un éclairage UV, permettant l'observation directe à l'oeil de l'ensemble de la préparation. La source d'excitation utilisée était la raie à 514 nm d'un laser à Argon ionisé continu. La fluorescence, centrée sur 570 nm, était séparée de l'excitation par un miroir dichroïque.

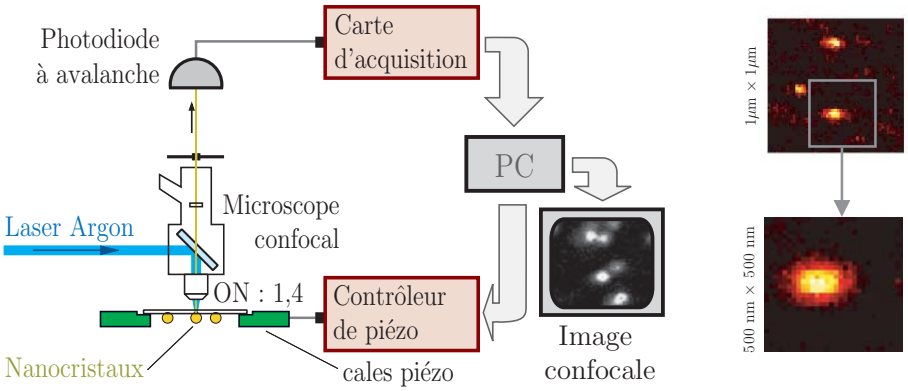


FIG. 2.3 – *Dispositif expérimental d'imagerie confocale par balayage pour les nanocristaux CdSe. A droite : images de nanocristaux obtenues.*

Le dispositif utilisé pour les nanocristaux de diamant est très similaire. Le système piézo-électrique contrôlait l'orientation du miroir dichroïque au lieu de contrôler la position de la préparation, ce qui revient au même. Le laser d'excitation pouvait être soit un laser à Argon ionisé émettant à 514 nm, soit un YAG doublé émettant à 532 nm. Le miroir dichroïque permettait d'effectuer la séparation entre les longueurs d'ondes inférieures et supérieures à 640 nm. L'objectif de microscope utilisé était un objectif métallographique de grande ouverture ($ON = 0,95$).

Après avoir effectué un scan de l'échantillon, on se positionne sur un maximum de fluorescence et l'on dispose alors du flux provenant d'un émetteur unique (ou d'un petit groupe d'émetteurs).

Atome de rubidium piégé unique

A l'Institut d'Optique, après m'être intéressé aux nanocristaux de diamants, j'ai rejoint l'équipe travaillant, au sein du groupe d'Optique Quantique, sur le piégeage d'atomes uniques. Cette équipe était alors composée d'un étudiant en thèse, Benoît Darquié, d'une post-doc, Silvia Bergamini et d'un chargé de recherche recruté en même temps que moi, Antoine Browaeys, avec lequel j'ai continué de travailler jusqu'à fin 2007. L'objectif, lorsque j'ai rejoint l'équipe, était de contribuer à la transformation d'un atome unique piégé en source de photons uniques.

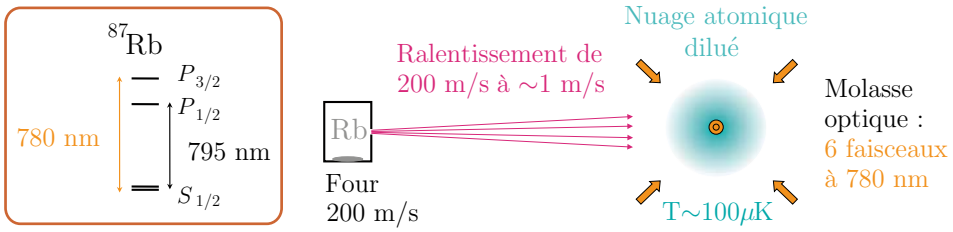


FIG. 2.4 – *Les atomes froids sont obtenus à partir d'un jet de rubidium freiné par un faisceau laser ralentisseur avant d'être piégés dans une molasse optique formée de trois paires de faisceaux contra-propageant dans les trois directions de l'espace.*

Le piégeage d'atomes uniques utilisé dans ces expériences repose sur un mécanisme de blocage collisionnel, observé dans le groupe quelques années plus tôt, permettant de piéger un unique atome froid dans un piège dipolaire extrêmement confinant.

Les atomes froids sont obtenus par ralentissement au moyen d'un laser d'un jet de rubidium, jusqu'à pouvoir les piéger dans une mélasse optique constituée de six faisceaux deux à deux contra-propageant dans les trois directions de l'espace, légèrement désaccordés de la raie D2 du ^{87}Rb, à 780,2 nm entre le fondamental $5^2S_{1/2}$ et l'état excité $5^2P_{3/2}$. On obtient ainsi un nuage atomique dilué, alimenté en continu, d'une température d'environ 100 μK (voir figure 2.4).

Pour capturer un atome unique dans ce nuage d'atome froids, un piège dipolaire optique extrêmement confinant est utilisé. Il est obtenu par focalisation à la limite de diffraction, au moyen d'un objectif de grande ouverture numérique, d'un faisceau laser désaccordé vers le rouge. Dans l'expérience originale [52], cet objectif, fabriqué spécialement à l'Institut d'Optique, est un assemblage complexe de neuf lentilles offrant une ouverture numérique de 0,7 ce qui correspond approximativement à un angle total au sommet de 90°. Il est corrigé des aberrations à 810 nm (longueur d'onde du piège dipolaire) et à 780 nm (longueur d'onde de fluorescence des atomes) pour un champ de quelques dizaines de microns et placé à l'intérieur de l'enceinte à vide. La taille du piège dipolaire ainsi obtenu est de l'ordre de 1 μm^3. Notons qu'une seconde expérience, conçue et construite récemment sous l'impulsion A. Browaeys, utilise à la place de cet objectif complexe et coûteux une lentille asphérique commerciale qui présente des caractéristiques similaires [53].

Le piège dipolaire constitue un potentiel conservatif d'une profondeur typique correspondant à 1 mK. Il n'est pas capable, en l'absence de mécanisme dissipatif, de capturer un atome, mais lorsque les faisceaux de la mélasse sont allumés, ils contribuent à exercer une friction qui fait perdre de l'énergie à un atome lors de son passage dans le piège, qui se trouve alors capturé. Par ailleurs, lorsqu'un atome se présente dans le piège alors que celui-ci est déjà chargé, le confinement élevé et les faisceaux de la mélasse produisent une collision assistée par la lumière qui tend à éjecter les atomes hors du piège. Lorsque le piège est suffisamment confinant, de la compétition entre collisions et chargement résulte un régime de blocage collisionnel qui interdit, pour certains valeurs du taux de chargement et de la profondeur du piège, d'avoir plus d'un atome dans le piège à la fois [51]. Dans ce régime, un atome unique est piégé pendant une durée typique de quelques centaines de millisecondes avant d'être perdu soit par chauffage, soit sous l'effet d'une collision si un second atome tente d'entrer dans le piège. C'est dans ce régime d'atome unique que nous travaillons.

L'entrée et la sortie d'un atome unique dans le piège n'est pas déterministe. Cependant, lorsqu'un atome entre dans le piège, il fluoresce sous l'action des faisceaux de la mélasse. Cette fluorescence, collectée par l'objectif qui sert à former le piège dipolaire, puis détectée au moyen d'une photodiode à avalanche, permet de détecter la présence ou l'absence d'un atome. La figure 2.5 montre le principe du piégeage d'un atome unique et un exemple de taux de comptage enregistré sur une photodiode à avalanche : on distingue très nettement deux niveaux de fluorescence correspondant à la présence ou l'absence de l'atome. Lorsque le signal est haut, on sait que l'on a isolé un atome unique.

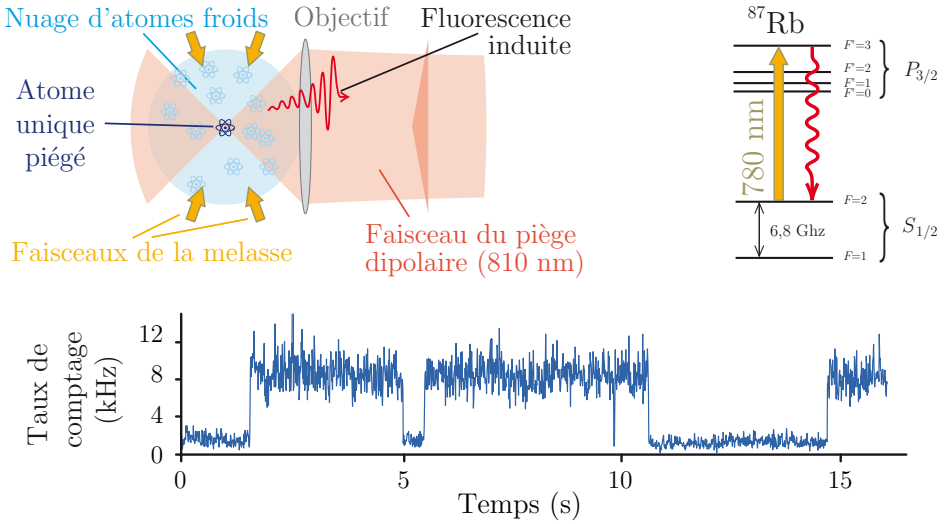


FIG. 2.5 – *Principe du piégeage d'un atome unique. Un faisceau laser désaccordé vers le rouge est focalisé avec un objectif de forte ouverture numérique pour former un piège dipolaire d'un volume de l'ordre du μm^3. Lorsqu'un atome est piégé, les faisceaux de la mélasse quasi-résonnants avec la transition $5^2S_{1/2}, F = 2 \rightarrow 5^2P_{3/2}, F' = 3$ induisent une émission de fluorescence. Cette fluorescence, détectée par une photodiode à avalanche, présente une alternance de périodes de taux de comptage hauts (atome présent) et bas (atome absent).*

2.2.3 Dégroupement de photons

La lumière de fluorescence des différents émetteurs que nous venons de décrire, lorsqu'elle est analysée au moyen d'un montage de type Hanbury Brown et Twiss de façon à mesurer la fonction de corrélation du second ordre de l'intensité $g^{(2)}(\tau)$, s'avère présenter un dégroupement quasiment total.

Dans les trois cas, nanocristaux de CdSe, centres colorés dans le diamant ou atome piégé unique, le dispositif de mesure de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ est similaire. L'émetteur isolé est soumis à une excitation continue au moyen d'un laser et produit ainsi de la lumière de fluorescence. Cette fluorescence est collectée par un objectif d'ouverture aussi grande que possible : un objectif de microscope dans le cas des nanocristaux de CdSe ou des centres N-V du diamant ; l'objectif utilisé pour former le piège dipolaire dans le cas d'atomes uniques de rubidium. Elle est ensuite séparée en deux au moyen d'une lame semi-réfléchissante et détectée par

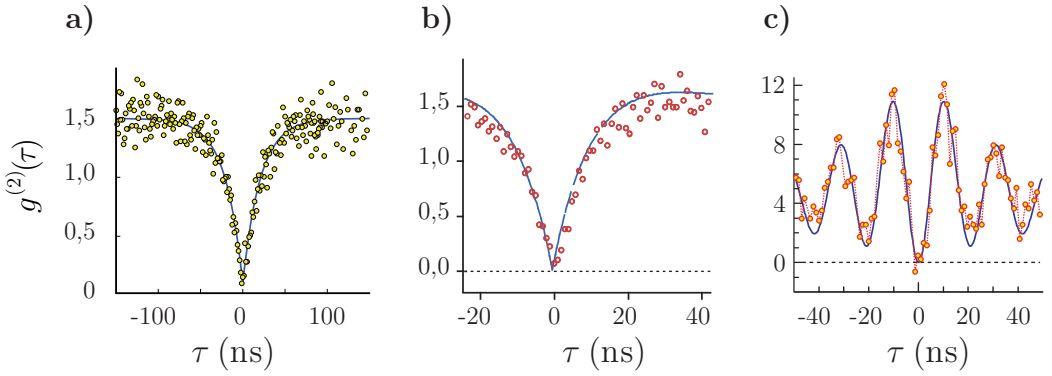


FIG. 2.6 – *Dégroupement obtenu aux temps courts. Une correction du fond est effectuée dans les deux derniers cas. Les courbes continues sont obtenues par un ajustement aux données d'un modèle à deux niveaux sans cohérence dans les deux premiers cas et d'un système quantique à deux niveaux dans le second cas (cf. annexe A.1.6 pour plus de détails).* ***a)*** *Nanocristaux CdSe.* ***b)*** *Centre N-V dans un cristal de diamant.* ***c)*** *Atome piégé unique ; les oscillations correspondent à l'oscillation de Rabi.*

deux photodiodes à avalanche placées en regard des deux voies de sortie de la lame. Un dispositif électronique de type «start-stop» enregistre l'histogramme des délais entre paires de photodétections sur les deux photodiodes. On en tire une mesure de la fonction $g^{(2)}(\tau)$. Une description de cette méthode de mesure est détaillée en annexe A.1.5.

La figure 2.6 montre des exemples de résultats de mesure de $g^{(2)}(\tau)$ pour chacun des trois émetteurs. Après une éventuelle correction du fond (coïncidences dues à de la lumière parasite et aux coups d'obscurité des photodiodes à avalanche) les courbes obtenues font toutes apparaître un dégroupement complet. Comme la fonction $g^{(2)}(\tau)$ est proportionnelle à la probabilité d'émettre un photon à τ sachant qu'un photon a été émis à $t = 0$ (cf. annexe A.1.1), le fait qu'elle soit nulle en zéro s'interprète comme l'impossibilité d'émettre deux photons simultanément. Le temps de montée du signal à partir du délai nul correspond à la durée d'un cycle excitation-émission ; il est dans les trois cas de l'ordre de la vingtaine de nanosecondes.

Les nanocristaux de CdSe et les centres colorés du diamant sont relativement bien décrits par un modèle à deux niveaux effectifs sans cohérence. Le $g^{(2)}(\tau)$ observé tend vers une constante avec un amortissement exponentiel et le temps de montée observé correspond à la somme du taux d'émission spontanée et du taux de pompage (qui dépend de l'intensité d'excitation). Si l'on trace l'inverse de ce temps en fonction de l'intensité d'excitation, on obtient une droite dont la valeur à intensité nulle tend vers la taux d'émission spontanée et dont la pente donne la section efficace d'excitation.

L'atome unique se comporte en première approximation comme un système quantique à deux niveaux dont les cohérences ne peuvent pas être négligées. La fonction $g^{(2)}(\tau)$ est proportionnelle à la probabilité d'émettre un photon à τ lorsque l'on a émis un photon à $t = 0$ et la probabilité d'émission est proportionnelle à la population de l'état excité, ainsi le $g^{(2)}(\tau)$ est proportionnel à la population dans l'état excité à l'instant τ sachant qu'à $t = 0$ l'atome est dans son état fondamental. Les oscillations que l'on observe sur le $g^{(2)}(\tau)$ correspondent donc à l'oscillation de Rabi entre les deux niveaux sous l'effet du laser

d'excitation. Ces oscillations s'amortissent à cause des émissions spontanées qui induisent des sauts de phase et qui en moyenne font disparaître les oscillations ; l'atome n'en continue pas moins d'osciller en permanence à la fréquence de Rabi. On trouvera dans l'annexe A.1.6 plus de détails.

2.2.4 Effets de groupement

On note, sur les trois courbes de la figure 2.6, en plus de l'effet de dégroupement, un effet de groupement qui se manifeste clairement aux temps courts par le fait que la fonction $g^{(2)}(\tau)$ tend, lorsque τ augmente, vers des valeurs notablement supérieures à l'unité. L'origine physique de cet effet est naturellement différent pour chacun des trois émetteurs, cependant il traduit à chaque fois un phénomène d'intermittence dans la fluorescence. L'élucidation de l'origine de ces effets de groupement est cruciale pour optimiser la fluorescence de ces émetteurs en vue de les transformer en source de photons uniques déclenchée. Nous passons en revue l'origine de cet effet pour chacune des trois sources considérées, en nous attardant d'avantage sur le cas des nanocristaux de CdSe, qui présente un intérêt particulier.

Nanocristaux de CdSe : Clignotement, groupement et non ergodicité

Dans le cas des nanocristaux de CdSe, nous avons sciemment cherché à mesurer la fonction $g^{(2)}(\tau)$ sur des échelles de temps allant de la fraction de nanoseconde jusqu'à la centaine de secondes pour étudier un phénomène de clignotement dans la fluorescence déjà identifié. Nous avons pour cela mis en place un double système d'acquisition électronique composé d'un système de type «start-stop», (Ortec 9308) permettant la mesure du $g^{(2)}(\tau)$ aux temps courts (0,1 ns à 10 μs) et d'un corrélateur électronique (Malverne 7932) permettant la mesure aux temps long ($> \mu$s). En outre, une carte d'acquisition permettait l'enregistrement du taux de photodétection en temps réel avec une résolution de l'ordre de la milliseconde.

Les fonctions $g^{(2)}(\tau)$ obtenues présentent un dégroupement complet sur la première centaine de nanosecondes. De la fraction de microseconde jusqu'à des dizaines de millisecondes, la fonction de corrélation présente un plateau : les photons sont émis un à un, mais sur des échelles de temps supérieures à la centaine de nanosecondes, le flux semble distribué aléatoirement dans le temps comme dans le cas d'une statistique poissonnienne. A des échelles de temps plus grandes, jusqu'à la centaine de secondes, qui correspond à la durée des mesures, on note une décroissance brutale vers 1, ce qui indique un effet de groupement. On trouvera un exemple dans la figure 2 de l'article publié dans *Optics Letters* reproduit un peu plus loin, page 43).

Ces courbes, même si elles indiquent bien un effet de dégroupement, ne font apparaître aucun temps caractéristique. Une analyse plus approfondie fait apparaître que si l'on mesure la fonction $g^{(2)}(\tau)$ pour un même nanocristal sur des durées de plus en plus longues, la fonction d'autocorrélation ne converge pas : on observe toujours une décroissance à une échelle de temps de l'ordre de la durée de la mesure et la hauteur du plateau évolue de façon aléatoire avec la durée de la mesure. Cela est illustré dans l'article reproduit page 43, figure 3.b.

Si l'on observe les enregistrements du taux de photodétection au cours du temps (voir figure 2.7), on observe bien un clignotement qui correspond à l'effet de groupement observé sur la fonction de corrélation. On extrait de ces enregistrements la suite des durées $\tau_{off}^{(i)}$ (resp. $\tau_{on}^{(i)}$) des périodes sombres (resp. brillantes) pendant lesquelles un nanocristal est éteint (resp.

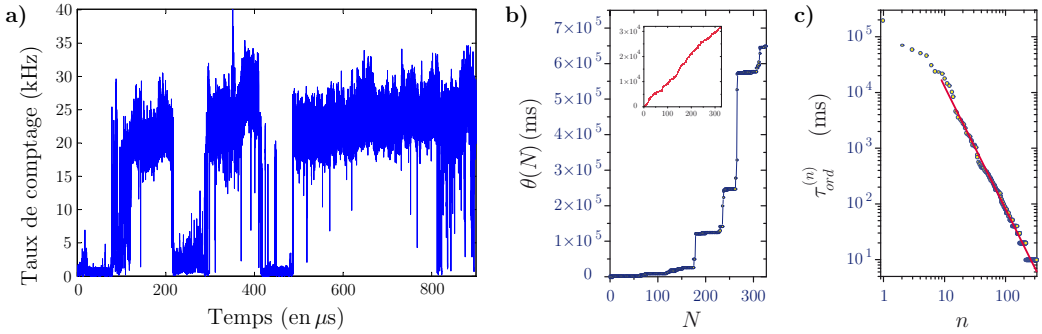


FIG. 2.7 – **a)** *Taux de fluorescence d'un nanocristal unique en fonction du temps.* **b)** $\theta(N) = \sum_{i=1}^{N} \tau_{on}^{(i)}$ *en fonction de* N *; la figure en encart est une simulation pour le même nombre d'événements dans le cas d'une loi étroite avec* $\langle\tau\rangle = 100ms$. **c)** *Suites des durées brillantes ordonnées* $\tau_{ord}^{(n)}$ *en fonction de leur rang* n*. Les données s'alignent sur une droite de pente* $-1/\mu_{on}$ *avec* $\mu_{on} = 0.43$.

allumé). On en déduit les densités de probabilité associées aux durées des périodes sombres et des périodes brillantes. On obtient des lois dont le comportement est en $p(\tau) = (\tau_0/\tau)^{\mu}$ avec $\mu < 1$, de l'ordre de $\simeq 0,5$. La densité de probabilité décroît si lentement que la valeur moyenne diverge, on parle dans ce cas de «lois larges» ou lois «anormales» ; ce type de processus aléatoire est connu sous le nom de vols de Lévy.

Cela a de multiples conséquences. Premièrement, une expérience sera toujours dominée par un très petit nombre d'événements, souvent un seul, de même durée que l'expérience. Deuxièmement, la durée des périodes brillantes ou sombres n'a pas de valeur moyenne. Troisièmement, ce type de processus est intrinsèquement non ergodique si bien que la moyenne temporelle de différentes réalisations ne converge pas. Cela explique les résultats surprenant obtenus lors des mesures de $g^{(2)}(\tau)$ car il s'agit en fait de mesures obtenues par une moyenne temporelle. Notons qu'il est cependant possible de déduire de ces mesures sur un émetteur donné une mesure du $g_{on}^{(2)}(\tau)$ égale à ce que l'on aurait obtenu par une moyenne d'ensemble pour un émetteur sans clignotement, dans la limite des temps court devant la durée de mesure. Il suffit pour cela, lorsque l'on normalise l'histogramme des coïncidences comme expliqué dans au §A.1.5 en annexe, de remplacer la durée d'intégration T_S par le produit $\theta_{on}T_S$, où θ_{on} est la fraction de la durée totale de la mesure pendant laquelle le nanocristal est dans son état brillant (voir à ce sujet la thèse de X. Brokmann [47], §6.4).

Pour mettre en évidence le comportement anormal de ces lois de probabilité, on a recours à des outils spécifiques[54, 55]. On peut tracer pour les suites $\tau^{(i)}$ de durées des périodes sombres ou brillantes des quantités dont le comportement est très différent pour des lois larges et pour des lois étroites. Pour une loi large, le comportement moyen de la quantité $\theta(N) = \sum_{i=1}^{N} \tau^{(i)}$ varie en $N^{1\mu}$ alors que pour une loi étroite on attend $\langle\tau\rangle N$. De plus, pour une réalisation donnée d'une suite $\tau^{(i)}$, la quantité $\theta(N)$ présente des sauts marqués dans le cas d'une loi large, mais pas dans le cas d'une loi étroite. On peut également ordonner les N premiers temps $\tau^{(i)}$ en ordre décroissant pour former une nouvelle suite $\tau_{ord}^{(n)}$. La valeur la plus probable de $\tau_{ord}^{(n)}$ en fonction de n varie comme $(N/n)^{1/\mu}$ alors que l'on attend une variation en $\log(N/n)$ pour une loi étroite. Nous donnons un exemple de ces deux courbes figure 2.7. D'autres analyses relatives à la non-ergodicité et aux effets de vieillissement statistique

qui découlent de ces lois larges sont présentées dans un article publié dans *Physical Review Letters* reproduit à la fin de ce chapitre, page 47.

L'étude détaillée du clignotement et du dégroupement a permis de tester diverses hypothèses relatives à la photophysique des nanocristaux. Il s'est avéré que le dégroupement est lié à des processus Auger qui interdisent la recombinaison radiative de deux excitons (voir l'article publié dans *New Journal of Physics* reproduit plus loin, page 51). La nature anormale des lois de probabilité qui régissent le clignotement a permis de l'attribuer à l'existence de molécules de ligand à l'extérieur de la coquille des nanocristaux qui constituent des pièges à électrons susceptibles de reconfigurations dynamiques (voir à ce sujet la thèse de Xavier Brokmann [47]). Il est apparu récemment qu'il était possible de réduire notablement le clignotement en agissant par voie chimique sur les ligands qui entourent les nanocristaux [56].

Centres NV : Etat métastable

Les centres colorés du diamants présentent eux aussi un effet de groupement comme on peut le voir figure 2.6.b) : au-delà de la zone dégroupée, qui correspond typiquement aux 20 premières nanosecondes, la fonction $g^{(2)}(\tau)$ prend des valeurs nettement supérieures à l'unité. Cet effet de groupement à temps courts est d'autant plus important que la puissance d'excitation est importante. Il a pu être attribué à l'existence d'un niveau métastable dans lequel le centre NV tombe et cesse d'émettre, ce qui provoque un clignotement. Alexios Beveratos a montré pendant sa thèse [49] qu'un modèle sans cohérences à trois niveaux, qui inclut ce niveau métastable, permet de reproduire les données expérimentales à toutes les puissances d'excitation (voir figure 2.8).

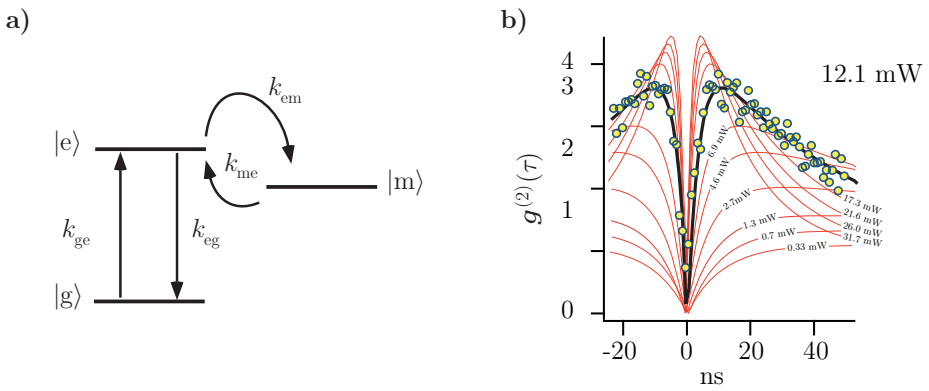


FIG. 2.8 – ***a)*** *Modèle à 3 niveaux sans cohérence. La transition radiative est entre le niveau excité* e *et le niveau fondamental* g*, le troisième niveau,* m*, est le niveau métastable responsable du groupement. Les données expérimentales conduisent à* $k_{em} \simeq 15 k_{eg}$ *et* $1/k_{me} \simeq 430$ *ns.* ***b)*** *Réseau de courbes de* $g^{(2)}(\tau)$ *pour un même centre NV unique excité à différentes puissances. Ces courbes sont obtenues par le modèle à 3 niveaux ajusté pour reproduire les données à toutes puissances. Un jeu de données expérimentales est indiquées à titre d'illustration.*

Groupement dans la fluorescence d'un atome unique

C'est sur la fonction de corrélation de la fluorescence de l'atome unique que l'effet de groupement est le plus important. On note en effet un double effet de groupement qui correspond à un effet de dépompage à l'échelle d'environ 200 ns et un effet de clignotement parce que les atomes entrent et sortent du piège avec des temps caractéristiques de l'ordre de la centaine de ms.

La figure 2.9 correspond à un $g^{(2)}(\tau)$ mesuré pour un désaccord $\delta \simeq 2,6\Gamma$ par rapport à la résonance. Le rapport entre la durée moyenne de piégeage T_{on} et la durée d'attente avant de piéger un nouvel atome T_{off}, lisible directement sur le signal de fluorescence résolu en temps, était de l'ordre de 2 (la probabilité d'avoir un atome piégé à un instant quelconque était de l'ordre de 1/3) avec $T_{on} \sim 100$ms.

Les lasers de la mélasse optique sont typiquement à quelques Γ de la transition $(5^2S_{1/2}, F = 2) \rightarrow (5^2P_{3/2}, F' = 3)$. Lorsque l'atome tombe dans $(5^2S_{1/2}, F = 1)$, il ne fluoresce plus jusqu'à ce qu'il soit repompé, ce qui prend un temps t_{off} dans la gamme de 300 à 500 ns. La durée de fluorescence t_{on} jusqu'au dépompage suivant est de l'ordre de 1 à 2 μs.

On peut ajuster à la fonction $g^{(2)}(\tau)$ mesurée à l'échelle de la μs une fonction de la forme :

$$g^{(2)}(\tau) = \left(1 + \frac{T_{off}}{T_{on}}\right)\left(1 + \frac{t_{off}}{t_{on}} \mathrm{e}^{-(1/t_{off}+1/t_{on})|\tau|}\right) f_{\delta,\Omega}(\tau) \ ,$$

où $f_{\delta,\Omega}(\tau)$ est l'équivalent de l'expression (A.21) donnée dans l'annexe A.1.6 lorsque l'on n'est plus forcément à résonance. Cela correspond à la prise en compte des deux mécanismes de clignotement en utilisant l'expression (A.24) de l'annexe A.1.7, pour des valeurs de τ petites devant la durée de piégeage de l'atome unique. Les valeurs extraites de l'ajustement pour la courbe présentée figure 2.9 correspondent à $T_{off}/T_{on} = 1,9$, $t_{off} = 520$ ns et $t_{on} = 1,5\mu$s [60].

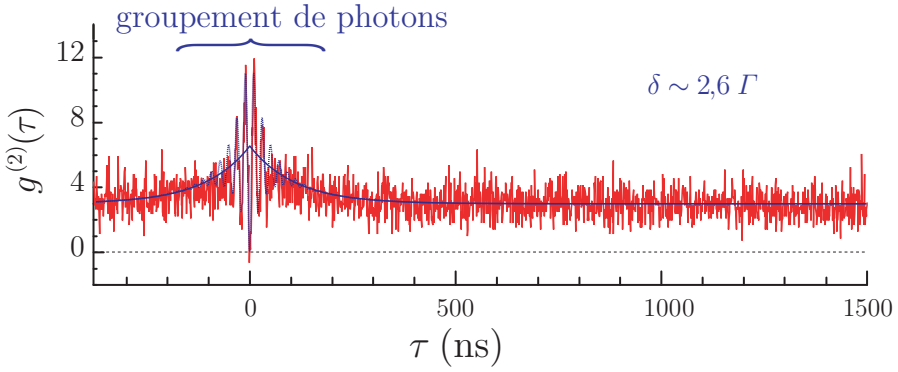


FIG. 2.9 – *On observe, en plus du dégroupement un double effet de groupement : une première décroissance du $g^{(2)}(\tau)$ est visible à l'échelle d'environ 200ns, une seconde, non visible sur la courbe, fait passer la valeur du $g^{(2)}(\tau)$ d'environ 3 à l'échelle de la μs jusqu'à 1 à l'échelle de la seconde.*

2.3 Sources de photons uniques déclenchées

2.3.1 Principe

Le principe de la source déclenchée est le suivant : on porte un émetteur unique dans son état excité au moyen, par exemple, d'une impulsion laser de durée τ_p courte devant la durée de vie radiative τ_r de l'état excité, avec un taux de répétition tel que l'intervalle T entre deux excitations successives soit grand devant τ_r de façon à être certain que l'émetteur est bien retourné à son état fondamental avant de l'exciter à nouveau. La fluorescence de l'émetteur est collectée avec une optique de grande ouverture (cf. figure 2.10). Il faut pour cela avoir sélectionné un émetteur pour lequel on aura pu observer un effet de dégroupement complet, ce qui signifie deux choses : d'une part l'émetteur est unique, d'autre part, on est capable d'exciter une unique transition radiative.

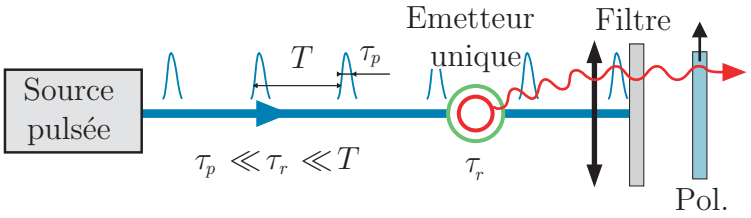


FIG. 2.10 – *Principe d'une source de photon unique déclenchée reposant sur l'excitation optique d'un unique émetteur. L'émetteur est excité en régime impulsionnel avec une période T grande devant la durée τ_r d'un cycle excitation-émission et avec des impulsions de durée τ_p courte devant τ_r. Il faut pouvoir séparer spectralement ou spatialement la fluorescence de l'émetteur unique et les impulsions d'excitation. Pour la cryptographie quantique avec des photons uniques, un polariseur permet de ne sélectionner que les photons correctement polarisés.*

L'essentiel de la difficulté pour obtenir le dégroupement total est, on l'a vu, d'isoler un émetteur unique. Pour construire une source de photons uniques utilisable en pratique à partir d'un émetteur présentant un dégroupement total, plusieurs conditions supplémentaires doivent être remplies. Un certain nombre de ces conditions concernent l'émetteur, mais des contraintes importantes portent sur le dispositif d'excitation.

Contraintes sur l'émetteur

La fluorescence de l'émetteur doit être stable : certains émetteurs comme les molécules de colorant présentent un effet de photoblanchiment très handicapant. L'environnement de l'émetteur doit également être aussi peu bruyant que possible : lors des mesures de dégroupement, on peut corriger le signal du bruit de fond pour évaluer la qualité de l'émetteur, mais pour une utilisation pratique, le fond est bel et bien présent et la mesure de la qualité de l'émetteur doit se faire sans le corriger. Par ailleurs, l'émetteur doit avoir une efficacité d'émission aussi élevée que possible : les canaux de désexcitation non radiatifs, les processus de clignotement, le piégeage dans des états métastables ou tout autre processus susceptible de produire du groupement sont de ce point de vue néfastes.

Si l'on cherche à construire une source de photons uniques destinée à des applications autres que des expériences de laboratoire, on cherchera à éviter les systèmes cryogéniques, les dispositifs nécessitant des vides poussés et les systèmes lasers complexes, ce qui exclut une grande majorité d'émetteurs à boîtes quantiques semi-conductrices, qui requièrent de basse températures, ainsi que tous les dispositifs à base d'atomes ou d'ions piégés qui sont littéralement des usines à gaz.

Contraintes sur le laser d'excitation

Bien que des systèmes d'excitation par voie électrique soient à l'étude, le plus simple aujourd'hui reste l'excitation lumineuse au moyen d'un laser. La longueur d'onde doit être dans le spectre d'absorption de l'émetteur et si possible hors du spectre d'émission. On cherche à avoir des impulsions aussi courtes que possible de façon à éviter toute double émission de photons, sans toutefois que leur spectre ne devienne trop large et soit susceptible d'exciter d'autres niveaux d'énergie que celui visé. Le taux de répétition doit être aussi élevé que possible en respectant comme contrainte que le délai T entre deux impulsions successives laisse le temps à l'émetteur de retomber de manière presque certaine dans sont état fondamental. En pratique on choisit $T \gtrsim 6/\Gamma$.

Pour une durée d'impulsion donnée, il existe, pour un émetteur dont les cohérences sont négligeables, une puissance optimale, pas trop élevée pour minimiser la probabilité de double excitation et pas trop faible pour maximiser la probabilité d'excitation (voir §A.2.4 en annexe). Pour un émetteur quantique à deux niveaux, l'impulsion d'intensité minimale qui donne la plus grande probabilité d'excitation correspond à une demi oscillation de Rabi ; c'est l'impulsion π. Pour des impulsions très courtes, même avec une importante focalisation, il est possible que cela conduise à des contraintes difficiles à tenir sur l'intensité. La qualité de l'optimum peut dépendre aussi de la durée des impulsions, ce qui conduit en général à un jeu de paramètres concentrés sur une plage étroite de valeurs.

Ces contraintes sont difficiles à satisfaire simultanément et peuvent conduire, comme ça a été le cas pour les centres N-V dans des nanocristaux de diamant et pour les atomes uniques piégés, au développement de sources laser spécifiques.

Caractérisation d'une source de photons uniques

La caractérisation des sources déclenchées se fait, comme pour la caractérisation du dégroupement, au moyen de mesures de l'histogramme des coïncidences avec un montage de type Hanbury Brown et Twiss. Evidemment, à cause de la nature impulsionnelle de l'excitation, le résultat obtenu est une série de pics séparés par la période d'excitation. Le dégroupement observé en régime continu se traduit par la disparition du pic à délai nul. L'annexe A.2 précise la forme de l'histogramme des coïncidences, introduit l'histogramme normalisé $C_N(k)$ des aires des pics, dont la valeur pour $k = 0$ est une mesure de la qualité de la source, et définit le facteur de mérite Ξ d'une source destinée à la cryptographie quantique.

2.3.2 Réalisation de sources déclenchées avec des nanocristaux

Les nanocristaux CdSe ou de diamant sont probablement les deux émetteurs qui remplissent le mieux les contraintes relatives à l'émetteur pour la construction d'une source déclenchée destinée à la cryptographie quantique. Leurs caractéristiques sont très similaires,

avec des temps caractéristiques pour le dégroupement du même ordre (vingtaine de nanoseconde) une bande d'absorption assez large dans le visible autour de 500 nm, une émission bien séparée spectralement (plus étroite pour les nanocristaux de CdSe) et des mécanismes de relaxation non radiatifs rapides qui permettent de bien décrire ces émetteurs par des modèles à équations de taux, sans cohérence. La méthode pour isoler un émetteur unique est dans les deux cas la même : on dépose à la tournette des nanocristaux dilués dans un solvant mélangé à un polymère sur un substrat qui est ensuite observé en microscopie confocale. Dans les deux cas, les effets de clignotement ne dégradent pas de manière inconsidérée la qualité de la source de photons uniques réalisée et n'ont pas d'effet notable sur la photostabilité à long terme, qui s'avère très bonne.

Emissions de photons uniques des nanocristaux CdSe

Les travaux que j'ai mené au Laboratoire Kastler Brossel entre l'été 2000 et septembre 2002 sur les nanocristaux de CdSe ont débouché sur la réalisation d'une source de photon unique. Le dégroupement mis en évidence permet, par passage au régime d'excitation impulsionnnel de transformer un nanocristal unique en source de photon déclenchée fonctionnant à température ambiante et présentant d'excellentes performances. Pour mémoire, je reproduis ci-après, page 51, l'article publié dans le *New Journal of Physics* en 2004 qui rend compte de ces résultats. Je ne m'y attarde pas dans la mesure où il s'agit essentiellement de conséquences de mes travaux et non de mes travaux eux-mêmes.

Notons tout de même que cette source présente une efficacité de collection particulièrement élevée, puisque 12,5% des photons émis sont collectés d'après [57], soit plus de 6% après polarisation. Le taux moyen d'émission par impulsion, bien que limité par le clignotement, est de l'ordre de 50%. Le dégroupement observé en régime impulsionnel est caractérisé par une valeur de $C_N(O) \lesssim 5\%$, ce qui donne finalement un facteur de mérite de $\Xi \simeq 0,6$ à comparer à la valeur $\Xi_{att} \simeq 0,11$ que donnerait une source d'impulsions atténuées produisant le même nombre d'impulsions à deux photons (la notion de facteur de mérite est définie dans l'annexe, §A.2.4).

Emissions de photons uniques avec un centre N-V unique

Bien que je n'ai pas participé moi-même au développement du dispositif d'émission de photons uniques avec des nanocristaux de diamants à centres N-V, j'ai utilisée cette source pour des expériences de distribution quantique de clé secrète avec des photons uniques. Aussi, j'en donne les principales caractéristiques. La construction de cette source de photons uniques [58] et sa première utilisation pour la cryptographie quantique [59] ont étés réalisés par Alexios Beveratos pendant sa thèse [49] dans le groupe d'Optique Quantique, à l'Institut d'Optique, juste avant mon arrivée.

Le dispositif expérimental est le même que celui utilisé pour les études de dégroupement. Le nanocristal utilisé est l'un des nanocristaux déposés sur un miroir pour augmenter le taux de collection de photons uniques. Il est choisi en effectuant une recherche d'émetteurs qui semblent uniques en imagerie confocale, puis en évaluant sa qualité par une mesure de dégroupement. Un fois l'émetteur identifié, il est longuement irradié par le laser d'excitation impulsionnel à puissance maximum pour photo-blanchir la surface de l'échantillon au voisinage du nanocristal. Cela permet de réduire considérablement la fluorescence de fond.

Laser d'excitation

Pour l'émission de photons uniques, l'émetteur est excité au moyen d'une chaîne laser spécialement développé pour cette application. La durée de vie radiative des centre N-V dans des nanocristaux obtenue grâce aux mesures de dégroupement est de 20 à 25 ns, ce qui impose une source d'impulsions nanosecondes, avec une période de répétition de l'ordre de 150 à 200 ns. La longueur d'onde, imposée par la plage spectrale d'absorption des centres N-V à température ambiante, doit être située autour de 560 nm ± 50 nm. L'intensité de saturation des centres N-V impose des puissances crêtes de l'ordre d'une centaine de mW soit, avec des impulsions nanosecondes, une fraction de nanojoule par impulsion. Une telle source est réalisée en doublant après amplification dans un amplificateur à fibre ytterbium des impulsions produites par un laser Nd :Yag continu couplé à modulateur intégré LiNbO3. Le dispositif produit ainsi des impulsions nanojoules à 532 nm, d'une durée de 0,8 ns avec un taux de répétition de 5,6 MHz. Le schéma de principe de cette chaîne laser est identique à celui de la chaîne laser utilisée pour exciter un atome unique, représentée figure 2.13, page 31, à ceci près que les longueurs d'ondes de fonctionnement sont différentes : dans la chaîne laser utilisée pour les atomes le laser continu est une diode télécom à 1560 nm et l'amplification se fait dans un amplificateur à fibre dopée erbium.

Caractérisation de la source

La figure 2.11 représente de l'histogramme des coïncidences obtenu en régime impulsionnel au moyen du même dispositif de type Hanbury Brown et Twiss utilisé pour l'étude du dégroupement (voir §A.2). L'absence de pic à délai nul montre clairement que deux photons ne peuvent être émis simultanément. Quantitativement, il faut comparer l'aire résiduelle de ce pic à l'aire que l'on aurait obtenue avec une source d'impulsions atténuée dont le nombre moyen de photons par impulsion, qui suit une statistique de Poisson, serait le même que celui de la source. Cela revient à déterminer $C_N(0)$, l'aire du pic à délai nul normalisée par l'aire d'un pic à très grand délai (cf. annexe §A.2.3). On tire de l'histogramme la valeur $C_N(0) = 0,07$, ce qui signifie que la source utilisée produit jusqu'à 14 fois moins de paires de photons par impulsion qu'une source atténuée.

Cette source fonctionne de façon très stable à température ambiante : le même cristal peu être utilisé une semaine entière sans difficulté particulière. Le nombre de photons uniques émis atteint environ 240 000 photons par seconde, ce qui correspond à une efficacité de

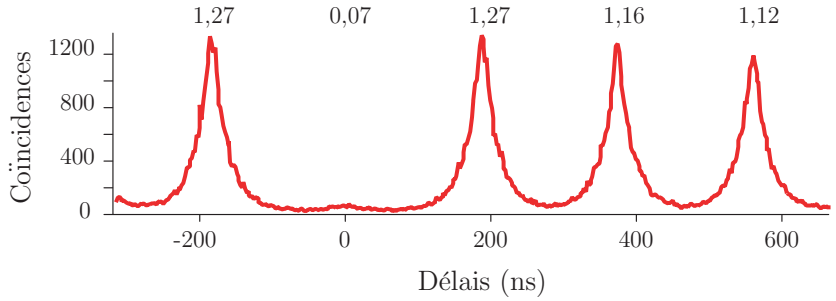


FIG. 2.11 – *Nombre total de coïncidences en régime impulsionnel, avec une excitation toutes les 180 ns (5,6 MHz) à 532 nm, le taux de photons uniques polarisés atteint 141000 ph/s. Les chiffres au-dessus de chaque pic représentent $C_N(k)$, la surface du pic normalisée à 1 lorsque le délai tend vers l'infini.*

collection de 4,3%. Pour la cryptographie quantique, il est nécessaire de disposer d'une source de photons polarisée. L'ajout d'un polariseur réduit le nombre de photons uniques à 141 000 photons par seconde, soit une efficacité de collection de photons polarisés $\eta_{coll} = 2,7\%$. On notera que ceci indique une légère polarisation de la lumière émise par les nanocristaux de diamant.

En régime impulsionnel, les constantes de temps du modèle à 3 niveaux obtenues par l'analyse des effets de groupement indiquent que le centre NV a une chance sur 16 de se retrouver dans l'état métastable à chaque impulsion d'excitation. Par ailleurs, une fois piégé il y restera pendant environ 430ns, soit pendant 2 à 3 impulsions. Ainsi le centre NV sera dans l'état métastable en moyenne environ une impulsion sur 6. La diminution de l'efficacité de production de photons uniques qui en résulte est de l'ordre de 15 à 20 %. L'analyse de l'effet de groupement visible sur les pics de la figure 2.11, traité comme un effet de clignotement, comme décrit au §A.1.7 en l'annexe, donne une probabilité d'émission $P_{\geqslant 1} \simeq 70\%$, soit 30% de chances d'être dans l'état métastable, ce qui est un peu moins bon que prévu.

On peut tirer de toutes ces données la valeur du facteur de mérite Ξ pour la cryptographie (cf. annexe, §A.2.4). On obtient $\Xi \simeq 0,27$, à comparer au facteur de mérite $\Xi_{att} \simeq 0,18$ qu'aurait une source d'impulsions atténuées produisant aussi peu d'impulsions à deux photons. On s'attend donc à observer un avantage quantitatif, pour la cryptographie, de cette source sur une source d'impulsions atténué.

2.3.3 Emission de photons uniques par un atome unique

Lorsqu'un atome à deux niveaux est porté dans son état excité, si l'élément de matrice du moment dipolaire entre les deux niveaux est non nul, l'atome se désexcite spontanément vers son état fondamental en émettant un unique photon. Nous décrivons sommairement ici la réalisation de cette situation idéale au moyen d'un unique atome de ^{87}Rb, piégé à une position bien définie, et excité de façon contrôlée de manière à obtenir une émission de photon unique déclenchée. Pour plus de détails, on pourra consulter l'excellente thèse de Benoît Darquié sur le sujet [60].

La motivation de ces travaux est un peu différente de celle concernant les deux autres sources de photons. L'intérêt majeur d'une source basée sur un atome unique est que, parce que tous les atomes de ^{87}Rb sont identiques, les photons qu'ils émettent doivent l'être également s'ils sont émis dans les mêmes conditions. Cela est la condition nécessaire à l'observation d'interférences à deux photons, qui présente un intérêt particulier pour l'information quantique, comme nous le verrons au chapitre 4.

Principe

On utilise notre dispositif de piégeage d'atomes de rubidium, décrit plus haut (cf. §2.2.2) en régime de de piégeage d'atomes uniques. On observe la fluorescence provenant du piège dipolaire, induite par les lasers de la mélasse optique et collectée par l'objectif qui sert à focaliser le faisceau du piège dipolaire. Le taux de fluorescence prend essentiellement deux valeurs, correspondant à la présence ou l'absence d'un atome dans le piège, comme on le voit nettement sur la trace représentée figure 2.5 page 19. Dès qu'un atome entre dans le piège, la fluorescence passe dans son niveau haut. On éteint alors les faisceaux de la mélasse et l'on dispose d'un atome unique piégé.

Pour lui faire émettre des photons uniques à la demande, il suffit d'être capable de le porter avec certitude dans un état excité. Nous avons pour cela utilisé des impulsions π,

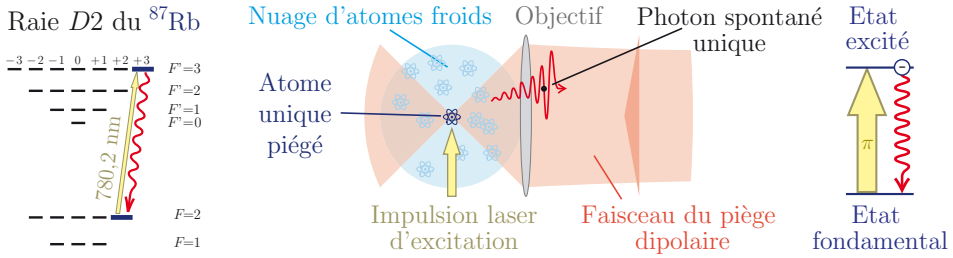


FIG. 2.12 – *Principe de l'émission de photons uniques avec un atome unique. Pour l'émission, on utilise la transition σ^+ fermée $(5^2S_{1/2}, F = 2, m_F = 2) \rightarrow (5^2P_{3/2}, F = 3, m_F = 3)$ représentée à gauche. Un atome unique capturé dans le piège dipolaire à 810 nm (non résonnant) est excité par une impulsion π résonante à 780 nm (correspondant à la transition fermée). Le photon unique émis est collecté par l'objectif de grande ouverture servant à former le piège dipolaire.*

c'est-à-dire des impulsions laser résonantes de durée et d'intensité choisie pour faire subir à l'atome une demi oscillation de Rabi. De façon à se trouver dans une situation qui soit aussi proche que possible d'un système à deux niveaux, nous avons choisi de travailler sur une transition fermée du ^{87}Rb : la transition du sous-niveau Zeeman $5^2S_{1/2}, F = 2, m_F = 2$ du fondamental vers le sous-niveau Zeeman $5^2P_{3/2}, F' = 3, m_{F'} = 3$ du niveau excité associé à la raie $D2$ du ^{87}Rb (cf. figure 2.12). Cette transition présente en outre l'avantage d'émettre des photons complètement polarisés σ^+.

Le laser d'excitation

La durée de vie de l'état excité considéré était de 26,2 ns et l'écart entre les sous niveaux $F' = 2$ et $F' = 3$ est de 266 MHz [61]. Cela impose un délai minimum entre impulsions de typiquement 200 ns et une durée des impulsions de quelques nanosecondes, courtes devant la durée de vie de l'état excité, mais pas trop pour éviter d'exciter le niveau $F' = 2$, responsable de dépompage vers $F = 1$. De façon à séparer facilement les impulsions d'excitation et les photons uniques émis, les impulsions se propageaient perpendiculairement à la direction d'émission des photons uniques collectés. Elles n'étaient donc pas focalisées très fortement, si bien qu'une puissance relativement importante était nécessaire pour réaliser des impulsions π.

Ces contraintes sur la source nous on conduit à la réalisation d'une chaîne laser produisant des impulsions de 16 nJ, d'une durée de 4 ns, avec un taux de répétition de 5 MHz, à 780,2 nm. Le schéma en est donné figure 2.13. Son principe est le suivant. Une diode laser télécom fibrée produit un flux continu à 1560 nm. Un modulateur électro-optique intégré télécom fibré, piloté par un générateur d'impulsions électriques rapide découpe des impulsions nanosecondes (0,8 à 6 ns) à une fréquence de 5 MHz. Les impulsions lumineuses produites sont amplifiées dans un amplificateur à fibre dopée erbium travaillant à saturation ; la puissance moyenne atteint jusqu'à 1 W. Après un coupleur de sortie, le faisceau est focalisé dans un cristal de niobate de lithium périodiquement polarisé de quelques centimètres de long. On obtient ainsi par doublage de fréquence jusqu'à 12 W crête (80 mW moyen) à 780 nm. Les impulsions sont couplés dans une fibre pour être acheminés vers l'expérience d'atome froids. Il est possible de moduler directement le courant de la diode laser télécom pour obtenir

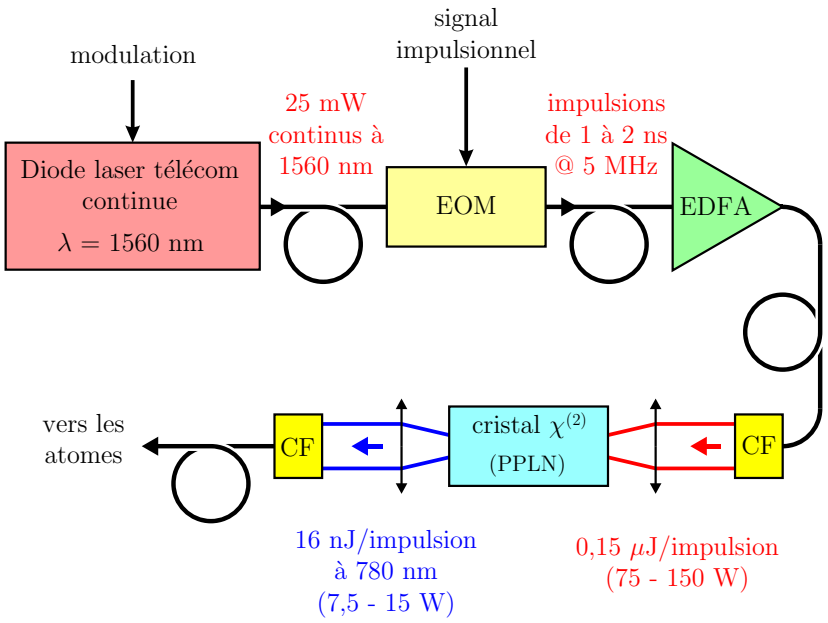


FIG. 2.13 – *Schéma du laser impulsionnel. EOM : Modulateur électro-optique intégré fibré télécom. EDFA : Amplificateur à fibre dopée erbium. PPLN : Cristal de niobate de lithium périodiquement polarisé. CF : Coupleur de fibre.*

une modulation de longueur d'onde. Nous avons publié les détails techniques relatifs à cette source dans [62].

Contrôle de la transition fermée

L'un des résultats de cette expérience est l'observation de l'oscillation de Rabi d'un atome unique pendant une excitation de quelques nanosecondes suivie de sa relaxation vers sont état fondamental par émission spontanée. Nous avons enregistré pour différentes puissances l'histogramme que l'on obtient lorsque l'on répète un grand nombre de fois, avec un même atome unique, la mesure du délai entre une excitation de l'atome, initialement dans son état fondamental, et la détection du photon unique produit.

Pendant la durée de l'impulsion, la population de l'état excité $\rho_{ee}(t)$ oscille à la fréquence de Rabi et l'amortissement par émission spontanée est en première approximation négligeable. Après l'impulsion, la population de l'atome excité décroît avec l'émission spontanée caractérisée par le taux Γ. Comme à chaque instant la probabilité d'émission vaut $\Gamma\rho_{ee}(t)$, l'histogramme des délais enregistrés reproduit l'évolution de la population de l'état excité. Les résultats attendus sont présentés dans l'annexe §A.2.4 et les courbes expérimentales sont reproduite figure 2.14[2].

[2] Le lecteur particulièrement attentif aura noté la nette différence entre le contraste des oscillations prévues théoriquement (figure A.5 de l'annexe) et ce que l'on obtient expérimentalement pour l'impulsion la plus intense : l'explication provient d'une part de fluctuations de l'intensité d'excitation (environ 10%) et d'autre part de la gigue électronique des compteurs de photons qui est de 300 ps et qui prend une importance d'autant plus grande que le nombre d'oscillations augmente dans une durée fixée à 4 ns.

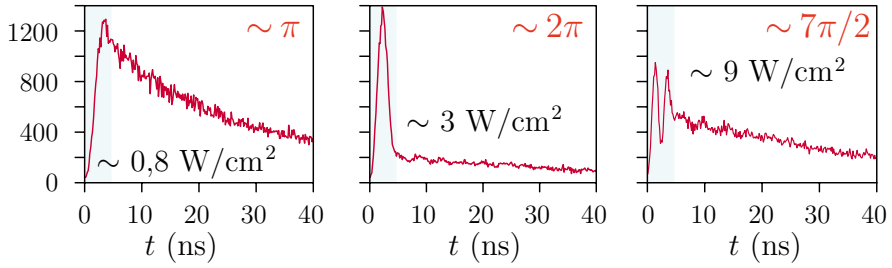


FIG. 2.14 – *Fluorescence d'un atome unique résolue en temps pour une excitation résonante de 4ns, pour diverses puissances d'excitation.*

Ces résultats illustrent bien notre capacité à contrôler la population de l'état excité d'un atome unique. En réalité on contrôle même la cohérence de l'atome, que l'on peut ainsi facilement préparer dans une superposition cohérente de l'état fondamental et de l'état excité. Il est même possible d'observer les battement entre deux niveaux excités correspondant à $F = 2$ et $F = 3$ si l'on excite avec des impulsions trop courtes ou si l'excitation se fait entre ces deux niveaux [60].

Caractérisation de l'émission de photons uniques

Après avoir ajusté la puissance des impulsions d'excitation pour obtenir des impulsions π portant l'atome dans son état excité avec une probabilité proche de 1, nous avons mis en place un dispositif de comptage de photons de type Hanbury Brown et Twiss avec lequel nous avions déjà pu établir que l'atome excité par notre laser constituait bien une source de photons uniques. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication dans *Science* reproduite en fin de chapitre, page 73.

L'enregistrement de l'histogramme des coïncidences, présenté figure 2.15, fait clairement apparaître la disparition du pic central due à l'émission d'un seul photon par excitation. En corrigeant du fond et en évaluant la surface des pics, on obtient néanmoins une valeur non nulle pour l'aire normalisée du pic à zéro : $C_N(0) = 0,034$.

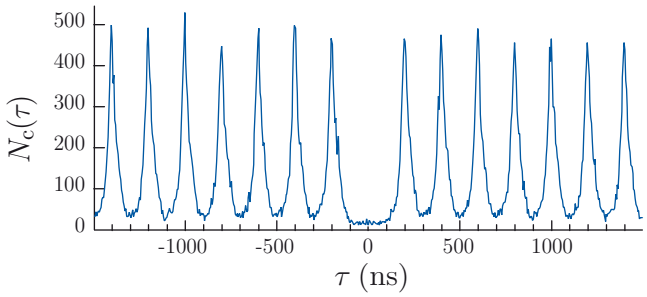


FIG. 2.15 – *Coïncidences en fonction du délai τ. La disparition du pic à délai nul indique une source de photons uniques de bonne qualité.*

Comme la probabilité P_1 d'émettre un photon est proche de 1 et que $C_N(0) = 2P_2/P_1^2$ comme expliqué en annexe, on en déduit que la probabilité d'émettre deux photons est de l'ordre de $P_2 \simeq 1,7\%$.Cette probabilité P_2 non nulle s'explique aisément : les impulsions d'excitation n'ont pas une durée infiniment courte (4 ns à comparer à la durée de vie de 26 ns de l'état excité) si bien que la probabilité d'émettre un photon avant la fin de l'impulsion d'excitation n'est pas nulle et la durée restante de l'impulsion donne une probabilité non nulle d'exciter à nouveau l'atome. Le calcul avec les paramètres de l'expérience (impulsions de 4ns), détaillé dans la thèse de Benoît Darquié [60], donne une valeur de la probabilité d'émission de deux photons tout à fait compatible avec les résultats expérimentaux obtenus.

L'évaluation de l'efficacité globale de collection conduit à un chiffre peu élevé : $\eta_{coll} = 0,6\%$. En terme de facteur de mérite pour la cryptographie quantique, on obtient $\Xi = 0,17$ à comparer à $\Xi = 0,18$ pour une source atténuée (et encore, on a utilisé la valeur de $C_N(0)$ corrigée du fond !). Cette faible efficacité de collection en fait une très mauvaise source pour la cryptographie quantique. Et c'est sans parler du fait que sur la durée totale d'une expérience de 4 heures, le taux réel de production de photons uniques n'est que 300 par seconde, ni du fait qu'une telle expérience n'est, de par sa complexité, absolument pas adaptée à des applications (voir la photo ci-dessous). L'intérêt réel de cette source réside dans son très bon dégroupement et dans le fait que les photons émis sont, comme on le verra au chapitre 4, susceptibles de produire des effets d'interférence à deux photons.

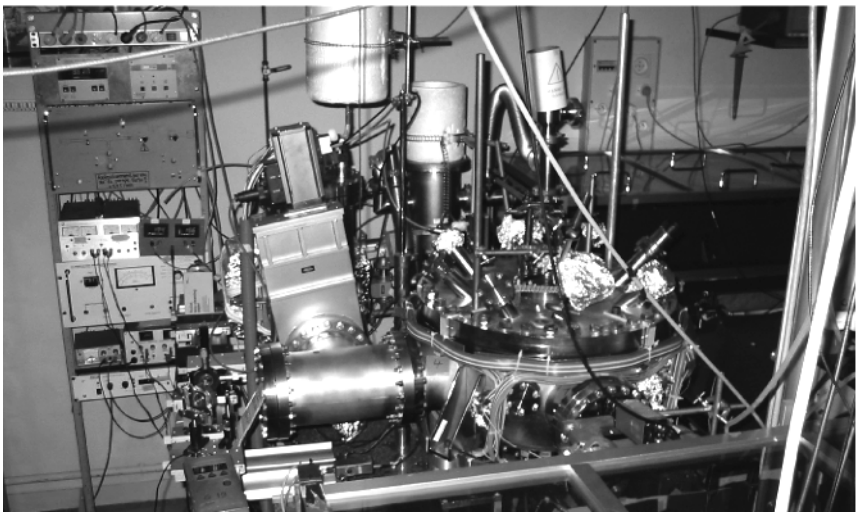


FIG. 2.16 – *L'enceinte à vide dans laquelle sont piégés les atomes uniques.*

2.4 Cryptographie quantique avec des photons uniques

A mon arrivée en septembre 2002 à l'Institut d'Optique, j'ai repris, l'expérience de production de photons uniques avec des nanocristaux de diamants décrite au §2.3.2 qui venait de permettre la première réalisation du protocole de cryptographie quantique BB84 avec des photons uniques [59]. L'objectif était de faire de cette expérience laboratoire la première expérience de démonstration de cryptographie quantique dans des conditions réelles et utilisant une source de photons uniques. Une fois améliorée et déménagée dans un lieu adapté, cette expérience a permis d'échanger des clés de cryptage parfaitement sûres entre deux ailes de l'Institut d'Optique d'Orsay, dans des conditions normales d'éclairage nocturne à raison d'environ 15kbit par seconde. De plus, elle a permis de démontrer expérimentalement un avantage quantitatif des sources de photons uniques sur de simples impulsions atténuées (cf. l'article publié dans le *New Journal of Physics* reproduit page 59). Le dispositif expérimental devant ensuite être transmis à une équipe de l'ENS Cachan, ce travail a fait l'objet d'une collaboration avec eux.

Avant de décrire les résultats de cette expérience, j'expose rapidement le protocole BB84 de cryptographie quantique

2.4.1 Protocole BB84 de cryptographie quantique

La sécurité de la plupart des protocoles classiques de cryptographie actuellement utilisés (comme RSA, le protocole le plus utilisé sur internet) reposent sur la complexité algorithmique. Il existe bien un protocole très simple de cryptographie inconditionnellement sûr, le code Vernam (figure 2.17), mais la clé de cryptage ne peut être utilisé qu'une fois, ce qui oblige à distribuer régulièrement des clés secrètes par un canal de communication privé, comme par exemple la valise diplomatique. Tout le problème est donc l'échange des clés secrètes.

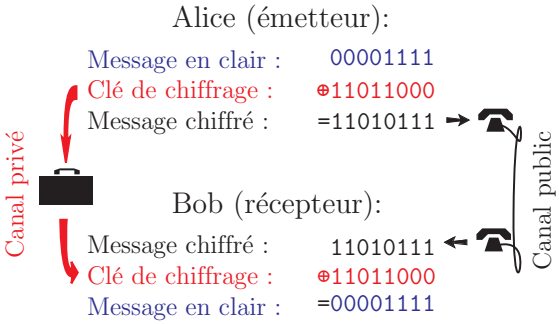


FIG. 2.17 – *Code Vernam : la clé doit être une séquence aléatoire, au moins aussi longue que le texte à chiffrer et est à usage unique.*

Le protocole BB84 de cryptographie quantique [13] résout le problème en construisant la même clé binaire chez les deux protagonistes distants, Alice et Bob, par échange public de photons uniques polarisés. Alice envoie les photons en codant un 0 ou un 1 aléatoirement dans l'une des deux bases de polarisation verticale/horizontale et $+45°/-45°$. Pour chaque photon qu'il reçoit, Bob choisit au hasard une base de lecture et mesure l'état de polarisation.

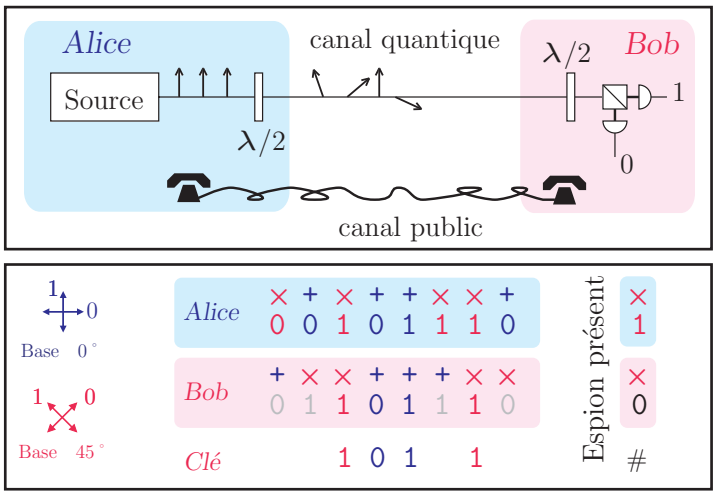


FIG. 2.18 – *Protocole BB84 : en haut le schéma de principe, en bas un exemple d'informations échangés. Alice envoie des photons uniques polarisés à Bob en choisissant, au moyen d'une lame $\lambda/2$ pour chacun aléatoirement une base de polarisation à 0° (+) ou à 45° (×), puis la valeur 0 ou 1 dans cette base. Bod reçoit les photons et, pour chaque photon, sélectionne aléatoirement l'une des deux base avec sa lame $\lambda/2$ pour en mesurer l'état de polarisation. Tout espion qui mesure la polarisation de photons sur le canal quantique et les envoie à Bob dans l'état donné par sa mesure, induit inévitablement des erreurs.*

Par la suite, Alice et Bob se communiquent, via un canal public, les bases qu'ils ont utilisé respectivement pour code et décoder l'information. Ils ne conservent, à l'issue de cette phase, que les bits correspondant aux 50% de cas où ils ont choisi la même base (voir figure 2.18).

Dans ce protocole, les photons uniques sont utilisés comme des idéaux simples à deux états sur lesquels est codée une information binaire, ce pourquoi on les nomme bits quantiques. Cette information est relative à une «base» d'états orthogonaux utilisée pour coder l'information. Les deux bases choisies sont telles que la mesure sur la seconde base d'un état codé dans la première donne un résultat complètement aléatoire. C'est cela qu'exploite le protocole de cryptographie BB84.

Le fait que le système porteur de l'information soit unique est crucial. L'idée sous-jacente est que toute tentative de mesure sur un objet quantique unique par un espion qui ne connaît pas *a priori* la base sur laquelle est codée l'information va altérer, en moyenne, le signal transmis. Cela donne à Alice et Bob un moyen de mesurer le nombre d'erreurs en sacrifiant une partie de la clé secrète produite. Ce taux d'erreur peut être considéré comme la conséquence de la fuite d'information due soit aux pertes sur la ligne, soit à une activité d'espionnage. Pour assurer une sécurité inconditionnelle, on considère que toute fuite d'information est exploitable par un espion potentiel.

Une source de photons unique réelle, aussi bonne soit-elle, est nécessairement imparfaite et produit de temps en temps des impulsions contenant plus d'un photon. Il est en principe possible à l'espion d'extraire de l'information en interceptant les photons surnuméraires, sans pour autant produire d'erreurs. La probabilité d'émettre plus d'un photon est donc une source de fuite d'information, mais c'est une fuite que peut exploiter l'espion sans être détecté.

2.4.2 Réconciliation et amplification de confidentialité

La clé que partagent Alice et Bob n'est pas exempte d'erreurs et, par ailleurs, un espion peut avoir intercepté une partie de l'information. Aussi, des étapes supplémentaires sont nécessaires pour générer une clé secrète parfaitement sûre et identique pour les deux protagonistes.

Compte-tenu du taux d'erreur qu'Alice et Bob peuvent contrôler en permanence et de la probabilité que la source émette plus d'un seul photon, Alice et Bob peuvent évaluer la quantité d'information maximale interceptée par un espion éventuel. Si le taux de perte est suffisamment bas (typiquement 11% pour une bonne source de photons uniques [44]) il leur est alors possible de générer une clé inconditionnellement sûre en procédant à deux opérations classiques sur les clés brutes obtenues (diminuées de ce qui est nécessaire à la mesure des taux d'erreurs) [31] : dans une première phase appelée réconciliation, Alice et Bob corrigent les erreurs résiduelles de la clé brute (au moyen de test de parité) ; dans une seconde phase appelée amplification de confidentialité, ils extraient de la clé ainsi obtenue une clé secrète en faisant disparaître l'information que l'espion aurait pu intercepter (au moyen d'algorithmes classiques reposant sur des fonctions de hachage).

Etant donné un taux minimal de production de bits secrets, les pertes en ligne limitent la portée du protocole parce qu'elles correspondent à une fuite d'information qui croît avec la distance. Comme la probabilité d'émettre plus d'un photon correspond elle aussi à une fuite d'information, on conçoit aisément que la portée dépend également de façon critique de la qualité de la source de photons uniques.

Contrairement à une idée reçue, le protocole BB84 ne sert pas à envoyer des messages secrets, ni même à générer une clé secrète mais plutôt à *amplifier* une clé secrète. En effet, il faut évidement qu'Alice et Bob puissent à tout instant s'identifier par une procédure d'authentification, ils peuvent pour cela utiliser un morceau de la clé précédente produite, à condition que la communication précédente ait été authentifiée. Il faut donc disposer au départ d'une amorce et tout ce que fait le protocole est de l'amplifier. On remarquera également que la fonction essentielle du canal quantique est d'effectuer une mesure fiable du "taux d'écoute" sur la ligne de façon à pouvoir assurer la sécurité par des procédures de réconciliation et d'amplification de confidentialité tout à fait classiques.

Pour terminer, notons qu'il existe maintenant des protocoles qui évitent l'usage des photons uniques : par exemple la cryptographie en variables continues avec des états cohérents [45] ou la cryptographie avec des états leurres («decoy states») [46]. Cela étant, le protocole BB84 avec de vraies sources de photons uniques se défend encore honorablement face à ces nouveaux protocoles.

2.4.3 Réalisation de BB84

La source de photon unique décrite au §2.3.2 a été utilisée pour réaliser le protocole de cryptographie quantique BB84 avec des photons uniques dans des conditions réelles et non dans des conditions de laboratoire. La transmission de photons uniques a été effectuée en espace libre entre deux ailes des bâtiments de l'Institut d'Optique d'Orsay, de nuit et en présence de l'éclairage du campus. Alice et Bob ont été équipés d'une connexion internet et d'un logiciel destiné à effectuer les étapes de réconciliation, purification et amplification de confidentialité de façon automatisée via internet.

Le taux de génération de clé secrète partagée obtenu était de l'ordre de 15 kbits/s. Nous avons également pu quantifier l'avantage d'une source de photons uniques sur une

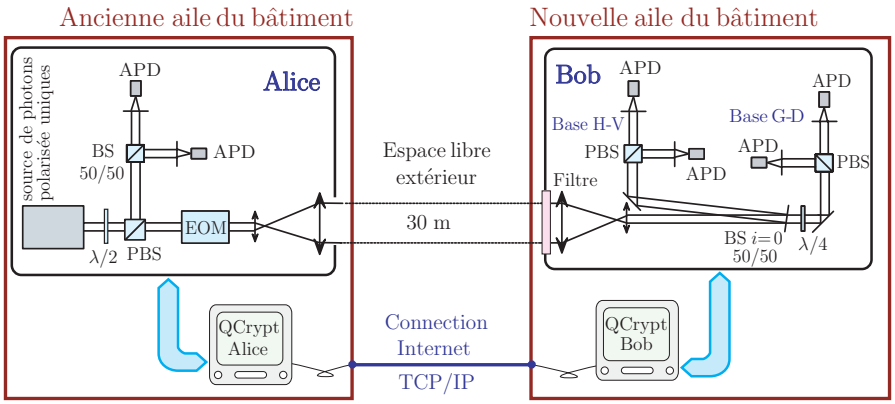


FIG. 2.19 – *Dispositif de distribution quantique de clé.*

source d'impulsions atténuées en termes de portée maximale de la distribution quantique de clé. L'essentiel des résultats obtenus on été publiés dans le *New Journal of Physics* en 2004. L'article est reproduit §2.6.4, page 59. On pourra également consulter, pour un aperçu général, l'article de publié dans la revue du CNRS *Images de la Physique* à la suite de ces travaux [63].

Dispositif expérimental

Le dispositif de distribution quantique de clé de cryptage, schématisé figure 2.19, est composé de deux montages indépendants : l'un correspondant à Alice a été installé au premier étage d'un bâtiment de l'Institut d'Optique d'Orsay, communément appelé le « nouveau bâtiment », l'autre, correspondant à Bob, a été installé dans un autre bâtiment de l'Institut d'Optique, plus ancien, situé en vis-à-vis du précédent, à une trentaine de mètres. Ces deux dispositifs ont été équipés d'un système de pilotage et d'acquisition informatique, reliés entre eux par Internet pour effectuer les opérations de communication classiques nécessitées par le protocole BB84. D'un point de vue logiciel, toutes ces opérations sont prises en charge par un programme du domaine public, appelé QuCrypt, développé à cet effet par L. Salvail à l'Université de Aarhus au Danemark [64], installé sur chaque ordinateur.

Chez Alice se trouve notre source de photons uniques utilisant des centres colorés du diamant. Un polariseur intégré à la source assure que tous les photons émis ont la même polarisation. Une lame $\lambda/2$ permet soit de diriger les photons uniques produits vers un montage de type Hanbury Brown et Twiss destiné à contrôler la qualité de l'émission de photons uniques, soit d'envoyer ces photons vers Bob. Dans ce dernier cas, chaque photon traverse un modulateur électro-optique (EOM) qui le prépare dans l'un des quatre états de polarisation du protocole BB84, puis se propage jusqu'à Bob. L'électronique de contrôle d'Alice permet d'envoyer des séquences durant 0,2 s, correspondant à un million d'impulsions d'excitation de la source de photons uniques et, pour chacune de ces impulsions, à un état aléatoire du modulateur électro-optique, mémorisé dans l'ordinateur d'Alice. Chez Bob, un filtre optique passe-bande centré sur la longueur d'onde des photons uniques permet d'éliminer une grande partie de la lumière ambiante. Cela est suffisant pour faire fonctionner le dispositif en extérieur de nuit, en présence d'éclairage public. La polarisation des photons reçus par Bob est lue aléatoirement (c'est la lame 50/50 qui décide) dans l'une des deux bases de

polarisation du protocole BB84 au moyen de photodiodes à avalanche (APD). Un système d'acquisition électronique permet de stocker les résultats de ces mesures dans l'ordinateur de Bob. Lorsque ces opérations, qui constituent la première étape du protocole BB84, sont terminées, le logiciel QuCrypt effectue alors toutes les opérations nécessaires à l'extraction d'une clé secrète parfaitement sûre, connue seulement d'Alice et Bob.

Performances du dispositif

Ce prototype est capable de produire, de nuit, à l'air libre et sur une distance de 30 m, environ 3200 bits de clé secrète partagée par séquence de 0,2 s, soit un taux de transmission de clé partagée de l'ordre de 16 kbits/s sur le canal quantique. Nous avons représenté figure 2.20 le résumé des performances de ce dispositif de distribution quantique de clé.

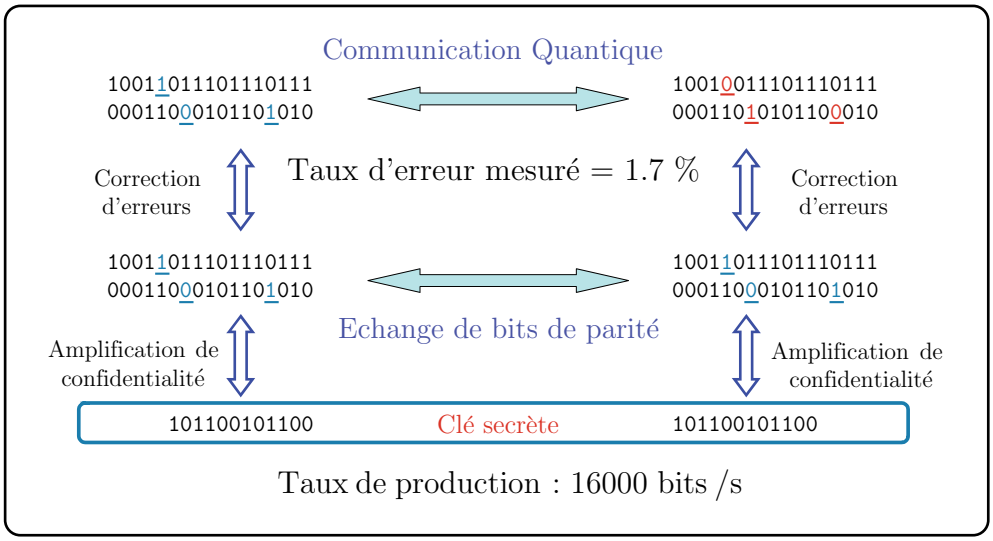


FIG. 2.20 – *Exemple de distribution quantique de clé et performances.*

La distance sur laquelle le dispositif peut fonctionner n'est pas limitée à 30 m : nous avons simulé, par des atténuations sur le canal quantique, un fonctionnement sur des distances plus importantes. Le résultat de ces mesures est donné dans la figure 3 de l'article reproduit page 59. Cette figure indique le nombre de bits secrets en fonction de l'atténuation pour notre source et pour une source d'impulsions atténuées équivalente. Il apparaît que la source atténuée ne transmet plus rien au-delà de 11 dB d'atténuation alors que notre source est capable de supporter jusqu'à 13 dB d'atténuation avant de voir son taux de bit secret s'effondrer. Ce résultat illustre bien l'avantage qu'il y a à utiliser des sources de photons uniques pour la cryptographie quantique.

2.5 Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre que les deux difficultés centrales de la réalisation d'une source de photons uniques déclenchée consistent d'une part à isoler un émetteur unique et d'autre part à en assurer l'excitation, par exemple au moyen d'un laser disposant de caractéristiques adaptées. Il y a fort à parier que dans un futur proche la question de l'excitation électrique viendra remplacer celle du laser adapté.

Nous avons également montré l'intérêt de la fonction de corrélation du second ordre de l'intensité et des mesures de coïncidences comme outils d'étude de la statistique de l'émetteur et de sa dynamique. Les études en régime continu permettent à la fois de mettre en évidence le dégroupement, qui est l'élément utile pour réaliser les sources de photons uniques, et le groupement, qui signale des problèmes d'intermittence de l'émission dont il est nécessaire de tenir compte pour le passage au régime impulsionnel. Les outils d'étude du régime continu s'avèrent être également d'excellents outils d'étude du régime impulsionnel : ils sont utilisables sans modification dans les deux cas.

Les sources de photons uniques reposant sur des émetteurs à décohérence rapide, dont la dynamique se décrit bien par des équations de taux, sont en général suffisantes pour des applications telles que la cryptographie avec des photons uniques. En revanche, un système comme un atome unique piégé, qui présente une physique plus riche en effets cohérents, ne présente pas d'intérêt particulier dans ce contexte ; ce serait même plutôt le contraire : la complexité générée par la gestion des aspects cohérents de cet émetteur le rend d'emploi bien plus délicat que les nanocristaux de diamant ou de CdSe. Nous verrons cependant plus tard, au chapitre 4 qu'il présente d'autres intérêts.

En ce qui concerne la cryptographie quantique, s'il est indéniable qu'elle a joué un rôle positif dans le développement des sources de photons uniques déclenchées, il est bien peu probable qu'elle en fasse finalement usage. En effet, même si les sources de photons uniques présentent un avantage quantifiable sur des sources atténuées, d'autres options nettement plus simples à mettre en œuvre, comme les protocoles à états leurres ou à variables continues gaussiennes, sont maintenant des concurrents sérieux. De toutes façons, pour parvenir à dépasser notablement les distances maximales permises par des protocoles comme BB84, il faudra passer à des systèmes de communication reposant plutôt sur la téléportation. Les états de la lumière les plus utiles dans ce contexte, même s'il apparaît qu'ils pourraient être très non classiques, ne seront probablement pas des sources de photons uniques.

2.6 Articles

Sont regroupés dans les pages qui suivent les reproductions d'articles suivants, relatifs aux travaux décrits dans ce chapitre :

- « Bunching and antibunching in the fluorescence of semiconductor nanocrystals », *Opt. Lett.* **26**, 1891 (2001). Page 43.
- « Statistical Aging and Nonergodicity in the Fluorescence of Single Nanocrystals », *Phys. Rev. Lett.* **90**, 120601 (2003). Page 47.
- « Colloidal CdSe/ZnS quantum dots as single-photon sources .», *New J. Phys.* **6**, 99 (2004). Page 51.
- « Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source », *New J. Phys.* **6**, 92 (2004). Page 59.
- « Controlled Single-Photon Emission from a Single Trapped Two-Level Atom », *Science* **309**, 454 (2005). Page 73.

Les deux premiers articles concernent l'émission de photons uniques par des nanocristaux de CdSe et la photophysique sous-jacente. Le premier, publié en 2001 dans *Optics Letters*, présente l'observation d'effet de dégroupement aux temps courts et de groupement aux temps longs dans la fluorescence de ces émetteurs. Il se penche sur les effets de clignotement et souligne l'aspect non ergodique de la fluorescence qu'ils produisent. Un second article, publié plus tard dans *Physical Review Letter* revient de manière plus quantitative sur cette non ergodicité et les effets de vieillissement statistique qui lui sont associés. Un troisième article qui est la conséquence de ces travaux, publié dans le *New Journal of Physics*, met l'accent sur les processus physiques à l'origine du dégroupement et démontre la possibilité de transformer ces émetteurs en sources de photons uniques déclenchées.

Le quatrième article reproduit ici, également publié dans le *New Journal of Physics*, résume les résultats d'une expérience de distribution quantique de clés au moyen d'une source de photons uniques utilisant des centres colorés du diamant. Il met en évidence l'avantage quantitatif d'une source de photons uniques sur une source de photons atténuée classique.

Un dernier article, publié dans *Science* explique comment une atome unique piégé dans un piège dipolaire extrêmement confinant a permis de produire des photons uniques à la demande.

2.6.1 *Optics Letters* 26, 1891 (2001).

Bunching and antibunching in the fluorescence of semiconductor nanocrystals

G. Messin, J. P. Hermier, E. Giacobino, P. Desbiolles, and M. Dahan

Laboratoire Kastler Brossel, Ecole Normale Supérieure et Université Pierre et Marie Curie, 24, Rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France

Received June 25, 2001

The fluorescence of single-colloidal CdSe quantum dots is investigated at room temperature by means of the autocorrelation function over a time scale of almost 12 orders of magnitude. Over a short time scale, the autocorrelation function shows complete antibunching, indicating single-photon emission and atomiclike behavior. Over longer time scales (up to tens of seconds), we measure a bunching effect that is due to fluorescence intermittency and that cannot be described by fluctuations between two states with constant rates. The autocorrelation function also exhibits nonstationary behavior related to power-law distributions of ON and OFF times. © 2001 Optical Society of America

OCIS codes: 270.5290, 030.5260, 180.1790.

The realization of single-photon sources and generation of nonclassical states of light is of great interest in quantum optics, especially in quantum cryptography, where secure transmission requires that one and only one photon be sent at a given time.[1] To obtain a single-photon source, one should use the fluorescence emission of single-quantum systems, and several potential sources have already been studied. Antibunching has been observed in the fluorescence of atoms,[2,3] organic molecules,[4–6] AlGaAs quantum dots (QDs),[7,8] and single nitrogen vacancy centers.[9,10] Colloidal CdSe–Zns QDs have also attracted much attention, since they can be used at room temperature, present remarkable photostability, and have a high quantum efficiency. Michler *et al.*[11] and Lounis *et al.*[12] recently showed that the fluorescence light of such QDs exhibits partial or complete antibunching. However, the fluorescence emission of QDs is known to exhibit intermittency[13] resulting from physical mechanisms that remain to be fully elucidated. In this Letter the photophysical properties of individual QDs are investigated over a large time scale (from nanoseconds to tens of seconds) by use of the autocorrelation function (ACF), providing a more-comprehensive description of QDs as light emitters.

We prepared the samples by spin coating a nanomolar solution of QDs (1.8-nm radius, 570-nm peak emission) in butanol and a thin film of poly methyl(methacrylate) on a glass coverslip. The excitation light comes from the 514-nm line of a cw Ar^+ laser whose beam is focused to the diffraction limit (waist, ~300 nm) by a high-N.A. objective (Apochromat; N.A., 1.4; oil immersion) of a confocal microscope. The fluorescence photons are collected by the same objective and sent to a high-sensitivity Hanbury-Brown–Twiss detection scheme composed of a 50/50 nonpolarizing beam splitter followed by two (start and stop) single-photon avalanche photodiodes. The pulses from the photodiodes are simultaneously sent to various data acquisition systems. First, a picosecond time analyzer (PTA; EG&G 9138) provides histograms of time delays between photons for delays ranging from hundreds to tens of microseconds. The PTA functions similarly to a conventional time–amplitude converter, except that it registers all the stop events during a time interval triggered by a start pulse and gives direct access to the ACF. To investigate negative correlation times, we introduce a constant delay (~200 ns) in the stop channel. The single-photon avalanche photodiode pulses are sent in parallel to a correlator (Malvern 7932) that calculates the ACF for delays greater than 1 μs. Finally, the absolute arrival time of each detected photon is recorded by a counting board with a 12.5-ns time resolution.

The normalized ACF of the fluorescence intensity is a tool suited to exploration of emission properties over large time scales. It is defined as

$$g^{(2)}(t, t+\tau) = \frac{\langle I(t) I(t+\tau)\rangle}{\langle I(t)\rangle \langle I(t+\tau)\rangle}, \qquad (1)$$

where $I(t)$ is the fluorescence intensity and $\langle\,\rangle$ indicates ensemble averaging. In practice, this quantity is calculated by use of time averaging, with implicit assumptions of ergodicity and stationarity. As explained below, calculating this quantity is of great importance in our measurements. Both the PTA and the correlator give the number of coincidence counts, $n(\tau)$, as a function of the time delay between photons. The normalized ACF can be deduced by calculation of $g^{(2)}(\tau) = n(\tau)/I_A I_B \Delta t T$, where I_A and I_B are the mean intensities on the start and stop channels, Δt is the time resolution, and T is the total acquisition time.

A histogram of the coincidence counts on a short time scale given by the PTA shows a dip centered at $\tau = 0$ (Fig. 1). The antibunching of the fluorescence finds its origin in the quantum nature of the emitter: A QD in its ground state needs to absorb an excitation photon before spontaneously emitting a fluorescence photon. Since both these processes take a finite time, two photons cannot be emitted simultaneously. The dip can be described by an exponential curve $a[1 - b \exp(-|\tau|/\tau_0)]$. For

Opt. Lett. **26**, 1891 (2001).

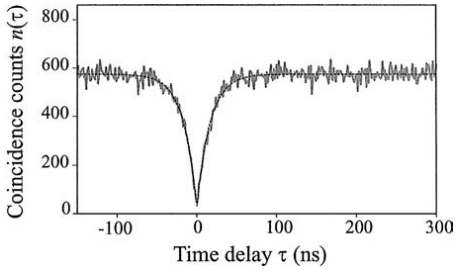


Fig. 1. Histograms of coincidence counts obtained from the PTA (time resolution, 600 ps) and corrected from the time delay. The solid curve is a fit by an exponential curve $a[1 - b\exp(-|\tau|/\tau^0)]$, with $a = 577.5$, $b = 0.95$, and $\tau_0 = 20.1$ ns.

an excitation intensity I well below the saturation limit (20–80 kW/cm^2),[12] the value of τ_0 is essentially determined by the excited-state lifetime. In our experiments, it is found to be 17.5 (2.0) ns, similar to direct lifetime measurements. In contrast with Michler *et al.*,[11] but in agreement with Lounis *et al.*,[12] we found that the measured value of b usually exceeds 0.9, independently of the excitation power. When it is corrected from the background noise that is due to scattered excitation light,[10] the amplitude is even greater than 0.99.

This complete antibunching is a clear indication of single-particle measurement, since two (or more) independent QDs would emit uncorrelated photons and contribute to the histogram at $\tau = 0$. As we repeatedly observed, this complete antibunching is the only nonambiguous criterion, rather than fluorescence intermittency, for experiments at the single QD level. In our experiments, for I of $\sim$1 kW/cm^2, we could collect up to 30×10^6 photons with average detected emission rates of 10–30 kHz. Compared with single molecules at room temperature,[6] QDs appear to be superior in terms of the number of emitted photons before photodegradation. In addition, the large absorption spectra of QDs make them compatible with a pulsed blue laser diode, opening the way to compact single-photon sources.

The stability of such a source over time is an issue that has seldom been addressed so far. It has been repeatedly observed that QDs exhibit fluorescence intermittency, possibly because of Auger ionization, after creation of multiple electron–hole pairs.[13,14] This effect manifests itself as an alternation of bright (ON) and dark (OFF) periods with durations of up to tens of seconds.

To link short- and long-term behavior, we measured the ACF from hundreds of picoseconds to tens of seconds. We obtained this time scale, which is to our knowledge unprecedentedly large, by joining the normalized data from the PTA and the correlator without any further adjustment (Fig. 2). The ACF is nearly constant from 100 ns to 100 μs, with a value of a_{norm} that indicates an absence of intermittency on this time scale. To a good approximation, $1/a_{\mathrm{norm}}$ represents the fraction of time spent by the emitter in the ON state. Beyond 100 μs, the ACF decreases slowly over several time scales before falling more abruptly at a time close to the measurement duration, T. Strikingly, we do not observe a time scale over which the ACF reaches an asymptotic value of 1, even for measurements with a duration of more than 1000 s.

To grasp this particular observation fully, it is useful to compare it with a two-state model in which a system jumps back and forth between an ON and OFF states with constant rates, k_{on} and k_{off}, respectively. Such a model, often employed to represent the fluctuations of fluorescent systems, successfully describes, for instance, bunching in organic molecules as a result of shelving in the triplet state.[5] In this case, the ACF is stationary and $g^{(2)}(t)$ varies as $1 + [(1 - p)/p]\exp(-t/t_0)$, where $t_0 = 1/(k_{\mathrm{on}} + k_{\mathrm{off}})$ and $p = k_{\mathrm{off}}/(k_{\mathrm{on}} + k_{\mathrm{off}})$. This exponential decay from $1/p$ to 1 implies that, for t much larger than the characteristic time scale t_0, the ACF is constant (equal to 1). Efros and Rosen actually developed a model for the fluorescence of individual QDs that leads to this kind of behavior.[14]

Our ACF measurements cannot be described by an exponential decay. To understand the origin of this discrepancy, we considered the intensity time trace obtained by binning the incoming pulses [Fig. 3(a)]. We obtained the distributions of ON and OFF periods by setting a threshold (equal to a couple of times the background signal) and comparing the intensity with this value. Instead of following exponential laws (as would be the case in the two-state model), the densities of probability of ON and OFF periods, calculated for more than 100 individual QDs, exhibit a power-law dependence $1/t^{1+\mu}$, with μ in the range 0.3–0.7.[15] The origin of this dependence, first observed and discussed by Kuno *et al.* for OFF times,[16] has yet to be understood fully. However, its occurrence has several consequences for the shape and the meaning of the ACF.

Since they have no mean values and are dominated by fluctuations, power-law distributions with exponents $1 + \mu$ smaller than 2 stand apart from conventional statistical laws.[17,18] Because of the long tails of these broad distributions, events with a duration of the order of the acquisition time are likely to occur, as is visible in the trace in Fig. 3(a). Consequently, there is no characteristic time scale over which the fluorescence intensity can be averaged. A stochastic process driven by a broad distribution,

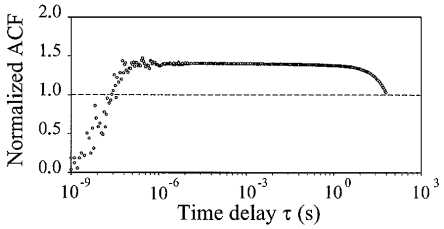


Fig. 2. Normalized ACF from 1 ns to 100 s, measured by the PTA and the Malvern correlator ($T = 900$ s, $I = 2$ kW/cm^2, $a_{\mathrm{norm}} = 1.4$).

Opt. Lett. **26**, 1891 (2001).

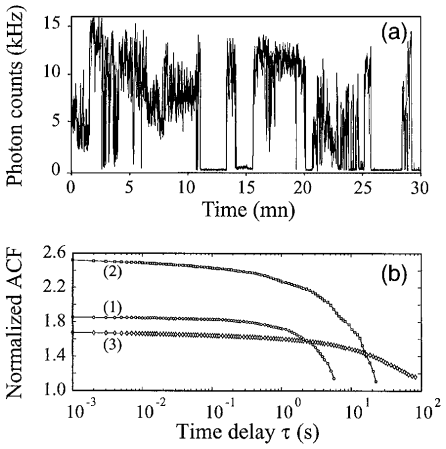


Fig. 3. (a) Time trace of the fluorescence intensity for a single QD (excitation intensity, 0.25 kW/cm^2). (b) Computations of the ACF for this trace. Curves (1), (2), and (3) correspond to time intervals of 18, 180, and 1800 s.

often designated as a Lévy flight, is intrinsically nonergodic: Ensemble and temporal averaging do not coincide.

This interpretation allows us to explain qualitatively the results of our ACF measurements. Since longer and longer ON and OFF events appear as the acquisition time increases, the value of the fraction of time spent in the ON state in the range $0–T$ (and consequently a_{norm}) does not reach an asymptotic value. The existence of ON and OFF times that are comparable to T also explains why the decay of the ACF always occurs on a time scale of the order of the measurement time. Both these properties are illustrated in Fig. 3(b). A significant and nonmonotonic change in the value at short time (~1 ms) as well as a progressive shift in the characteristic decay time can be observed. This effect is not due to statistical dispersion but is related to the sampling of the power laws during the particular time intervals. In contrast, for a two-state model, increasing the measurement time leads to a better single-to-noise ratio but does not induce any significant change of the ACF.

The nonergodicity induced by broad distributions implies that the temporal ACF does not equal the ensemble value. In particular, the ACF cannot be directly compared with recent analytical calculations of the ensemble correlation function.[19] Nevertheless, the correlation measurements remain an appropriate tool for the study of fluorescence antibunching. Since the time scales of the fluorescence cycles (well below 100 μs) and the intermittency are strongly decoupled, the coincidence histogram remains valid (and hence the values of b and τ_0). However, the normalized value a_{norm} has no general significance, as it depends critically on the acquisition time.

In conclusion, we have studied the fluorescence of single-colloidal quantum dots, using the ACF. At short time scales, we observed complete antibunching, demonstrating that, even though they have a crystalline structure, the emission properties of individual QDs are those of two-level atoms. At large time scales, because of the power-law dependence of the distributions of ON and OFF periods, QDs cannot be treated as stationary systems, meaning that standard analysis of the ACF should be used with care. This study also raises questions about the interpretation of single-molecule experiments when one is dealing with nonergodic systems.

M. Dahan's e-mail address is maxime.dahan@lkb.ens.fr.

References

1. D. Bouwmeester, A. Ekert, and A. Zeilinger, *The Physics of Quantum Information* (Springer-Verlag, Berlin, 2000).
2. H. J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **39,** 691 (1977).
3. F. Diedrich and H. Walther, Phys. Rev. Lett. **58,** 203 (1987).
4. T. Basche, W. E. Moerner, M. Orrit, and H. Talon, Phys. Rev. Lett. **69,** 1516 (1992).
5. L. Fleury, J. M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, and U. P. Wild, Phys. Rev. Lett. **84,** 1148 (2000).
6. B. Lounis and W. E. Moerner, Nature **407,** 491 (2000).
7. P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu, Science **290,** 2282 (2000).
8. C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, and Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **86,** 1502 (2001).
9. C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, and H. Weinfurter, Phys. Rev. Lett. **85,** 290 (2000).
10. R. Brouri, A. Beveratos, J. P. Poizat, and P. Grangier, Opt. Lett. **25,** 1294 (2000).
11. P. Michler, A. Imamoglu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, and S. K. Buratto, Nature **406,** 968 (2000).
12. B. Lounis, H. A. Bechtel, D. Gerion, A. P. Alivisatos, and W. E. Moerner, Chem. Phys. Lett. **329,** 399 (2000).
13. M. Nirmal, B. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, and L. E. Brus, Nature **383,** 802 (1996).
14. A. L. Efros and M. Rosen, Phys. Rev. Lett. **78,** 1110 (1997).
15. These data, not shown here, will be discussed and analyzed in detail in a forthcoming paper entitled "Lévy flight approach to fluorescence intermittency in semiconductor nanocrystals."
16. M. Kuno, D. P. Fromm, H. F. Hamann, A. Gallagher, and D. J. Nesbitt, J. Chem. Phys. **112,** 3117 (2000).
17. J. P. Bouchaud and A. Georges, Phys. Rep. **195,** 125 (1990).
18. F. Bardou, J. P. Bouchaud, A. Aspect, and C. Cohen-Tannoudji, *Lévy Statistics and Laser Cooling* (Cambridge U. Press, Cambridge, 2001).
19. C. Godreche and J. M. Luck, J. Stat. Phys. **104,** 489 (2001).

2.6.2 *Physical Review Letters* 90, 120601 (2003).

Statistical Aging and Nonergodicity in the Fluorescence of Single Nanocrystals

X. Brokmann,[1] J.-P. Hermier,[1,2] G. Messin,[1] P. Desbiolles,[1] J.-P. Bouchaud,[3] and M. Dahan[1]
[1]*Laboratoire Kastler Brossel,* 75231 Paris Cedex 05, France*
[2]*Pôle Matériaux et Phénomènes Quantiques, Université Denis Diderot, 2, place Jussieu, 75251 Paris Cedex 05, France*
[3]*Service de Physique de l'Etat Condensé, Commissariat à l'Énergie Atomique, Orme des Merisiers, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France.*
(Received 8 November 2002; published 26 March 2003)

The relation between single particle and ensemble measurements is addressed for semiconductor CdSe nanocrystals. We record their fluorescence at the single molecule level and analyze their emission intermittency, which is governed by unusual random processes known as Lévy statistics. We report the observation of statistical aging and ergodicity breaking, both related to the occurrence of Lévy statistics. Our results show that the behavior of ensemble quantities, such as the total fluorescence of an ensemble of nanocrystals, can differ from the time-averaged individual quantities, and must be interpreted with care.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.90.120601 PACS numbers: 05.40.Fb, 78.67.Bf

The relation between single particle and ensemble measurements is at the core of statistical physics. It is usually expressed in terms of the ergodic hypothesis which states that time averaging and ensemble averaging of an observable coincide [1,2]. This question has attracted renewed attention given that experiments are now able to resolve individual nanometer-sized systems. It is addressed here for semiconductor CdSe nanocrystals. The fluorescence properties of these colloidal quantum dots (QDs) have raised great interest due to their size-induced spectral tunability, high quantum yield, and remarkable photostability at room temperature [3], all of which make QDs a promising system for biological labelling [4], single-photon sources [5], and nanolasers [6].

When studied at the single molecule level, CdSe QDs share with a large variety of other fluorescent nanometer-sized systems [7–10] the property of exhibiting fluorescence intermittency [11]. This means that the fluorescence intensity randomly switches from bright ("on") states to dark ("off") states under continuous excitation. Although the very origin of the intermittency for CdSe QDs remains a matter of investigation, its statistical properties have been studied. For a given QD, the durations τ_{on} and τ_{off} of the on and off periods follow slowly decaying power-law distributions $P_{on}(\tau_{on} > \tau) = (\tau_0/\tau)^{\mu_{on}}$, $P_{off}(\tau_{off} > \tau) = (\tau_0/\tau)^{\mu_{off}}$, where μ_{on} and μ_{off} are close to 0.5 [12,13]. This behavior extends over several orders of magnitude, from the detection integration time τ_0 up to hundreds of seconds, with very small dependence on temperature or excitation intensity.

The crucial point for our analysis is that both μ_{on} and μ_{off} are smaller than 1. In this case, the decay is so slow that the mean value of P_{on} and P_{off} is formally infinite, and very long events tend to dominate the fluorescence signal, producing strong intermittency. The duration of the on and off periods are thus governed by "Lévy statistics," which have been encountered in various fields [14–22] such as laser cooling of atoms [15], dynamics of disordered [16] and chaotic [18] systems, glassy dynamics [20], or economics and finance [21].

In this Letter, we show that single QD measurements can be used to explicitly compare ensemble- and time-averaged properties and explore some of the unusual phenomena induced by Lévy statistics, such as statistical aging and ergodicity breaking. Using an epifluorescence microscopy setup and a low-noise CCD camera, we simultaneously recorded at room temperature the fluorescence intensity of 215 individual QDs for the duration of 10 min with a time resolution of 100 ms [23]. The blinking of the fluorescence intensity was observed for each QD detected in the field of the camera (Fig. 1). Because of the binary behavior of the blinking process, each intensity time trace was considered simply as a sequence of n on and off times $\{\tau_{on}^{(1)}, \tau_{off}^{(1)}, \tau_{on}^{(2)}, \tau_{off}^{(2)}, \ldots, \tau_{on}^{(n)}, \tau_{off}^{(n)}\}$ from which the distributions P_{on} and P_{off} were derived. In our measurements, the on and off periods both followed power-law distributions [25]. After adjustment of the cumulative distributions of the on and off periods for each of the 215 QDs, the exponents μ_{on} and μ_{off} were

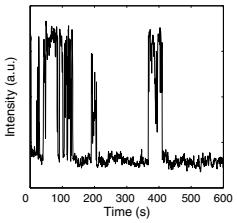


FIG. 1. Fluorescence intermittency of a single CdSe nanocrystal measured over 10 min with 100 ms time bins. Because of the broad distribution of the on and off states, the signal is dominated by a few long events.

Phys. Rev. Lett. **90**, 120601 (2003).

estimated to be, respectively, 0.58 (0.17) and 0.48 (0.15), consistent with previous experiments [12,13]. For all pairs of QDs, we also computed the Kolmogorov-Smirnov (KS) likelihood estimator [26] to compare the on (respectively, off) distributions between each pair of QDs. For our set of data, the KS tests yield the same average value of 0.4 (0.3) for both on and off distributions, well above the value 0.05 usually considered as an inferior limit to assume that two data sets have identical distributions. In the following, the 215 QDs are therefore considered as statistically identical, with $\mu_{\rm on} = 0.58$ and $\mu_{\rm off} = 0.48$ [27].

The first observation is that, for purely statistical reasons, the fluorescence of QDs is nonstationary, i.e., time translation invariance is broken in the intermittency process. This is best evidenced by studying the rate at which the QDs jump back from the off to the on state (a "switch on" event). For this purpose, we computed the ensemble average of the probability density $s(\theta)$ to observe a QD switching on between θ and $\theta + d\theta$ after a time θ spent in the off state. For off periods following a "narrow" distribution (with a finite mean value $\langle\tau_{\rm off}\rangle$), $s(\theta)$—also called the renewal density—would be independent of θ and equal to $1/\langle\tau_{\rm off}\rangle$. The situation is drastically changed for CdSe QDs due to the fact that $\mu_{\rm off} < 1$, $\langle\tau_{\rm off}\rangle$ no longer exists and $s(\theta)$ is then expected to decay as $\theta^{-(1-\mu_{\rm off})}$ [15]. This means that as time grows the switch on events occur less and less frequently. Figure 2(a) shows that our data match these theoretical predictions: the measured value of $s(\theta)$ decreases as $\theta^{-\alpha}$, with $\alpha = 0.5$ in agreement with the value $(1 - \mu_{\rm off})$ expected from our measurement of $\mu_{\rm off}$.

This nonstationary behavior can be understood by considering, for each QD, the quantity

$$\theta(N) = \sum_{i=1}^{N} \tau_{\rm off}^{(i)}, \qquad (1)$$

i.e., the total time spent in the off state during the N first off periods [Fig. 2(b)]. Assuming that the $\tau_{\rm off}^{(i)}$ are independent and $\tau_{\rm off}$ having no mean value, the sum of N such independent random variables must be evaluated by means of the generalized central limit theorem (see, e.g., [15]). This theorem states that $\theta(N)$, instead of scaling as N, grows more rapidly, as $N^{1/\mu_{\rm off}}$. As shown in Fig. 2(b), the sum $\theta(N)$ is dominated by few events. This central property, distinctive of Lévy statistics, means that, as time grows, one observes long events that are of the order of $\theta(N)$ itself [28]. Hence, the probability for a QD to switch on decreases with time: the system ages [20] and the signal is nonstationary.

To test the assumption that the off events are independent and to gain further insight into this aging effect, we computed the persistence probability $\Pi_0(\theta, \theta + \theta')$, defined as the probability that no switch on event occurs between θ and $\theta + \theta'$. In the case of independent off

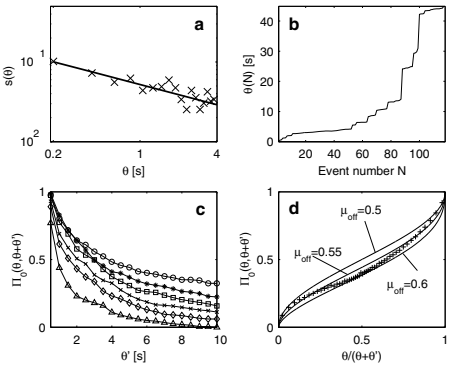


FIG. 2. Statistical aging measured from a sample of 215 QDs. (a) Logarithmic plot of the probability density $s(\theta)$ for a QD to jump in the on state after having spent a total time θ in the off state. The solid line is a power-law adjustment $\theta^{-\alpha}$ with $\alpha = 0.5$. (b) Evolution of the total time spent in the off state $\theta(N)$ with the number N of off periods for a given QD; the sum $\theta(N)$ is dominated by a few events of the order of $\theta(N)$ itself. (c) Persistence probability $\Pi_0(\theta, \theta + \theta')$ measured from the set of 215 QDs for $\theta = 0.1$ s (△), $\theta = 0.5$ s (◇), $\theta = 1$ s (×), $\theta = 2$ s (□), $\theta = 4$ s (*), and $\theta = 8$ s (○). $\Pi_0(\theta, \theta + \theta')$ depends on θ, indicating that the process is aging. (d) Persistence probability $\Pi_0(\theta, \theta + \theta')$ measured for θ and θ' ranging between 0 and 10 s with 0.1 s time bins and expressed as a function of $\theta/(\theta + \theta')$ (+). Each point corresponds to the average over 200 adjacent data points. The solid lines are the theoretical predictions for exponents $\mu_{\rm off} = 0.5$, $\mu_{\rm off} = 0.55$, and $\mu_{\rm off} = 0.6$.

periods with an exponential distribution (with mean value $\langle\tau_{\rm off}\rangle$), $\Pi_0(\theta, \theta + \theta')$ is independent of θ, and given by $e^{-\theta'/\langle\tau_{\rm off}\rangle}$, illustrating that the switching process is stationary. The computation of Π_0 from our data set reveals a completely different pattern: the probability that no switch on event occurs within a given duration θ' decreases with θ [Fig. 2(c)], consistent with the behavior of $s(\theta)$. Furthermore, $\Pi_0(\theta, \theta + \theta')$ is found to depend only on the reduced variable $\theta/(\theta + \theta')$ and to vanish for $\theta/(\theta + \theta')$ close to 0 [Fig. 2(d)]. This result proves that one has to wait a time θ' of the order of θ to have a chance to observe a switch on event, in qualitative agreement with the fact that the largest term of the sum $\theta(N)$ is of the order of $\theta(N)$ itself. Quantitatively, for independent off events distributed according to a Lévy distribution $P_{\rm off}$ with exponent $\mu_{\rm off}$, the persistence probability is expected to read

$$\Pi_0(\theta, \theta + \theta') = \int_0^{\theta/(\theta+\theta')} \beta_{\mu_{\rm off}, 1-\mu_{\rm off}}(u)du, \qquad (2)$$

where β is the beta distribution on $[0, 1]$ [20,29]. Our data follow this prediction with $\mu_{\rm off} = 0.55$, in agreement both with our previous estimations of $\mu_{\rm off}$ [Fig. 2(d)] and with the assumption that the off events

Phys. Rev. Lett. **90**, 120601 (2003).

are independent. These results show that the aging effect has a pure statistical origin and is not related to an irreversible process (such as photodestruction). Because of the statistical properties of Lévy distributions, nonstationarity emerges despite the time independence of the laws governing the microscopic fluorescence process.

From a more general standpoint, this nonstationary behavior also has profound consequences on basic data interpretation, such as the ensemble-averaged total fluorescence emitted by a population of QDs. We illustrated this by studying $\Phi_{\rm on}(t)$, the fraction of QDs in the on state at a given time t [Fig. 3(a)]. In the context of Lévy statistics, the time evolution of $\Phi_{\rm on}(t)$ is intimately linked to the relative amount of time spent in the on and off states for each QD. Qualitatively, the off events tend to be dominant whenever $\mu_{\rm off} < \mu_{\rm off}$ since $\theta(N) = \sum_{i=1}^{N} \tau_{\rm off}^{(i)}$ grows faster than its counterpart $\hat{\theta}(N) = \sum_{i=1}^{N} \tau_{\rm on}^{(i)}$. When analyzed in a more quantitative way, the fraction $\Phi_{\rm on}(t)$ can be shown to decrease asymptotically as $t^{\mu_{\rm off}-\mu_{\rm on}}$ [15]. Experimental results confirm this analysis: $\Phi_{\rm on}(t)$ decays as $t^{-\beta}$, with an exponent $\beta = 0.13$ indeed consistent with the previous determination of $\mu_{\rm on}$ and $\mu_{\rm off}$ [Fig. 3(a)]. We also observed that the average signal over the whole CCD detector, i.e., the sum of the fluorescence of all the QDs, decays as $t^{-0.18}$, in agreement (within experimental uncertainty) with the fact that time

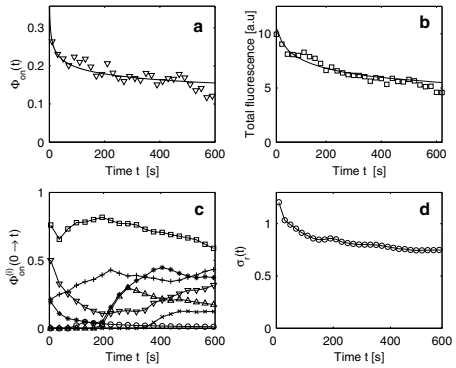


FIG. 3. Nonstationarity and nonergodicity in a sample of QDs. (a) Time evolution of the fraction $\Phi_{\rm on}(t)$ of QDs in the on state at time t ($\triangledown$). $\Phi_{\rm on}(t)$ decays as $t^{-0.13} = t^{\mu_{\rm off}-\mu_{\rm on}}$ (solid line). (b) Time evolution of the total fluorescence signal emitted by the sample ($\square$): the darkening effect follows a $t^{-0.18}$ power-law decay (solid line). (c) Typical time evolution of $\Phi_{\rm on}^{(i)}(0 \mapsto t)$—the fraction of time spent in the on state between 0 and t - for seven QDs. The time averages are widely fluctuating, even in the long integration time limit. (d) Evolution of the relative dispersion $\sigma_r(t)$ of $\Phi_{\rm on}^{(i)}(0 \mapsto t)$ at time t over the ensemble of QDs ($\bigcirc$). As time grows, $\sigma_r(t)$ tends to a constant value, illustrating that the time averages trajectories do not converge to any asymptotic value.

increasing, less and less QDs are in the on state, causing the total fluorescence to decrease as $\Phi_{\rm on}(t)$ [Fig. 3(b)]. Importantly, we also observed that this fluorescence decay is laser induced and reversible: after a continuous laser illumination of 10 min, leaving the sample in the dark for about 10–15 min systematically lead to a complete recovery of its initial fluorescence. This confirms that this decay is again purely statistical, and not related to an irreversible bleaching of the QDs.

Our final observation focuses on nonergodic aspects of random processes driven by Lévy statistics. Single particle measurements allow one to compare directly $\Phi_{\rm on}(t)$ and the fraction of time $\Phi_{\rm on}^{(i)}(0 \mapsto t)$ spent in the on state between 0 and t for the ith QD. This provides a direct test of the ergodicity of the QD fluorescence. While the ensemble average $\Phi_{\rm on}(t)$ decays deterministically as $t^{-0.13}$ [Fig. 3(a)], each time average widely fluctuates over time and for a given t, the values of $\Phi_{\rm on}^{(i)}$ are broadly distributed between 0 and 1, even after a long time of integration [Fig. 3(c)]. To study the behavior of time averages, we calculated the relative dispersion $\sigma_r(t)$ of the time averages at time t, where $\sigma_r(t)$ corresponds to the standard deviation of the distribution of $\Phi_{\rm on}^{(i)}(0 \mapsto t)$ over the set of QDs, divided by its mean value. Figure 3(d) shows that $\sigma_r(t)$ does not decay to zero, and is still of the order of 1 on the experimental time scale. Therefore, even for long acquisition times, the fluctuations of the time averages from QD to QD remain of the order of the time averages themselves and do not vanish as expected for ergodic systems. These data indicate ergodicity breaking: due to rare events with a duration comparable to the total acquisition time, there is no characteristic time scale over which physical observables can be time averaged. Even for long acquisition time, $\Phi_{\rm on}^{(i)}(0 \mapsto t)$ does not converge and no information on the ensemble value $\Phi_{\rm on}$ can be obtained by time averaging an individual trajectory.

While we found that accurate estimates of $\mu_{\rm on}$ and $\mu_{\rm off}$ are essential to analyze and predict the statistical properties of the fluorescence, the microscopic origin of these broad distributions is not yet established. Possible explanations are related to the general question of relaxation in disordered systems [14,20,30]. Distributions of off times are sometimes attributed to distributions of static traps from which the charge of an ionized QD escapes by tunneling effect [12,31]. In these models, the value of $\mu_{\rm off}$ strongly depends on microscopic characteristics of the QDs, and it is not clear how this is compatible with the statistical homogeneity of the different QDs suggested by the KS test. The dynamic changes of the particle environment are also often invoked to account for the fluctuating emission of the QD [13,32]. Some authors have thus suggested models in which the trap for the charge of the ionized QD follows a random walk in a 1D parameter space, yielding a universal value $1/2$ for $\mu_{\rm off}$ [13]. However, both of these models (static and dynamic) have yet to be more thoroughly tested.

Since intermittency is an ubiquitous process at the nanometer scale, some of the arguments discussed here for QDs might also apply to other systems. In particular, our analysis shows that nonstationary behavior of the fluorescence—sometimes attributed to photochemical processes—can also have purely statistical origins (such as statistical aging). Recent evidence has shown that this may be the case in a system as microscopically different from QDs as green fluorescent proteins [33]. In this respect, aging and nonergodicity might be an important pattern when studying single nanometer-sized objects in complex environments.

In conclusion, our experimental results show that ensemble-averaged fluorescence properties of individual CdSe QDs are deeply affected by the nonstandard statistical properties of the Lévy statistics governing the blinking process. We found that a population of QDs exhibit statistical aging. Hence, despite the fact that blinking statistics are time independent, the fluorescence emitted by an ensemble of QDs under continuous laser excitation is nonstationary. Our data also evidence that, due to the scaling properties of Lévy statistics, CdSe QDs are nonergodic systems: time- and ensemble-averaged properties do not coincide anymore, in full contrast with usual assumptions when studying nanoscale emitters.

We acknowledge fruitful discussion with F. Amblard, C. Cohen-Tannoudji., C. Godrèche, and J. M. Luck. We thank E. Giacobino for valuable comments on the manuscript.

*Unité de recherche de l'Ecole normale supérieure et de l'Université Pierre et Marie Curie, associée au CNRS.

[1] F. Reif, *Statistical and Thermal Physics* (McGraw-Hill, New York, 1985).
[2] A. Papoulis, *Probability, Random Variables and Stochastic Processes* (McGraw-Hill, New York, 1981).
[3] A. P. Alivisatos, Science **271**, 933 (1996); S. Empedocles and M.G. Bawendi, Acc. Chem. Res. **32**, 389 (1999).
[4] M. Bruchez *et al.*, Science **281**, 2013 (1998); W. C. W. Chan and S. M. Nie, Science **281**, 2016 (1998).
[5] P. Michler *et al.*, Nature (London) **406**, 968 (2000).
[6] V. I. Klimov *et al.*, Science **290**, 314 (2000).
[7] W. E. Moerner, Science **277**, 1059 (1997).
[8] R. M. Dickson *et al.*, Nature (London) **388**, 355 (1997).
[9] D. A. Vanden Bout *et al.*, Science **277**, 1074 (1997).
[10] K. D. Weston *et al.*, J. Chem. Phys. **109**, 7474 (1998).
[11] M. Nirmal *et al.*, Nature (London) **383**, 802 (1996).
[12] M. Kuno *et al.*, J. Chem. Phys. **112**, 3117 (2000); M. Kuno *et al.*, J. Chem. Phys. **115**, 1028 (2001).
[13] K. T. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 205316 (2001).
[14] M. Shlesinger, G. M. Zaslavskii, and U. Frisch, *Lévy Flights and Related Topics in pPhysics* (Springer-Verlag, Berlin, 1995).
[15] F. Bardou, J. P. Bouchaud, A. Aspect, and C. Cohen-Tannoudji, *Lévy Statistics and Laser Cooling* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 2001).
[16] J. P. Bouchaud and A. Georges, Phys. Rep. **195**, 127 (1990).
[17] A. Ott *et al.*, Phys. Rev. Lett. **65**, 2201 (1990).
[18] J. Klafter, M. F. Schlesinger, and G. Zumofen, Phys. Today **49**, 33 (1996).
[19] G. Zaslavsky, Phys. Today **53**, 39 (1999).
[20] J. P. Bouchaud and D. Dean, J. Phys. I (France) **5**, 265 (1995).
[21] B. B. Mandelbrot, *Fractals and Scaling in Finance* (Springer-Verlag, Berlin, 1997).
[22] V. Da Costa *et al.*, Eur. Phys. J. B **13**, 297 (2000)
[23] We spin coated a nanomolar solution of CdSe/ZnS QDs (1.8 nm core radius, 570 nm peak emission) on a glass coverslip, covered by a thin film of PMMA. The nanoparticles were excited using the 488 nm line of an Ar^+ laser at an intensity of 0.1 kW/cm^2. Their fluorescence was recorded using a CCD camera (CoolSnap, Roper Scientific). Using antibunching measurements [5,24] we had previously checked that, for these conditions of sample preparation, the surface concentration of the nanoparticles was low enough so that they could be detected individually.
[24] G. Messin *et al.*, Opt. Lett. **26**, 1891 (2001).
[25] In agreement with previous measurements [13], we also observed that the on periods display a truncation time τ_{trunc} after which P_{on} would fall more rapidly. However, for our experimental conditions, τ_{trunc} is greater than tens of seconds, fluctuating from QD to QD. On the time scale of our analysis, the occurrence of this truncation does not affect our results.
[26] See, e.g., *Numerical Recipes* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1993), 2nd ed.
[27] All the results shown in this Letter are found unchanged when working with a subset of QDs for which the average values of the KS test are as high as 0.62 (0.3) for P_{on} and 0.63 (0.30) for P_{off}, confirming the statistical homogeneity of the sample.
[28] This result is in striking contrast with the case of narrow distributions. For an exponential distribution ae^{-at}, the largest event is only of the order of $\log(N)/a$.
[29] C. Godrèche and J. M. Luck, J. Stat. Phys. **104**, 489 (2001).
[30] E. Montroll and J. T.Bendler, J. Stat. Phys. **34**, 129 (1984).
[31] R. Verberk, A. M. von Oijen, and M. Orrit (to be published).
[32] Y. Jung, E. Barkai, and R. J. Silbey, Adv. Chem. Phys. **123**, 199 (2002).
[33] F. Amblard (private communication).

2.6.3 *New Journal of Physics* 6, 99 (2004).

Colloidal CdSe/ZnS quantum dots as single-photon sources

X Brokmann[1], **G Messin**[1], **P Desbiolles**[1], **E Giacobino**[1], **M Dahan**[1] **and J P Hermier**[1,2]

[1] Laboratoire Kastler Brossel, École normale supérieure, Université Pierre et Marie Curie et CNRS, 24 rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France
[2] Fédération de Recherche Matériaux et Phénomènes Quantiques, Université Denis Diderot, 2 place Jussieu, 75251 Paris Cedex 05, France
E-mail: hermier@lkb.ens.fr

New Journal of Physics **6** (2004) 99
Received 29 March 2004
Published 29 July 2004
Online at http://www.njp.org/
doi:10.1088/1367-2630/6/1/099

Abstract. The fluorescence of colloidal CdSe/ZnS nanocrystals at room temperature exhibits a perfect antibunching under continuous or pulsed excitation. In this paper, we discuss the consequences of fluorescence properties of CdSe nanocrystals on the generation of single photons. In particular, we examine the role of Auger processes in the inhibition of multiexcitonic emission. We also discuss the relationship between Auger processes and the fluorescence intermittency of CdSe quantum dots. Altogether, features discussed here indicate that CdSe/ZnS nanocrystals are promising single-photon sources.

Contents

1. Introduction **2**
2. Experimental setup **2**
3. Results **3**
3.1. Fluorescence antibunching 3
3.2. Effects of Auger processes over single-photon emission 4
3.3. Fluorescence intermittency 6
4. Conclusion **7**
Acknowledgments **7**
References **7**

New J. Phys. **6**, 99 (2004).

1. Introduction

Single-photon emission has been demonstrated using the fluorescence of single emitters such as atoms [1], ions [2], organic molecules [3], semiconductor quantum dots [4]–[6] and nitrogen vacancy centres [7]. In the field of quantum information processing, single-photon sources could be used for quantum cryptography or optical quantum computation [8, 9].

Colloidal CdSe/ZnS core-shell nanocrystals have also been the focus of great attention because of their high quantum yield and high photostability at room temperature. These features make them promising emitters not only for quantum information but also for biological labelling [10] or the realization of devices such as thin-film LEDs or nanocrystal quantum dot (QD) lasers [11]–[13]. When observed individually, CdSe QDs exhibit remarkable properties. The fluorescence is known to exhibit fluorescence lifetime fluctuations [14], spectral shifts [15] and fluorescence intermittency resulting in the alternance of dark and bright periods [16]. Compared with atoms or molecules, CdSe/ZnS QDs provide opportunities to investigate new phenomena as well. The nanometre size of these QDs (radius <5 nm) permits the investigation of interactions between efficient multi-carriers known as Auger processes. Their effect on the fluorescence properties of CdSe QDs have previously been examined in detail for optical gain generation and lasing from CdSe QDs [11]–[13].

In this paper, we investigate the generation of single photons by colloidal CdSe/ZnS QDs under continuous (cw) and pulsed excitation, the latter being the regime used in quantum information protocols. First, we show that perfect antibunching can be obtained. Next, the nature of Auger processes and their role in single-photon emission are discussed. We show that the efficiency of these processes in nanometre-sized CdSe QDs is a clear advantage for triggered single-photon generation since it makes the light emission properties of CdSe nanocrystals similar to those of individual quantum systems such as single atoms or molecules. Finally, we discuss the implications of recent results concerning the fluorescence intermittency of colloidal CdSe QDs.

2. Experimental setup

In our experiments, colloidal CdSe/ZnS core/shell nanocrystals are chemically synthesized semiconductor nanoparticles with a mean radius of 1.7 nm and a peak wavelength emission about 560 nm. To collect the fluorescence of a single nanocrystal, samples are prepared by spin coating a nanomolar solution of quantum dots in butanol on a cleaned glass coverslip. After deposition, the mean distance between two nanocrystals is about 1 μm. The fluorescence emitted by a single nanocrystal under continuous or pulsed excitation is collected by a confocal microscope. For continuous wave excitation we used the 514 nm line of an Ar-ion laser. The pulsed excitation comes from a 400 nm pulsed laser diode whose pulse duration ($\tau_p = 50$ ps) is much shorter than the fluorescence lifetime $\tau_{rad} = 20$ ns of our CdSe QDs to suppress two-photon emission as far as possible. The energy per pulse could be continuously set from 0 to 5 pJ, and the pulse repetition period was set at 100 ns, a duration much longer than τ_{rad} to avoid the overlap of triggered photons generated by consecutive pulses. The fluorescence photons are collected by a high numerical apperture (NA) oil immersion objective (Olympus $\times 100$, apochromatic, NA $= 1.4$), which also focuses the excitation beam to the diffraction limit (waist $\sim$250 nm). Photons are then sent to a standard high sentistivity Hanbury-Brown and Twiss setup. It consists of a 50/50 non-polarizing

New J. Phys. **6**, 99 (2004).

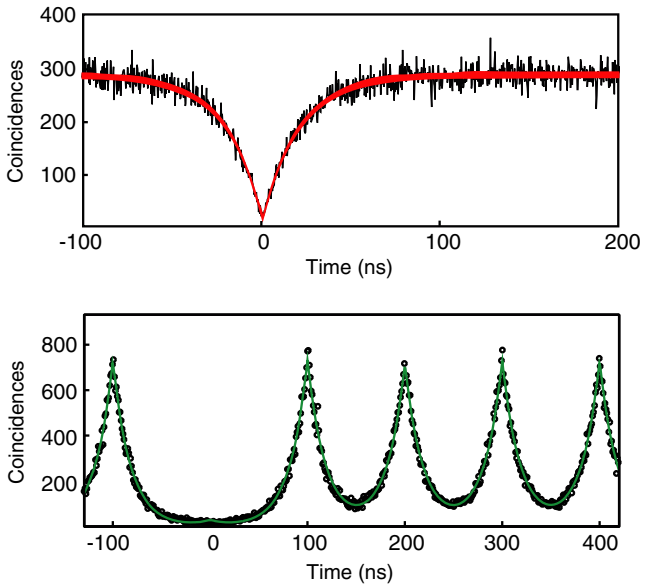


Figure 1. Histogram of coincidence counts of single QDs' fluorescence (○) after background correction under continous (a) or pulsed (b) excitation. (a) The red solid line is a fit yielding a 20 ns excited-state lifetime for this nanocrystal. (b) The blue solid line is a fit of the data, yielding a 22 ns excited-state lifetime for this nanocrystal.

beamsplitter and two (start/stop) photon avalanche photodiodes (APDs) with a time resolution of 300 ps. A picosecond time analyser (PTA, EG&G 91 38) provides the histogram of time delays between photons. We also introduced a delay of 200 ns in the stop channel to record the signal at negative correlation times.

3. Results

3.1. Fluorescence antibunching

First we analyse the autocorrelation function of the emitted light under pulsed or continuous excitation. Under cw excitation, our data are in agreement with [17]. The histogram of coincidence counts at short time scale given by the PTA exhibits a dip centred at zero delay (figure 1(a)). After correction for the background noise due to photodiodes, the antibunching amplitude is found to be greater than 99%. The adjustment of our experimental data lead to a value of $\tau_{rad} = 20$ ns. Under pulsed excitation, the autocorrelation function also shows few coincidence counts at zero delay (figure 1(b)). For all accessible pumping power, the value of the zero delay peak area is less than 0.05, systematically droping close to zero after substracting the background due to the APD dark counts. As for cw excitation, the value of τ_{rad} deduced from our experimental data is of the order of 22 ns.

New J. Phys. **6**, 99 (2004).

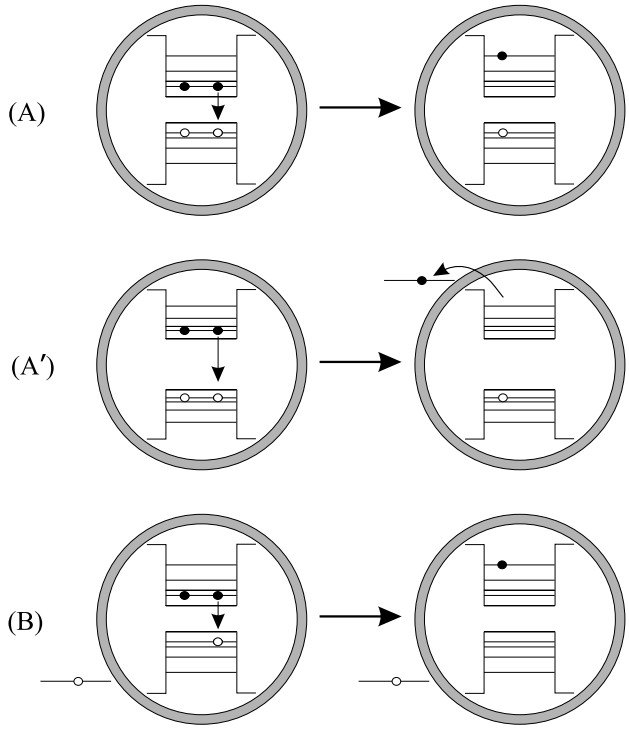


Figure 2. Scheme presenting Auger effects considered in this paper. In each process, one electron/hole pair does not decay radiatively. The energy recombination is transferred to the remaining carrier. (A) Auger relaxation of a biexciton in a neutral QD. The remaining excited carrier is still confined in the nanocrystal. (A') Autoionization of a neutral QD by Auger process. The remaining excited carrier is ejected from the QD. (B) Auger relaxation of a bi-exciton in a ionized QD leading to the QD extinction.

3.2. Effects of Auger processes over single-photon emission

The absence of photon coincidences at zero delay under pulsed and continuous excitation proves that colloidal CdSe QDs are perfect single-photon emitters at room temperature. The antibunching exhibited by the fluorescence of these solid-state sources is similar to that of a single quantum system such as an atom. QDs are often called artificial atoms since the three-dimensional confinement results in a discrete, atomic-like energy spectrum. Perfect antibunching strengthens this analogy. However, QDs exhibit an important difference with atoms or molecules. Multi-electron/hole pairs can be created by the excitation laser. The crucial point is that multi-excitonic states recombine non-radiatively due to the Auger effect as shown schematically in figure 2 (type *A* Auger effect). In this process, a ground-state bi-exciton decays to an excited monoexcitonic state without any photon emission. Subsequently, the excited carrier rapidly relaxes to its ground state in a couple of ps [19]. Recent experimental and theoretical results showed that, for CdSe QDs with radii ranging between 1.2 and 3.6 nm, the Auger process occurs in less

New J. Phys. **6**, 99 (2004).

than 100 ps [18, 19], much faster than $\tau_{rad} \sim 20$ ns. Auger recombination is thus the dominating relaxation process for multiexcitonic states.

Auger processes are much more efficient in nanometre-sized structures than in bulk materials for two reasons. First, for the bulk case, the maximum density of excitons corresponds to one exciton per excitonic volume $V \sim a_B^3$, where a_B is the Bohr radius of the exciton. Above this density, carriers do not form an exciton gas but a metallic plasma and strong screening effects reduce Coulomb interactions. In nanocrystals with a radius lower than a_B, several excitons can occupy a volume smaller than V, without the possibility of dynamic screening because of strong carrier confinement. The overlap between carrier functions is increased and Coulomb interactions are enhanced. Second, there is no wave vector carrier momentum conservation in QDs because of their nanometre size. Due to this non-conservation, which may be interpreted in terms of translation-symmetry breaking, Auger transitions which exhibit a low probability in bulk material are very efficient in QDs. Accurate calculations of Auger rates [19] confirm this picture.

The influence of the efficiency of Auger processes on colloidal CdSe QD fluorescence antibunching has already been invoked [17] for continuous excitation to explain the multiexcitonic emission suppression. Under pulsed excitation, the absence of the zero delay peak confirms that if the QD contains more than a single electron/hole pair after a pulse excitation, non-radiative recombination via process A is the preferential energy relaxation channel until a single electron/hole remains. Only the last pair can recombine radiatively and no more than one photon can be emitted after one pulse excitation.

The absence of multiexcitonic emission for high pumping power is specific to colloidal CdSe QDs. For epitaxially grown QDs, the suppression of radiative bi-exciton recombination requires low pumping. Close to saturation of the monoexcitonic emission, which is the regime called for efficient single-photon generation, radiative recombination of bi-excitons is always observed [6, 20]. As a result, epitaxially grown QDs require the use of spectral filtering which isolates the first exciton emission of a single QD from the bi-excitonic emission but also introduces optical losses. In terms of photon collection efficiency, a crucial parameter for the realization of a practical single-photon source [8], monoexcitonic emission thus provides a specific advantage to CdSe QDs. This benefit is reinforced by the high quantum yield of CdSe QDs at room temperature. Working at room temperature allows the use of high-NA immersion objective, leading to simple and efficient light collection. A detailed analysis [21] of the collection efficiency of our setup showed that 12.5% of the emitted photons were collected and detected, and that the probability to detect a photon per pulse was equal to 3%, much higher than the rate of 0.1% obtained for epitaxially grown QDs [22].

In addition to antibunching observed under continuous or pulsed excitation, light emission by single electron/hole pair recombination successfully explains the fluorescence saturation of a single emitter. Under continuous excitation, measurements on the fluorescence saturation were consistent with a two-level system [17]. Under pulsed excitation, we investigated the probability σ to excite the emitting transition versus the pump pulse power, knowing that this probability is crucial for the efficient generation of triggered single photons. To deliver a single photon per pump pulse, the probability σ to excite the emitter must be close to 1. Our results [21] showed that the variation of the photon emission intensity versus the excitation intensity can be fitted by an effective two-level model and an excitation probability greater than 0.95 can be obtained.

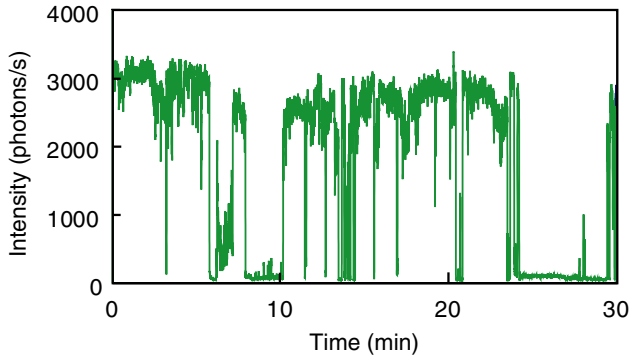


Figure 3. Time trace of a single QD fluorescence registered over 30 min with 100 ms time bins. 'On' and 'off' events with duration of the order of the acquisition time are likely to be observed due to power-law distributions.

3.3. Fluorescence intermittency

Due to Auger process A, colloidal CdSe QDs are similar to a two-level system in terms of single-photon generation and fluorescence saturation. However, the overall fluorescence properties of colloidal CdSe QDs are not identical to a simple two-level system. Resonant excitation is not required since efficient excitation has been observed for many wavelengths. CdSe QD fluorescence is also known to exhibit intermittency resulting in the alternance of dark and bright periods (figure 3) [16]. A statistical analysis of the intermittency reveals power-law distributions of the 'on' and 'off' times [23]–[25]. Consequences of these statistics have been analysed. Statistical aging and ergodicity breaking have been reported [26, 27]. In the field of quantum cryptography, the main problem is the random duration of bright and dark periods. 'On' and 'off' times have no mean value and very long 'off' events are observed (figure 3). These long dark periods are the main restriction for the use of colloidal CdSe QDs as single-photon emitters.

The origin of fluorescence intermittency has been studied in detail [24, 25, 28]. It is now commonly admitted that blinking arises from rare ionization events that eject a carrier from the QD [24, 25]. For simplicity, we will consider in the following that the hole is the ejected carrier. The ionized QD is non-fluorescent due to a multiparticle process between subsequent exciton and the remaining electron as shown schematically in figure 2 (type B Auger effect). An Auger ionization model was proposed earlier by Efros *et al* [28] to explain the QD fluorescence intermittency. The relaxation of a bi-excition following the Auger process presented in figure 2 (type A' Auger effect) was assumed to lead to ionization of the QD, which consequently became non-fluorescent. According to this model, single-photon emission and fluorescence intermittency would then be intimately linked, as suggested in [17]. However, recent results showed that process A' is probably not involved in the QD ionization [24, 25]. Ionization process A' would lead to a mono-exponential probability distribution of 'on' events [28], which is not consistent with the power-law distributions and the large dynamic range of time scale observed experimentally (from 100 μs to 100 s). Actually, electron or hole tunnelling to a fluctuating environment of trap sites is more probably at the origin of blinking [24, 25].

Although fluorescence intermittency has long been considered as an intrinsic property of CdSe QDs, very recent results [29] demonstrated that the intermittency of single QDs could be

New J. Phys. **6**, 99 (2004).

significantly reduced by chemical processes. Surrounding the QDs with a concentrated solution of molecules containing thiol groups (such as betamercaptoethanol or DTT) suppresses the blinking. This suppression is presumably due to the passivation of surface traps by thiol groups, which also confirms that Auger process A' is not the cause of QD ionization.

4. Conclusion

In conclusion, we have analysed the generation of single photons by colloidal CdSe QDs. At room temperature, due to the efficiency of Auger processes, the fluorescence of colloidal CdSe QDs exhibits a perfect antibunching under continuous or pulsed excitation. The collection of single photons is also both simple and efficient. The main drawback of colloidal CdSe/ZnS is their fluorescence intermittency although recent results showed that it could be partly suppressed. Auger processes also take part in the blinking mechanism but are probably not at the origin of the effect. Overall, CdSe/ZnS QDs appear as promising single-photon sources.

Acknowledgments

This work has been supported by the 'S4P' project from the European Union IST/FET/QIPC program, by the French project ACI Cryptologie from Ministre de la Recherche and by the French project Sesame Ouno from the Region Ile de France.

References

[1] Kimble K J, Dagenais M and Mandel L 1977 *Phys. Rev. Lett.* **39** 691
[2] Diedrich F and Walther H 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 203
[3] Lounis B and Moerner W E 2000 *Nature* **407** 491
[4] Michler P, Imamoglu A, Mason M D, Carson P J, Strouse G F and Buratto S K 2000 *Nature* **406** 968
[5] Santori C, Pelton M, Solomon G, Dale Y and Yamamoto Y 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1502
[6] Sebald K, Michler P, Passow T, Hommel D, Bacher G and Forchel A 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 2920
[7] Kurtsiefer C, Mayer S, Zarda P and Weinfurter H 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 290
[8] Gisin N, Ribordy G, Tittel W and Zbinden H 2002 *Rev. Mod. Phys.* **74** 145
[9] Knill E, Laflamme R and Milburn G 2001 *Nature* **409** 46
[10] Alivisatos A P 2004 *Nature Biotech.* **22** 47
[11] Klimov V I, Mikhailovsky A A, McBranch D W, Leatherdale C A and Bawendi M G 2000 *Science* **287** 1011
[12] Klimov V I, Mikhailovsky A A, Xu S, Malko A, Hollingsworth J A, Leatherdale C A, Eisler H J and Bawendi M G 2000 *Science* **90** 314
[13] Mikhailovsky A A, Malko A V, Hoolingsworth J A, Bawendi M G and Klimov V I 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 2380
[14] Schelgel G, Bohnenberger J, Potapova I and Mews A 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 137401
[15] Empedocles S A, Norris D J and Bawendi M G 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3873
[16] Nirmal M, Dabbousi B, Bawendi M G, Macklin J J, Trautman J K, Harris T D and Brus L E 1996 *Nature* **383** 802
[17] Lounis B, Bechtel H A, Gerion D, Alivisatos P and Moerner W E 2000 *Chem. Phys. Lett.* **329** 399
[18] Achermann M, Hollingsworth J A and Klimov V I 2003 *Phys. Rev.* B **68** 245302
[19] Wang L W, Califano M, Zunger A and Franceschetti A 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 056404
[20] Aichele T, Zwiller V, Benson O, Akimov I and Henneberger F 2003 *J. Opt. Soc.* B **20** 2189
[21] Brokmann X, Giacobino E, Dahan M and Hermier J P 2004 submitted for publication

New J. Phys. **6**, 99 (2004).

[22] Moreau E, Robert I, Grard J M, Abram I, Manin L and Thierry-Mieg V 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 2865
[23] Shimizu K T, Neuhauser R G, Leatherdale C A, Empedocles S A, Woo W K and Bawendi M G 2001 *Phys. Rev.* B **63** 205316
[24] Kuno M, Fromm D P, Hamann H F, Gallagher A and Nesbitt D J 2001 *J. Chem. Phys.* **115** 1028
[25] Kuno M, Fromm D P, Johnson S T, Gallagher A and Nesbitt D J 2003 *Phys. Rev.* B **67** 125304
[26] Messin G, Hermier J P, Giacobino E, Desbiolles P and Dahan M 2001 *Opt. Lett.* **26** 1891
[27] Brokmann X, Hermier J P, Messin G, Desbiolles P, Bouchaud J P and Dahan M 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 120601
[28] Efros A L and Rosen M 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1110
[29] Hohng S and Ha T 2004 *J. Am. Chem. Soc.* **126** 1324

2.6.4 *New Journal of Physics* 6, 92 (2004).

Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source

R Alléaume[1], F Treussart[1], G Messin[2], Y Dumeige[1], J-F Roch[1], A Beveratos[2], R Brouri-Tualle[2], J-P Poizat[2] and P Grangier[2]

[1] Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire, UMR 8537 du CNRS, ENS Cachan, 61 avenue du Président Wilson, 94235 Cachan Cedex, France
[2] Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, UMR 8501 du CNRS, F-91403 Orsay, France
E-mail: treussar@physique.ens-cachan.fr

New Journal of Physics **6** (2004) 92
Received 13 February 2004
Published 29 July 2004
Online at http://www.njp.org/
doi:10.1088/1367-2630/6/1/092

Abstract. We describe the implementation of a quantum key distribution (QKD) system using a single-photon source, operating at night in open air. The single-photon source at the heart of the functional and reliable set-up relies on the pulsed excitation of a single nitrogen-vacancy colour centre in a diamond nanocrystal. We tested the effect of attenuation on the polarized encoded photons for inferring the longer distance performance of our system. For strong attenuation, the use of pure single-photon states gives measurable advantage over systems relying on weak attenuated laser pulses. The results are in good agreement with theoretical models developed to assess QKD security.

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

Contents

1. Introduction **2**
2. Experimental set-up **3**
2.1. Single-photon emission 3
2.2. Implementation of the 'BB84' QKD protocol 4
3. Parameters of the QKD experiment **6**
3.1. Emission efficiency of the SPS and assessment of its sub-Poissonian statistics . 6
3.2. Parameters of Bob's detection apparatus 8
3.3. Evaluation of quantum bit error rate (QBER) 8
4. Experimental implementation of the 'BB84' QKD method **8**
4.1. Raw key exchange and sifted data 8
4.2. Key distillation from sifted data 9
5. Performance of the QKD set-up and resistance to losses **10**
6. Conclusion **12**
Acknowledgments **13**
References **13**

1. Introduction

Key distribution remains a central problem in cryptography, as encryption system security cannot exceed key security. Public key methods rely on computational difficulty [1]. They cannot, however, guarantee unconditional security against future algorithm or hardware advances.

As Bennett and Brassard first proposed 20 years ago [2], quantum physics can be used to build alternative protocols for key distribution (see [3] for a recent review). In their proposed 'BB84' scheme for quantum key distribution (QKD), a first user (Alice) sends a second user (Bob) a sequence of single photons on an authenticated channel. Each of them is independently and randomly prepared in one of the four polarization states, linear–vertical (V), linear–horizontal (H), circular–left (L) and circular–right (R). For each photon he detects, Bob picks randomly one of the two non-orthogonal bases to perform a measurement. He keeps the outcome of his measurement a secret and Alice and Bob publicly compare their basis choices. They retain only data for which polarization encoding and measurements were done in the same basis. In the absence of experimentally induced errors and eavesdropping, the set of data known by Alice and Bob should agree. Owing to the constraints on single-photon measurements laid by quantum physics, an eavesdropper (commonly named Eve) cannot gain even partial information without disturbing the transmission. The unavoidable errors introduced by Eve can be detected by the legitimate users of the quantum transmission channel. If the measured error rate is too high, no secret can be generated from the transmitted data. However, if the error rate remains within acceptable bounds, Alice and Bob can distill a secure secret key, unknown to Eve, using key reconciliation procedures. This perfectly secure key can then be used for data encryption.

Interest in experimental QKD has evolved from early proof-of-principle experiments [4, 5] to long-distance demonstrations on optical fibres [6, 7] as well as in free space [8]–[10] and now to commercial products (MAGIQ Technologies, Somerville, MA, USA; IDQUANTIQUE SA, Genève, Switzerland). Nevertheless, several technological and theoretical barriers still have to be overcome to improve the performance of current QKD systems. Most of them rely on weak

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

coherent pulses (WCPs) as an approximation to single photons. Such classical states are very simple to produce, but a fraction of them will contain two photons or more. Since information exchanges using such multiphotonic pulses can be spied on by potential eavesdropping strategies [11, 12], security hazard is introduced into the key distribution process. For QKD schemes relying on WCP, one has to throw away finally a part of the initially exchanged information, in proportion to what an eavesdropper could have learnt from it. Indeed, in WCPs' schemes, the probability for multiphotonic pulses is directly connected to the mean intensity of the initial pulse that must therefore be attenuated more and more to guarantee security as line losses become higher. Therefore either the transmission rate at long distance becomes vanishingly small or complete security cannot be guaranteed.

The use of a true single-photon source (SPS) presents an intrinsic advantage over WCPs' schemes since it potentially permits greater per-bit extraction of secure information. This advantage becomes significant for systems having high losses on the quantum transmission channel such as the envisioned satellite QKD [9]. Single-photon quantum cryptography has recently been implemented in two experiments [13, 14], which gave clear evidence for the advantage of SPS. Following the work of Beveratos *et al* [13], we have used a pulsed SPS, based on temporal control of the fluorescence of a single-colour nitrogen vacancy (NV) centre in a diamond nanocrystal. On the emitted polarized photons, we have then implemented the 'BB84' QKD method [2].

When compared with [13], our realization is closer to a practical QKD set-up. Quantum communication between Alice and Bob was realized in open air at night between the two wings of the Institut d'Optique's building. Thus the QKD set-up was operated with a realistic background light, in a configuration where Alice and Bob were two entirely remote parties communicating via a quantum transmission channel in free space and a classical channel using the internet. So as to bring our QKD experiment closer to practical reality, several technical aspects were also improved. Optimization of the polarization-encoding scheme allowed us to decrease the QBER to 1.7% and to decrease losses on Alice's side. This also led to a higher key exchange rate, which benefited from improvements in the collection efficiency of the emitted single photons. We also significantly increased the number of photons associated with each key exchange session. Error correction algorithms could then be applied with almost optimum efficiency. Finally, in addition to the improvements when compared with the previous experiments of [13], QKD sessions with different quantum channel attenuations were implemented to explore QKD resistance to loss.

In section 2, we describe the experimental set-up used to address single-colour centres and the QKD method based on polarization encoding on the emitted photons. Section 3 deals with the parameters of the QKD experiment. In section 4, we detail how the quantum key is extracted from raw data using QUCRYPT software [15]. Finally, in section 5, we discuss security models for absolute secrecy. We will show that, in a realistic regime corresponding to high losses in the quantum transmission channel, our single-photon QKD set-up has a measurable advantage over similar systems using WCP.

2. Experimental set-up

2.1. Single-photon emission

Much effort have been put in the realization of SPSs over the recent years. Since first proposals [16]–[18], a wide variety of schemes have been worked out, based on the control of fluorescence

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

from different kinds of emitters, such as molecules [19]–[22], atoms [23], colour centres [24] and semiconductor structures [25]–[32]. Our SPS is based on the pulsed excitation of a single NV colour centre [33, 34] inside a diamond nanocrystal [24, 35]. This type of emitter, which shares many similarities with the emission from molecules, has important practical advantages, since it can be operated at room temperature and is perfectly photostable for both cw and pulsed ns excitations.[3]

The nanostructured samples were prepared by a procedure described in [35], by starting with type Ib synthetic powder (de Beers, Netherlands). The diamond nanocrystals were size-selected by centrifugation, yielding a mean diameter of about 90 nm. A polymer solution (polyvinylpyrrolidone, 1 wt.% in propanol), containing selected diamond nanocrystals, was deposited by spin-coating on a dielectric mirror, resulting in a 30-nm-thick polymer layer holding the nanocrystals. The ultra-low fluorescing dielectric SiO_2/Nb_2O_5 mirrors (Layertec, Germany) were optimized to reflect efficiently the emission spectrum of an NV colour centre, which is centred on 690 nm (60 nm FWHM). Background fluorescence around the emission of a single NV colour centre was also strongly reduced by photobleaching after a few hours of laser illumination, while NV colour centre emission properties remained unaffected.

Under pulsed excitation with a pulse duration shorter than the excited-state lifetime (which, for the considered samples of NV colour centres, is distributed around 25 ns [35]), a single dipole emits single photons one by one [17, 18]. As described in [24], we used a home-built pulsed laser at 532 nm with a 0.8 ns pulse duration to excite a single NV colour centre. The 50 pJ energy per pulse is high enough to ensure efficient pumping of the emitting centre in its excited state. The repetition rate was set at 5.3 MHz so that successive fluorescent decays are well separated in time. The green excitation light was focused on the nanocrystals by a high-numerical aperture ($NA = 0.95$) metallographic objective. Fluorescent light is collected by the same objective. A long-pass filter (low cutting edge at 645 nm) was used to block the reflected 532 nm pump light. The stream of collected photons was then spatially filtered by focusing into a 100 μm diameter pinhole to ensure the confocality of the set-up. Linear polarization of the emitted photons was obtained by passing light through a polarizing cube. Since the fluorescence light emitted by a single colour centre is partially polarized, an achromatic half-wave plate was introduced in front of the cube. Its rotation allowed us to send that linearly polarized fraction of the NV fluorescence either towards Bob or towards two avalanche silicon photodiodes (APDs) arranged in a Hanbury Brown and Twiss configuration. This set-up was used to obtain a histogram of the delay between two consecutively detected photons (see figure 2), from which we inferred how far the source departs from an ideal SPS.

2.2. Implementation of the 'BB84' QKD protocol

We then implemented the 'BB84' QKD method, by coding the bits on polarization states of single photons. We used the horizontal–vertical (H–V) and circular left–circular right (L–R) polarization bases. Each of these polarization states was obtained by applying a given level of high voltage on a KDP electro-optical modulator (EOM; Linos LM0202, Germany). Home-built electronics provides fast driving of the high voltage, being capable of switching the 300 V

[3] Note that under femtosecond pulsed excitation, we observed the photo-induced creation of new colour centres [36] in a nanocrystal containing, initially, a single NV centre. Such behaviour under femtosecond laser illumination places some limitations on the use of sub-picosecond pulses to trigger single-photon emission.

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

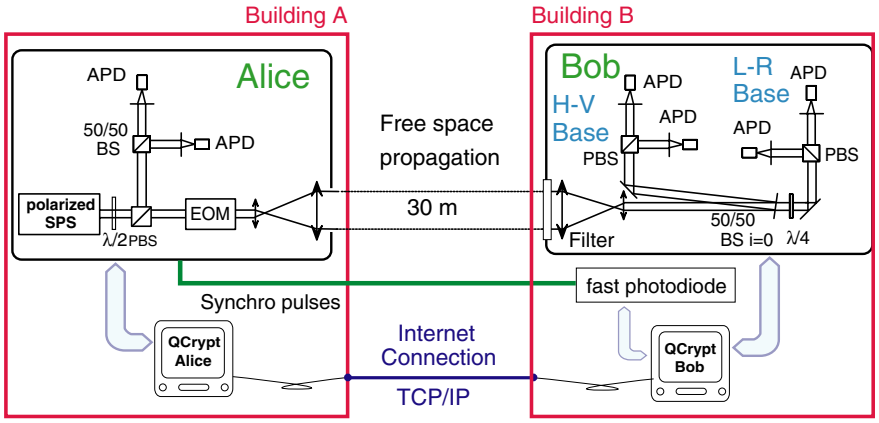


Figure 1. Experimental set-up for our quantum key distribution system based on a polarized SPS. This system corresponds to the implementation of the BB84 protocol. It was operated at night using a free space quantum channel between Alice and Bob and the internet as the classical channel. APD, silicon avalanche photodiode; BS, beam splitter; PBS, polarizing beam splitter; EOM, electro-optical modulator; $\lambda/2$, achromatic half-wave plate; $\lambda/4$, achromatic quarter-wave plate.

halfwave voltage of the EOM within 30 ns. In our key distribution, the sequence of encoded polarization bits was generated with hardware electronics, using two programmable electronic linear shift registers in the Fibonacci configuration. Each register gave a pseudo-random sequence of $2^{20} - 1 = 1\,048\,575$ bits, and the four 'BB84' states were coded with two bits, each of them belonging to one of the two pseudo-random sequences.

As shown in figure 1, quantum key distribution was realized between two parties, Alice and Bob, located in two remote wings of the Institut d'Optique's building (Orsay, France). Single photons were sent through the windows from one building to the other. To minimize diffraction effects, the beam was enlarged to a diameter of about 2 cm using an afocal set-up made of two lenses, before sending it through 30.5 m of open air. The transmitted photons were collected on Bob's side by a similar afocal set-up that reduced its diameter back to the original one.

On Bob's side, a combination of four Si-APDs was used to measure the polarization sent by Alice (see figure 1). The H–V or L–R basis was passively selected, as the single photons were either transmitted or reflected on a 50/50 beam splitter used at almost 0° incidence to avoid any mixing between the four polarization states. In the linear polarization detection basis H–V, the states H and V were simply discriminated by a polarizing beam splitter whose outputs were sent on to two APDs. For the circular L–R basis, an achromatic quarter-wave plate transformed the incoming circular polarizations into linear ones, which were finally detected with a polarizing beam splitter and two APDs.

The polarization state associated with each detection event on Bob's APDs was recorded by a high-speed digital I/O PCI computer card (National Instrument, PCI-6534). To remove non-synchronous APD dark counts, the reading of each detector output was synchronized with the excitation pulses. Since the pumping laser was driven by a stable external clock, this synchronization was achieved first by sending a small fraction of the excitation laser pulses

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

towards a fast photodiode on Bob's side. The photodiode output was reshaped into a 30 ns TTL-like pulse, which is electronically delayed, while the output electric pulses from each APD were reshaped to a constant 60 ns duration TTL-like pulse, eliminating any APD pulse width fluctuation. The acquisition card reads its state inputs on the falling edge of the synchronization pulse. Optimal setting of the electronic delay, therefore, ends up in a time-gated measurement of the APD outputs within a gate of 60 ns width.

The sequence of time-gated polarization state measurements constitutes Bob's raw key. It can be considered as the output of the 'quantum communication phase', which lasts for a period of 0.2 s. The remaining steps of the 'BB84' QKD method were purely classical ones. They consist in taking advantage of the quantum correlations between Alice's information and Bob's raw key in order to distill secrecy between these two parties. All these steps, detailed in section 4.2, were realized with the internet using TCP/IP method and the open source QUCRYPT software written by L Salvail (Aahrus University, Denmark) [15].

3. Parameters of the QKD experiment

The principal goal of our experiment was to bring together a realistic set-up to test the feasibility of single-photon open-air QKD. Experiments were carried out from the end of August 2003 to the middle of September 2003. The system was operated at night to keep the influence of background light (in our case, moon and public lighting) at a relatively low level. Our room temperature SPS proved its convenience and reliability in these experimental conditions. Note that for consistency reasons, all the data analysed in the present paper were obtained from the emission of a given single NV colour centre chosen for its strong emission rate. Keeping always this same centre allowed us to investigate consistently the effect of high attenuation on the quantum transmission channel.

3.1. Emission efficiency of the SPS and assessment of its sub-Poissonian statistics

Preliminary characterization of the SPS quality, performed on Alice's side, consists in measurement of the emission rate and reduction in probability of multiphotonic emissions, compared with an equivalent WCP having the same mean number of photons per pulse.

For a 0.2 s sequence of transmission and a pulsed excitation of 5.3 MHz, a total of 8.8×10^4 photons is recorded on Alice's side. By correcting from the APD efficiency $\eta_{\mathrm{APD}} = 0.6$, we can infer that the overall emission efficiency of the polarized SPS is about $\approx$2.8%. After polarization encoding in the EOM of transmission $T_{\mathrm{EOM}} = 0.90$ and transmission $T_{\mathrm{optics}} = 0.94$ through the optics of the afocal setup, the mean number of polarized single photons per pulse sent on the quantum channel was $\mu = 0.0235$.

Direct evidence for the reduction in multiphotonic emission probability comes from acquisition of the delays with the Hanbury Brown and Twiss set-up on Alice's side (figure 2). The photon statistics of the SPS can be quantified more precisely from Bob's measurements, which give the probability distribution of the number of photocounts within the 60 ns timeslots used for time-gated detection. To perform such evaluation, we have gathered the data corresponding to more than 40×10^6 pulses registered by Bob's acquisition card. For a given detection timeslot, probabilities for detecting one and two photons are respectively $P_{\mathrm{d}}(1) = 7.6 \times 10^{-3}$ and $P_{\mathrm{d}}(2) = 2.7 \times 10^{-6}$. From these numbers, we can infer the amount of reduction of multiphotonic emission probability with respect to the photon statistics of an equivalent WCP [18]. Note that

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

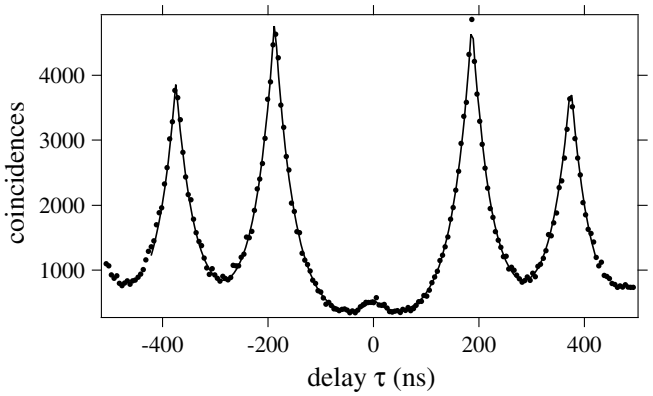


Figure 2. Histogram of time intervals between consecutive photon detection events in Alice's correlation set-up. Integration time is 175 s. Lines are exponential fits for each peak, taking into account the background level. Radiative lifetime given by the fit is 35 ns and the repetition period was 188 ns. The strong reduction in coincidences at zero delay gives evidence for single-photon emission by the excited colour centre.

one needs to take into account the fact that each avalanche photodiode cannot detect more than one photon per timeslot, due to their detection deadtime. From the configuration of the APDs detection scheme on Bob's side, the probability $P_{\mathrm{d}}(2)$ to detect two photons is only 5/8 of the probability for Bob to receive two photons, and the probability that two photons arrive on the same APD is 3/8.

The reduction factor $\mathcal{R}$ of the multiphotonic probability is therefore

$$\mathcal{R} = \frac{5}{8} \times \frac{P_{\mathrm{d}}(1)^2/2}{P_{\mathrm{d}}(2)} = 6.7. \tag{1}$$

This result agrees well with the sub-Poissonian reduction factor of 6.1 that can be inferred from the normalized area of figure 2, taking into account the 60 ns integration time and the lifetime of the emitter [24]. For security analysis and numerical simulations, a value of $\mathcal{R} = 6.7$ for the sub-Poissonian reduction factor will be taken, since it corresponds to a direct outcome of the photocounts record.

As it will be discussed in more detail in the section concerning security models, information leakage towards potential eavesdropper is directly linked to $S^{(\mathrm{m})}$, which is the probability per excitation pulse that a multiphotonic pulse leaves on Alice's side. For the equivalent WCP, that parameter is

$$S^{(\mathrm{m})}_{\mathrm{WCP}} = 1 - (1+\mu)\mathrm{e}^{-\mu} = 2.7 \times 10^{-4}, \tag{2}$$

whereas for the SPS, that parameter can be evaluated as

$$S^{(\mathrm{m})}_{\mathrm{SPS}} = \frac{1}{6.7}[1 - (1+\mu)\mathrm{e}^{-\mu}] = 4.1 \times 10^{-5}. \tag{3}$$

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

3.2. Parameters of Bob's detection apparatus

Probabilities for recording a photocount on one of Bob's detectors within a given timeslot is $p_{\text{exp}} \simeq 7.6 \times 10^{-3}$. Making the reasonable assumption that absorption in the 30 m open-air transmission beam is negligible and taking into account that $\mu = 0.0235$, one can obtain an estimate of the efficiency of Bob's detection apparatus as $\eta_{\text{Bob}} \simeq 0.3$.

Detector dark counts and fake photocounts due to stray light are responsible, on Bob's side, for errors in the key exchange process. As it will be discussed in more detail below, these errors contribute to the practical limit of secure transmission distance. Particular care was taken to protect Bob's APDs from stray light, using shielding and spectral filtering. Nevertheless, due to the broad emission spectrum of NV colour centres, benefit of spectral filtering was limited and the experiment could not be run under usual day light conditions. At night, the measured dark count rates on Bob's APDs (under experimental conditions after stopping the SPS beam), d_{H}, d_{V}, d_{L} and d_{R}, were 60, 70, 350 and 150 s^{-1}. Considering the ratio of the 60 ns detection timeslots compared with the 35 ns radiative lifetime of the NV colour centre, 82% of the SPS photons fall within the detection gate, whereas only 32% of the dark counts are introduced into the key exchange process. Thus the probability of a dark count record within a given detection timeslot is $p_{\text{dark}} = 3.8 \times 10^{-5}\ \text{s}^{-1}$.

3.3. Evaluation of quantum bit error rate (QBER)

QBER is computed by comparing Alice and Bob's data corresponding to the same polarization basis. Errors are due to two experimental imperfections of the system. First, non-ideal polarization encoding and detection can result in optically induced errors, which is proportional, by a factor α, to the rate of photodetection events $\mu\eta_{\text{t}}\,\eta_{\text{Bob}}$, where η_{t} stands for the transmission of the quantum channel. Secondly, dark counts of the APDs induce errors within the transmission sequence, the average of which is independent of the mean number of photons/pulse.

Following the analysis given in [12] and accounting for the specificities of our detection set-up on Bob's side, QBER e is given by

$$e = \alpha \frac{\mu\eta_{\text{t}}\,\eta_{\text{Bob}}}{p_{\text{exp}}} + \frac{p_{\text{dark}}}{p_{\text{exp}}}. \tag{4}$$

Measurements of QBER e for different quantum channel transmission values are given in table 1. The measured values of $e \times p_{\text{exp}}$ correlate well with η_{t} values in accordance with equation (4). A linear fit gives $\alpha = (13 \pm 2) \times 10^{-3}$ and $p_{\text{dark}} = (35 \pm 6) \times 10^{-6}$, a result compatible with a previous direct estimate. These values will be used in our subsequent numerical simulations.

4. Experimental implementation of the 'BB84' QKD method

4.1. Raw key exchange and sifted data

During a key transmission sequence lasting 0.2 s, Bob detects only a fraction $\eta_{\text{Bob}}\mu$ of the 1 048 575 bits initially encoded by Alice. Without any added attenuation on the quantum transmission channel, Bob detects on average 8000 bits, which constitute the initial raw data

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

Table 1. Measured experimental parameters as a function of quantum channel transmission η_t. To limit statistical fluctuations, values of the QBER e and p_{exp} have been computed on samples of at least 3000 bits, obtained by concatenation of several raw data samples.

η_t	Average size of raw data (bits)	p_{exp}	QBER (%)
1	8000	7.6×10^{-3}	1.7
0.50	4250	4.0×10^{-3}	2.2
0.25	2100	2.0×10^{-3}	3.2
0.13	1025	9.8×10^{-4}	4.2
0.057	395	3.8×10^{-4}	9.4

exchanged through the physical quantum channel. Starting with this shared information, Alice and Bob then extract a key by exchanging classical information for basis reconciliation. Bob reveals the index of the pulses for which a photocount has been recorded and publicly announces to which polarization basis (H–V or L–R) it belongs. Events corresponding to more than one photodetection on Bob's APDs are discarded, since they are ambiguous. Note that one should nevertheless impose an upper bound on the acceptable number for such events, so that discarding them does not introduce a backdoor for any eavesdropper. Considering the low number of multiple photodetection events in our experiment, such filtering does not introduce any practical limitation in the key distillation process. Alice then reveals which bits correspond to identical polarization bases and should be retained. This process ends up in sifted data; the size of sifted data $N_{sifted} \approx 4000$ bits is, on average, half of the size of Bob's recorded data.

4.2. Key distillation from sifted data

Sifted data shared by Alice and Bob have imperfect correlations as they are affected by errors. Also, they are not completely secure since an eavesdropper may have gained some information on exchanged bits during the quantum transmission sequence.

Starting with those data, complete secrecy is then obtained by error correction followed by privacy amplification [37]. This two-step procedure, which allows one to distill a secret key for the sifted data, is achieved throughout the IP network using the public domain software QUCRYPT [15].

QUCRYPT uses the algorithm CASCADE for error correction [38]. It implements an iterative dichotomic splitting of Alice and Bob sifted data into blocks and compares their parity to spot and correct the errors. This algorithm is optimized to correct all the errors while revealing a minimum number of bits. For a QBER e, the Shannon information

$$f(e) = -\log_2 e - (1-e)\log_2(1-e) \tag{5}$$

gives a lower bound on the amount of information that needs to be exchanged on the public channel to correct one error.

A random subset of 1% of the data used by QUCRYPT is taken to evaluate the QBER e. With such a length of tested data, the number of secure bits extracted from the sifted data fluctuates by less than 5% from one run of QUCRYPT to another. Moreover, for our data samples of a few

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

thousands of bits, CASCADE corrects errors with good efficiency. We indeed checked that the information disclosed to correct one error is only 10% greater than the limit imposed by the Shannon bound.

The total amount of information an eavesdropper may have gained on the sifted data is a crucial parameter for the final privacy amplification step. It is the sum of two contributions: the information classically disclosed during error correction added to the information that Eve may have gained during the quantum transmission. The latter part has to be evaluated according to the security requirement and model.

By setting an upper bound on the QBER in data processing by QUCRYPT, we ensure that all our QKD sessions are secure against a first class of attack. We set this bound to 12.5%, which corresponds to the minimum probability for Eve to introduce an error by performing measurements on a single pulse without knowing Bob's measurement basis [15].

More efficient and subtle attacks can be used. We therefore assessed the security of our data by the approach of N Lütkenhaus, who developed a theoretical framework for the secure experimental QKD implementations of the 'BB84' method [12]. In that model, all the errors including the ones due to photodiode dark counts, are interpreted as a possible source of information leakage towards an eavesdropper. Even though this security assumption is very strong, it has the nice feature of allowing us to establish a positive security proof for realistic experimental systems under an entire class of attacks, the so-called 'individual attacks'. The proof is based on the fact that Eve's optimal strategy is to perform a photon number splitting (PNS) attack on multiphotonic pulses, allowing her to finally extract all the information carried by those pulses. Under such working assumptions, numerical values for the QBER and for the source statistics allow one to calculate a bound on Eve's information and, thus, to assess the amount of secure key that can be shared by Alice and Bob.

Less drastic security assumptions (considering for example that Eve acquires no information on the key from dark counts) allow a wider range of parameters to be spanned for secure QKD. However, security analysis becomes in that case more complex, since the PNS attack strategy might not always be optimal [39]. We thus adopted the working assumptions of Lütkenhaus [12] for the practical estimate of QKD security.

Note also that alternative methods, more robust against the PNS attack than the 'BB84' method, have been proposed recently [40]. They might constitute an efficient way to increase the span of experimental QKD systems relying on WCPs. Under high attenuation of the quantum transmission channel, such schemes allow us to work with a higher mean number of photons per pulse μ, since information carried on two-photon pulses appears to be less vulnerable to eavesdropping. It would be interesting to compare the performance of SPSs with respect to WCPs for these alternative methods. Such an analysis is, however, beyond the scope of the present paper.

5. Performance of the QKD set-up and resistance to losses

Secure key distribution performance of the QKD system is characterized by the mean amount of secure information exchanged on each sent pulse. Experimental measurements of that parameter have been performed for different levels of losses in the quantum channel. The results were compared with numerical simulations based on the analytical derivation of the number of secure bits/pulse, G, after privacy amplification and error correction evaluated from the analysis

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

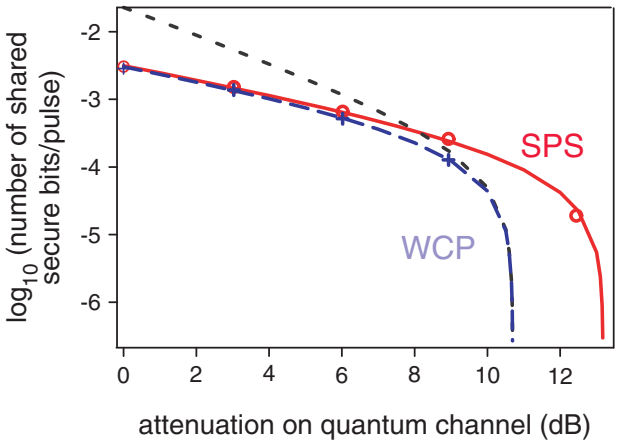


Figure 3. Simulation and experimental data for the number of exchanged secure bits per time slot versus attenuation in the quantum channel. Solid (red) and long-dashed (blue) lines correspond, respectively, to numerical simulations of equation (6) for SPS and WCP, using experimental parameters given in section 3. The short-dashed line is obtained by optimizing G with respect to μ in equation (6). It corresponds to the limit of WCP performance under our experimental conditions and security model.

in [12] and given by

$$G = \frac{1}{2} p_{\mathrm{exp}} \left\{ \frac{p_{\mathrm{exp}} - S^{(\mathrm{m})}}{p_{\mathrm{exp}}} \left(1 - \log_2 \left[1 + 4e \frac{p_{\mathrm{exp}}}{p_{\mathrm{exp}} - S^{(\mathrm{m})}} - 4 \left(e \frac{p_{\mathrm{exp}}}{p_{\mathrm{exp}} - S^{(\mathrm{m})}} \right)^2 \right] \right) + 1.1[\log_2 e + (1-e)\log_2(1-e)] \right\}. \quad (6)$$

Theoretical curves giving G versus attenuation on the quantum transmission channel are displayed in figure 3, together with experimental points. Measured experimental rates correspond to data samples large enough to ensure a statistical accuracy higher than 5%. They are in good agreement with theoretical curves showing that experimental parameters have been correctly assessed and that data samples are large enough for efficient error correction.

In the absence of attenuation, an average of 3200 secure bits can be exchanged within a 0.2 s transmission sequence. It corresponds to a rate of 16 kbits s^{-1} rate, double that of the first experimental realization [13]. As seen in figure 3, reduction in the proportion of multiphotonic pulses compared with WCP gives a significant advantage to our system, in the strong attenuation regime. Since our set-up is affected by the relatively high level of dark counts[4] and since we have adopted a restrictive security model, our system cannot work under attenuation stronger

[4] There are several reasons for that. The main one is inherent to the long emission lifetime of our SPS, forcing us to use a long (here 60 ns) detection window. There are two other reasons that coud be subject to improvement: we are using a passive determination of the detection basis on Bob's side, which increases dark counts by a factor of two, and two of our Si APDs have dark count rate higher than the common value of 70 Hz.

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

than 13 dB. It, however, allows us to directly check for the influence of the photon statistics on the experimental QKD system.

A first comparison consists in keeping a constant value of $\mu = 0.0235$ and calculating the effect of either sub-Poissonian or Poissonian statistics on the size of the final key. This directly relates to the comparison of the 'SPS' and 'WCP' curves in figure 3. When the system is operated with WCP, one can try to optimize G over μ for different attenuation values. However, even with this strategy (cf figure 3), it is clearly seen that our SPS overcomes WCP operated under the same experimental conditions, as soon as attenuation reaches 9 dB. In all cases, the maximum distance at which a secure key distribution can be guaranteed is increased by more than 2 dB.

Our SPS was compared with WCPs for the same photodetector dark count probability p_{dark}. It allowed us to evaluate directly the gain in performance due to reduction in the multiphotonic probability $S^{(m)}$. Such a comparison may seem unfair for WCP since the level of dark counts can be decreased by tighter temporal filtering. However, a long emission lifetime is not an intrinsic limitation of SPS-based QKD. Alternative systems like quantum dots exhibit sub-ns emission lifetimes [14]. However, they require operation at cryogenic temperatures. Concerning the properties of colour centres in diamond, we carefully investigated the distribution of their fluorescence lifetimes. We found a non-negligible fraction of single NV centres in diamond nanocrystals having lifetimes of about 10 ns, which is significantly shorter than the one presented in this paper. Use of other colour centres, such as the one recently reported in [41], is also a promising method to realize an SPS well suited for QKD.

6. Conclusion

In the present paper, we have demonstrated a free-space QKD set-up by the 'BB84' method. The system is based on a stable, simple and reliable pulsed SPS. The open-air experimental conditions under which it was operated are reasonably close to those for practical application. They might be extended to km distances using previously established techniques [10]. Advantages of SPS over equivalent WCPs have been assessed experimentally for increasing propagation losses. The results demonstrate quantitatively that QKD with SPS can have measurable advantages over QKD with WCP when transmission losses exceed 10 dB.

There clearly remains much room for improvement. For instance, SPS sources using quantum dots [28]–[31] are able to emit much shorter pulses with much narrower bandwidths compared with diamond NV colour centres. These properties are indeed very favourable for efficient QKD but currently require a cryogenic (liquid He) environment. This constraint makes quantum-dot-based QKD much less suitable for outdoor applications when compared with our SPS. This limitation can be overcome either by developing semiconductor quantum dots operating at higher temperature (e.g. with II–VI semiconductors) or by finding other colour centres with improved performances. Other improvements can also be foreseen on the protocol side [40], where both SPS and non-SPS sources deserve to be examined.

At present, neither colour-centre- nor quantum-dot-based SPS can operate at the telecom wavelength range of approx. 1550 nm. Given their emission wavelength, their main application is free-space QKD, especially QKD from a satellite [9]. Compactness and reliability then become major issues. Development of nanofabrication techniques should allow the realization of compact sources based on diamond nanocrystals. In any case, QKD systems have, in recent years, overcome many of the difficulties initially considered insurmountable. It is expected that the progress will continue in the near future.

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

Acknowledgments

We thank T Gacoin for realizing the NV-centre samples and L Salvail and M Tarizzo for assistance with the QUCRYPT software. We thank Mathieu Ferreira, Frédéric Moron and André Villing for their crucial contributions in improving the electronics and data acquisition setup. We also thank Robin Smith for studying the dispersion of NV centre emission lifetimes. This work was supported by the European Commission (IST/FET programme), by France Telecom R&D and by the 'ACI Jeunes Chercheurs' (Ministère de la Recherche et des Nouvelles Technologies).

References

[1] Diffie W and Hellman M E 1976 *IEEE Trans. Inform. Theory* **IT-22** 644
[2] Bennett C H and Brassard G 1984 *Proc. Int. Conf. on Computers, Systems and Signal Processing (Bangalore, India)* p 175
[3] Gisin N, Robordy G, Tittel W and Zbinden H 2002 *Rev. Mod. Phys.* **74** 145
[4] Bennett C H, Bessette F, Brassard G, Salvail L and Smolin J 1992 *J. Cryptol.* **5** 3
[5] Townsend P 1994 *Electron. Lett.* **30** 809
[6] Ribordy G, Brendel J, Gautier J-D, Gisin N and Zbinden H 2001 *Phys. Rev.* A **63** 012309
[7] Kosaka H, Tomita A, Nambu Y, Kimura T and Nakamura K 2003 *Electron. Lett.* **39** 1199
[8] Hughes R J, Nordholt J E, Derkacs D and Peterson C G 2002 *New J. Phys.* **4** 43
[9] Rarity J G, Tapster P R, Gorman P M and Knight P 2002 *New J. Phys.* **4** 82
[10] Kurtsiefer C, Zarda P, Halder M, Weinfurter H, Gorman P M, Tapster P M and Rarity J G 2003 *Nature* **419** 450
[11] Brassard G, Lütkenhaus N, Mor T and Sanders B C 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 1330
[12] Lütkenhaus N 2000 *Phys. Rev.* A **61** 052304
[13] Beveratos A, Brouri R, Gacoin T, Villing A, Poizat J-P and Grangier P 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 187901
[14] Waks E, Inoue K, Santori C, Fattal D, Vučković J, Solomon G and Yamamoto Y 2002 *Nature* **420** 762
[15] Nielsen P M, Schori C, Sorensen J L, Salvail L, Damgard I and Polzik E 2001 *J. Mod. Opt.* **48** 192; online at http://www.cki.au.dk/experiment/qcrypto/doc
[16] Imamoglu A and Yamamoto Y 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 210
[17] De Martini F, Di Giuseppe G and Marrocco M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 900
[18] Brouri R, Beveratos A, Poizat J-P and Grangier P 2000 *Phys. Rev.* A **62** 063814
[19] Brunel C, Lounis B, Tamarat P and Orrit M 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2722
[20] Lounis B and Moerner W E 2000 *Nature* **407** 491
[21] Treussart F, Alléaume R, Le Floc'h V, Xiao L T, Courty J-M and Roch J-F 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 093601
[22] Alléaume R, Treussart F, Courty J M and Roch J F 2004 *New J. Phys.* **6** in press
[23] Kuhn A, Hennrich M and Rempe G 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 067901
[24] Beveratos A, Kühn S, Brouri R, Gacoin T, Poizat J P and Grangier P 2002 *Eur. Phys. J.* D **18** 191
[25] Michler P, Kiraz A, Becker C, Schoenfeld W V, Petroff P M, Zhang L, Hu E and Imamoğlu A 2000 *Science* **290** 2282
[26] Santori C, Pelton M, Solomon G, Dale Y and Yamamoto Y 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1502
[27] Moreau E, Robert I, Gérard J-M, Abram I, Manin L and Thierry-Mieg V 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 2865
[28] Santori C, Fattal D, Vučković J, Solomon G and Yamamoto Y 2002 *Nature* **419** 594
[29] Pelton M, Santori C, Vučković J, Zhang B, Solomon G, Plant J and Yamamoto Y 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 233602
[30] Hours J, Varoutsis S, Gallart M, Bloch J, Robert-Philip I, Cavanna A, Abram I, Laruelle F and Gérard J-M 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 2206
[31] Vučković J, Fattal D, Santori C, Solomon G and Yamamoto Y 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 3596

New J. Phys. **6**, 92 (2004).

[32] Yuan Z, Kardynal B E, Stevenson R M, Shields A J, Lobo C J, Cooper K, Beattie N S, Ritchie D A and Pepper M 2002 *Science* **295** 102
[33] Kurtsiefer C, Mayer S, Zarda P and Weinfurter H 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 290
[34] Brouri R, Beveratos A, Poizat J-P and Grangier P 2000 *Opt. Lett.* **25** 1294
[35] Beveratos A, Brouri R, Gacoin T, Poizat J-P and Grangier P 2001 *Phys. Rev.* A **64** 061802
[36] Dumeige Y, Treussart F, Alléaume R, Gacoin T, Roch J-F and Grangier P 2004 *J. Lumin.* in press
[37] Bennett C H, Brassard G, Crépeau C and Maurer U M 1995 *IEEE Trans. Inform. Theory* **41** 1915
[38] Brassard G and Salvail L 1994 *Advances in Cryptology—EUROCRYPT '93* ed T Helleseth (*Lecture Notes in Computer Science* vol 765) (Berlin: Springer) p 410
[39] Curty M and Lütkenhaus N 2003 *Preprint* quant-ph/0311066
[40] Acin A, Gisin N and Scarani V 2004 *Phys. Rev.* A **69** 012309
[41] Gaebel T, Popa I, Gruber A, Domhan M, Jelezko F and Wrachtrup J 2004 *Preprint* quant-ph/0402213

2.6.5 *Science* 309, 454 (2005).

Controlled Single-Photon Emission from a Single Trapped Two-Level Atom

B. Darquié, M. P. A. Jones, J. Dingjan, J. Beugnon, S. Bergamini, Y. Sortais, G. Messin, A. Browaeys,* P. Grangier

By illuminating an individual rubidium atom stored in a tight optical tweezer with short resonant light pulses, we created an efficient triggered source of single photons with a well-defined polarization. The measured intensity correlation of the emitted light pulses exhibits almost perfect antibunching. Such a source of high-rate, fully controlled single-photon pulses has many potential applications for quantum information processing.

Implementing a deterministic or conditional two-qubit quantum gate is a key step toward quantum computation. Deterministic gates generally require a strong interaction between the particles that are used to carry the physical qubits (*1*). Recently, controlled-not gates have been realized with the use of trapped ions and incorporated in elaborate quantum algorithms (*2*–*4*). So far, individually addressed two-qubit gates have not been demonstrated with neutral atoms. Promising results have been obtained on entangling neutral atoms with the use of cold controlled collisions in an optical lattice (*5*), but the single-qubit operations are difficult to perform in such a system.

Another approach is to bypass the requirement for a direct interaction between the qubits and use instead an interference effect and a measurement-induced state projection to create the desired operation (*6*, *7*). An interesting recent development of this idea is the use of photon detection events to create entangled states of two atoms (*8*–*10*). This provides "conditional" quantum gates, where the success of the logical operation is heralded by appropriate detection events. These schemes can be extended to realize a full controlled-not gate, or a Bell-state measurement, or more generally to implement conditional unitary operations (*8*, *11*). They could be implemented by using, for instance, trapped ions (*12*) or atoms in microscopic dipole traps. These proposals require the controlled emission of indistinguishable single photons by at least two identical emitters.

Various single-photon sources have been implemented using solid-state systems as well as atoms or ions. Solid-state systems such as single molecules, nitrogen-vacancy centers in diamond, and quantum dots allow high single-photon rates (*13*). However, realizing truly identical sources is a major problem for such systems because of inhomogeneities in both the environment of the emitters and the emitters themselves. Another approach is provided by sources based on neutral atoms (*14*, *15*) or ions (*16*) strongly coupled to a mode of a high-finesse optical cavity. Such sources are spectrally narrow, and the photons are emitted into a well-defined spatial mode, thus opening the way to coherent coupling of the quantum state of single atoms and single photons. However, the rate at which the system can emit photons is limited by the cavity and is often low in practice. Moreover, the need to achieve the strong coupling regime of cavity quantum electrodynamics remains a demanding experimental requirement.

We present a triggered single-photon source based on a single rubidium atom trapped at the focal point of a lens with a high numerical aperture of 0.7. We also show that we have full control of the optical transition by observing Rabi oscillations. Under these conditions, our system is equivalent to the textbook model formed by a two-level atom driven by monochromatic light pulses. Previous work has shown that by using holographic techniques one can create arrays of dipole traps, each containing a single atom, which can be addressed individually (*17*). The work presented here can therefore be directly scaled to two or more identical emitters.

We trapped the single rubidium-87 atom at the focus of the lens using a far-detuned optical dipole trap (810 nm), loaded from an optical molasses. The same lens was used to collect the fluorescence emitted by the atom (Fig. 1). The experimental apparatus is described in more detail by Schlosser *et al.* (*18*, *19*). A crucial feature of our experiment is the existence of a "collisional blockade" mechanism (*19*) which allows only one atom at a time to be stored in the trap; if a second atom enters the trap, both are immediately ejected. In this regime, the atom statistics are sub-Poissonian and the trap contains either one or zero (and never two) atoms, with an average atom number of 0.5.

The trapped atom was excited with 4-ns pulses of laser light, resonant with the $S_{1/2}$, $F = 2 \rightarrow P_{3/2}$, $F' = 3$ transition at 780.2 nm. The laser pulses were generated by frequency doubling pulses at 1560 nm, generated by using an electrooptic modulator to chop the output of a continuous-wave diode laser. A fiber amplifier was used to boost the peak power of the pulses before the doubling crystal. The repetition rate of the source was 5 MHz.

Fluorescence photons were produced by spontaneous emission from the upper state, which has a lifetime of 26 ns. The pulsed laser beam was right-circularly polarized (σ^+-polarized) with respect to the quantization axis defined by a magnetic field applied during the excitation. The trapped atom was optically pumped into the $F = 2$, $m_F = +2$ ground state by the first few laser pulses. It then cycled on the $F = 2$, $m_F = +2 \rightarrow F' = 3$, $m_{F'} = +3$ transition, which forms a closed two-level system emitting σ^+-polarized photons. Impurities in the polarization of the pulsed laser beam with respect to the quantization axis, together with the large bandwidth of the exciting pulse (250 MHz), resulted in off-resonant excitation to the $F' = 2$ upper state, leading to possible de-excitation to the $F = 1$ ground state. To counteract this, we added a repumping laser resonant with the $F = 1 \rightarrow F' = 2$ transition. We checked that our two-level description was still valid in the presence of the repumper by analyzing the polarization of the emitted single photons (supporting online material text).

The overall detection and collection efficiency for the light emitted from the atom was measured to be 0.60 ± 0.04%. This was obtained by measuring the fluorescence rate of the atom for the same atomic transition driven by a continuous-wave probe beam and confirmed by a direct measurement of the transmission of our detection system (SOM text).

For a two-level atom and exactly resonant square light pulses of fixed duration T, the probability that an atom in the ground state

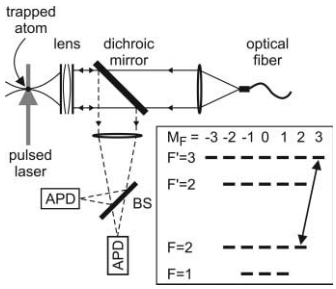


Fig. 1. Schematic of the experiment. The same lens is used to focus the dipole trap and collect the fluorescence light. The fluorescence is separated by a dichroic mirror and imaged onto two photon-counting avalanche photodiodes (APD), placed after a beam-splitter (BS). The insert shows the relevant hyperfine levels and Zeeman sublevels of rubidium-87. The cycling transition is shown by the arrow. Also shown is the nearby $F' = 2$ level responsible for the depumping.

Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (UMR 8501), Bâtiment 503, Centre Universitaire, 91403 Orsay, France.

*To whom correspondence should be addressed. E-mail: antoine.browaeys@iota.u-psud.fr

Science **309**, 454 (2005).

will be transferred to the excited state is $\sin^2(\Omega T/2)$, where the Rabi frequency Ω is proportional to the square root of the power. Therefore, the excited state population and hence the fluorescence rate oscillates as the intensity is increased. To observe these Rabi oscillations, we illuminated the trapped atom with the laser pulses during 1 ms. We kept the length of each laser pulse fixed at 4 ns, with a repetition rate of 5 MHz, and measured the total fluorescence rate as a function of the laser power. The Rabi oscillations are clearly visible on our results (Fig. 2). From the height of the first peak and the calibrated detection efficiency measured previously, we derived a maximum excitation efficiency per pulse of 95 ± 5%.

The reduction in the contrast of the oscillations at high laser power is mostly due to fluctuations of the pulsed laser peak power. This is shown by the theoretical curve in Fig. 2, based on a simple two-level model. This model shows that the 10% relative intensity fluctuations that we measured on the laser beam are enough to smear out the oscillations as observed.

The behavior of the atom in the time domain can be studied by using time-resolved photon-counting techniques to record the arrival times of the photons relative to the excitation pulses, thus constructing a time spectrum. By adjusting the laser pulse intensity, we observe an adjustable number of Rabi oscillations during the duration of the pulse, followed by the free decay of the atom once the laser has been turned off. The effects of pulses close to π, 2π, and 3π are displayed as inserts in Fig. 2 and show the quality of the coherent control achieved on a single atom.

To use this system as a single photon source, the laser power was set to realize a π pulse. To maximize the number of single photons emitted before the atom was heated out of the trap, we used the following sequence. First, we detected the presence of an atom in the dipole trap in real time using its fluorescence from the molasses light. Then, the magnetic field was switched on and we triggered an experimental sequence that alternated 115-μs periods of pulsed excitation with 885-μs periods of cooling by the molasses light (Fig. 3). The repumping laser remained on throughout, and the trap lifetime during the sequence was measured to be 34 ms. After 100 excitation/cooling cycles, the magnetic field was switched off and the molasses was turned back on until a new atom was recaptured and the process began again. On average, three atoms were captured per second under these conditions. The average count rate during the excitation was 9600 s^{-1}, with a peak rate of 29,000 s^{-1} (corresponding to twice the first peak in Fig. 3).

To characterize the statistics of the emitted light, we measured the second-order temporal correlation function, using a Hanbury Brown and Twiss type set-up. To do this, we used the beam splitter in the imaging system (Fig. 1), which sent the fluorescence light to two photon-counting avalanche photodiodes that were connected to a high-resolution time-to-digital conversion counting card in a start-stop configuration (resolution of about 1 ns). The card was gated so that only photons scattered during the 115 μs periods of pulsed excitation were counted, and the number of coincidence events was measured as a function of delay. The histogram obtained after 4 hours of continuous operation is displayed in Fig. 4 and shows a series of spikes separated by the period of the excitation pulses (200 ns). The $1/e$ half width of the peaks is 27 ± 3 ns, in agreement with the lifetime of the upper state. No background correction was done on the displayed data. The small flat background is attributed to coincidences between a fluorescence photon, and an event coming either from stray laser light (about 175 counts/s), or dark counts of the avalanche photodiodes (about 150 counts/s). When we correct for these events, the integrated residual area around zero delay is 3.4 ± 1.2% of the area of the other peaks.

We calculated (*20*) that under our experimental conditions, the probability to emit exactly one photon per pulse is 0.981, whereas the probability to emit two photons is 0.019. These two-photon events would show up in the correlation curve as coincidences close to zero delay (still with no coincidences at exactly zero delay). From our calculation, the value for the ratio of the area around zero delay to the area of the other peaks is 3.7%, in excellent agreement with the experimental results.

Finally, we discuss the coherence properties of the emitted photons, necessary for entanglement protocols based on the interference between two emitted photons, either from the same atom or from different atoms. As our collection optics are diffraction limited, the outgoing photons should be in a single spatial mode of the electromagnetic field. As far as temporal coherence is concerned, the main limiting factor appears to be the motion of the atom in the trap, which can be controlled by optimized cooling sequences. We then anticipate that our source should be Fourier limited by the lifetime of the excited state. We are now working to characterize the coherence of our single-photon source and to use it to observe multiple atom interference effects.

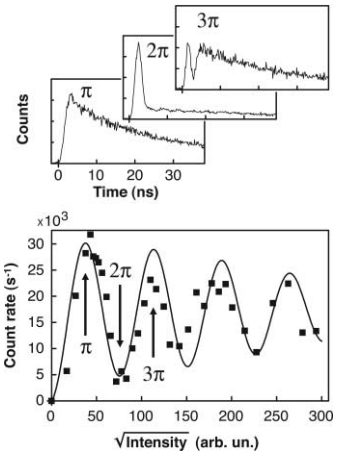


Fig. 2. Total count rate (squares) as a function of the average power of the pulsed beam, for a fixed pulse length of 4 ns and a repetition rate of 5 MHz. The solid line is a theoretical curve based on a simple two-level model that includes spontaneous emission and intensity fluctuations. The inserts show the time spectra for the laser intensities corresponding to π, 2π, and 3π pulses. arb. un., arbitrary units.

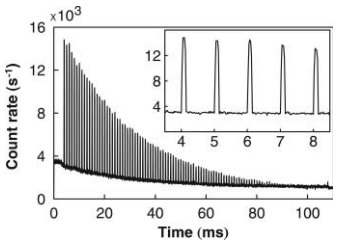


Fig. 3. Fluorescence signal measured by one of the two photodiodes during the experimental sequence, averaged over 22,958 cycles. Peaks are observed corresponding to the 115-μs periods of pulsed excitation, separated by periods of lower fluorescence induced by the molasses light during the 885 μs of cooling. The exponential decay of the signal is due to the lifetime of the atom in the trap, which is 34 ms under these conditions. (Insert) A close-up of the signal clearly shows the alternating excitation and cooling periods.

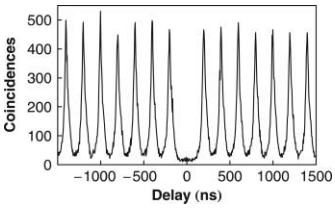


Fig. 4. Histogram of the time delays in the start-stop experiment. The histogram has been binned 4 times, leading to a 4.7-ns time resolution. No correction for background has been made. The absence of a peak at zero delay shows that the source is emitting single photons. During the 4-hour experimental run, 43,895 sequences were completed, which corresponds to a total of 505 s of excitation. A total of 4.83×10^6 photons were detected by the two photodiodes.

Science **309**, 454 (2005).

References and Notes

1. P. Zoller, J. I. Cirac, L. Duan, J. J. García-Ripoll, in *Les Houches 2003: Quantum Entanglement and Information Processing*, D. Estève, J.-M. Raimond, J. Dalibard, Eds. (Elsevier, Amsterdam, 2004), pp. 187–222.
2. M. Riebe *et al.*, *Nature* **429**, 734 (2004).
3. M. D. Barrett *et al.*, *Nature* **429**, 737 (2004).
4. J. Chiaverini *et al.*, *Nature* **432**, 602 (2004).
5. O. Mandel *et al.*, *Nature* **425**, 937 (2003).
6. E. Knill, R. Laflamme, G. J. Milburn, *Nature* **409**, 46 (2001).
7. J. P. Dowling, J. D. Franson, H. Lee, G. J. Milburn, *Quantum Inf. Process.* **3**, 205 (2004).
8. I. Protsenko, G. Reymond, N. Schlosser, P. Grangier, *Phys. Rev. A.* **66**, 062306 (2002).
9. C. Simon, W. T. M. Irvine, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 110405 (2003).
10. L.-M. Duan, H. J. Kimble, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 253601 (2003).
11. Y. L. Lim, A. Beige, L. C. Kwek, in press; preprint available at http://arXiv.org/abs/quant-ph/0408043.
12. B. B. Blinov, D. L. Moehring, L.-M. Duan, C. Monroe, *Nature* **428**, 153 (2004).
13. Single Photons on Demand, P. Grangier, B. Sanders, J. Vukovic, Eds. *New J. Phys.* **6**, 85–100, 129–163 (2004).
14. A. Kuhn, M. Hennrich, G. Rempe, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 067901 (2002).
15. J. McKeever *et al.*, *Science* **303**, 1992 (2004).
16. M. Keller, B. Lange, K. Hayasaka, W. Lange, H. Walther, *Nature* **431**, 1075 (2004).
17. S. Bergamini *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 1889 (2004).
18. N. Schlosser, G. Reymond, I. Protsenko, P. Grangier, *Nature* **411**, 1024 (2001).
19. N. Schlosser, G. Reymond, P. Grangier, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 023005 (2002).
20. We performed a full calculation of the second-order correlation function using the Heisenberg-Langevin equations, which gives the areas of the peaks. We also calculated the photon emission probabilities using density matrix and Monte Carlo methods, which lead to the same result.
21. We thank P. Georges for his assistance in designing the pulsed laser system. This work was supported by the European Union through the Information Society Technologies/Future and Emerging Technologies/ Quantum Information Processing and Communications project "QGATES" and the Research Training Network "CONQUEST."

Supporting Online Material
www.sciencemag.org/cgi/content/full/309/5733/454/DC1
SOM Text

11 April 2005; accepted 25 May 2005
10.1126/science.1113394

Supporting Online Material :

Polarization analysis of the emitted single photons

As explained in the main text, polarization imperfections lead to a depumping process to the $F = 1$ ground state. A repumping laser is used to counteract this process and minimize deviations from the two-level behavior.

To check the validity of our two-level description, we have investigated the effect of impurities in the polarization of the pulsed laser beam with respect to the quantization axis. We measure that on average the atom is pumped into the $F = 1$ ground state by spontaneous emission after 120 excitations. In the presence of the repumping light, a rate equation model of the repumping process (including the repumping laser as well as the pulsed excitation) shows that the atom spends more than 90% of its time on the cycling $F = 2, m_F = +2 \rightarrow F' = 3, m'_F = +3$ transition, as desired.

In addition, we have measured the polarization of the emitted light, using a polarizer to select fluorescence light either polarized perpendicularly ($\perp$) or parallel ($\parallel$) to the quantization axis. For a narrow collection angle, $\perp$ would correspond to the circularly polarized photons emitted on the cycling transition, and $\parallel$ to π polarized photons. Here, the measured contrast $(R_\perp - R_\parallel)/(R_\perp + R_\parallel) = 72(\pm 2)\%$, where $R_\perp$ and $R_\parallel$ are the count rates perpendicular and parallel to the quantization axis respectively. The largest part of this depolarization is actually due to the very large numerical aperture (N.A. = 0.7) of the collection lens, which decreases to 77 % the maximum contrast obtainable for purely σ-polarized fluorescence. From the measured contrast of 72%, we calculate that 3% of the collected photons are π-polarized and we attribute this to photons induced by the depumping-repumping processes. This number is compatible with the results of the rate equation model discussed in the previous paragraph.

Collection and detection efficiency

The overall collection and detection efficiency of $(0.60 \pm 0.04)\%$ is obtained by measuring the fluorescence rate of the atom as a function of the power of a continuous-wave probe beam. Since the saturated photon emission rate for a closed two-level system is $\Gamma/2$, where Γ is the inverse of the natural lifetime, the collection and detection efficiency can be obtained directly from the measured count rate.

This value is compatible with that obtained from a direct evaluation of the transmission of our detection system. The transmission of our lens is measured to be 87% and its collection solid angle is $0.15 \times 4\pi$ sr. Because the emission pattern for σ^+-polarized photons is not isotropic, the effective solid angle of collection must be corrected by a factor of 85%. The transmission of the optical elements in the imaging system is 58%. Finally the light passes through a pinhole before illuminating the avalanche photodiode. The largest uncertainty is in the combination of the pinhole transmission and photodiode quantum efficiency, which is estimated to be around 10%. Multiplying all factors gives an overall collection and detection efficiency compatible with the 0.6% quoted above.

Chapitre 3

Sources de paires de photons pour la téléportation quantique

3.1 Introduction

La téléportation quantique a été introduite comme un protocole de transfert quantique d'information [16] utilisant les corrélations à distance d'une paire de particules intriquées et séparées spatialement, ou paire EPR en référence au fameux paradoxe soulevé par Einstein, Podolsky et Rosen [71]. Son apparition suit celle des notions de cryptographie quantique et de calculateur quantique. A la suite des travaux de Deutsch sur les calculateurs quantiques [72], Ekert, poussé par l'idée que le traitement de l'information et les lois de la physique sont indissociables, propose en 1991 une alternative au protocole de cryptographie BB84 [13] reposant sur la complétude de la mécanique quantique et utilisant des paires EPR [73]. Il est rapidement établi que ce protocole est en fait équivalent à BB84 [74], mais l'idée d'utiliser des paires EPR fait son chemin [75] et conduit les auteurs de BB84 et quelques autres à formuler en 1993 leur protocole de « téléportation quantique » [16]. Il a été réalisé pour la première fois en 1997 par l'équipe de Zeilinger avec des photons, en utilisant une source de paires de photons [76]. En 2004, les équipes de Blatt et Wineland réalisent simultanément le protocole avec des ions piégés [77].

Dans sa version originale, la téléportation quantique permet le transfert de l'état d'un système physique à deux niveaux, vers un autre système physique à deux niveaux. L'état d'un système à deux niveaux, que l'on peut noter $|0\rangle$ et $|1\rangle$ permet de coder un bit d'information. La possibilité ouverte par la mécanique quantique de préparer le système dans n'importe quelle superposition $|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$ des deux états $|0\rangle$ et $|1\rangle$ en fait un « bit quantique » d'information. La téléportation apparaît ainsi comme un système de communication de bits quantiques. Les variantes de la téléportation sont nombreuses, comme le font apparaître les articles précurseurs [73, 75] et comme le soulignait déjà l'article fondateur [16], l'ingrédient essentiel étant toujours la source d'état EPR. Les applications les plus évidentes concernent la cryptographie quantique et en particulier, si l'on dispose de mémoires quantiques permettant de conserver en un endroit donné un bit d'information quantique, il est possible d'enchaîner plusieurs dispositifs de téléportation qui constituent autant de « relais quantiques ». La téléportation peut également être utilisée dans le cadre du traitement quantique de l'information et constitue en elle-même une opération de calcul quantique [78, 79].

Le groupe du *Massachusetts Insitute of Technology* (MIT) dans lequel j'ai effectué un post-doc en 2001-2002 poursuit un projet de recherche à long terme, en collaboration avec une équipe de *Northwestern University* (NU), pour développer une architecture complète de communication quantique à longue distance utilisant des mémoires quantiques reliées entre elles par des canaux de communication par téléportation [80].

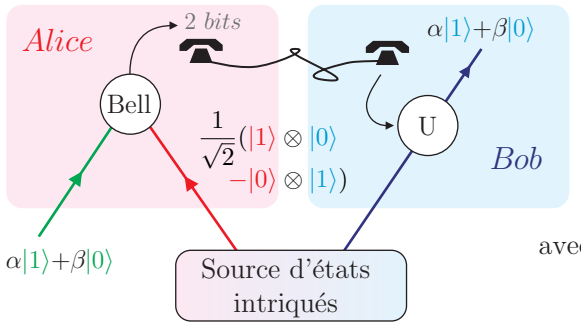
Je présente dans ce qui suit, après un bref exposé du protocole de téléportation, les principes de l'architecture du projet MIT-NU. Je m'attache ensuite à décrire les études menées au MIT auxquelles j'ai participées et qui portent sur l'utilisation de cristaux non linéaires $\chi^{(2)}$ pour produire des paires de photons par fluorescence paramétrique ou effectuer de la conversion de fréquence. Le groupe dont je faisais partie s'occupait en effet spécifiquement de la réalisation des sources de photons intriqués en polarisation pour la téléportation.

3.2 Communications quantique par téléportation

3.2.1 Principe de la téléportation quantique

En physique classique, si l'on veut transférer l'état d'un système physique donné à un autre système identique, il suffit de mesurer les variables dynamiques du premier système et de préparer le second dans le même état. Pour des systèmes quantiques cela n'est plus possible : on ne peut mesurer complètement l'état d'un système quantique unique, sans quoi l'on pourrait faire des «copies» de ce système, ce qu'interdit le théorème de non clonage [81]. La téléportation contourne le problème : plutôt que de mesurer l'état du système, elle mesure les corrélations entre le système est une partie A d'un système non local dont les deux sous parties A et B sont parfaitement corrélées (*i.e.* l'ensemble est dans un état EPR) ; la mesure affecte l'ensemble du système non local et la connaissance de son résultat permet d'effectuer sur le sous-système B une transformation simple qui le met dans l'état que l'on souhaitait téléporter. L'état du système initial est détruit par le processus de mesure, ce qui est en conformité avec le théorème de non clonage.

Détaillons le protocole de téléportation d'un bit quantique tel que représenté figure 3.1. Une source produit des états intriqués singulets $(|1\rangle \otimes |0\rangle - |0\rangle \otimes |1\rangle)/\sqrt{2}$ de deux bits quantiques séparés spatialement. L'un est reçu par Alice et l'autre par Bob. Alice dispose du



$$
\begin{aligned}
|\Psi\rangle = N\,[\,&|\psi^{(-)}\rangle\otimes(-\alpha|1\rangle-\beta|0\rangle) \quad (1)\\
&+|\psi^{(+)}\rangle\otimes(-\alpha|1\rangle+\beta|0\rangle) \quad (2)\\
&+|\phi^{(-)}\rangle\otimes(+\alpha|0\rangle+\beta|1\rangle) \quad (3)\\
&+|\phi^{(+)}\rangle\otimes(+\alpha|0\rangle-\beta|1\rangle) \quad (4)
\end{aligned}
$$

$$
\text{avec :}\ \begin{cases} |\psi^{(\pm)}\rangle = \dfrac{1}{\sqrt{2}}(|1\rangle\otimes|0\rangle \pm |0\rangle\otimes|1\rangle) \\ |\phi^{(\pm)}\rangle = \dfrac{1}{\sqrt{2}}(|1\rangle\otimes|1\rangle \pm |0\rangle\otimes|0\rangle) \end{cases}
$$

FIG. 3.1 – *Téléportation d'un bit quantique. La mesure de Bell effectuée par Alice projette le bit quantique de Bob dans un état de la forme $\alpha|x\rangle+\beta|y\rangle$; le résultat, qu'Alice communique à Bob, permet à ce dernier d'effectuer l'opération unitaire qui achève la téléportation.*

bit quantique à téléporter $\alpha|1\rangle + \beta|0\rangle$. L'état conjoint $|\Psi\rangle$ des 3 bits quantiques en jeu peut se mettre sous la forme indiquée en haut à droite de la figure 3.1, où les 4 états $|\psi^{(\pm)}\rangle, |\phi^{(\pm)}\rangle$ forment une base des états des deux bits quantiques dont dispose Alice, dite «base des états de Bell». Alice effectue une mesure conjointe de l'état de ses deux bits quantiques dans la base des états de Bell. Cela a pour effet de projeter le bit quantique dont dispose Bob sur l'un des quatre états de la forme $\alpha|x\rangle + \beta|y\rangle$ qui apparaissent dans l'expression de $|\Psi\rangle$. Alice communique à Bob le résultat de sa mesure en lui indiquant le numéro de l'état de Bell qu'elle a obtenu, ce qui correspond à la transmission de deux bits classiques d'information. Bob peut alors effectuer une opération unitaire locale pour transformer l'état dont il dispose en $\alpha|1\rangle + \beta|0\rangle$. L'état des deux bits quantiques d'Alice est projeté à l'issue de la mesure dans l'un des quatre états de Bell dans lesquels n'apparaissent ni α ni β, ce qui montre bien que l'état initial du bit quantique à téléporter est détruit dans le processus. Notons enfin qu'à aucun moment l'état à téléporter n'est connu, ce qui fait l'intérêt du protocole pour la cryptographie.

3.2.2 Téléportation avec des photons intriqués en polarisation

Les sources d'états EPR ont été initialement étudiées pour réaliser des tests d'inégalités de Bell [82]. Différentes techniques de production de paires de photons intriqués ont été utilisées : paires de photons γ obtenues par annihilation de positronium de spin nul [83], émission de paires de photons optiques par une désexcitation en cascade du calcium [7] ou, plus tardivement, émission de photons corrélés par fluorescence paramétrique [84]. Toutes ces techniques produisent des états intriqués en polarisation. Bien que l'intrication en impulsion ait également été utilisée [85], l'intrication en polarisation est en pratique plus commode à utiliser. Par ailleurs, la méthode la plus facile à mettre en œuvre est l'émission de paires en fluorescence paramétrique au moyen de cristaux non linéaires. C'est la raison pour laquelle la première réalisation du protocole de téléportation utilisait des photons intriqués en polarisation produits par fluorescence paramétrique [76]. Cette méthode de production de photons intriqués demeure le moyen le plus utilisé pour produire les états EPR nécessaires à la téléportation quantique. Il est également possible de produire des paires d'atomes[86] ou d'ions intriqués[77], mais cela se prête plus à des opérations de calcul quantique qu'à la distribution d'intrication sur de longues distances dont il est question dans ce chapitre.

Les premières sources reposant sur cette méthode produisaient en fait des produits de deux états à un seul photon. Les états intriqués sont obtenus par post-sélection : les deux photons de la paire sont séparés puis recombinés avec des polarisations orthogonales sur une lame semi-réfléchissante ; lorsque les deux photons quittent la lame séparément, ce qui ne se produit que la moitié du temps, un état intriqué est produit. Il est cependant possible d'utiliser deux cristaux pour produire directement des états intriqués qui évitent ce problème [87, 88, 89, 90] — la dernière de ces références correspond à la méthode la plus simple et la plus connue, qui est celle qui a été utilisée pour la première réalisation de la téléportation ; j'ai personnellement construit un dispositif reposant sur la méthode proposée dans la référence [89] (cf. article reproduit page 99). Notons que dans tous les cas, il reste une certaine dose de post-sélection : les états générés par les cristaux ne sont pas tout à fait des paires de photons mais une superposition de vide, de paires, d'états à quatre photons,... et c'est la détection de l'un des photons de la paire qui projette sur un état à un photon, comme dans une source de photons uniques annoncée (cf. annexe A.3).

Pour réaliser le protocole de téléportation quantique, les deux principaux problèmes qui se posent une fois que l'on dispose d'une source de photons intriqués en polarisation qui produit

par exemple des états singulets de la forme $|\uparrow \odot\rangle - |\odot \uparrow\rangle$ sont d'une part la synchronisation du photon EPR d'Alice et du photon à téléporter et d'autre part la réalisation de la mesure de Bell. Comme la source EPR ne produit pas les paires à la demande, il faut attendre qu'un photon à téléporter et le photon EPR d'Alice arrivent simultanément dans l'appareil de mesure dans la base de Bell, ce qui limite considérablement le taux de transfert. En ce qui concerne la mesure conjointe de la polarisation de deux photons dans la base de Bell, on peut montrer qu'il n'est pas possible de réaliser simplement une mesure complète, distinguant les quatre états de Bell, par les moyens de l'optique linéaire [91] à moins de disposer d'états intriqués sur plusieurs degrés de liberté (états «super-intriqués») [92]. Une autre solution consiste à effectuer une mesure introduisant des éléments non-linéaires [93]. Une solution, qui règle les deux problèmes d'un coup et qui présente d'autres avantages, est l'utilisation de mémoires atomiques ; c'est ce que propose le projet MIT/NU.

3.2.3 L'architecture MIT/NU

Le projet MIT/NU propose une architecture pour un réseau de communication quantique utilisant des paires de photons intriqués en polarisation pour le transport de l'information quantique et des mémoires quantiques pour le stockage l'information. Dans la version initiale du projet qui date de 2000, la production de paires de photons devait se faire selon une méthode utilisant deux cristaux non linéaires, proche de la proposition de la référence [89], en combinant les paires émises par deux amplificateurs paramétriques optiques doublement résonnants (OPA) utilisant des cristaux $\chi_{(2)}$ périodiquement polarisés [94]. Ce type de source devrait être caractérisé par un taux de production de paires intriquées de l'ordre de 10^6 paires par seconde, à 795 nm, sur une bande spectrale de l'ordre de 30 MHz. Les mémoires atomiques initialement prévues reposaient sur l'utilisation d'atomes de rubidium piégés dans des cavités pouvant stocker l'information quantique codée sur la polarisation des photons à 795 nm. L'échange d'information d'une mémoire à l'autre devant se faire par téléportation, un protocole de mesure dans la base de Bell de l'état de deux mémoires atomiques était prévue [95]. Le principe simplifié de cette architecture est résumé figure 3.2.

Une version plus récente du projet, publiée en 2002, envisage l'utilisation de paires de photons intriqués en polarisation émis aux longueurs d'onde télécom, autour de 1,55 μm, pour permettre des transmissions à longue distance par fibres télécom [96]. Pour éviter la dégradation des états intriqués produits pendant la propagation dans les fibres, l'information codée sur la polarisation est transformée en information temporelle. Une conversion inverse est prévue en sortie de fibre. De plus, pour pouvoir coupler les photons avec les mémoires atomiques, l'utilisation d'un convertisseur de fréquence capable de conserver les corrélations quantiques et transformant les photons télécom en photons à 795 nm est proposée. Des réseaux de communications quantiques plus complexes, à trois mémoires quantiques et utilisant des états intriqués à trois particules sont également envisagés.

Plus récemment encore, en 2006, ont été publiés des travaux qui proposent une analyse comparative des performances de l'architecture proposée par Duan, Lukin, Cirac et Zoller [98], connue sous le signe DLCZ, et de l'architecture MIT/NU [97] ; le lecteur intéressé pourra consulter le travail de thèse de Moshen Razavi qui a servi de base à cette analyse [99]. Quelles que soient les variantes envisagées pour l'architecture MIT/NU, le cœur du dispositif reste la distribution d'états intriqués sous la forme de photons polarisés, dont la «brique de base» est la source de paires de photons compatibles avec les transitions atomiques de la raie D1 du rubidium 87 et/ou le transport dans des fibres télécom. C'est sur cette partie que se concentrent les travaux de l'équipe du MIT.

3.3 Cristaux $\chi^{(2)}$ polarisés périodiquement

Les cristaux non linéaires étudiés par l'équipe du MIT dans laquelle j'ai travaillé en 2001-2002 étaient des cristaux non linéaires $\chi^{(2)}$ de niobate de lithium périodiquement polarisés (PPLN) et de phosphate de potassium et de titanyle périodiquement polarisés (PPKTP). Je présente ici les principales caractéristiques de ces cristaux.

3.3.1 Photons jumeaux et conversion de fréquence

Dans un cristal non linéaire $\chi^{(2)}$, l'onde de pompe de fréquence ω_P produit par fluorescence paramétrique deux ondes, signal et complémentaire (ou «idler»), de fréquences respectives ω_S et ω_I, vérifiant $\omega_P = \omega_S + \omega_I$. En terme de photons, la fluorescence paramétrique est la conversion, avec conservation de l'énergie, d'un photon pompe en un photon signal et un photon complémentaire émis simultanément, qui constituent une paire de photons jumeaux. Le processus n'est efficace que sous condition d'accord de phase, c'est-à-dire lorsqu'il y a conservation de l'impulsion dans le processus de transformation d'un photon de pompe en un photon signal et un photon complémentaire, soit $\mathbf{k}_P = \mathbf{k}_S + \mathbf{k}_I$.

Il est également possible d'utiliser un cristal $\chi^{(2)}$ pour obtenir le processus inverse : deux photons de fréquences différentes ω_a et ω_b peuvent donner naissance à un photon de fréquence somme $\omega_a + \omega_b$. Un cas particulièrement intéressant de génération de fréquence somme dans le cadre du projet MIT/NU est son utilisation pour la conversion de fréquence. Si l'on utilise un faisceau intense à la fréquence ω_P, lorsqu'un photon de fréquence ω_1 se présente, on obtient, sous réserve de respect des conditions d'accord de phase, un photon de fréquence $\omega_2 = \omega_1 + \omega_P$, plus élevée.

Ces deux utilisations, production de paires de photons jumeaux et conversion de fréquence, sont schématisées figure 3.3.

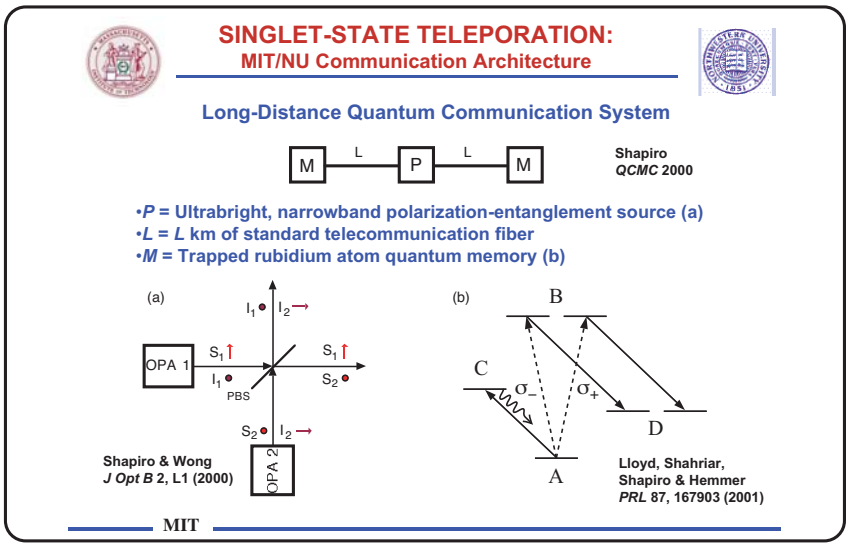


FIG. 3.2 – *Architecture de communications quantique MIT/NU.*

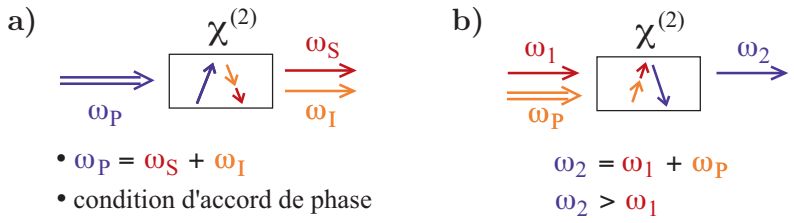


FIG. 3.3 – ***a)*** *Fluorescence paramétrique : production de paires de photons jumeaux.* ***b)*** *Génération de fréquence somme : conversion de fréquence d'un photon unique.*

3.3.2 Cristaux polarisés périodiquement

Lorsque la condition d'accord de phase n'est pas remplie, au fur et à mesure de la propagation dans le cristal, l'amplitude des ondes signal et complémentaire commence par augmenter jusqu'à atteindre un maximum au bout d'une longueur L_c. Le défaut de phase accumulé conduit ensuite à une décroissance de leur amplitude jusqu'à annulation pour $2L_c$. Ainsi, l'amplitude générée oscille avec la longueur de propagation. Si la condition d'accord de phase est vérifiée, ce que l'on peut obtenir dans les matériaux biréfringents, l'amplitude des ondes signal et complémentaire croît de façon quadratique. Cependant, la condition d'accord de phase conduit généralement à des directions de propagation différentes pour les trois faisceaux et les faisceaux produits ne se recouvrent rapidement plus, ce qui limite l'épaisseur de cristal effectivement utilisable et donc l'efficacité du processus.

Une solution consiste à utiliser un cristal dans lequel la susceptibilité χ change de signe périodiquement au bout d'un nombre impair de fois L_c. Cela revient à ajouter un déphasage de π au moment où les amplitudes des ondes sont maximales de façon à obtenir un *quasi-accord de phase* (cf. figure 3.4). Cette idée, déjà proposée par Armstrong *et al.* en 1962 [100], n'a commencé a être mise en œuvre qu'il y a une quinzaine d'années avec les

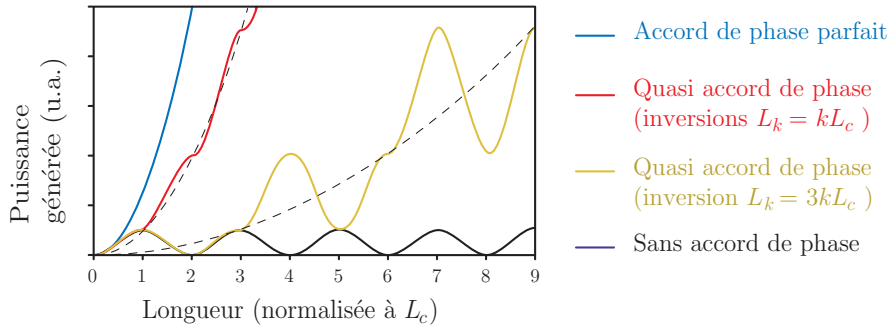


FIG. 3.4 – *Puissance de la fluorescence paramétrique générée en fonction de la longueur de cristal, dans le cas d'une pompe non dépeuplée. Sans accord de phase la puissance produite oscille. Un accord de phase parfait donne une croissance quadratique. L'inversion périodique de la polarisation permet un quasi-accord de phase avec une croissance approximativement quadratique.*

premières réalisations de cristaux périodiquement polarisés (voir par exemple la référence [101] et les références incluses). Des cristaux périodiquement polarisés de niobate de lithium (PPLN) ou de phosphate de potassium et de titanyle (PPKTP) sont aujourd'hui disponibles commercialement.

L'intérêt majeur de ces cristaux périodiquement polarisés est que les trois ondes, pompe, signal et complémentaire, se propagent dans la même direction : il est ainsi possible d'utiliser des cristaux de quelques centimètres de longueur, pour lesquels l'efficacité de génération de second harmonique est sans comparaison avec ce que permettent des cristaux classiques, même avec un accord de phase parfait. Ils présentent également un avantage pour la production d'états intriqués : contrairement aux cristaux classiques qui émettent sur des cônes dont seule une petite partie est prélevée pour produire des états intriqués, ces cristaux polarisés périodiquement émettent tous leurs photons sur l'axe, donc une partie bien plus importante du flux produit est potentiellement utilisable. C'est pour ces raisons que les cristaux étudiés au MIT étaient des cristaux de PPKTP et de PPLN.

3.3.3 Cristaux utilisés au MIT

Deux types de cristaux ont été utilisés : des cristaux de PPKTP de type II (les deux photons paramétriques sont de polarisation orthogonale) fonctionnant de manière dégénérée en fréquence et des cristaux de PPLN de type I (les deux photons paramétriques ont la même polarisation) fonctionnant de manière non dégénéré en fréquence. Dans les deux cas, les conditions de quasi-accord de phase dépendent de la température. En les plaçant dans un four, il est possible d'ajuster les longueurs d'ondes émises en fluorescence paramétrique.

Les cristaux de PPKTP utilisés font 1 cm de long. Ils sont prévus pour fonctionner à dégénérescence en fréquence à une température de l'ordre de 30° C, pour une pompe à environ 400 nm. Il est possible d'ajuster la température et la longueur d'onde de pompe pour obtenir des paires de photons de même longueur d'onde, égale à 795 nm, et de polarisation orthogonale (figure 3.5.a).

Les cristaux de PPLN utilisés font jusqu'à 4 cm de long. Ils permettent l'utilisation d'une pompe ajustable dans l'intervalle 510-795 nm avec une émission de photons jumeaux

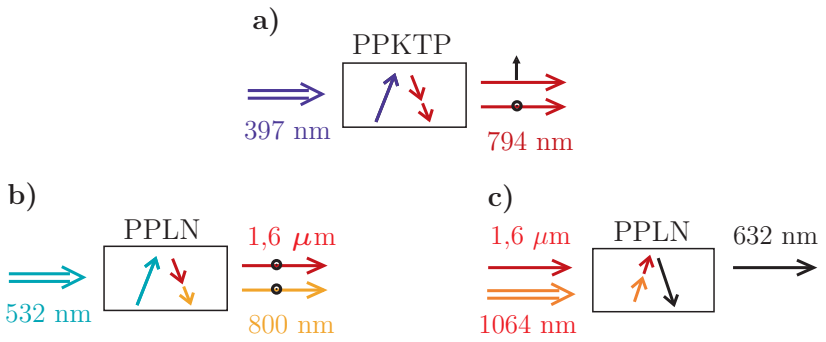


FIG. 3.5 – ***a)*** *Cristal de PPKTP, type II. Fluorescence paramétrique dégénérée en fréquence.* ***b)*** *Cristal de PPLN, type I. Fluorescence paramétrique non dégénérée en fréquence. Pompe accordable sur 510-795 nm.* ***c)*** *Cristal de PPLN, type I. Conversion de fréquence avec une pompe à 1064 nm.*

à 1,6 μm et 800 nm, de même polarisation, pour une longueur d'onde de pompe de 532 nm, à des températures de l'ordre de 100 à 200° C (figure 3.5.b). Ces cristaux de PPLN sont également utilisables pour la conversion de fréquence de photons de 1,6 μm vers 632 nm au moyen d'une pompe à 1064 nm (figure 3.5.c).

3.4 Description des expériences

Durant mon séjour d'un an au MIT, j'ai travaillé sur quatre expériences différentes utilisant les cristaux que nous venons de décrire. Il s'agissait, à ce stade, d'évaluer les efficacités des processus étudiés et la qualité des corrélations quantiques qui y sont attachées dans le cas d'utilisation de ces cristaux sans cavités. Les expériences en question concernaient la production de paires de photons à 795 nm et 1608 nm, la conversion de fréquence de 1608 nm à 632 nm, la production de paires dégénérées à 795 nm et une source duale d'états intriqués en polarisation à 795 nm. Je décris dans ce qui suit ces expériences, en développant d'avantage la troisième, sur laquelle a porté la part la plus importante de mon travail.

3.4.1 Paires de photons non dégénérés en fréquence

Un cristal de PPLN pompé par un laser continu à 532 nm permet la production de photons jumeaux émis simultanément, dont l'un est émis à 800 nm et l'autre à 1,6 μm, ce qui permet de les séparer comme représenté figure 3.6.a). L'expérience préliminaire menée avec ce dispositif était la démonstration d'une production efficace de paires. Le photon à 800 nm était détecté au moyen d'une photodiode à avalanche commerciale et permettait de déclencher la détection du photon télécom à 1,6 μm, collecté dans une fibre optique télécom et détecté au moyen d'une photodiode à avalanche «maison» en InGaAs, afin d'évaluer

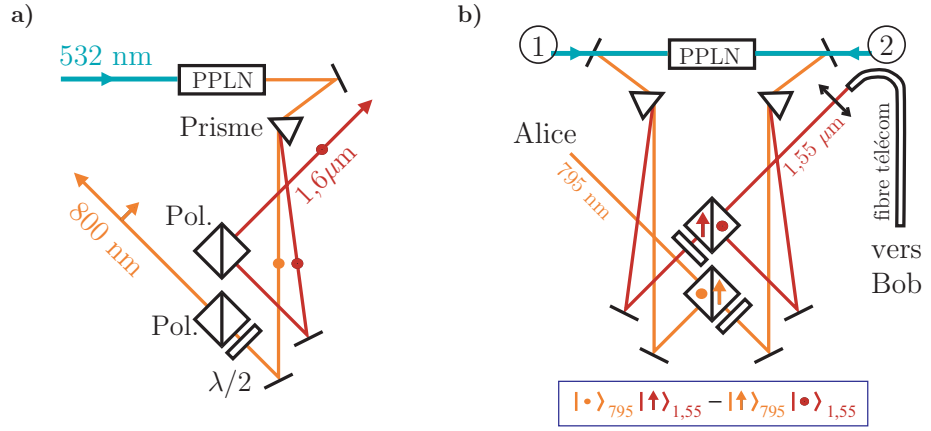


FIG. 3.6 – *Paires de photons non dégénérés.* ***a)*** *Utilisation d'un cristal de PPLN pour produire une paire de photons jumeaux à 800 nm et 1,6 μm.* ***b)*** *Pour produire des états intriqués en polarisation, le dispositif est dupliqué et le cristal pompé par deux faisceaux contra-propageants issus d'un même laser. Un photon de l'état intriqué est destiné à une utilisation locale, l'autre est destiné à une utilisation distante.*

l'efficacité de conversion [102]. L'idée sous-jacente était de pouvoir dupliquer le dispositif comme représenté figure 3.6.b), en pompant le cristal dans deux directions opposées avec un même laser : en recombinant les paires de photons émises dans les deux sens, il est possible de générer un état intriqué singulet en polarisation à deux photons de fréquence différente. L'un des deux photons, émis à 795 nm, pourrait être utilisé localement et stocké dans une mémoire atomique alors que l'autre photon à 1,55 μm serait envoyé à distance via une fibre télécom. La production de tels états intriqués à été obtenue en 2004 avec ce dispositif [103, 104].

3.4.2 Conversion de fréquence

L'utilisation du dispositif précédent dans l'architecture MIT/NU suppose la capacité à convertir les photons télécom en photons compatibles avec les mémoires atomiques envisagées. Pour cela, un autre cristal de PPLN de 4 cm de long a été utilisé en régime de conversion de fréquence. J'ai participé à la phase préliminaire de mise en place de cette expérience qui consistait simplement à réaliser la conversion de fréquence d'un signal faible à 1,55 μ en un signal à 630 nm par simple passage dans le cristal pompé à 1064 nm.

Ces études se sont poursuivies après mon départ par l'utilisation d'une cavité résonante pour la pompe autour du cristal de façon à maximiser l'efficacité de conversion, puis par la mise en place d'un schéma de conversion de fréquence qui préserve l'intrication en polarisation. On pourra se reporter à la thèse de Marius Albota sur ce sujet [104].

Notons que ce dispositif de conversion de fréquence est également utile pour la détection de photons aux fréquences télécom. En effet, les photodiodes à avalanche fonctionnant autour des fréquences télécom présentent une efficacité quantique relativement faible (moins de 20%), des taux de coups d'obscurité très élevés (de l'ordre de 80 000 par seconde) et des températures de fonctionnement peu pratiques (de l'ordre de 220 K). Ainsi, une conversion des photons des fréquences télécom vers 630 nm, avec une efficacité proche 100%, même accompagnée d'un peu d'émission spontanée par le cristal (ce qui provoque l'équivalent de coups d'obscurité) et une détection au moyen d'une photodiode à avalanche commerciale constitue un dispositif de détection qui donne de meilleurs résultats qu'une détection directe [105].

3.4.3 Paires de photons dégénérés en fréquence

Afin d'obtenir des paires de photons jumeaux dégénérés en fréquence, un cristal de PPKTP pompé par une diode laser émettant à 497 nm a été utilisé. S'agissant d'un cristal de type II, les photons signal et complémentaires émis à 795 nm présentent des polarisation orthogonales. Pour évaluer les qualités de cette source, nous avons mené différentes études. Tout d'abord, une étude simple destinée à évaluer l'efficacité de production de paires de photons. Ensuite, nous avons optimisé le degré de dégénérescence des photons produits : nous avons pour cela maximisé le contraste d'interférences à deux photon de type «HOM» [15]. Une fois le contraste maximum obtenu, nous avons pu produire des états intriqués post-sélectionnés et nous avons évalué leur qualité par une mesure de violation d'inégalités de Bell.

Production de paires de photons

Le cristal de PPKTP d'1 cm de longueur utilisé est prévu pour produire des paires de photons dégénérés en fréquence et émis colinéairement à la pompe. Un filtre interférentiel

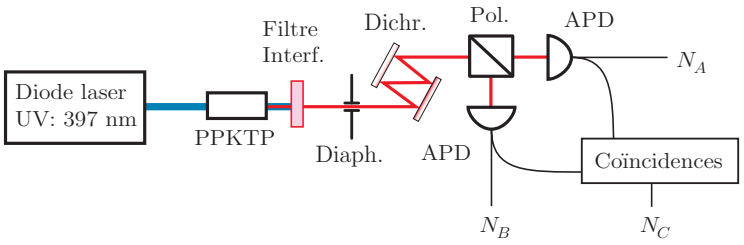


FIG. 3.7 – *Production de paires de photons. De N_A, N_B et N_C on déduit l'efficacité de collection et le taux de production de paires. L'efficacité des photodiodes à avalanche (APD) vaut $\eta = 55\%$.*

élimine une grande partie du faisceau de pompe ; la lumière UV résiduelle est éliminée par réflexion sur des miroirs dichroïques. Un diaphragme placé une quinzaine de cm après le cristal permet de limiter l'ouverture des faisceaux produits.

L'évaluation du taux de paires de photons produites se fait en régime de comptage de photons avec deux photodiodes à avalanches placées de part et d'autre d'un séparateur de polarisation, comme représenté figure 3.7. En enregistrant le nombre de détections pour chacune des polarisations et le nombre de coïncidences entre les deux dans une fenêtre temporelle donnée (environ 70 ns), on peut en déduire, compte tenu de l'efficacité quantique des détecteurs mesurée par ailleurs, le taux de production de paires.

On obtient typiquement 10^6 paires par seconde et par mW de pompe, ce qui est plus d'un ordre de grandeur au-dessus de ce que l'on obtient avec des cristaux sans polarisation périodique. En revanche, l'efficacité de collection est relativement faible : on ne collecte qu'environ 30% des paires émises. Cela résulte de l'étendue longitudinale de la source et du fait que l'émission n'est pas purement colinéaire à la pompe mais se fait dans un cône de quelques degrés.

Interférences à deux photons

L'intérêt d'une source dégénérée en fréquence est d'obtenir des paires de photons qui ne diffèrent que par leur polarisation. Cela permet de produire facilement des états intriqués du type $|\odot\odot\rangle - |\uparrow\uparrow\rangle$ en plaçant simplement sur le faisceau une lame $\lambda/2$ pour tourner les polarisations de 45°, suivie d'un cube séparateur de polarisation, parce qu'une interférence de type HOM [15] fait disparaître le terme $|\uparrow\odot\rangle - |\odot\uparrow\rangle$. La condition pour que cela fonctionne est que les photons signal et complémentaire soient exactement identiques en termes de mode spatial et de mode temporel. Cela nécessite un ajustement fin de l'orientation du cristal et de sa température.

Pour mesurer le degré de similitude des deux photons d'une paire, il suffit de réaliser précisément l'interférence à deux photons de type HOM. La figure 3.8 représente le schéma de principe qui permet de réaliser cela ainsi que l'histogramme attendu pour le nombre de coïncidences en fonction du délai τ introduit entre les deux photons. On remarquera que le minimum des coïncidences n'est pas obtenu à délai nul mais pour un délai qui correspond à la moitié du retard maximal que peuvent présenter les photons signal et complémentaire à la sortie du cristal. C'est en effet pour ce délai que l'on n'est plus capable, par des mesures

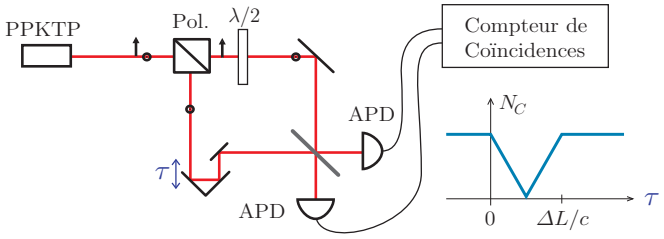


FIG. 3.8 – *Schéma de principe d'une mesure d'interférences à deux photons. Le nombre de coïncidences en fonction du délai τ présente un creux de forme triangulaire. $\Delta L/c$ est le retard maximal entre deux photons d'une paire, induit par la différence d'indice dans le cristal pour les deux polarisations.*

de délai entre les photo-détections, de retrouver l'information sur la polarisation effacée par la lame $\lambda/2$ de la figure 3.8. On pourra se reporter à l'article reproduit page 93 pour plus de détails sur ce point subtil.

Plutôt que de réaliser le montage avec un délai variable, nous avons choisi de fixer le délai τ à la valeur $\Delta L/2c$ qui donne l'interférence maximale en ajoutant, juste après le cristal de PPKTP, un cristal de KTP de longueur moitié et tourné de 90° autour de l'axe optique de façon à induire le retard voulu. Ce faisant, il apparaît que le montage de la figure 3.8 qui sépare les deux photons avant de les recombiner pour les détecter est équivalent à une lame $\lambda/2$ qui fait tourner les polarisations de 45°, suivie d'un cube séparateur de polarisation avec une photodiode à avalanche placée à chaque port de sortie. Aussi le montage que nous avons utilisé est identique à celui représenté figure 3.7 dans lequel un cristal de KTP de 5mm est ajouté juste après le filtre interférentiel et une lame $\lambda/2$ juste avant le cube séparateur de polarisation (ce qui correspond également au montage de la figure 3.9 dans lequel on aurait enlevé la séparatrice).

Nous avons pu ainsi optimiser le contraste des interférences à deux photons jusqu'à obtenir des valeurs compatibles avec 100%. Nous avons observé qu'il était d'autant plus élevé que le diaphragme limitant l'ouverture était fermé (voir la figure 3 de l'article reproduit page 93). Le flux correspondant un contraste maximal représentait 300 paires de photons par seconde et par mW de pompe. En autorisant une divergence de 16 mrad, le contraste atteignait encore 90% et environ 5000 paires par seconde et par mW de pompe.

Test des inégalités de Bell

En plaçant dans le faisceau des paires de photons une lame séparatrice équilibrée (50/50) et en post-sélectionnant uniquement les états correspondant à un photon en transmission et un photon en réflexion, on obtient des états intriqués de la forme $|\uparrow\odot\rangle+|\odot\uparrow\rangle$. Afin d'analyser la qualité des états produits, nous avons placé de part et d'autre de la séparatrice deux dispositifs d'analyse de polarisation constitués chacun d'une lame $\lambda/2$, un cube séparateur de polarisation et deux photodiodes à avalanches, comme représenté figure 3.9. Ce dispositif permet d'effectuer un test des inégalités de Bell de type Clauser, Horne, Shimony, and Holt [106]. Dans les conditions donnant le meilleur contraste pour les interférences à deux photons, nous avons observé une violation des inégalités de Bell d'un très bon niveau avec une valeur de $2,711 \pm 0,017$, soit près de 42 écarts-types. Ce résultat, ainsi que les résultats précédents,

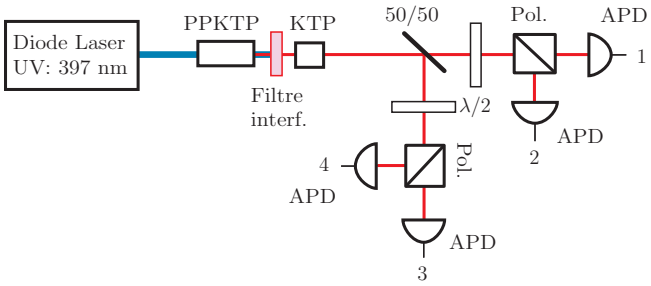


FIG. 3.9 – *Production d'un état intriqué* $|\uparrow \odot\rangle + |\odot \uparrow\rangle$ *post-sélectionné. L'enregistrement en continu des événements sur les quatre photodiodes à avalanche (APD) permet un test des inégalités de Bell. Le cristal de KTP sert à symétriser le retard de propagation entre les deux polarisations, causé par le cristal de PPKTP, de façon à assurer l'indiscernabilité.*

a fait l'objet d'une publication dans *Physical Review A*, reproduite à la fin de ce chapitre, page 93.

Notons que la qualité de l'intrication est limitée dans cette expérience par la qualité du recouvrement spectral et spatial des faisceaux signal et complémentaire émis par le cristal. Cela oblige à effectuer une sélection spatiale et spectrale pour ne conserver que les paires de photons «bien intriqués».

3.4.4 Source duale de paires intriquées en polarisation

Afin de produire des paires de photons intriquées en polarisation directement dans l'état singulet et surtout sans perdre la moitié des paires à cause de la post-sélection, j'ai construit une autre expérience reposant une proposition faite en 1994 par Kwiat *et al.* [89]. L'idée est pomper deux cristaux de PPKTP identiques simultanément puis combiner entre elles les paires de photons produites. Avec cette géométrie, aucun filtrage spectral ou spatial n'est théoriquement nécessaire pour sélectionner les paires intriquées.

Plutôt que d'utiliser deux cristaux, j'ai préféré utiliser le même cristal, pompé dans les deux sens par deux faisceaux à 397,5 nm obtenus en séparant en deux avec une lame semi-réfléchissante la lumière produite par un laser titane-saphir doublé. Les deux faisceaux de fluorescence paramétrique sont ensuite recombinés sur une cube séparateur de polarisation, après que l'on a fait subir à l'un d'eux une rotation de sa polarisation de 90° au moyen d'une lame $\lambda/2$ comme représenté figure 3.10. La lumière de pompe résiduelle qui tombe sur le cube séparateur de polarisation se recombine également. L'interférence qui en résulte est utilisée pour asservir l'interféromètre ainsi formé pour l'UV ; cela fixe la phase entre les paires produites et par conséquent la phase relative entre les deux termes de l'état intriqué produit.

Le détail des résultats obtenus avec ce dispositif après mon départ ont été publiés dans une «communication rapide» dans *Physical Review A*, dont une copie est reproduite en fin de chapitre, page 99. Un contraste de 90% a pu être atteint pour un flux d'environ 12 000 paires intriquées par seconde et par milliwatt de pompe, sans aucune sélection angulaire ou en fréquence. De plus, avec ce montage, la longueur d'onde des photons produits est accordable sur une plage d'environ 5 nm, autour de 800 nm.

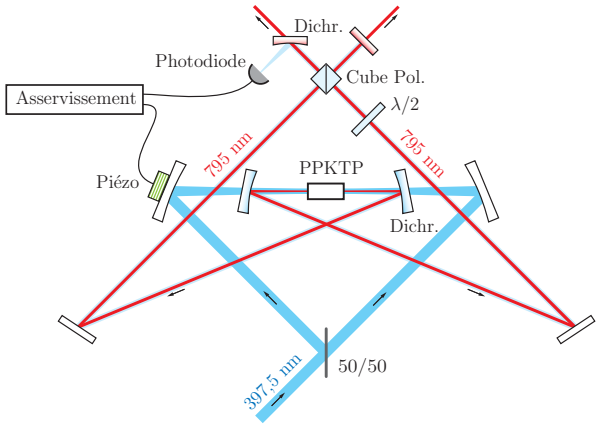


FIG. 3.10 – *Production d'un état intriqué* $|\uparrow\odot\rangle - |\odot\uparrow\rangle$ *avec une source duale de paires de photons.*

3.5 Conclusion

Le développement de sources de paires de photons intriqués ou «sources EPR» est fondamental pour l'information quantique car elles sont au cœur des protocoles de communications quantiques. Au moment où les expériences présentées dans ce chapitre ont été menées, les états intriqués de photons polarisés étaient généralement produits avec des cristaux tels que du BBO, pompé par exemple au moyen d'un laser argon. L'efficacité de génération d'états intriqués était faible parce que seule une petite partie du cône d'émission était utilisée et parce que les conditions d'accord de phase empêchaient l'utilisation de cristaux plus épais. La proposition de source duale de Kwiat *et al.* [89] permettait d'envisager de s'affranchir d'une partie de ces problèmes, mais en pratique il s'est avéré que cette méthode ne permettait pas d'obtenir, avec les cristaux utilisés habituellement, les flux et qualité d'intrication escomptés, à cause de difficultés d'alignement [107]. Avec les cristaux polarisés périodiquement, les problèmes d'alignement et d'épaisseur limitée sont automatiquement résolus puisque la pompe et les faisceaux signal et complémentaire produits se propagent colinéairement à l'un des axes propre du cristal. Cela améliore à la fois le taux de production de paires, parce que l'on peut utiliser des cristaux longs, mais aussi l'efficacité de collection, parce que l'essentiel des photons sont émis dans la même direction. Dans le cas de la source duale dégénérée en fréquence utilisant un cristal de PPKTP pompé vers 400 nm, un autre avantage mérite d'être souligné : l'accordabilité autour de 397,5 nm permet la production de paires intriquées en polarisation à la fréquence de la raie $D1$ du ^{87}Rb, ce qui pourrait s'avérer fort utile pour le développement d'interfaces atome-champ.

D'un point de vue plus général, il est clair que le protocole de téléportation quantique et ses développements ont largement contribué à vivifier la recherche sur les sources de paires de photons. Après les sources de photons uniques, l'optique quantique trouve ainsi une utilité évidente à la production d'états à deux photons pour l'information quantique. On pourrait être tenté de penser que l'application des sources de photons uniques et de paires de photons trouvent des applications à la seule cryptographie quantique. Ce n'est pas le cas. La téléportation ouvre à l'optique quantique la possibilité d'utiliser ces sources pour l'information quantique dans son ensemble, puisque la téléportation peut être utilisée pour

réaliser des portes logiques quantiques [79] et aussi parce qu'il a été montré que des sources de photons uniques et des composants d'optique linéaire suffisaient en théorie à réaliser un ordinateur quantique [14]. Inversement, la cryptographie quantique en particulier, mais aussi les communications et le traitement de l'information quantiques en général trouvent régulièrement de nouvelles utilisations aux états non classiques du champ, en grande partie parce que la purification d'intrication ne peut être obtenue par les moyens de l'optique linéaire sur des états gaussiens [108].

3.6 Articles

Sont regroupés dans les pages qui suivent les reproductions d'articles suivants, relatifs aux travaux décrits dans ce chapitre :

- « High-flux source of polarization-entangled photons from a periodically poled $KTiOPO_4$ parametric down-converter », *Phys. Rev. A* **69**, 013807 (2004). Page 93.
- « Generation of ultrabright tunable polarization entanglement without spatial, spectral, or temporal constraints », *Phys. Rev. A* **69**, 041801(R) (2004). Page 99.

Le premier article présente l'expérience de production de paires de photons jumeaux dégénérés en fréquence avec un cristal de PPKTP de type II pompé à 397 nm. Il rapporte l'obtention d'un flux important de paires, l'observation d'interférences quantiques et la violation d'inégalités de Bell avec les paires produites.

Le second article décrit l'expérience réalisée à partir du montage d'excitation duale d'un cristal de PPKTP. Il rapporte l'observation d'un flux important d'états intriqués en polarisation, sans contrainte spectrale ou angulaire, accordable en fréquence autour de 800 nm et la réalisation d'un test d'inégalités de Bell pour évaluer la qualité des états produits.

3.6.1 *Physical Review A* 69, 013807 (2004).

High-flux source of polarization-entangled photons from a periodically poled $KTiOPO_4$ parametric down-converter

Christopher E. Kuklewicz, Marco Fiorentino, Gaétan Messin, Franco N. C. Wong, and Jeffrey H. Shapiro
Research Laboratory of Electronics, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Massachusetts 02139, USA
(Received 15 May 2003; published 15 January 2004)

We have demonstrated a high-flux source of polarization-entangled photons using a type-II phase-matched periodically poled $KTiOPO_4$ parametric down-converter in a collinearly propagating configuration. We have observed quantum interference between the single-beam down-converted photons with a visibility of 99% together with a measured coincidence flux of 300 s^{-1}/mW of pump. The Clauser-Horne-Shimony-Holt version of Bell's inequality was violated with a value of 2.711 ± 0.017.

DOI: 10.1103/PhysRevA.69.013807 PACS number(s): 42.65.Lm, 03.65.Ud, 42.50.Dv

I. INTRODUCTION

Entanglement is the basis for fundamental demonstrations of quantum mechanics such as violation of Bell's inequality and tests of local realism [1,2]. Moreover, it is essential to a wide variety of quantum communication applications, including teleportation [3,4] and quantum secret sharing [5], and it can be used for quantum key distribution [6]. A high-flux source of polarization-entangled photons is therefore desirable for practical implementation of a variety of entanglement-based applications. Spontaneous parametric down-conversion (SPDC) in a noncollinearly propagating, angle phase-matched crystal, such as beta-barium borate (BBO), is often used to generate polarization entanglement [7–9]. However, only a small segment of the output cone of the down-converted photons is collectible. Moreover, angle phase matching precludes the use of long crystals for more efficient generation or for narrowband generation in a cavity configuration.

We take a different, yet simple, approach to entanglement generation that is based on periodically poled potassium titanyl phosphate (PPKTP) with collinear propagation of the pump, signal, and idler fields. A periodically poled nonlinear crystal such as PPKTP, with an appropriate grating period, permits efficient three-wave mixing at user-selectable wavelengths within the crystal's transparency window by the technique of quasi-phase-matching (QPM) [10]. Under QPM one can choose to propagate along a principal axis of the crystal, thus avoiding undesirable angle walkoff and permitting collinear propagation in long crystals, which can be utilized in cavity configurations for enhancing down-conversion efficiency and providing high-brightness narrowband outputs [11]. Furthermore, a single-beam configuration of copropagating signal and idler photons simplifies the transport of entangled photon pairs. For the current work we report measurements of single-beam quantum interference with a visibility of up to 99% and Bell's inequality violation from a continuous-wave (cw) PPKTP parametric down-converter.

II. SINGLE-BEAM ENTANGLEMENT

Figure 1 shows the basic concept of our cw collinearly propagating single-beam SPDC for polarization entanglement. It consists of a length-L type-II phase-matched PPKTP crystal followed by a length-$L/2$ KTP timing compensator. Consider the probability amplitudes of a single pair of down-converted signal and idler photons that originate, via quantum superposition, from two locations, A and B, which are symmetrically displaced from the center of the periodically poled crystal [12]. Because of the crystal's birefringence, the horizontally (H) polarized signal photon along the crystal's y axis always exits the crystal ahead of the conjugate idler photon, which is vertically (V) polarized along the crystal's z axis. The timing compensator in Fig. 1 is a KTP crystal that is oriented similar to the PPKTP crystal but with the y and z axes interchanged. Time-resolved signal and idler photon counting before the compensating crystal will collapse the quantum superposition. This will tag the location—A or B—at which the pair was created by virtue of the time difference between the signal and idler counts. After the compensator, the signal and idler pair is at a quantum superposition of locations C and D, with either H_A leading V_A or V_B leading H_B by the same time interval. The temporal information has been erased because the separation of the photon pair no longer reveals the source location in the PPKTP. Although the timing compensator has erased one feature that distinguishes the signal and idler photons, they are still distinguishable by virtue of their orthogonal polarizations. This polarization information can be erased, however, by rotating the output polarizations by $\pi/4$, before analysis along H and V. The erasure of such identifying information is essential to all quantum-interference experiments [16]. Furthermore, it is also necessary to erase any frequency or spatial mode information, which might distinguish between photons in a de-

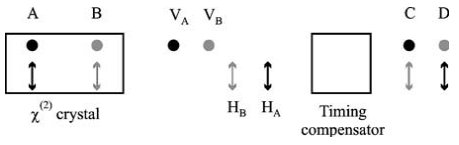


FIG. 1. Schematic for generating entanglement in a single optical beam. A single signal/idler photon pair is generated, via quantum superposition, at locations A and B. The timing of the probability amplitudes of the orthogonally polarized outputs from locations A and B in a $\chi^{(2)}$ crystal is shown before and after a timing compensation crystal. Timing information is erased for photon pairs at locations C and D. Horizontal (vertical) polarization: $\updownarrow$ (●).

Phys. Rev. A **69**, 013807 (2004).

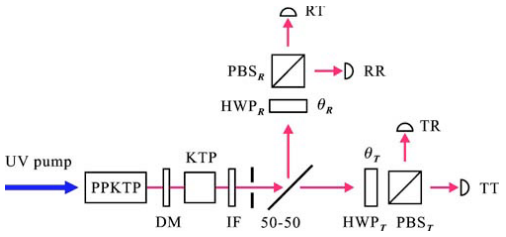


FIG. 2. Schematic of experimental setup. The 50-50 beam splitter is removed for quantum interference measurements which are made with detectors TT and TR. Detectors TT and RT are used for Bell's inequality measurements. DM, dichroic mirror; IF, interference filter; HWP, half-wave plate; PBS, polarizing beam splitter.

tected pair, by collecting only collinear and degenerate pairs. Ignoring the vacuum and higher photon-number components, the state at the output of this polarization rotation is the biphoton,

$$|\psi\rangle = (|H\rangle_1|H\rangle_2 - |V\rangle_1|V\rangle_2)/\sqrt{2}. \quad (1)$$

The photons labeled 1 and 2 can be analyzed with a polarization beam splitter (PBS) and a null should occur in coincidence measurements. This coincidence null is equivalent to the coincidence dip in Hong-Ou-Mandel (HOM) interferometry [16–18].

It is possible to utilize the single-beam SPDC output of Fig. 1 to obtain polarization-entangled photons with a 50-50 beam splitter. Each photon of the orthogonally polarized photon pair that is generated from the PPKTP is equally likely to be transmitted or reflected at the beam splitter. Hence half of the generated pairs yield one photon in the transmitted path and one in the reflected path. If we postselect only these events within a coincidence window, the two photons in the two paths are in a polarization-entangled triplet state:

$$|\psi\rangle = (|H\rangle_T|V\rangle_R + |V\rangle_T|H\rangle_R)/\sqrt{2}, \quad (2)$$

where the subscripts T and R refer to the transmitted and reflected paths of the 50-50 beam splitter, respectively. We note that postselection is not necessary if quantum memories that allow nondestructive loading verification are used [4,19].

III. SINGLE-BEAM QUANTUM INTERFERENCE

We have implemented the single-beam down-conversion scheme in the setup shown in Fig. 2. A 10-mm-long flux-grown PPKTP crystal with a grating period of 8.84 μm was used for frequency-degenerate type-II quasi-phase-matched operation at a pump wavelength of 397 nm. The output wavelength at 795 nm was chosen to match the transition wavelength of the D_1 line of Rb, which has been proposed for use as a trapped-atom quantum memory for long-distance teleportation [4,19]. The 1-mm-thick PPKTP crystal was antireflection coated at 397 and 795 nm and was pumped with a 10-mW cw external-cavity ultraviolet (UV) diode laser that was weakly focused to a $\sim$200-μm beam waist in the crystal. The crystal was set up for collinear propagation along its x axis and with its y axis aligned with the pump's horizontal polarization. For type-II phase matching, the nonlinear coefficient d_{24} was utilized, and the signal and idler outputs were orthogonally polarized along the crystal's y and z axes, respectively. The operating temperature of the PPKTP crystal was controlled with a thermoelectric cooler that allowed us to tune the crystal to exact frequency degeneracy and was typically set at 20 °C. After passing through the 5-mm-long KTP timing compensator to erase the timing information, the output beam was sent through an interference filter centered at 795 nm that had a 1-nm bandwidth and 80% in-band transmission. We have imaged the down-converted light through the 1-nm interference filter onto a high-sensitivity charge-coupled device camera, and found this light had a divergence full angle of $\sim$20 mrad, in good agreement with theoretical estimates of the external divergence angle for our PPKTP system. Due to our propagation along one of the principal axes in PPKTP, the observed divergence angle of 20-mrad/nm of bandwidth is more than an order of magnitude larger than that for the usual angle phase-matched configuration in BBO for a given crystal length and spectral bandwidth [8].

There were some UV-induced fluorescence photons from the flux-grown PPKTP crystal. These fluorescence photons, estimated to be $\sim$1000 (photons/s)/mW of pump generated in a 1-nm bandwidth and collected through a small iris, increased the singles rates by $\sim$5%. Accidental coincidences caused by them were relatively insignificant in our experiments. We installed two dichroic mirrors that passed the 795-nm outputs but attenuated the UV pump by $\sim$40 dB to minimize additional fluorescence from the KTP timing compensator and other optical elements. An adjustable iris was used to control the effective divergence angle of the transmitted beam. A smaller iris increased the depth of field and reduced the spatial resolution of the output photons such that the photons generated from locations A and B in Fig. 1 would be spatially indistinguishable. The iris also served to block off-axis, nearly degenerate photon pairs that would not contribute to either quantum interference or polarization entanglement.

For quantum-interference measurements, the 50-50 beam splitter in Fig. 2 was not necessary. Removing this beam splitter improves the conditional detection probability by a factor of two, and we have made measurements with and without it present. With the 50-50 beam splitter present, each output beam was sent through a half-wave plate (HWP), a PBS for polarization analysis, and a clean-up polarizer to eliminate the leakage of horizontally polarized light into the vertically polarized path. Also, prisms were used in the horizontally polarized output paths to reduce accidental counts due to the UV pump. All four PBS outputs were focused on commercial Si single-photon counting detectors, whose detection quantum efficiencies are estimated to be 50–55% at 795 nm and whose dark count rates are less than 100 s^{-1}. We then combined the $\sim$35-ns-long electrical pulses from detectors TT and TR with AND logic, and both the singles

Phys. Rev. A **69**, 013807 (2004).

rates from the detector output pulses and the coincidence rate from the logic pulses were counted. The dead times of our single-photon counters (including the pulse width) were measured to be ~50 ns, which is negligible at our operating count rates of 10^5 s^{-1} or less. By blocking the pump and measuring the singles and coincidence rates due to different amounts of stray light for the four detectors, we were able to determine the effective coincidence window for each pair of detectors and calibrate the accidental coincidence rates for removal in postdetection data analysis. Typical rates, with the 50-50 beam splitter in place, were 12 000 singles s^{-1}, pair coincidences of 1 200 s^{-1} in a ~70-ns coincidence window, and accidental coincidences of ~12 s^{-1} for 10 mW of pump and 1-nm detection bandwidth. The main contribution to the accidental coincidences is the Poisson occurrence of a double pair within the coincidence window in which the signal of one pair and the idler of the other pair are detected [20]. The reliability of the logical AND coincidence detection and the data analysis methodology was checked by comparing it to a high time-resolution (sub-ns) start-stop histogram obtained with a Picoquant TimeHarp 200.

Consider the case without the 50-50 beam splitter and with only the detectors labeled *TT* and *TR* in Fig. 2 in use. PBS_T in the transmitted path and the crystal's y and z axes were aligned such that if the HWP_T's fast and slow axes were also aligned the same way, the signal and idler photons would be separately detected to yield the pair generation rate. When HWP_T was set at $\theta_T=0$ to yield zero polarization rotation and the iris was open, we observed a coincidence rate as high as 46 100 s^{-1}, from which we infer a pair generation rate of ~10^6 s^{-1} using our 21% conditional detection efficiency. At $\theta_T=\pi/8$, the output beam underwent a $\pi/4$ polarization rotation, and each incident photon had a 50-50 chance of being transmitted or reflected at PBS_T. For photon pairs that were spectrally, spatially, and temporally indistinguishable, the state after HWP_T was given by Eq. (1), and quantum interference between the signal and idler of a photon pair occurred, resulting in a reduction in the coincidence rate. When we made the photons distinguishable, by frequency detuning, no quantum interference occurred and a coincidence rate of 50% relative to the zero-rotation rate was observed. With the iris open and $\theta_T=\pi/8$, we observed a coincidence rate of 11 800 s^{-1}, corresponding to a visibility $V=[C(0)-C(\pi/8)]/[C(0)+C(\pi/8)]$ of 59%, where $C(\theta_T)$ is the coincidence rate at a HWP_T angle setting of θ_T. As we reduced the size of the iris, the effective divergence angle was reduced and the depth of field improved, leading to a reduction in the coincidence rates and an increase in the visibility. We have achieved $V=97.7\%$ with a 200-μm-diameter aperture, corresponding to a divergence full angle of ~2 mrad, for the flux-grown PPKTP down-converter.

We have also made similar quantum-interference measurements with a second PPKTP crystal, which was hydrothermally grown and had a grating period of 9.01 μm. This 10-mm-long crystal was pumped with the second harmonic of a Ti:sapphire laser centered at 397 nm with a maximum usable power of ~30 mW. The tunable UV pump source and the temperature tuning of the PPKTP crystal permitted

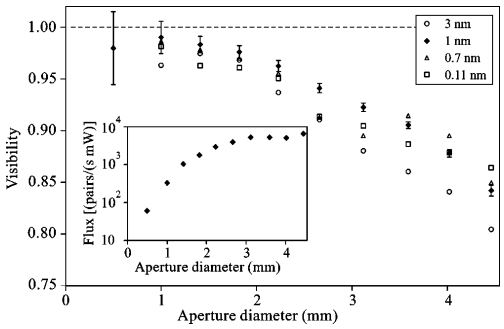


FIG. 3. Plot of visibility V as a function of aperture diameter for interference filter bandwidths of 3, 1, 0.7, and 0.11 nm. The 0.7-nm filter was composed of two identical 1-nm filters in series. Error bars for the 1-nm data are displayed. The inset plots the detected coincidence flux as a function of the aperture size for the filter bandwidth of 1 nm, showing the trade-off between usable flux and visibility.

us to maintain the SPDC operating point at exact frequency degeneracy for the collinearly propagating portion of the output. Typical pump powers were 5 mW and the crystal temperature was usually set at 30 °C. We added a collimating lens for the output beam and an adjustable iris was used to control the depth of field. The conditional detection efficiency for the hydrothermally grown PPKTP setup was ~25% for a 3-mm-diameter aperture and a 3-nm interference filter. Figure 3 shows the quantum-interference visibility as a function of the aperture size for four different interference-filter bandwidths. At the aperture size of 1 mm, which is equivalent to a divergence full angle of 5.4 mrad, we observed a visibility of 99±1% for the 1-nm filter. Figure 3 clearly shows that for larger aperture sizes, which correspond to shallower depths of field at the crystal, the visibility is reduced. This reduction occurred because spatial and spectral indistinguishability was no longer fully maintained. The inset in Fig. 3 shows the detected coincidence rate as a function of the aperture size for the case of the 1-nm filter. At the highest visibility level of 99%, obtained with a 1-mm aperture, the measured coincidence rate was ~300 s^{-1}/mW of pump power, which is one of the highest reported values at near-unity visibility level for an entanglement source [7,8]. Moreover, for an aperture size of 3 mm, with a corresponding divergence angle of 16 mrad, we measured a flux of over 5 000 s^{-1}/mW of pump while maintaining a visibility of 90%. We should note that the hydrothermally grown PPKTP crystal was found to be more efficient (with d_{eff}~1.60 pm/V) than the flux-grown PPKTP crystal (d_{eff}~0.74 pm/V). In addition, the UV-induced fluorescence of the hydrothermally grown PPKTP was about 25% of that for the flux-grown crystal.

IV. POLARIZATION ENTANGLEMENT

One can easily obtain polarization-entangled photon pairs using the experimental setup in Fig. 2. Each member of an

Phys. Rev. A **69**, 013807 (2004).

orthogonally polarized photon pair that is generated in the PPKTP down-converter has a 50% chance of being transmitted or reflected by the 50-50 beam splitter. When one photon appears in the transmitted path and one in the reflected path—something that can be postselected by monitoring for coincidences—the joint state of the beam-splitter's output is the polarization-entangled triplet given by Eq. (2).

The quality of the single-beam polarization entanglement can be evaluated by measuring the violation of the Clauser, Horne, Shimony, and Holt (CHSH) form of Bell's inequality [2]. We have made such Bell's inequality measurements using the diode-pumped flux-grown PPKTP down-converter with a 1-nm interference filter and ~10 mW of pump power. Referring to Fig. 2, the light in the transmitted path and in the reflected path of the 50-50 beam splitter were separately analyzed with a HWP and a PBS. Simultaneous coincidence measurements between detectors TT and RT ($C_{TT,RT}$), detectors TR and RR ($C_{TR,RR}$), and detectors TT and TR ($C_{TT,TR}$), as indicated in Fig. 2, were taken for two different θ_T settings of 0 and $\pi/8$ for the transmitted beam. The HWP$_T$'s angle setting θ_T was ascertained by quantum-interference measurements in the transmitted path using $C_{TT,TR}$. At each θ_T angle, coincidence measurements $C_{TT,RT}$ and $C_{TR,RR}$ over a 10-s interval were taken at 32 different positions of the HWP$_R$'s setting (θ_R at $\sim\pi/16$ intervals) in the reflected path of the 50-50 beam splitter. These coincidence measurements were used to calculate the value of the CHSH inequality. Figure 4 shows the coincidence counts $C_{TT,RT}$ for $\theta_T=0$ and for $\theta_T=\pi/8$ and their sinusoidal fits,

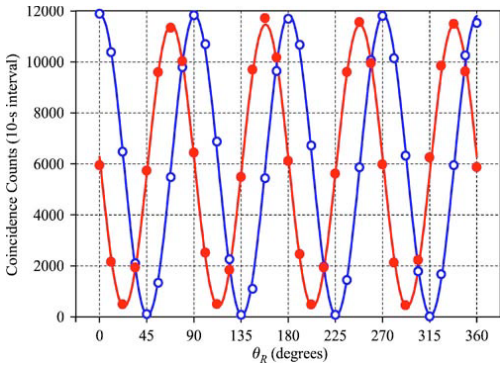


FIG. 4. Plot of coincidence counts for $\theta_T=0$ (open circles) and $\theta_T=\pi/8$ (solid circles) in a 10-s counting interval as a function of HWP$_R$ setting θ_R in the reflected path of the 50-50 beam splitter in Fig. 2. Accidental coincidences have been removed in these plots and the sinusoidal fits (solid lines) are used for obtaining visibility and the S parameter in the CHSH inequality.

showing visibilities of 98% and 93%, respectively.

The four coincidence-count data sets of $C_{TT,RT}$ and $C_{TR,RR}$ for $\theta_T=0$ and $\theta_T=\pi/8$ are fit to sinusoidal functions. Using these four fits (with their estimated errors) we construct the CHSH expectation E functions and the S parameter function [7,9]. E is defined by

$$E(\theta_T,\theta_R)=\frac{C_{TT,RT}(\theta_T,\theta_R)+C_{TR,RR}(\theta_T,\theta_R)-C_{TT,RR}(\theta_T,\theta_R)-C_{TR,RT}(\theta_T,\theta_R)}{C_{TT,RT}(\theta_T,\theta_R)+C_{TR,RR}(\theta_T,\theta_R)+C_{TT,RR}(\theta_T,\theta_R)+C_{TR,RT}(\theta_T,\theta_R)}. \tag{3}$$

Note that E depends on $C_{TT,RR}$ and $C_{TR,RT}$, which were not directly measured, so we derive their values from the fits of $C_{TT,RT}$ and $C_{TR,RR}$ with $\theta_R\rightarrow\theta_R+\pi/4$:

$$C_{TT,RR}(\theta_T,\theta_R)=C_{TT,RT}\left(\theta_T,\theta_R+\frac{\pi}{4}\right), \tag{4}$$

$$C_{TR,RT}(\theta_T,\theta_R)=C_{TR,RR}\left(\theta_T,\theta_R+\frac{\pi}{4}\right). \tag{5}$$

The parameter S is composed of E functions for two values of θ_R and two values for θ_T. In our case $\theta_T=0$, $\pi/8$ and $\theta_R=\pi/16$, $3\pi/16$. Thus our S parameter is defined as

$$S=\left|E\left(0,\frac{\pi}{16}\right)-E\left(\frac{\pi}{8},\frac{\pi}{16}\right)+E\left(0,\frac{3\pi}{16}\right)+E\left(\frac{\pi}{8},\frac{3\pi}{16}\right)\right|. \tag{6}$$

Classical and hidden variable theories predict $S\leqslant 2$, while quantum mechanics permits $S\leqslant 2\sqrt{2}\approx 2.828$, with equality occurring for maximal polarization entanglement, i.e., a polarization Bell state such as the triplet from Eq. (2). We obtained an S value of 2.711 ± 0.017, which indicates good polarization entanglement of our PPKTP SPDC source.

V. CONCLUSION

In summary, we have demonstrated a cw high-flux source of polarization-entangled photons using a PPKTP parametric down-converter in a collinearly propagating configuration. The single-beam output is shown to allow easy control of its spatial and spectral contents and simplify the transport of the photon pairs. By using a circular aperture we were able to obtain a high visibility of 99% with a corresponding flux of ~300 s^{-1}/mW of pump power. Polarization entanglement was obtained from the cw single-beam PPKTP down-converter with a 50-50 beam splitter, and we measured Bell's inequality violation with $S=2.711\pm0.017$. We have found that the use of periodically poled nonlinear material and the single-beam collinearly propagating configuration offer distinct advantages over the usual noncollinearly phase-matched BBO down-converter. Wavelength tunability of the paired photons with no change in the output beam angle can

Phys. Rev. A **69**, 013807 (2004).

be easily accomplished with temperature tuning of the crystal and/or a change in the pump wavelength. Long crystals with collinear outputs can be used to allow more efficient generation and collection of entangled photons. We expect that future entanglement sources based on cavity-enhanced parametric down-conversion in long crystals can significantly improve on its flux and also its spatial and spectral contents [11,15].

ACKNOWLEDGMENTS

This work was supported by the DoD Multidisciplinary University Research Initiative (MURI) program administered by the Army Research Office under Grant No. DAAD-19-00-1-0177, and by the National Reconnaissance Office. The authors thank Peter Hendrickson for fruitful discussion.

[1] J.S. Bell, Rev. Mod. Phys. **38**, 447 (1966).
[2] J.F. Clauser, M.A. Horne, A. Shimony, and R.A. Holt, Phys. Rev. Lett. **23**, 880 (1969).
[3] C.H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres, and W.K. Wootters, Phys. Rev. Lett. **70**, 1895 (1993).
[4] J.H. Shapiro, New J. Phys. **4**, 47. 1 (2002).
[5] M. Hillery, V. Buzek, and A. Berthiaume, Phys. Rev. A **59**, 1829 (1999).
[6] A.K. Ekert, Phys. Rev. Lett. **67**, 661 (1991).
[7] P.G. Kwiat, E. Waks, A.G. White, I. Appelbaum, and P.H. Eberhard, Phys. Rev. A **60**, R773 (1999).
[8] C. Kurtsiefer, M. Oberparleiter, and H. Weinfurter, Phys. Rev. A **64**, 023802 (2001).
[9] P.G. Kwiat, K. Mattle, H. Weinfurter, A. Zeilinger, A.V. Sergienko, and Y. Shih, Phys. Rev. Lett. **75**, 4337 (1995).
[10] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, and R.L. Byer, IEEE J. Quantum Electron. **28**, 2631 (1992).
[11] J.H. Shapiro and N.C. Wong, J. Opt. B: Quantum Semiclassical Opt. **2**, L1 (2000).
[12] Rigorous treatment of SPDC requires a Gaussian-state description, to properly account for multiple-pair events. We have previously reported [13–15] a Gaussian-state analysis that unifies the principal quantum signatures produced by $\chi^{(2)}$ interactions. Furthermore, we have shown how the low-gain limit of the polarization-entangled Gaussian state is well approximated by vacuum plus biphoton components [15]. Because our down-converter operates in this low-gain regime, it is appropriate to describe its nonvacuum output component in terms of the probability amplitudes of a biphoton state. Because the biphoton description is more intuitive than the rigorous Gaussian-state characterization, we have chosen to use the former throughout this paper.
[13] J.H. Shapiro and K.-X. Sun, J. Opt. Soc. Am. B **11**, 1130 (1994).
[14] J.H. Shapiro, Proc. SPIE **5111**, 382 (2003).
[15] J. H. Shapiro, in *Proceedings of the Sixth International Conference on Quantum Communication, Measurement and Computing*, edited by J.H. Shapiro and O. Hirota (Rinton Press, Princeton, 2003), pp. 153–158.
[16] M.H. Rubin, D.N. Klyshko, Y.H. Shih, and A.V. Sergienko, Phys. Rev. A **50**, 5122 (1994).
[17] C.K. Hong, Z.Y. Ou, and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **59**, 2044 (1987).
[18] C.E. Kuklewicz, E. Keskiner, F.N.C. Wong, and J.H. Shapiro, J. Opt. B: Quantum Semiclassical Opt. **4**, S162 (2002).
[19] S. Lloyd, M.S. Shahriar, J.H. Shapiro, and P.R. Hemmer, Phys. Rev. Lett. **87**, 167903 (2001).
[20] The biphoton state from Sec. II is the leading (first-order) nonvacuum term when the Gaussian state produced by SPDC is expanded in the number-state basis. That $\sim 1\%$ of our coincidences are due to double-pair occurrences represents the contribution of the second-order term in this number-state expansion. In Ref. [18] we used the Gaussian-state treatment of SPDC to analyze a quantum-interference measurement similar to that of Fig. 2. The same analysis procedure can be used for the Bell's inequality configuration. When the coincidence gate is short enough that the probability of a singles count in that time window is low, then the Gaussian-state results reduce to those obtained from the biphoton description.

3.6.2 *Physical Review A* 69, 041801(R) (2004).

Generation of ultrabright tunable polarization entanglement without spatial, spectral, or temporal constraints

Marco Fiorentino,* Gaétan Messin, Christopher E. Kuklewicz, Franco N. C. Wong, and Jeffrey H. Shapiro
Research Laboratory of Electronics, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Massachusetts 02139, USA
(Received 8 September 2003; published 5 April 2004)

The need for spatial and spectral filtering in the generation of polarization entanglement is eliminated by combining two coherently driven type-II spontaneous parametric down-converters. The resulting ultrabright source emits photon pairs that are polarization entangled over the entire spatial cone and spectrum of emission. We detect a flux of ~12 000 polarization-entangled pairs/s per mW of pump power at 90% quantum-interference visibility, and the source can be temperature tuned for 5 nm around frequency degeneracy. The output state is actively controlled by precisely adjusting the relative phase of the two coherent pumps.

DOI: 10.1103/PhysRevA.69.041801 PACS number(s): 42.65.Lm, 03.65.Ud, 03.67.Mn, 42.50.Dv

Polarization entanglement has been used to demonstrate a variety of quantum effects from quantum teleportation [1] to quantum cryptographic protocols [2]. The quality of polarization-entangled photon sources can be characterized by their pair flux and the purity of the entangled state they generate [3–7]. For the existing sources the requirements of high flux and high purity are often in conflict. Consider, for example, type-II spontaneous parametric down-conversion (SPDC) in a noncollinearly phase-matched β-barium borate (BBO) crystal. Here [4] spatial and spectral filtering are necessary to eliminate nonentangled photons that would reduce the purity of the output state. A source of polarization-entangled photons has been proposed [3] and demonstrated [6] in which the outputs of two different SPDC crystals are combined interferometrically. It was recognized that such a setup would generate entangled photons independent of their wavelengths and angles of emission [3]. The two-crystal interferometer, however, did not show the promised high flux and high visibilities [6]; this was attributed to technical difficulties in the alignment.

Our group has investigated the use of a collinearly propagating geometry and long periodically poled crystals to simplify alignment and to increase the output flux in both type-I [8] and type-II SPDC [9]. In the case of type-II SPDC in periodically poled potassium titanyl phosphate (PPKTP) [9], we have obtained *post selected* polarization-entangled photons. However, spatial and spectral filtering are still required to obtain a high-purity entangled state and the postselection process involves a 3-dB loss. In this Rapid Communication we report on a robust implementation of the coherent addition of two SPDC sources based on a single PPKTP crystal. Our scheme fully exploits, for the first time to our knowledge, the properties of interferometric combining of two coherent SPDC sources [3] to yield an ultrabright source of polarization entanglement that has no spatial or spectral constraints. Moreover, collinear operation allows us to control the output state by locking the pump phase of the same interferometer. This setup produces approximately ten times more polarization-entangled pairs/s per mW of pump than any other continuous-wave (cw) source in the literature [5,7].

Figure 1 illustrates a source that coherently combines the outputs of two SPDC crystals. A laser is split by a 50-50 beam splitter (BS) and pumps the two crystals that are phase matched for collinear type-II SPDC. In the low-gain regime, the biphoton state just after the crystals is given by

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|H_A(\omega_s)V_A(\omega_i)\rangle + e^{i\phi_p}|H_B(\omega_s)V_B(\omega_i)\rangle\right), \quad (1)$$

where A and B refer to the two arms of the interferometer, ω_s and ω_i are the signal and idler frequencies, respectively, and $\phi_p = k_p(L_B - L_A)$ is the difference of the delays accumulated by the pump (with wave vector k_p) in the paths L_A and L_B between the 50-50 BS and the crystals. A half-wave plate (HWP) is used to rotate the polarizations by 90° in arm B, so that the output state after the polarizing beam splitter (PBS) is

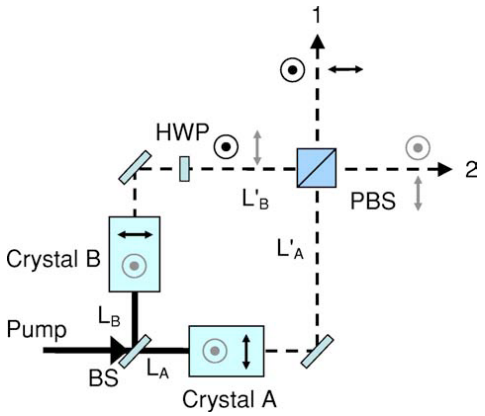


FIG. 1. Schematic of the two-crystal source of polarization-entangled photons. Black (gray) refers to the signal (idler) field amplitude at ω_s (ω_i). Horizontal (vertical) polarization: ↕ (⊙). BS, beam splitter; HWP, half-wave plate; PBS, polarizing beam splitter.

*Electronic address: mfiore@mit.edu

Phys. Rev. A **69**, 041801(R) (2004).

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H_1(\omega_s)V_2(\omega_i)\rangle + e^{i\phi}|V_1(\omega_s)H_2(\omega_i)\rangle), \qquad (2)$$

where 1 and 2 refer to the two PBS output ports. The overall phase $\phi=\phi_p+\phi_s+\phi_i$ is determined by the pump phase ϕ_p and the phase delays accumulated by the signal and idler, respectively, with $\phi_{s,i}=k_{s,i}(L'_B-L'_A)-\Delta\phi_{\lambda/2}(\omega_{s,i})$. The first term of $\phi_{s,i}$ is the delay due to the arm lengths L'_A and L'_B between the crystals and the PBS, and the second term is the phase difference introduced by the HWP. Note that the phase delays introduced by the identical crystals in the two arms cancel. Under collinear phase matching $k_p=k_s+k_i$, and ϕ is equal to the phase difference accumulated by the pump in the Mach-Zehnder interferometer formed between the 50-50 BS and the PBS except for a fixed offset due to the HWP. The phase of the output biphoton state in Eq. (2) can therefore be precisely controlled by locking the Mach-Zehnder interferometer as seen by the pump alone: one can generate the triplet (for $\phi=0$) or the singlet state ($\phi=\pi$), as well as intermediate states that are linear combinations thereof.

The HWP constrains the signal (idler) fields from the two crystals to exit at output 1 (2) in Fig. 1, ensuring [3,10] that the two sources are indistinguishable so that all the photons are polarization entangled regardless of their wavelengths and directions of emission. Spatial and spectral filtering is unnecessary in this two-crystal configuration, thus promising a source that has a much higher photon-pair flux, plus a larger bandwidth and spatial extension than BBO sources. Due to energy and momentum conservation, one expects the emitted photon pairs from this broadband spatially extended source to show spectral and spatial entanglement. Additional advantages of this scheme include automatic erasure of timing distinguishability, nondegenerate operation, and source tunability.

To implement the interferometric source described above it is crucial that the two SPDC sources be identical. Source differences introduce an element of distinguishability between the two paths that would lead to a mixed state output. We therefore implemented the scheme based on a single crystal with counterpropagating pump beams derived from a single laser. The single-crystal approach is particularly useful with periodically poled crystals, as it mitigates imperfections in the profiles of the periodic gratings.

We used a 10-mm-long (X crystallographic axis), 1-mm-thick (Z axis), and 4-mm-wide (Y axis) hydrothermally grown PPKTP crystal with a grating period of 9.0 μm. At a temperature of $\simeq$32°C this grating period phase matches type-II collinear frequency-degenerate down-conversion of a 398.5-nm pump polarized along the Y axis and propagating along the crystal's X axis. The crystal was housed in an oven and was maintained at its operating temperature with ±0.1°C precision. This crystal was previously characterized and used in type-II collinear SPDC to yield single-beam quantum interference with a 99% visibility [9]. We used second-harmonic generation to measure the temperature and wavelength tuning behavior in PPKTP using a cw tunable laser centered around 797 nm. The second-harmonic measurements are well described by the Sellmeier phase-matching equations for PPKTP [11], which allow us to calculate the spatial and spectral properties of the down-converted photons, as well as the phase-matching angles' dependence on the crystal temperature. The latter predictions have been verified by imaging the emitted photons with a charge-coupled-device camera and narrow spectral filters.

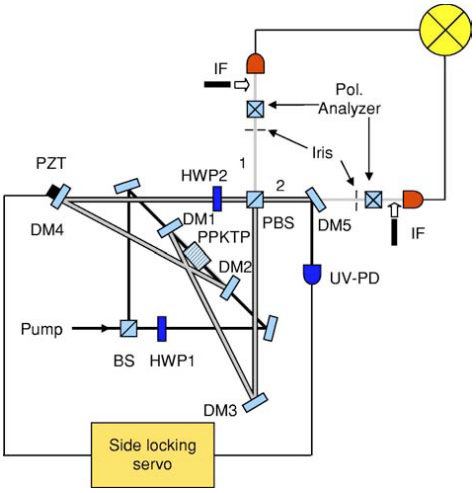


FIG. 2. Experimental setup. BS, 50-50 beam splitter; DM, dichroic mirror; PBS, polarizing beam splitter; HWP, half-wave plate; IF, 3-nm interference filter centered at 797 nm. HWP1 is used to balance the flux of down-converted photons in the two directions.

The experimental setup is shown in Fig. 2. The frequency-doubled cw Ti:sapphire pump laser at 398.5 nm was split by a BS that had a splitting ratio of ~50-50. To balance the powers of the two pump beams we inserted a half-wave plate (HWP1) to vary the horizontally polarized pump power in the (counterclockwise propagating) brighter path. The crystal was not phase matched for a vertically polarized pump. Each pump beam focused to a waist of ~150 μm at the center of the PPKTP crystal. The generated beams were collimated with 300-mm radius-of-curvature dichroic mirrors (DM1,2) and combined at a PBS after the polarization of one of the beams was rotated by 90° with a HWP. The dichroic mirrors were coated for high reflectivity (HR) at 797 nm and for high transmission (HT) at 398.5 nm, with a residual reflectivity of 0.2% at the pump wavelength. The pump beams, which propagated collinearly with the down-converted beams, were weakly reflected by the four mirrors (DM1-4) and recombined on the PBS, which had a ~20-80 splitting ratio at the pump wavelength. The resultant pump beam from port 2 of the PBS was directed by a dichroic mirror (DM5, HR at 398.5 nm, and HT at 797 nm) for detection with an ultraviolet photodiode. The BS and PBS in Fig. 2 formed a Mach-Zehnder interferometer for the pump and the detected fringes were used to stabilize the interferometer with a side-locking technique. This provided a convenient and robust way to control the phase ϕ of the output state in Eq. (2). By inserting a dispersive medium (such as a thin glass plate) in one of the arms of the Mach-Zehnder interferometer we introduced

Phys. Rev. A **69**, 041801(R) (2004).

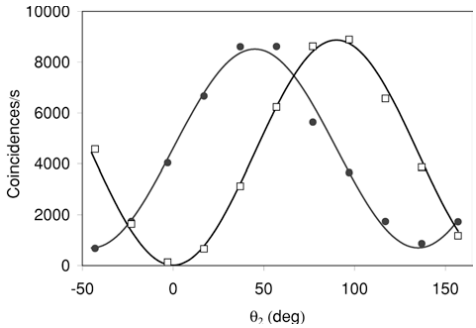


FIG. 3. Coincidence counts for the frequency-degenerate singlet state versus analyzer angle θ_2 in arm 2 for analyzer angle in arm 1 set at 45° (solid circles) and 0° (open squares). Aperture size: 4 mm; no interference filter was used; pump power: 0.7 mW. Each point is averaged over 10 s and the lines are a sinusoidal fit to the data.

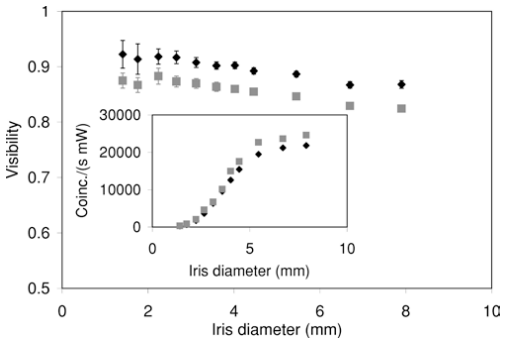


FIG. 4. Frequency-degenerate singlet state 45°-visibility versus iris diameter. In the inset: coincidence counts/s per mW of pump power versus iris diameter. No interference filter (squares) and 3-nm interference filter centered at 797 nm (diamonds).

a fixed but variable offset between the phase of the pump fringes and the phase of the output state (the overall offset phase includes other dispersive elements in the interferometer). By varying this phase offset, we were able to lock the phase of the output state at an arbitrary value while optimizing the side-locking feedback signal.

We placed two irises in the output beam paths to control the acceptance angle of the detection system. We estimate that an iris diameter of 1 mm corresponded to an internal emission solid angle of $\sim 3.5 \times 10^{-5}$ sr at the crystal. Flat dichroic mirrors (not shown in Fig. 2) similar to DM1 were used to eliminate residual pump light. The output photons were detected with single-photon Si detectors (Perkin-Elmer SPCM-AQR-14) through polarization analyzers (composed of a half-wave plate and a polarizer). The outputs of the single-photon detectors were counted and also sent to an AND gate (TTL logic family 74F) for coincidence counting. The coincidence window for this configuration was measured to be 39.4 ns. This parameter allowed us to correct for the rate of accidental coincidences in all of the data reported. For example, when 12 000 coincidences/s were measured, an average of 67 000 singles/s were detected at each single-photon detector and ~250 coincidences/s were due to accidental Poisson processes (better coincidence logic would make this correction unnecessary).

A summary of our experimental results, with the accidentals removed, is shown in Figs. 3–5 for $\phi = \pi$ (singlet). The temperature of the crystal was set to ~32 °C to ensure frequency degenerate operation. Figure 3 shows the quantum interference in the coincidence counts when the analyzer angle in arm 2 was varied for a fixed angle in arm 1 with no narrow-band interference filter. We observed a visibility of $(100 \pm 3)\%$ $[(85 \pm 3)\%]$ when analyzer 1 is set to 0° (45°). In what follows we will use the 45° visibility as an indication of the quality of the state generated.

In Fig. 4 we report the 45° visibility for the singlet state as a function of the iris diameter. Two sets of data are shown, one using a 3-nm interference filters centered at 797 nm placed in front of the detectors (diamonds) and one in which the interference filter was removed (squares). In both cases the visibility is almost constant as a function of the iris diameter. This allows us to increase the pair flux (Fig. 4 inset) while preserving the purity of the output state. With the 3-nm filter we observed a visibility of 90% and a flux $\simeq 12\,000$ pairs s^{-1} mW^{-1} with a 4-mm iris. Under this condition, following Ref. [12], we tested Bell's inequality and obtained $S = 2.599 \pm 0.004$, violating the classical limit by more than 100σ.

Figure 4 can be compared with data obtained in a single-pass configuration with similar collection geometry properties reported in Ref. [9]. The visibility of quantum interference in the single-pass experiment drops much faster as the iris diameter increases than in this interferometric configuration. The nearly constant visibility in Fig. 4 arises from effective spatial and spectral indistinguishability in this dual-pumped interferometric configuration.

Two main factors limited the visibility: wave-front distortion and diffraction caused by the components of the inter-

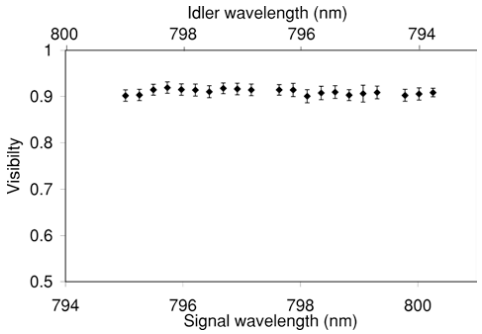


FIG. 5. 45° visibility (corrected for accidentals) versus signal wavelength (no interference filter, iris diameter 2.2 mm) with a measured flux of 3500 pairs s^{-1} mW^{-1}. The wavelengths on the abscissas are calculated from temperature tuning curves of the Sellmeier equations.

Phys. Rev. A **69**, 041801(R) (2004).

ferometer, and defects in the electric-field poling of the crystal. Wave-front distortion and diffraction lead to spatial distinguishability between the two down-converted beams. Inhomogeneity in the crystal grating introduces a temporal mismatch between the two paths. Both these effects were mitigated somewhat by closing the iris and by adding spectral filters. To investigate the effects of wave-front distortion and diffraction we measured the interferometer visibility directly by injecting a laser beam at 797 nm through arm 2 of the PBS in Fig. 2 and observing the fringe signal in arm 1. The input and output beam diameters could be varied with irises. When we changed the diameter of the output beam for a fixed input beam diameter, the visibility showed the same plateau for small iris diameters as in Fig. 4. When we decreased the input beam diameter for a fixed output beam diameter the visibility increased linearly, approaching 100%. This suggests that the diffraction inside the interferometer was responsible for the flat plateau in the visibility of Fig. 4. We note that a slight mismatch in the length of the two interferometric arms can also degrade the visibility.

No interference filter was used in obtaining the data shown in Fig. 5 and the iris diameter was fixed at 2.2 mm. The temperature of the crystal was then scanned between 20 °C and 50 °C and the 45° visibility was measured. We used our knowledge of the Sellmeier equations, verified by down-conversion and second-harmonic generation measurements, to calculate the phase-matched signal and idler wavelengths for each temperature setting, and hence obtain the abscissas shown in this figure. Figure 5 shows that the 45° visibility is essentially independent of the signal and idler emission wavelengths for a range of ~5 nm around degeneracy.

In conclusion, we have demonstrated a source of polarization-entangled photon pairs with high flux and state purity. The cw source is based on the interferometric combination of two coherently driven type-II sources of spontaneous parametric down-conversion from a single PPKTP crystal. This dual-pumped source is uniquely characterized by the fact that all the emitted photon pairs are polarization entangled, regardless of their wavelengths and directions of emission. Therefore it can be tuned, has a wide bandwidth, and an extended spatial profile. We believe that our source produces spatial and spectral entanglement, in addition to polarization entanglement, thus providing additional degrees of freedom that can be used for quantum communication. Further work with this source is needed to experimentally demonstrate these additional forms of entanglement. If successful, we would then have a source that could be used to demonstrate fundamental quantum properties [13] and in cryptographic protocols with improved security [14].

This work was supported by a DoD Multidisciplinary University Research Initiative (MURI) program administered by the Army Research Office under Grant No. DAAD-19-00-1-0177, the Defense Advanced Research Projects Agency (DARPA) and Air Force Research Laboratory under Grant No. F30602-01-2-0546, the National Reconnaissance Office, and a DURIP Instrumentation Grant No. DAAD-19-01-1-0335.

[1] D. Bouwmeester *et al*., Nature (London) **390**, 575 (1997).
[2] T. Jennewein, C. Simon, G. Weihs, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, Phys. Rev. Lett. **84**, 4729 (2000); D. S. Naik, C. G. Peterson, A. G. White, A. J. Berglund, and P. G. Kwiat, *ibid*. **84**, 4733 (2000).
[3] P. G. Kwiat, P. H. Eberhard, A. M. Steinberg, and R. Y. Chiao, Phys. Rev. A **49**, 3209 (1994).
[4] P. G. Kwiat *et al*., Phys. Rev. Lett. **75**, 4337 (1995).
[5] P. G. Kwiat, E. Waks, A. G. White, I. Appelbaum, and P. H. Eberhard, Phys. Rev. A **60**, R773 (1999).
[6] Y. H. Kim, M. V. Chekhova, S. P. Kulik, M. H. Rubin, and Y. Shih, Phys. Rev. A **63**, 062301 (2001).
[7] C. Kurtsiefer, M. Oberparleiter, and H. Weinfurter, Phys. Rev. A **64**, 023802 (2001); J. Völtz, C. Kurtsiefer, and H. Weinfurter, Appl. Phys. Lett. **79**, 869 (2001); M. Barbieri, F. De Martini, G. Di Nepi, and P. Mataloni, e-print quant-ph/0303018; M. Pelton *et al*. (unpublished).
[8] E. J. Mason, M. A. Albota, F. König, and F. N. C. Wong, Opt. Lett. **27**, 2115 (2002).
[9] C. E. Kuklewicz, M. Fiorentino, G. Messin, F. N. C. Wong, and J. H. Shapiro, Phys. Rev. A **69**, 013807 (2004).
[10] J. H. Shapiro and N. C. Wong, J. Opt. B: Quantum Semiclassical Opt. **2**, L1 (2000).
[11] H. Vaherzeele, J. D. Bierlein, and F. C. Zumsteg, Appl. Opt. **27**, 3314 (1988); W. Wiechmann, S. Kubota, T. Fukui, and H. Masuda, Opt. Lett. **18**, 1208 (1993).
[12] J. F. Clauser, M. A. Horne, A. Shimony, and R. A. Holt, Phys. Rev. Lett. **23**, 880 (1969); A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger, *ibid*. **49**, 91 (1982).
[13] Z.-B. Chen, J.-W. Pan, Y.-D. Zhang, C. Brukner, and A. Zeilinger, Phys. Rev. Lett. **90**, 160408 (2003).
[14] M. Genovese and C. Novero, Eur. Phys. J. D **21**, 109 (2002).

Chapitre 4

Emetteur de photons uniques et calcul quantique

4.1 Traitement quantique de l'information

4.1.1 Bref historique

La notion de traitement quantique de l'information émerge au début des années quatre-vingt avec l'introduction de la notion de simulateur quantique par Feynman [111], les machines de Turing quantiques de Benioff [112] et la notion d'automate quantique par Albert [113], c'est-à-dire à peu près au même moment que la cryptographie quantique [13]. Ce n'est d'ailleurs pas tout à fait une coïncidence : on retrouve derrière tous ces travaux les noms de Bennett et Landauer, bientôt rejoints par DiVincenzo, tous chercheurs chez IBM et pionniers de l'information quantique. C'est Deutsch qui va fournir au calcul quantique, dans la seconde moitié des années quatre-vingt, un cadre explicite en définissant les machines de Turing quantiques, les circuits quantiques et en étudiant certaines de leurs propriétés [72].

Avec ces travaux, la notion de bit quantique d'information introduite pour la cryptographie et que l'on a retrouvé dans le protocole de téléportation, prend une nouvelle dimension : c'est l'élément de base de la théorie de l'information quantique, qui traite à la fois des communications et du calcul quantique. Le fait que la téléportation (et donc la cryptographie) puisse s'exprimer comme un calcul quantique [78] et que le calcul quantique peut être réalisé au moyen de la téléportation [79] traduit bien ce fait. Il ne s'agit plus seulement de transporter des états quantiques ou d'utiliser les propriétés de la mécanique quantique pour la cryptographie, il s'agit aussi de transporter et de traiter des bits quantiques d'information.

C'est entre 1992 et 1996 — en même temps qu'apparaît la téléportation quantique — que se développe vraiment le traitement quantique de l'information avec la proposition de trois algorithmes principaux pour lesquels le traitement quantique de l'information présenterait un avantage : l'algorithme de Deutsch-Jozsa qui détermine si une fonction est contante ou équilibrée [114], l'algorithme de factorisation de Shor [115] et l'algorithme de recherche dans une liste de Grover [116]. C'est aussi durant cette période qu'est montrée l'universalité de portes à deux bits quantiques [117, 118], qu'est introduite la porte C-NOT [119] (porte «NON-contrôlé » qui permet, avec les opérations à un seul bit quantique, de réaliser n'importe quelle opération unitaire sur un registre de bits quantiques) et que sont proposés les premiers codes correcteurs d'erreurs [120]. Cirac et Zoller proposent en 1995 la réalisation d'un ordinateur

quantique avec des ions [121] ; quelques mois plus tard le groupe de Wineland réalise la première porte C-NOT.

Un certain nombre d'algorithmes quantiques ont pu être réalisés depuis ; citons en particulier l'algorithme de Shor, utilisé en 2001 par Chuang *et al.* pour factoriser 15 [123], celui de Grover, réalisé par Monroe *et al.* en 2003 [124], et celui de Deutsch-Jozsa, mis en œuvre par Blatt *et al.* en 2005 [125].

4.1.2 Enjeux du traitement quantique de l'information

Un ordinateur classique sait évidement résoudre ces problèmes — rien de ce qu'un ordinateur quantique peut faire n'est impossible à un ordinateur classique — mais ces algorithmes quantiques sont asymptotiquement plus rapide que les meilleurs algorithmes classiques connus, ce qui en fait leur attrait principal : le temps de calcul de l'algorithme de Shor croît de façon polynomiale avec la taille du nombre à factoriser, alors qu'un algorithme classique croît exponentiellement ; une recherche dans une liste de N éléments demande en moyenne un temps de calcul proportionnel à N avec un algorithme classique, alors que l'algorithme de Grover trouve la solution en un temps qui croît comme $\sqrt{N}$; la résolution du problème de Deutsch-Jozsa pour une fonction de N bits peut nécessiter jusqu'à $2^{N-1}+1$ interrogations de la fonction dans le cas classique, contre une seule dans le cas quantique.

Ce qui fait l'avantage du traitement quantique de l'information est la conjonction de l'utilisation du principe de superposition quantique et de l'exploitation des interférences quantiques. Le principe de superposition permet à un registre de bits quantiques d'explorer simultanément toutes les configurations possible du registre ; c'est ce que l'on nomme le parallélisme quantique. Un choix judicieux de la succession des opérations unitaires appliquées au registre quantique permet de renforcer dans la superposition quantiques des états du registre le poids des états que l'on recherche (interférences constructives) et de réduire celui des autres (interférences destructives) [126]. Une mesure de l'état du registre peut alors donner soit un résultat parfaitement déterministe dans le cas où un seul état correspond à des interférences constructives, soit un résultat dont la probabilité d'être le bon est élevé. Dans ce second cas, on peut alors souvent facilement tester la solution trouvée et exécuter à nouveau le programme si elle ne convient pas. La figure 4.1, reproduite d'après [127], illustre ce fonctionnement.

Toute la difficulté de la construction d'un calculateur quantique provient du fait qu'il faut pouvoir conserver la cohérence de l'ensemble du registre de bits quantiques utilisés pendant tout le déroulement du calcul et que ce registre doit être aussi grand que possible. DiVincenzo a établi une liste de cinq critères qu'un dispositif physique doit remplir pour être un calculateur quantique universel [128] :

1. Le dispositif doit être extensible (*s*calable) et être composé de bits quantiques parfaitement caractérisés.
2. L'état de l'ensemble des bits quantiques doit pouvoir être initialisé dans un état de référence tel que $|000...\rangle$.
3. Le dispositif doit présenter des temps de décohérence longs devant la durée d'opération d'une porte logique.
4. On doit disposer d'un jeu universel de porte logiques quantiques pouvant agir sur les bits quantiques du dispositif.
5. On doit être capable de mesurer l'état de tout bit quantique du dispositif.

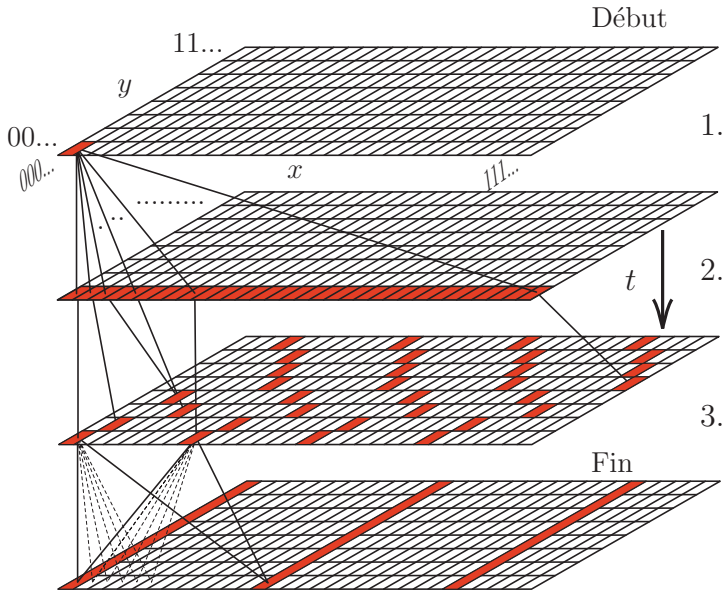


FIG. 4.1 – *Illustration schématique de l'évolution temporelle de l'état du registre quantique dans la procédure de factorisation de Shor. Les états qui contribuent à la fonction d'onde à chaque instant sont représentés en rouge. Quelques «chemins» sont ébauchés. Dans la dernière étape, la plupart interfèrent destructivement (pointillés) ; seulement quelques-uns interfèrent constructivement. Figure reproduite d'après [127].*

4.1.3 Etat de l'art

A la tête de la compétition internationale pour la réalisation d'un calculateur quantique, ont trouve aujourd'hui au coude-à-coude les groupes de Blatt en Allemagne et Wineland aux Etats-Unis qui travaillent tous deux avec des ions piégés [129, 130]. De nombreux autres systèmes matériels sont étudiés : la résonance magnétique nucléaire, utilisée pour réaliser l'algorithme de factorisation de Shor [123], les états de spin de centres $N-V$ du diamant [19], les états de spin de boîtes quantiques semi-conductrices [132], les circuits supraconducteurs [133], les systèmes d'électrodynamique quantique en cavité [134], ou encore les atomes neutres dans des réseaux optiques [135, 136] et dans des pinces optiques [137, 138, 139].

Bien que la lumière soit plutôt considérée comme un support pour le transport de l'information, la facilité de manipulation des photons en fait un candidat intéressant. Le principal inconvénient des photons est qu'ils n'interagissent pas entre eux, ce qui a pour conséquence l'impossibilité de réaliser par les seules opérations de l'optique linéaire une mesure de Bell complète sur un état à deux photons [91] et rend par là-même difficile la construction de portes logiques à deux bits quantiques[1]. Leur principal avantage est de ne pas être sujets à la décohérence : une information stockée dans un photon reste potentiellement là indéfiniment.

[1] Une mesure de Bell complète sur un état à deux bits quantiques est équivalente à l'application d'une porte C-NOT suivie d'une opération à un seul bit quantique sur le bit de contrôle, puis une mesure de l'état de chacun des deux bits [140]. Dans le cas de bits quantiques représentés par des photons uniques polarisés, toute la difficulté de la réalisation de la mesure de Bell réside dans celle de la porte C-NOT.

La première proposition de réalisation d'un calculateur quantique simple avec des photons, par Chuang et Yamamoto date de 1995 [141]. Depuis, de nombreuses propositions d'ordinateurs quantiques reposant sur l'utilisation d'état du champ lumineux ont été faites, allant de l'utilisation d'états chat de Schrödinger comme bits quantiques au traitement quantique de l'information en variables continues, en passant par l'encodage de l'information dans les états d'un oscillateur harmonique ou par l'utilisation de l'optique linéaire avec des photons uniques. L'article de revue [142] et les références qu'il contient donne un panorama assez complet de ces propositions. Il détaille tout particulièrement la dernière de ces propositions connue sous le nom de KLM [14] (en référence à Knill, Laflamme et Milburn qui en sont les auteurs) ainsi que ces variantes, dont l'adaptation du *one-way quantum computing* de Raussendorf et Briegel [143] qui substitue à l'enchaînement des portes logiques l'utilisation d'états *cluster* massivement intriqués et de mesures projectives.

4.1.4 Intérêt des émetteurs de photons uniques

KLM repose fondamentalement sur l'usage de photons uniques. Son intérêt majeur est d'établir qu'il est possible de construire un ordinateur quantique extensible utilisant des sources de photons uniques, des composants optiques linéaires et des détecteurs de photons. Ces derniers permettent d'induire, par la mesure, les non-linéarités nécessaires à l'obtention de portes à deux bits quantiques. Cette proposition, publiée en 2001, est largement responsable du regain d'intérêt pour le calcul quantique au moyen de dispositifs d'optique linéaire comme en témoignent la construction en 2003 d'une porte C-NOT «tout-optique» [144], ainsi que la réalisation récente des algorithmes de Shor [146], Grover [145] et Deutsch [147] avec des photons, avec l'utilisation additionnelle des idées du *one-way quantum computing* pour les deux dernières. On notera que toutes ces réalisations utilisent des sources de paires de photons jumeaux, donc des sources de photons uniques annoncées, plutôt que des sources de photons déclenchées qui présentent pourtant un intérêt certain lorsque l'on cherche à construire des dispositifs à grand nombre de photons car elles sont synchronisables.

Quelles que soient les sources de photons uniques utilisées, une contrainte sévère doit être remplie : les photons émis doivent être tous parfaitement identiques, c'est-à-dire capables de produire des effets d'interférences quantique à deux photons. Il est nécessaire pour cela que les photons ne gardent pas de «souvenir» de leur émetteur ou que ces émetteurs soient eux-même parfaitement identiques. C'est précisément ce qui fait l'intérêt de l'émission déclenchée de photons uniques produits par un unique atome de rubidium que nous avons développée dans le groupe d'optique quantique (cf. §2.3.3).

Nous présentons dans ce qui suit les expériences d'interférences à deux photons réalisées avec deux atomes uniques de rubidium utilisés comme sources de photons uniques déclenchées. Nous verrons que ces émetteurs présentent en outre l'avantage d'être eux-même capables de porter un bit d'information quantique. De plus, le processus d'émission conduit à des états intriqués atome-photon permettant l'intrication conditionnelle de deux atomes sans que ceux-ci aient besoin d'interagir entre eux. La capacité à obtenir cette intrication est un premier pas vers la réalisation de portes logiques à deux bits quantiques avec des atomes neutres.

4.2 Interférences à deux photons

L'intérêt principal de la source de photons uniques déclenchée utilisant comme émetteur un atome unique piégé que nous avons décrite au chapitre 2 (cf. §2.3.3) est que les pho-

tons qu'elle émet sont *a priori* identiques en termes de mode spatial, de fréquence, et plus généralement de mode temporel, et en polarisation. Cette propriété est capitale pour les propositions de calcul quantique avec des photons uniques telles que KLM et ses variantes [14, 142] parce que c'est elle qui garantit les effets d'interférences quantiques indispensables. Pour montrer l'intérêt de cette source de ce point de vue, nous avons réalisé une expérience d'interférence avec deux photons émis par deux atomes uniques. Pour une approche peu technique de ces travaux, on pourra se reporter à un article publié dans la revue du CNRS *Images de la Physique* en 2006 [149] qui décrit à la fois notre expérience avec des photons uniques émis par des atomes uniques et une expérience similaire menée au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures avec des émetteurs à base de boîtes quantiques.

4.2.1 Coalescence

L'effet d'interférence quantique à deux photons que nous avons cherché à mettre en évidence a été observée pour la première fois par Hong, Ou et Mandel (HOM) en 1987 [15] avec des photons jumeaux produits par fluorescence paramétrique. Cet effet est le suivant : lorsque deux photons uniques identiques tombent sur chacune des faces d'une lame séparatrice équilibrée (50/50), la probabilité de détecter un photon sur chacune des deux voies de sortie de la lame est nulle parce que les amplitudes de probabilités associées aux deux «chemins» possibles pour y parvenir (les deux photons sont transmis ou les deux photons sont réfléchis) interfèrent destructivement. Autrement dit, deux photons qui arrivent séparément, sur deux voies d'entrée différentes d'une séparatrice équilibrée, partent toujours ensemble, ce qui vaut a cet effet d'être parfois appelé «coalescence».

La coalescence ne peut s'expliquer ni par une description purement corpusculaire de la lumière, ni par une description purement ondulatoire. C'est un effet dont la description

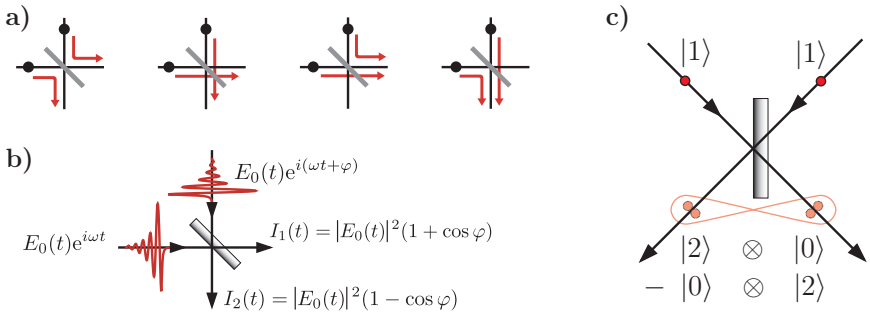


FIG. 4.2 – *La coalescence n'est correctement décrite que dans une approche quantique de la lumière.* ***a)*** *Deux corpuscules classiques ou deux particules discernables qui tombent sur une lame semi-réfléchissante quittent la lame séparément la moitié du temps.* ***b)*** *Deux paquets d'ondes classiques identiques qui ne diffèrent que par une phase φ et qui tombent sur une séparatrice ne donnent jamais des ondes qui sortent aléatoirement d'un côté ou de l'autre de la lame ; pour une phase aléatoire, si l'on assimile les intensités à des flux de photons, on obtient des photons des deux côtés de la lame au moins la moitié du temps.* ***c)*** *Le calcul quantique conduit a un état non local après la lame, avec deux photons d'un côté et rien de l'autre ; on doit détecter aléatoirement deux photons d'un côté ou de l'autre, mais jamais un de chaque côté.*

nécessite une description des photons identiques comme particules quantiques indiscernables (voir figure 4.2). Notons que dans notre cas, contrairement à l'expérience historique de HOM, les deux photons sont émis par deux atomes uniques indépendants et n'ont donc aucune «histoire commune».

4.2.2 Réalisation expérimentale

De façon à obtenir l'émission de deux photons uniques par deux atomes différents, nous avons utilisé deux pièges dipolaires séparés de quelques microns. Pour cela, nous avons simplement utilisé deux faisceaux lasers désaccordés vers le rouge des raies $D1$ et $D2$ du ^{87}Rb (810nm), formant un petit angle entre eux et focalisés au travers de l'objectif de grande ouverture numérique pour former deux pièges côte-à-côte. Comme dans le cas du piégeage d'un atome unique (cf. §2.2.2, p. 2.2.2), l'observation de la fluorescence induite par les faisceaux de la mélasse optique provenant des pièges permet de déterminer si des atomes sont entrés.

Trois niveaux de fluorescence bien distincts correspondant à aucun atome piégé, un atome dans l'un des deux pièges ou un atome dans chaque piège étaient clairement observables et permettaient de déclencher sans ambiguïté une séquence expérimentale uniquement lorsque deux atomes étaient piégés. Cette séquence consistait à éteindre les faisceaux autres que les deux faisceaux des pièges dipolaire dans un ordre garantissant le pompage optique des atomes dans leur sous état fondamental $F = 2, m_F = 2$. Une impulsion résonante π réalisée sur la raie $D2$ des deux atomes au moyen du laser nanoseconde présenté au §2.3.3 permettait de les porter simultanément dans leur état excité $F' = 3, m_{F'} = 3$. Pour réaliser la même excitation au niveau des deux pièges, le diamètre du faisceau d'excitation était très grand devant la séparation spatiale des atomes. Les deux atomes émettaient alors simultanément deux paquets d'ondes caractérisés par une durée de 25 ns.

La distance entre les atomes (6μm) était suffisante pour séparer leurs images et donc séparer les photons provenant de l'un ou de l'autre. En recombinant les deux paquets d'ondes sur une lame séparatrice 50/50 avec un montage symétrique, on réalisait l'expérience de coalescence comme représentée très schématiquement figure 4.3 en enregistrant le délai τ entre les photodétections produites sur deux photodiodes à avalanches placées de part et d'autre de la lame. L'excitation des deux atomes était répétée avec une période de 200 ns, grande devant la durée de vie de l'état atomique excité, de façon à être certain d'être revenu dans le fondamental avant d'exciter l'atome à nouveau. L'histogramme du nombre de coïncidences de photodétection $N_c(\tau)$ était ainsi formé à partir de la mesure répétée

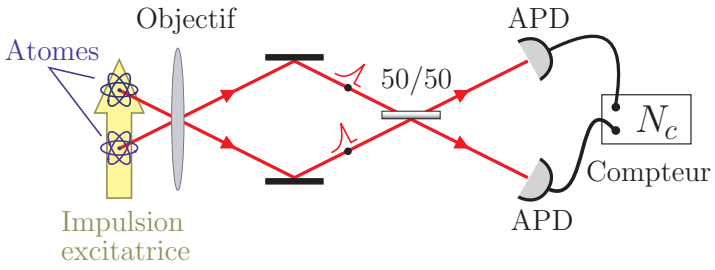


FIG. 4.3 – *Schéma de principe du montage expérimental.*

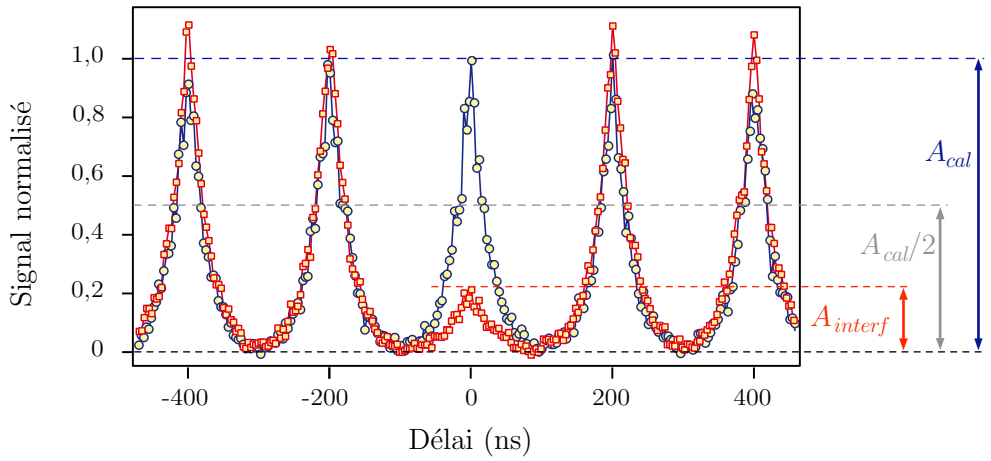


FIG. 4.4 – *Signal d'interférence. Histogramme de calibration et histogramme correspondant à l'effet d'interférence. La hauteur moyenne des pics de calibration est normalisée à 1. Le pic à délai nul de l'histogramme avec effet d'interférence est plus petit que la moitié du pic de calibration, ce qui ne peut s'expliquer que par une interférence quantique.*

des délais τ. De façon à pourvoir normaliser cet histogramme, nous enregistrions également l'histogramme obtenu lorsque le lame séparatrice était absente du montage. Le rapport des deux histogrammes s'interprète comme la probabilité, en fonction du délai τ que deux photons qui arrivent sur la lame la quittent séparément.

4.2.3 Résultats expérimentaux

Sont reproduits, figure 4.4, les deux histogrammes obtenus : l'histogramme en présence de la séparatrice et l'histogramme de calibration que l'on obtient si on l'enlève.

Si l'on avait utilisé à la place des deux atomes uniques, deux sources d'impulsions lumineuses classiques ne pouvant interférer entre elles, les deux histogrammes auraient été identiques : chacune des deux impulsions se divisant en deux sur la lame séparatrice et n'interférant pas, la probabilité d'observer une coïncidence si les deux impulsions atteignent la lame est l'unité.

Si on avait utilisé des sources de photons uniques discernables ou des sources de corpuscules classiques, la probabilité de voir une coïncidence se produire autour du délai nul à chaque fois que deux corpuscules arrivent sur la séparatrice vaut 1/2. Pour des délais multiples de la période de répétition de l'excitation, un petit calcul de dénombrement permet de voir que les deux expériences, avec et sans lame séparatrice doivent donner le même résultat. Dans le cas de deux sources identiques sans relation de phase, mais néanmoins cohérentes entre elles[2], on trouverait le même résultat : le pic central serait deux fois moins haut en présence de la lame séparatrice qu'en son absence ; les autres pics seraient identiques dans les deux situations. La réduction d'un facteur deux peut ainsi s'interpréter comme un effet

[2] C'est-à-dire deux sources produisant des impulsions identiques ne différant à chaque fois que par une phase globale fixe pour toute la durée de l'impulsion, mais variant aléatoirement d'une impulsion à l'autre.

classique corpusculaire (du dégroupement) ou ondulatoire (des interférences moyennées par une phase aléatoire).

L'observation d'un histogramme en présence de la lame séparatrice qui présente un pic à délai nul qui est moins de la moitié du pic de calibration ne peut s'expliquer que par une interférence quantique dans laquelle se manifestent à la fois les aspects ondulatoires (interférences des chemins) et corpusculaires de la lumière (détections de photons individuels). Le contraste de cet effet d'interférence constitue une mesure du degré d'identité de photons utilisés : pour des photons uniques complètement discernables (orthogonalement polarisés par exemple), la hauteur normalisée du pic central vaut $1/2$; pour des photons complètement indiscernables, la hauteur normalisée du pic central doit être nulle. Le contraste est en fait directement relié au produit scalaire des états des deux photons.

Les résultats de cette expérience sont décrits en détail dans un article publié dans *Nature* et reproduit à la fin de ce chapitre, page 4.5.1. Pour plus d'informations, on pourra également consulter la thèse de Jérôme Beugnon sur le sujet [150]. Le pic résiduel à délai nul est attribué en majorité à un défaut de recouvrement de modes spatiaux, ce qui peut être corrigé en couplant la lumière provenant de chaque atome dans des fibres identiques. Une autre contribution est identifiée : le mouvement résiduel des atomes dans leur piège est responsable de légères différences dans les fréquences des photons émis, ce qui donne après moyennage sur la distribution thermique des atomes piégés un léger renflement sur les ailes du pic central, visible sur la figure 4 de l'article (voir aussi les *Supplementary Informations* qui suivent). C'est ce dernier effet qui deviendrait limitant si les photons émis par les atomes étaient couplés à des fibres. Pour en réduire les conséquences, il faudrait pouvoir refroidir les atomes dans leur piège (par exemple par refroidissement Raman par bandes latérales) ou bien les piéger directement dans le niveau vibrationnel fondamental du piège (en partant un condensat).

4.3 Utilisation d'un émetteur unique comme bit quantique

Les atomes alcalins uniques piégés dans des pinces optiques, en plus de permettre l'émission de photons uniques, constituent en eux-même de bons candidats comme support de bits quantiques. Il est en effet possible de réaliser des registres d'atomes adressables optiquement, par exemple en réalisant des réseaux de pièges dipolaires au moyen d'un hologramme [139] que cela a été montré dans notre groupe, ou avec des réseaux de lentilles ou des ondes stationnaires comme cela se fait ailleurs [137, 138]. Chaque atome du registre peut alors être utilisé comme support pour un bit d'information quantique. Cette utilisation d'atomes neutres présente par rapport aux ions l'avantage d'être plus facilement extensible, même s'il est plus difficile de réaliser des portes logiques à deux atomes.

Nous avons pu monter qu'un atome unique piégé constituait un bon support pour un bit quantique et qu'il était même possible de déplacer dans un registre atomique un tel bit quantique ou de le transfert d'un piège dipolaire à un autre en conservant ses propriété de cohérences. Le fait qu'un émetteur de photons uniques puisse également être utilisé comme bit d'information quantique peut être utilisé pour réaliser des états intriqués atome-photon, voire pour intriquer conditionnellement des atomes en effectuant une mesure conjointe sur les photons émis. Ces résultats et leurs applications potentielles peuvent paraître un peu marginales par rapport à mes activités de recherches vues sous l'angle de l'optique quantique. Ils le sont moins si l'on considère les choses sous l'angle de l'information quantique qui

apparaît comme le second axe principal des activités de recherches, c'est pourquoi je leur consacre les quelques paragraphes qui suivent.

4.3.1 Atome unique comme bit quantique

Afin de transformer un atome unique piégé en un bit quantique d'information, il faut choisir deux états destinés à jouer le rôle d'états logiques. Nous avons choisi d'utiliser comme états $|0\rangle$ et $|1\rangle$ les sous-niveaux Zeeman $F = 1, m_F = 0$ et $F = 2, m_F = 0$ du fondamental du ^{87}Rb en raison d'une part de leur durée de vie quasi-infinie et d'autre part de leur relative insensibilité aux champs magnétiques. Ces états étant séparés de 6,8 GHz, nous avons développé un système de lasers Raman verrouillés en phase permettant de les manipuler. L'utilisation de faisceaux lasers plutôt que de radiofréquences présente l'avantage important, du point de vue de l'extensibilité, de permettre la manipulation d'un unique atome choisi dans un réseau optique.

La technique utilisée pour produire les faisceaux Raman repose sur la l'utilisation de trois diodes lasers. Le courant de l'une des diodes est modulé à 3,4 GHz, elle est injectée sur l'une de ses bandes latérales par une diode maître et injecte elle même, sur son autre bande latérale, une diode esclave. La porteuse est supprimée par un dispositif interférométrique. Ce système laser est décrit de façon détaillée dans la référence [151] dans laquelle nous avons également rapporté l'utilisation qui en a été faite pour la manipulation de l'état du bit quantique considéré. De façon à éviter une multiplication inutile des lasers, l'un des deux lasers Raman est en fait le piège dipolaire utilisé pour piéger l'atome unique que l'on veut manipuler. Il est allumé en permanence. L'autre laser est allumé pendant des durées contrôlées pour réaliser des transitions entre les deux états $|0\rangle$ et $|1\rangle$. La configuration des polarisations des faisceaux et champs magnétiques est représenté figure 4.5.

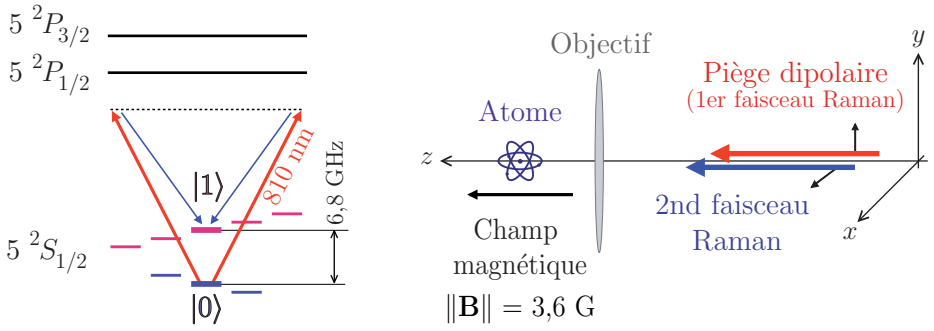


FIG. 4.5 – *Configuration des faisceaux Raman et bit quantique. Les deux chemins possibles pour aller de $|0\rangle$ et $|1\rangle$ interfèrent constructivement pour les polarisations représentées des faisceaux Raman.*

Il ne suffit pas seulement d'être capable d'effectuer des transitions contrôlées entre les états $|0\rangle$ et $|1\rangle$ pour réaliser un bit quantique : il faut d'abord être capable de l'initialiser dans un état donné et il faut également pouvoir effectuer une mesure de l'état dans lequel l'atome se trouve après une manipulation quelconque. Nous avons réalisé la préparation par pompage optique dans l'état $|0\rangle$ en utilisant le fait que la transition de la raie $D2$ entre $F = 1, m_F = 0$ et $F' = 1, m_{F'} = 0$ est une transition interdite. La lecture de l'état est réalisée au moyen de

l'irradiation de l'atome par laser résonant avec la transition cyclante $F = 2 \rightarrow F' = 3$ de la raie $D2$ accompagnée d'une diminution de l'intensité du piège dipolaire : si l'atome est dans l'état $|0\rangle$ il reste dans le piège ; si il est dans l'état $|1\rangle$ il est éjecté par pression de radiation. Nous avons montré que cette méthode de mesure était limitée par le bruit de projection quantique.

Munis de ces instruments, nous avons dans un premier temps effectué des oscillations de Rabi contrôlées entre les deux états du bit quantique considéré, et montré que des impulsions $\pi/2$ d'une durée d'environ 40 ns pouvaient être réalisées. Nous avons ensuite étudié les propriétés de cohérence de notre bit quantique par interférométrie Ramsay et obtenu des temps d'amortissement des franges de Ramsey de l'ordre de quelques centaines de microsecondes (voir figure 4.6) que nous avons attribués au mouvement résiduel de l'atome. Par écho de spin, nous avons compensé en grande partie les effets du mouvement résiduel et mesuré des temps de cohérence pouvant atteindre jusqu'à plus de 30 ms (soit presque 10^6 la durée de l'impulsion $\pi/2$ la plus rapide. Le temps de décohérence à comparer avec des durées de piégeages des atomes de l'ordre de 200 ms est attribué principalement à la perte de l'atome et sa fuite vers d'autres niveaux, en particulier sous l'effet de l'émission spontanée induite par le piège dipolaire et les fluctuations de champs magnétiques.

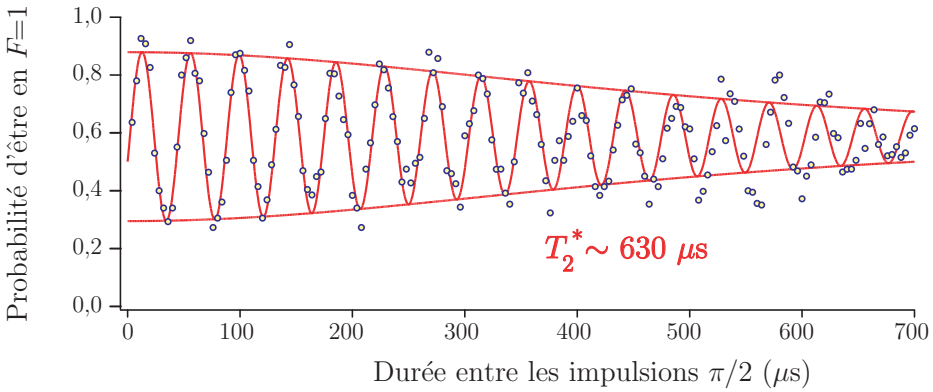


FIG. 4.6 – *Franges de Ramsey. L'atome est initialement en $F = 1, m_F = 0$ avec une probabilité de 85% et l'on mesure la probabilité de le retrouver dans cet état en fonction de la durée qui sépare les deux impulsions Raman $\pi/2$ qui lui sont appliquées. Le désaccord entre la transition atomique radiofréquence et l'écart de fréquence des lasers Raman est de 21 kHz. La température estimée de l'atome dans son piège est de l'ordre de 50 μK.*

A l'issue de ces travaux, nous avons procédé à l'étude des effets sur la cohérence du bit d'information quantique porté par un atome causé par son déplacement, obtenu par le mouvement contrôlé du piège dipolaire, et par son transfert entre deux pièges dipolaires. Nous avons pour cela mesuré les effets du mouvement et du transfert sur la probabilité de perte de l'atome, puis sur les franges de Ramsey et les signaux d'échos de spin. Nous avons montré une absence d'échauffement mesurable de l'atome dans son piège, ainsi que la conservation de la cohérence du bit quantique, à des phases contrôlables près. Les résultats de ces études ont été publiés dans *Nature Physics* ; l'article est reproduit en fin de chapitre, page 121.

Pour plus de détails sur l'ensemble de ces expériences, on pourra se reporter à la thèse de Jérôme Beugnon [150].

4.3.2 Intrication de deux émetteurs uniques

Disposant d'un atome capable à la fois d'émettre des photons uniques à la demande et de porter un bit d'information quantique, il devient possible de produire des états intriqués entre l'atome et le photon émis. Il suffit pour cela de préparer l'atome dans le sous niveau Zeeman du fondamental $F = 1, m_F = +1$ et de le porter dans l'état excité $F' = 2, m_{F'} = +1$ par une impulsion résonante π sur la raie $D2$. Pour un choix convenable de l'orientation du champ magnétique directeur et la collection des seuls photons correspondant à l'émission sur les transitions atomiques σ_+, on obtient un état intriqué correspondant à un photon émis à une pulsation ω_1 et l'atome dans le sous-niveau du fondamental $F = 2, m_F = 0$ qui correspond à l'état logique $|1\rangle$ ou bien un photon émis à une pulsation $\omega_2 = \omega_1 + 2\pi \times 6,8$ GHz et l'atome dans le sous-niveau du fondamental $F = 1, m_F = 0$ qui correspond à l'état logique $|0\rangle$. C'est ce qui est représenté schématiquement figure 4.7 pour chacun des deux atomes A et B. Les coefficients de Clebsch-Gordan associées aux deux possibilités d'émission sont égaux, si bien que l'on obtient l'état maximalement intriqué indiqué sur la figure.

Comme il nous a été possible d'exciter deux atomes simultanément pour produire deux photons, il est également possible d'exciter deux atomes simultanément pour produire deux états intriqués atome-champ identiques. Si les photons collectés sont couplés dans des fibres optiques pour éliminer toute éventuelle différence de mode spatial, les contributions de même fréquence des deux photons émis correspondent à des états pratiquement indicernables (dans la limite du mouvement résiduel des atomes dans leur piège). Si l'on amène alors les deux photons sur les deux voies d'entrée d'une lame séparatrice équilibrée suivie d'une paire de détecteurs de photons comme représenté figure 4.7, il est possible d'obtenir un état intriqué des atomes, conditionné à l'obtention d'une double détection. En effet, un calcul simple conduit à la conclusion que si l'on détecte un photon de chaque côté de la séparatrice, l'état des atomes est projeté sur l'état intriqué $|0_A, 1_B\rangle - |1_A, 0_B\rangle/\sqrt{2}$. On peut voir cet effet comme un échange d'intrication entre les deux systèmes intriqués atome-photon, provoqué par une mesure conjointe de l'état des deux photons.

Evidemment, ce type d'expérience est extrêmement délicat et toutes les imperfections

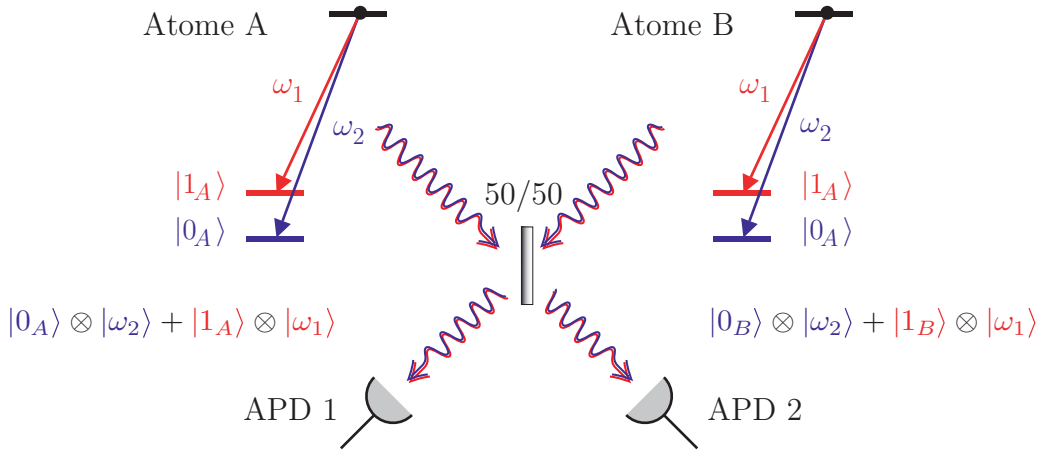


FIG. 4.7 – *Intrication conditionnelle. Un clic sur chacune des photodiodes à avalanche 1 et 2 projette les atomes dans l'état* $|1_A\rangle \otimes |0_B\rangle - |0_A\rangle \otimes |1_B\rangle$.

dégradent l'effet recherché. De plus, pour évaluer la qualité de l'intrication, il faut être capable de déclencher une mesure dès qu'une double détection est obtenue. Cela peut se faire par un test de violation des inégalités de Bell : on fait subir aux bits quantiques atomiques des rotations arbitraire au moyen de faisceaux Raman indépendants pour les deux atomes, suivies de la mesure de leur état logique. Etant donnée l'efficacité de collection de notre expérience (de l'ordre de 0,6 %), la durée nécessaire pour capturer un atome unique dans chaque piège (typiquement 300 ms), le nombre d'émissions de photons uniques qu'un atome peut effectuer avant de chauffer au point de quitter le piège (de l'ordre de 5000), on peut estimer que l'on obtiendrait probablement moins d'une double détection toutes les deux minutes. En comptant une centaine de mesures pour réaliser un test de Bell avec une barre d'erreur raisonnable, pour un minimum de quatre jeux de rotations des bits quantiques, on atteint plus de 12 heures de mesure en continu. Cela n'est pas du domaine de l'irréalisable, mais le moindre facteur deux additionnel rend les choses particulièrement difficiles.

D'une certaine manière, par chance pour nous, le groupe de Monroe au Etats-Unis a réalisé récemment une expérience très similaire avec des ions uniques piégés plutôt que des atomes neutres [17], ce qui a eu pour conséquence de nous faire abandonner la course. L'équipe qui continue le travail sur la réalisation de portes logiques avec les atomes neutres se concentre désormais sur l'excitation des atomes vers des états de Rydberg.

4.4 Conclusion

Nos travaux sur les interférences quantiques à deux photons sont sans doute un bel exemple de réalisation d'une expérience très proche du cas idéal que l'on trouve dans tous les traités d'optique quantique, mais l'on peut se demander quelle en est l'utilité réelle.

On peut être tenté d'affirmer que l'on a réalisé une source utile pour le traitement quantique de l'information dans le cadre de la proposition KLM. Il me semble plutôt que nous avons mis en évidence la grande difficulté qu'il y a à produire des photons vraiment identiques, même avec des sources aussi bien contrôlées et reproductibles que des atomes uniques piégés. Les problèmes rencontrés avec les atomes ne sont finalement pas moins critiques que ceux rencontrés avec des boîtes quantiques. Et les dispositifs que nous réalisons ont bien moins de chances de trouver des applications concrètes.

Mon point de vue est que nous disposons d'un système modèle bien compris qui permet de réaliser des tests de faisabilité (et parfois des tests d'infaisabilité) : bien des propositions théoriques paraissent simples sur le papier, mais font surgir des problèmes insoupçonnés dès que l'on tente de les réaliser. Je crois que les systèmes simples comme ceux que nous étudions sont de formidables machines à séparer ce qui est réaliste de ce qui ne l'est pas.

Un autre point qui me paraît important est le fait que nous sachions parfaitement que nos expériences sont inutilisables à des fins pratiques. Cela nous oblige à chercher sans cesse de nouvelles directions de recherches. Ainsi, dans notre tentative un peu vaine de construire des portes logiques avec des atomes uniques, nous réalisons que nous sommes finalement en train de faire tout autre chose : construire les premiers systèmes physiques dont les corrélations quantiques sont contrôlées au niveau de la particule unique. Au fond, il est peut-être temps de penser la théorie de l'information quantique comme autre chose que le prolongement de l'information classique.

4.5 Articles

Sont regroupés dans les pages qui suivent les reproductions d'articles suivants, relatifs aux travaux décrits dans ce chapitre :

- « Quantum interference between two single photons emitted by independently trapped atoms », *Nature* **440**, 779 (2006). Page 117.
- « Two-dimensional transport and transfer of a single atomic qubit in optical tweezers », *Nature Physics* **3**, 696 (2007). Page 121.

Le premier article présente l'expérience d'interférence à deux photons produits par deux atomes uniques capturés dans des pièges dipolaires utilisés comme sources de photons uniques.

Le second article concerne la cohérence d'un bit d'information quantique porté par un atome de Rubibium unique dans un piège dipolaire. Nous montrons expérimentalement que lorsque l'atome est déplacé (en déplaçant le faisceau dipolaire) ou transféré d'un piège dipolaire à un autre, l'atome ne subit pas de chauffage notable et la cohérence du bit quantique est conservée.

4.5.1 *Nature* 440, 779 (2006).

Quantum interference between two single photons emitted by independently trapped atoms

J. Beugnon[1], M. P. A. Jones[1], J. Dingjan[1], B. Darquié[1], G. Messin[1], A. Browaeys[1] & P. Grangier[1]

When two indistinguishable single photons are fed into the two input ports of a beam splitter, the photons will coalesce and leave together from the same output port. This is a quantum interference effect, which occurs because two possible paths—in which the photons leave by different output ports—interfere destructively. This effect was first observed in parametric downconversion[1] (in which a nonlinear crystal splits a single photon into two photons of lower energy), then from two separate downconversion crystals[2], as well as with single photons produced one after the other by the same quantum emitter[3–6]. With the recent developments in quantum information research, much attention has been devoted to this interference effect as a resource for quantum data processing using linear optics techniques[2,7–11]. To ensure the scalability of schemes based on these ideas, it is crucial that indistinguishable photons are emitted by a collection of synchronized, but otherwise independent sources. Here we demonstrate the quantum interference of two single photons emitted by two independently trapped single atoms, bridging the gap towards the simultaneous emission of many indistinguishable single photons by different emitters. Our data analysis shows that the observed coalescence is mainly limited by wavefront matching of the light emitted by the two atoms, and to a lesser extent by the motion of each atom in its own trap.

A basic requirement for most quantum computing schemes is the implementation of two-qubit quantum gates[12]. If the qubits are encoded in single photons, the gate can be obtained by using an interference effect between the photons, followed by a measurement-induced state projection[9]. One may also use qubits encoded in solid-state systems such as quantum dots[13], or in atomic systems such as ions[14] or neutral atoms[15]. One way to entangle the atomic qubits without direct interaction, and thus realise quantum gates, is to use them as single photon sources, so that the emitted photons are entangled with the internal states of the emitters. The interference of two photons emitted by such sources projects the state of the two atoms into an entangled state[16]. Many protocols based on this conditional entanglement have been proposed[10,11], and experimental work is under way to implement them[17]. The photons involved in such schemes do not need to be initially entangled, and can even be emitted by different sources[2], but they need to be indistinguishable. However, it is in general not easy to have several (possibly many) independent sources emitting indistinguishable photons. With quantum dots in microcavities[3,6], the dispersion in frequency associated with differences in fabrication is usually much too large for the photons to be emitted at the same frequency. With atoms in cavities[4], each emitter is itself a complicated experiment, and cannot easily be multiplied. In this paper we address this problem by using two single atoms in two neighbouring traps emitting in free space, and we demonstrate that these atoms do emit indistinguishable photons. This scheme can easily be scaled to arrays of traps[18].

Our experiment uses two single rubidium-87 atoms, confined in separate optical dipole traps. These traps are formed in the focal plane of the same high-numerical aperture lens, and loaded from a cloud of cold atoms in an optical molasses[19]. The two traps, each of which has a waist of 1 μm, are separated by a distance of 6 μm. To obtain triggered single photon emission from the two atoms, we simultaneously excite them with a high efficiency (>95%) using a σ^+-polarized pulsed laser beam which drives the $F = 2$, $m_F = 2$ to $F' = 3$, $m'_F = 3$ closed transition[20]. The quantization axis is defined by a magnetic field of several gauss. Both atoms are excited by the

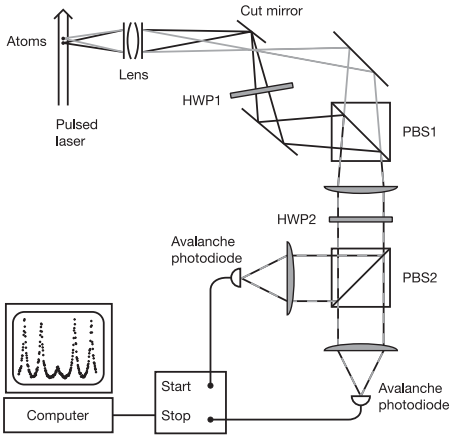


Figure 1 | Experimental set-up. The two atoms are trapped in two dipole traps separated by 6 μm, and they are excited by the same pulsed laser beam. The trap depth is 1.5 mK, and the trap frequency along the axis of the pulsed laser beam is 120 kHz. The emitted photons are collected by the same lens that is used to create the dipole traps. The light from one of the traps is separated off using a cut mirror placed close to the image plane of the objective. In the plane of the cut mirror, the spot corresponding to each trap has a waist of ~90 μm, and the two images are separated by 500 μm. The half-wave plate HWP1 is oriented such that, at polarizing beam splitter PBS1, the light beams from the two atoms are recombined into the same spatial mode, but with orthogonal polarizations. There are then two configurations to detect the photons: either the axis of HWP2 is set so that the two orthogonal incident polarizations are equally mixed in each output of PBS2, as in a 50/50 beam splitter, or the axis is set so that the polarizations are unchanged, and then PBS2 simply separates the two beams coming from the two atoms without mixing them. Two avalanche photodiodes are placed in the two output ports of PBS2. The measured overall collection and detection efficiency is 0.6% for each photodiode[21].

[1]Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (UMR 8501), Bâtiment 503, Centre Universitaire, 91403 Orsay cedex, France.

Nature **440**, 779 (2006).

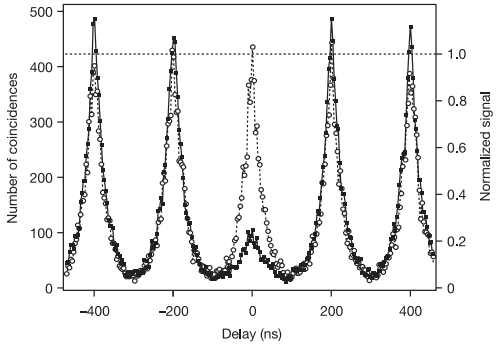


Figure 2 | Histograms of the time delays of the arrival of two photons on the avalanche photodiodes, in the start–stop configuration. Black squares correspond to the 50/50 beam-splitter configuration (interfering beams). Open circles correspond to the beam-separator configuration (independent beams). These histograms have been binned three times, leading to a 3.6-ns resolution. The total accumulation time is about five hours, corresponding to about 6,600 events with two photons arriving on the beam splitter at around zero delay. The solid and dashed lines are a guide to the eye. The normalized signal is obtained by dividing the number of counts by the average value of the peak height in the beam-separator configuration.

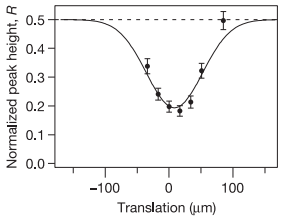


Figure 3 | Influence of wavefront matching. The ratio of the height of the residual peak at zero delay in the beam-splitter configuration to the average height of the peaks in the beam-separator configuration, as a function of the relative distance between the two beams, translated parallel to each other. The solid curve is the expected ratio, calculated from the measured beam waist of the two beams. The amplitude and the centre of this curve are adjusted to fit the data. Error bars show ±1 s.d.

same short (less than 4 ns) π-pulse. Each one then spontaneously emits a single photon[21] with a lifetime of 26 ns. The photons are collected by the same objective lens that is used to focus the dipole trap beams[19], and detected using a pair of avalanche photodiodes. Between the objective and the photodiodes, an optical set-up composed of two half-wave plates and two polarizing beam-splitter cubes (HWP1, HWP2 and PBS1, PBS2) is inserted in the beam path (see Fig. 1). It can be configured either as a 50/50 beam splitter that mixes the light from the two atoms on each detector, or as a beam separator that sends the light from each atom to only one of the detectors. The avalanche photodiodes are connected to a high-resolution counting card in a start–stop configuration. This allows us to measure the number of coincident photodetections as a function of the delay between the arrival times of the two photons on the photodiodes, with a resolution of about 1.2 ns. In the 50/50 beam-splitter configuration, the detectors cannot distinguish which atom has emitted a photon, and we expect to observe the coalescence effect. In the beam-separator configuration, each avalanche photodiode monitors only the light emitted by one of the two atoms, and coincidence counts can be due only to independent emissions by both atoms.

The measurements are performed by repeating the following procedure. First, we detect the simultaneous presence of one atom in each trap in real time by measuring their fluorescence from the molasses light used to load the traps. We then trigger a sequence that alternates a burst of 575 pulsed excitations, lasting 115 μs, with a 885-μs cooling period using the molasses light. This alternation is repeated 15 times before stopping and recapturing a new pair of atoms. During the excitation periods, the π-pulses irradiate both atoms every 200 ns, and the counting card accumulates the number of double detections produced by the two avalanche photodiodes. This sequence maximizes the number of single photons that we can obtain before the two atoms are heated out of the trap[21]. After the 15 bursts of pulsed excitations, we measured a probability of 65% to keep each atom in its trap. At the end of the sequence, we switch the molasses back on and wait on average about 300 ms until we detect two atoms again. Two histograms are accumulated for the same number of repetitions: one in the 50/50 beam-splitter configuration, and one in the beam-separator configuration.

The two histograms are shown in Fig. 2, without background subtraction. Both histograms consist of a series of peaks separated by 200 ns, the repetition period of the pulsed laser. The width of the peaks is determined by the 26-ns lifetime of the excited state. In the beam-separator configuration, all peaks are identical, and always correspond to a double detection with one photon coming from each atom. Hence, their height gives a natural calibration of the experiment. A histogram in the 50/50 beam-splitter configuration can be normalized by dividing by the height of the peaks in its corresponding histogram measured in the beam-separator configuration. The normalized signals that are obtained are then independent of collection efficiency, detection efficiency and experiment duration, and allow histograms taken under different conditions to be compared. In the 50/50 beam-splitter configuration, the peak at zero delay is clearly much smaller than the other peaks. As each atom is a very good source of single photons[21], this peak also consists only of events where both atoms have emitted a photon. In contrast, the other peaks consist of events where two photons are successively emitted, either by the same atom, or by both atoms. Because the peaks at non-zero delay are almost the same in both configurations, we can deduce that almost all registered counts are due to events where both atoms were present.

In the case of perfect coalescence, the peak at zero delay in the 50/50 beam-splitter configuration would be absent: as the two photons leave via the same port, there can be no coincidences. We attribute the residual peak that we observe in Fig. 2 to an imperfect overlap of the spatial modes of the two photons, which then do not interfere. To illustrate this effect experimentally, we varied the overlap between the two modes in a controlled way by translating one beam relative to the other (translation of the cut mirror; see Fig. 1). Figure 3 shows the normalized height R of the residual peak at zero delay, as a function of the separation between the two images. For a given spatial overlap K between the amplitude of the two modes, the ratio R is expected to be $(1–K^2)/2$ (see Methods section and Supplementary Information). The solid line is a gaussian fit based on the experimental value of the beam size in the image plane, and considering the maximal wavefront overlap K_{max} as an adjustable parameter. The agreement with the coincidence data is very good, which confirms the crucial role of good mode matching of the two beams in our experiment. We obtain from the fit the maximum wavefront overlap $K_{max} = 0.78 \pm 0.03$. This imperfect overlap is consistent with the errors we measure on the beam positions and waists.

Finally, we analyse the structure of the time spectrum around zero delay. The small peak at zero delay from Fig. 2 is displayed on a larger scale in Fig. 4. The dashed line corresponds to a model where the

Nature **440**, 779 (2006).

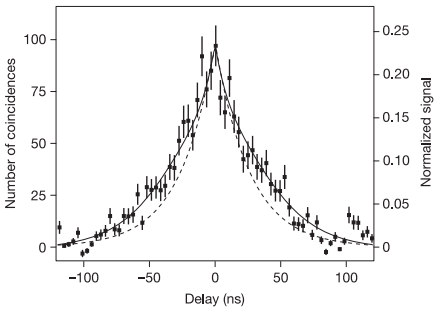


Figure 4 | Zoom of the histogram of Fig. 2 in the 50/50 beam-splitter configuration, around zero delay. This curve is obtained from Fig. 2 by subtraction of the contribution from the background and neighbouring peaks. The squares represent the experimental data. The solid line is a fit by the model described in the Methods section, taking into account the finite temperature of the atoms and the spatial overlap. The dotted line is the expected signal for zero temperature. The error bars correspond to $\pm\sqrt{N}$ statistical photon counting noise.

wavepackets of the two photons are identical and arrive at the same time on the beamsplitter, but with imperfect spatial overlap of the two beams. This curve does not correctly reproduce the experimental data: the experimental dots seem to sit on a slightly wider curve. Due to their finite temperature, the atoms move in the trapping potential and experience a range of light-shifts. This changes their internal energy, and thus modifies the frequency of the emitted photon. For two photons at different frequencies, the correlation signal would exhibit a beat note as already seen in ref. 4. If the two photons now have a distribution of frequencies, the correlation signal consists of a beat note averaged out over this distribution. This gives rise to a slightly broader structure for the signal, which is well fitted by the solid line predicted by our simple model (see details in the Methods section).

By fitting the experimental data shown in Fig. 4 with our model, we extract the overlap of the spatial modes $K = 0.7 \pm 0.05$ and the temperature of the atoms $T = 180 \pm 20\,\mu$K. In a separate experiment, we measured the temperature of the atoms in the dipole trap, which is initially close to $120 \pm 10\,\mu$K. Each pulse followed by the spontaneous emission of the photon increases the energy of the atom by one recoil. We calculate that after the first 115 μs of pulsed excitations the temperature rises by 60 μK, in good agreement with the temperature obtained from the fit above. We also checked experimentally that each cooling period resets the temperature of the atom to its initial value. A comparison of the fit with the dashed curve, which corresponds to zero temperature, confirms that at present the imperfect interference is due mainly to the imperfect optical wavefront matching, and not to the motion of the atoms in the traps.

Thus we have experimentally demonstrated the coalescence of two photons emitted by two independent trapped atoms. The contrast of the interference is limited by the overlap (in free space) of the spatial modes of the fluorescence light emitted by the two atoms. By coupling the light from each of the atoms into identical single-mode optical fibres, this overlap could be greatly improved, though this may be at the cost of a reduced counting rate. The shape of the residual signal around zero delay is well explained by a broadening due to the finite temperature of the atoms in the trap. Better wavefront overlap and further cooling of the atoms will improve the overall quality of this interference and will make this system suitable as a resource for entangling two atoms.

METHODS

Derivation of the experimental signal. If $f_k(\mathbf{r})\varepsilon_k(t)$ is the field emitted by the atom k ($k = 1, 2$), ref. 22 shows that the probability of detecting one photon at $\mathbf{r}_A$ and of detecting the other one at $\mathbf{r}_B$, in the 50/50 beam-splitter configuration, after a delay τ, is proportional to:

$$w^{(2)}(\tau, \mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) = \int |f_1(\mathbf{r}_B)f_2(\mathbf{r}_A)\varepsilon_1(t+\tau)\varepsilon_2(t) - f_2(\mathbf{r}_B)f_1(\mathbf{r}_A)\varepsilon_2(t+\tau)\varepsilon_1(t)|^2 \mathrm{d}t$$

which can be understood as the interference of two paths. Assuming a temporal form of the field $\varepsilon_k(t) = H(t)e^{-\frac{\Gamma t}{2}}e^{i\omega_k t}$ where $H(t)$ is the step function, we obtain:

$$w^2(\tau) \propto e^{-\Gamma|\tau|}(1 - K^2\cos\Delta\omega\tau)$$

where $K = |\int \mathrm{d}\mathbf{r} f_1^*(\mathbf{r})f_2(\mathbf{r})| / \sqrt{\int \mathrm{d}\mathbf{r}|f_1(\mathbf{r})|^2 \times \int \mathrm{d}\mathbf{r}|f_2(\mathbf{r})|^2}$ is the spatial overlap of the electric field, and $\Delta\omega$ is the frequency difference between the two emitted photons. The double detection probability for $\tau = 0$ is proportional to $(1–K^2)$, and so is the normalized ratio R defined in the text. The proportionality factor is determined in the absence of interferences ($K = 0$): in this case, the two photons behave as distinguishable particles and have a probability of 1/2 of leaving the 50/50 beam splitter through two different ports. Thus, the normalized ratio R is $(1–K^2)/2$.

Model including the finite temperature of the atoms in the trap. To take into account the finite temperature of the atoms in the trap, we integrate the expected signal for two photons interfering with a frequency difference $\Delta\omega$ and a spatial overlap K (see above), over the probability distribution of frequency differences. To obtain this probability distribution, we solve the equations of motion for a thermal ensemble of single atoms in the trap experiencing pulsed excitations during 115 μs, followed by a decay in a random direction. After each pulse, we calculate the lightshifts of all the atoms in the ensemble. We repeat this for 575 pulses to obtain the distribution of lightshifts. This distribution is found to be well represented by a function of the form $U^2 e^{-\frac{2U}{k_B T}}$. The value of $\Delta\omega$ is proportional to the difference in lightshifts experienced by the atoms when they emit the photons. We then calculate the auto-correlation of the lightshift distribution to get the probability distribution of $\Delta\omega$. By averaging over this distribution of lightshift differences, we obtain the normalized coincidence rate signal as an analytical function with only two fitting parameters, the spatial overlap and the temperature of the atoms.

Received 25 October 2005; accepted 31 January 2006.

1. Hong, C. K., Ou, Z. Y. & Mandel, L. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2044–2046 (1987).
2. de Riedmatten, H., Marcikic, J., Tittel, W., Zbinden, M. & Gisin, N. Quantum interference with photon pairs created in spatially separated sources. *Phys. Rev. A* **67**, 022301 (2003).
3. Varoutsis, S. *et al.* Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot. *Phys. Rev. B* **72**, 041303(R) (2005).
4. Legero, T., Wilk, T., Hennrich, M., Rempe, G. & Kuhn, A. Quantum beat of two single photons. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 070503 (2004).
5. Kiraz, A. *et al.* Indistinguishable photons from a single molecule. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 223602 (2005).
6. Santori, C., Fattal, D., Vučković, J., Salomon, G. S. & Yamamoto, Y. Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature* **419**, 594–597 (2002).
7. Dowling, J. P., Franson, J. D., Lee, H. & Milburn, G. J. Towards scalable linear-optical quantum computers. *Quantum Inf. Process.* **3**, 205–213 (2004).
8. Pan, J.-W., Bouwmeester, D., Weinfurter, H. & Zeilinger, A. Experimental entanglement swapping: entangling photons that never interacted. *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3891–3894 (1998).
9. Knill, E., Laflamme, R. & Milburn, G. J. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature* **409**, 46–52 (2001).
10. Lim, Y. L., Beige, A. & Kwek, L. C. Repeat-until-success linear optics distributed quantum computing. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 030505 (2005).
11. Barrett, S. D. & Kok, P. Efficient high-fidelity quantum computation using matter qubits and linear optics. *Phys. Rev. A* **71**, 060310 (2003).
12. Zoller, P., Cirac, J. I., Duan, L. & García-Ripoll, J. J. in *Les Houches, Session LXXIX, 2003—Quantum Entanglement and Information Processing* (eds Estève, D., Raimond, J.-M. & Dalibard, J.) 187–222 (Elsevier, Amsterdam, 2004).
13. Paillard, M. *et al.* Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1634–1637 (2001).
14. Monroe, C., Meekhof, D. M., King, B. E., Itano, W. M. & Wineland, D. J. Demonstration of a fundamental quantum logic gate. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4714–4717 (1995).
15. Schrader, D. *et al.* Neutral atom quantum register. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 150501 (2004).

Nature **440**, 779 (2006).

16. Simon, C. & Irvine, W. T. M. Robust long-distance entanglement and a loophole-free Bell test with ions and photons. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 110405 (2003).
17. Blinov, B. B., Moehring, D. L., Duan, L.-M. & Monroe, C. Observation of entanglement between a single trapped atom and a single photon. *Nature* **428**, 153–157 (2004).
18. Bergamini, S. *et al.* Holographic generation of microtrap arrays for single atoms by use of a programmable phase modulator. *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 1889–1894 (2004).
19. Schlosser, N., Reymond, G., Protsenko, I. & Grangier, P. Sub-poissonian loading of single atoms in a microscopic dipole trap. *Nature* **411**, 1024–1027 (2001).
20. Dingjan, J. *et al.* A frequency-doubled, pulsed laser system for rubidium manipulation. *Appl. Phys. B* **82**, 47–51 (2006).
21. Darquié, B. *et al.* Controlled single-photon emission from a single trapped two-level atom. *Science* **309**, 454–456 (2005).
22. Legero, T., Wilk, T., Kuhn, A. & Rempe, G. Time-resolved two-photon quantum interference. *Appl. Phys. B* **77**, 797–802 (2003).

Supplementary Information is linked to the online version of the paper at www.nature.com/nature.

Acknowledgements We acknowledge support from the European Union through the Integrated Project 'SCALA'. J.D. was funded by Research Training Network 'CONQUEST'. M.P.A.J. was supported by a Marie Curie fellowship.

Author Information Reprints and permissions information is available at npg.nature.com/reprintsandpermissions. The authors declare no competing financial interests. Correspondence and requests for materials should be addressed to A.B. (antoine.browaeys@iota.u-psud.fr).

Supplementary Informations :

The normalized height of the residual peak for non-interfering photons

In the absence of interference, i.e. if the spatial overlap $K = 0$, the height of the peak at zero delay after the normalization described in the text is 0.5. The reason why it is 0.5 and not 1 can be understood from the following argument. The normalised peak height, as described in the text, is simply the height of the peak in the beam splitter configuration divided by the height of the peak in the beam separator configuration, both taken at zero delay. At zero delay, a coincidence event, whether in the beam splitter or beam separator configuration, always corresponds to the detection of one photon from each atom. This is because both atoms are near perfect single photon sources, and therefore the probability that one of the atoms emits two photons during the same excitation/emission cycle, which would appear as a peak at zero delay, is negligible.

The difference between the two configurations is that in the beam separator configuration, where each photodiode sees the light from only one of the atoms, a pair of photons where one photon comes from each atom always gives rise to a coincidence. In the beam splitter configuration, both of the photons can end up at the same photodiode, as each photodiode sees both atoms. In this case, no coincidence occurs. For a 50-50 beamsplitter and distinguishable, non-interfering photons, this happens 50% of the time. The same number of incident photon pairs therefore gives rise to half as many coincidences in this configuration and thus the ratio of the heights of the peak at zero delay in the two configurations is 0.5.

From a more general quantum optics perspective based on intensity correlation functions, it is important to notice that if the two beams were two independent poissonian sources (like two laser beams) emitting distinguishable photons, then the normalized peak height as defined above would be 1, as can be expected for independent random events. This one is the same as the one which occurs in the original Hong-Ou-Mandel experiment, done with randomly emitted parametric photon pairs. Another situation, often considered in the discussions about the Hong-Ou-Mandel effect, is the case of interfering classical beams with a fluctuating relative phase, so that the average intensities on both detectors are equal. Then it can be shown easily that the value 1/2 is a minimum for the normalized zero-delay coincidence rate. In our case, the value 1/2 is a maximum (and the minimum is zero), because the two single photon sources that we are using already have very strong non-classical properties, and behave neither like interfering classical waves, nor like independant classical particles.

Alignment of the optical system and limits on spatial overlap

In order to overlap the spatial modes of the two single photons in free space, we used the fluorescence signal of each of the two single atoms induced by the molasses laser beams. We measured the beam positions and waists ($1/e^2$ radius) in two perpendicular directions and at two positions along the propagation axis by taking intensity profiles using razor blades. Using such profiles, the angular and translational alignment were corrected step-by-step. This process was ultimately limited by the error bars introduced by intensity fluctuations on the single atom signal. The translational alignment (x and y) of the two spatial modes was further improved using the contrast of the two-photon interference signal itself, as shown in figure 4.

To understand how possible alignment errors contribute to the spatial overlap, we have estimated how much the overlap changes in the following situations:
- The two beams have a different size (different divergence).
- The two beams are displaced transversally (x and y).
- The position of the image plane along the optical axis is different for the two beams.
- The two propagation axes have a small angle between them.

In order to get an electric field mode overlap $K > 0.8$, one should achieve better than a 4% error on each of these alignements, assuming that they are independent. As an example, if the size of the waist of the two beams is different by 16%, which corresponds to our error bar on the waist size, then the overlap K is already multiplied by 0.97. The cumulative effect of small alignment errors seems therefore a reasonable explanation for the limited spatial overlap that we observe. However, it should be noted that phase errors across the wavefronts of the two beams due to aberrations of the optical system would also decrease the spatial overlap.

Effect of the inhomogeneous broadening on the shape of the residual peak at zero delay

The finite temperature of the atoms in the dipole traps gives rise to an inhomogeneous broadening of the spectrum of the photons emitted by the atoms. As described in our article, this broadening manifests itself in our two-photon interference signal as an increase in the width of the residual peak at zero delay. The height of the residual peak is not changed, and depends only on the spatial overlap of the two beams.

In the case of perfect spatial overlap, the peak would disappear at exactly zero delay. This is because if one looks close enough around zero delay, the wavepackets of the two photons look alike, as dephasing due to their frequency difference has not had time to occur. In a sense, perfect two-photon interference always occurs, provided we look at short enough timescales. This is similar to imposing temporal coherence by adding a narrow band filter. In the case of perfect spatial overlap, our residual peak would have a dip at exactly zero delay, with the width of this dip depending on the inhomogeneous spectral width of the emitted photons. This effect has been observed for two photons emitted by the same source (see reference [4], Legero *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 070503 (2004)), and the theory is detailled in reference [22], Legero *et al.*, *Appl. Phys. B* **77**, 797-802 (2003). The figure below summarizes the different cases in our experimental configuration.

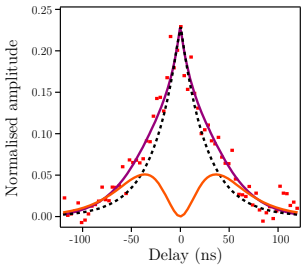


Figure 1: *Zoom of the histogram of figure 2 of the paper, in the 50/50 beam splitter configuration, around zero delay. The squares represent the experimental data expressed in number of coincidences. The purple solid line is a fit by the model described in the Methods section, taking into account the finite temperature of the atoms and the spatial overlap. The dotted line is the expected signal for zero temperature. The orange solid line with a dip at zero delay is the expected signal for a perfect spatial overlap and a temperature of 200 μK. This shows that at zero delay, in the case of a perfect spatial overlap, the interference is always perfect, whatever the temperature of the atoms.*

4.5.2 *Nature Physics* 3, 696 (2007).

Two-dimensional transport and transfer of a single atomic qubit in optical tweezers

JÉRÔME BEUGNON, CHARLES TUCHENDLER, HAROLD MARION, ALPHA GAËTAN, YEVHEN MIROSHNYCHENKO, YVAN R. P. SORTAIS, ANDREW M. LANCE, MATTHEW P. A. JONES, GAÉTAN MESSIN, ANTOINE BROWAEYS* AND PHILIPPE GRANGIER

Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, CNRS, Univ. Paris-sud, Campus Polytechnique, RD 128, 91127, Palaiseau cedex, France
***e-mail: antoine.browaeys@institutoptique.fr**

Published online: 12 August 2007; doi:10.1038/nphys698

Quantum computers have the capability of out-performing their classical counterparts for certain computational problems[1]. Several scalable quantum-computing architectures have been proposed. An attractive architecture is a large set of physically independent qubits arranged in three spatial regions where (1) the initialized qubits are stored in a register, (2) two qubits are brought together to realize a gate and (3) the readout of the qubits is carried out[2,3]. For a neutral-atom-based architecture, a natural way to connect these regions is to use optical tweezers to move qubits within the system. In this letter we demonstrate the coherent transport of a qubit, encoded on an atom trapped in a submicrometre tweezer, over a distance typical of the separation between atoms in an array of optical traps[4–6]. Furthermore, we transfer a qubit between two tweezers, and show that this manipulation also preserves the coherence of the qubit.

In the quest for an implementation of a quantum computer, scalability is a major concern. In the trapped-ion approach (see for example ref. 7), a lot of effort is being devoted to building arrays of small ion traps[8], and to moving ion qubits whilst avoiding heating and decoherence[9]. Neutral atoms also offer promising properties for the realization of large quantum registers. For example, one- or two-dimensional addressable arrays of dipole traps have been demonstrated using holographic techniques[4], micro-fabricated elements[5], or active rearrangement of single atoms[6,10]. An alternative approach is to use the Mott insulator transition to initialize a three-dimensional register by loading a Bose–Einstein condensate into an optical lattice[11]. Recent progress has shown subwavelength addressability in such a system[12]. To carry out quantum computations, however, an additional key feature is the ability to realize the gate between two arbitrary qubits of the register.

Here we demonstrate a scheme where a neutral-atom qubit is transferred between two moving tweezers ('register' to 'moving head'), and then transported towards an interaction zone where the two-qubit gate should be implemented[13–16]. We show that these manipulations of the external degrees of freedom preserve the coherence of the qubit, and do not induce any heating. This transport in a moving tweezer is a promising alternative to the recently demonstrated transport of qubits in 'optical conveyor belts'[6,17], or in state-dependent moving optical lattices[18]. Altogether, these results could pave the way towards a scalable neutral-atom quantum-computing architecture.

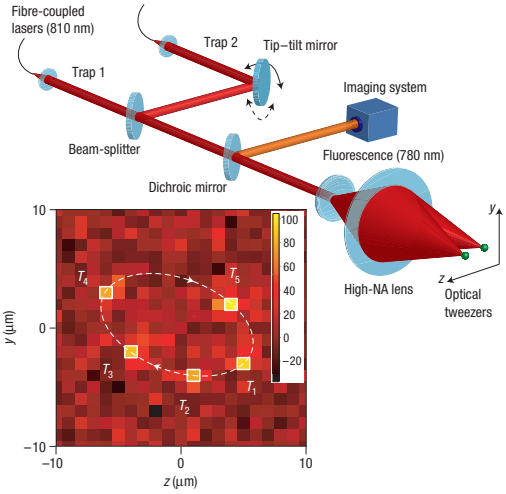


Figure 1 Experimental set-up. A large-numerical-aperture lens focuses two independent dipole-trap beams at 810 nm each to a size of 0.9 μm. An optical power of 400 μW results in a trap depth of 500 μK and oscillation frequencies of 81 and 15 kHz, in the radial and axial directions respectively. The two trapping lasers have the same linear polarization and their frequencies are separated by 10 MHz to avoid interference. The moving tweezer is displaced by rotating a tip–tilt platform. The same large-numerical-aperture lens is used to collect the fluorescence light at 780 nm from the atom. This fluorescence light is separated from the trapping light by the dichroic mirror and sent to a single-photon counter module and a CCD (charge-coupled device) camera. The inset shows a fluorescence picture of an atom moved along an elliptical trajectory in the *y*–*z* plane, thus showing the two-dimensional control of the displacement. The picture is a summation of five images taken at different times during the motion. The colour scale represents the number of counts per pixel of the CCD camera (background substracted).

In our experiment, we trap a single rubidium-87 atom in an optical dipole trap created by a tightly focused laser beam[19,20].

Nature Physics **3**, 696 (2007).

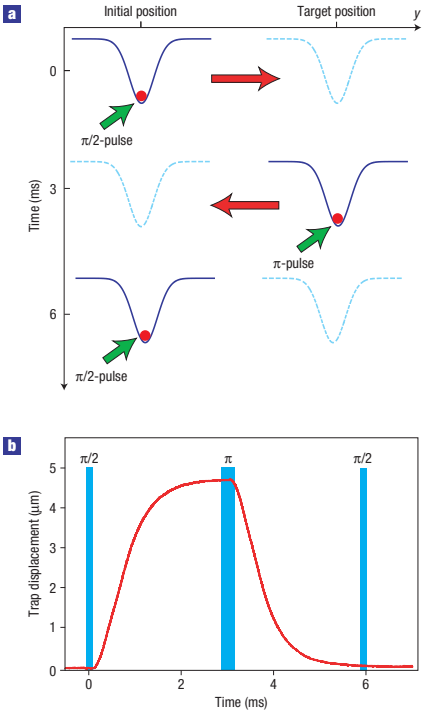


Figure 2 Principle of the moving-qubit experiment. a, Position of the atom when the pulses of the spin-echo sequence are applied. Starting at the initial position, the first pulse prepares the atom in a superposition $(|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$. The tweezer is then moved along the *y* axis to the target position and the π-pulse is applied. Finally, the tweezer is brought back to its initial position and the coherence is checked by applying a second $\pi/2$-pulse and measuring the state of the qubit. **b**, Example of displacement of the tweezer versus time. The signal is obtained from the sensor attached to the tip–tilt platform, which is converted into a distance travelled by the tweezer. The $\pi/2$- and π-pulses, being 2 and 4 μs long respectively, are not to scale.

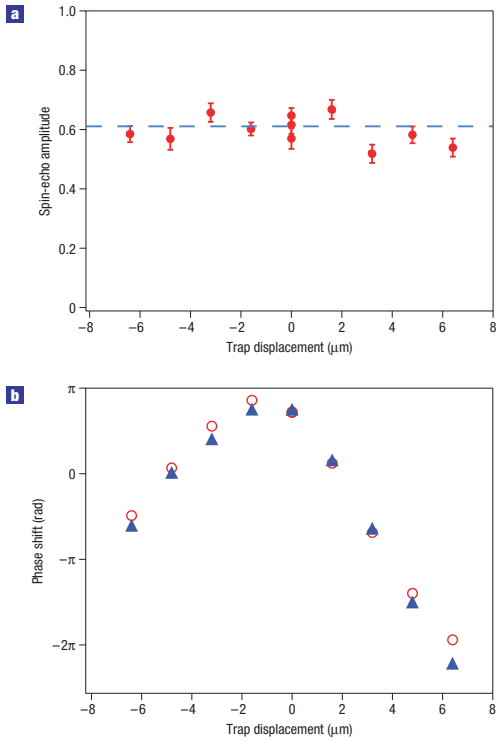


Figure 3 Results of the moving-qubit experiment. a, The amplitude of the spin-echo signal versus the amplitude of the displacement. The error bars are the root-mean-square (r.m.s.) uncertainty obtained from the fit of the fringes. The 60% contrast is a result of the damping of the fringes after 6 ms (ref. 21). The dashed line represents the average of the data for no trap displacement. **b**, The phase shift versus the amplitude of the displacement. The triangles are the data and the circles are the calculated values of the dephasing on the basis of the model described in the Methods section.

As described in detail in ref. 21, the qubit is encoded onto the $|0\rangle = |F = 1, M = 0\rangle$ and $|1\rangle = |F = 2, M = 0\rangle$ hyperfine ground states separated by $\omega_{\rm hf} \approx 6.8$ GHz. We initialize the qubit in state $|0\rangle$ by optically pumping the atom. We drive single-qubit operations by a Raman transition using two phased-locked laser beams, one of which is the dipole trap. The internal dephasing time of the qubit, measured by Ramsey interferometry, is approximately 630 μs. This time is mostly limited by the residual motion of the atom in the trap, which leads to a fluctuation of the frequency of the qubit transition. This dephasing can be reversed by applying a spin-echo technique, where a π-pulse is inserted between the two $\pi/2$ pulses of the Ramsey sequence. Using this technique we measure an irreversible dephasing time of 34 ms.

The experimental set-up for the moving tweezer is represented in Fig. 1. We reflect the dipole-trap beam off a mirror affixed to a tip–tilt platform before the large-numerical-aperture lens. The platform is actuated by piezo-electrical transducers and can rotate with a maximal angle of 2.5 mrad in both the horizontal and vertical directions. We have measured the position of the dipole trap for different angles of the platform by observing the position of the atom on the CCD camera. The maximal angle corresponds to a total displacement of the tweezer of 18 ± 1 μm. This motion is two dimensional, as demonstrated in Fig. 1.

We first analyse the influence of a displacement of the tweezer on the external degrees of freedom of the qubit. For this purpose, we measure the temperature of the single atom in the tweezer using a release-and-recapture technique[22] (see the Methods section). In the absence of motion, the temperature of the atom is 56.0 ± 1.4 μK. We repeat this measurement after moving the tweezer by a total distance of 360 μm, consisting of 20 round trips of 18 μm, along the *z* axis. Each round trip lasts a time of 6 ms. We do not find any measurable loss due to this transport. After the motion, we measure a temperature of 54.8 ± 1.6 μK. As the energy difference between two vibrational quanta in the radial direction is 4 μK, this temperature is compatible with no change on average in the

Nature Physics **3**, 696 (2007).

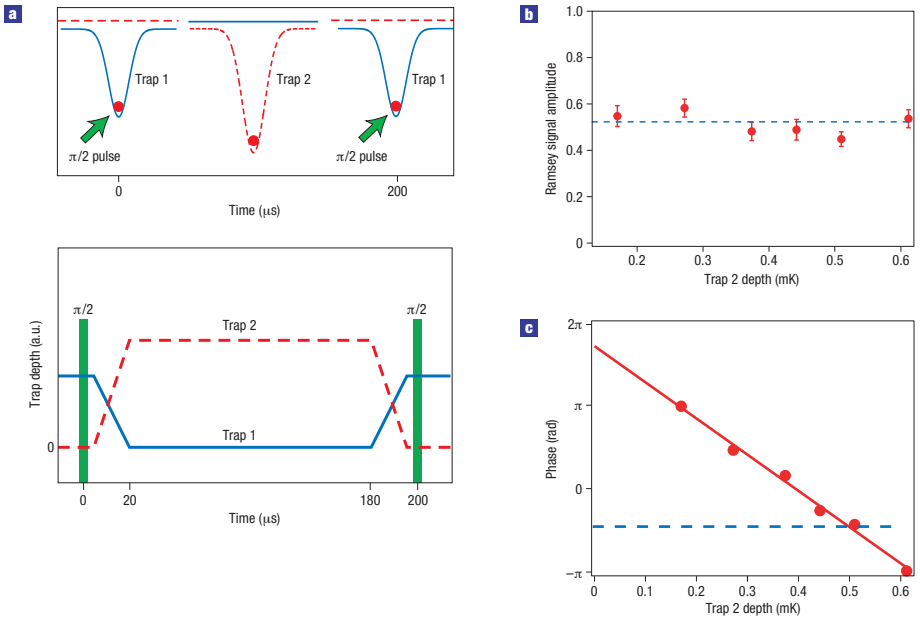


Figure 4 Experiment on the transfer of the qubit between two tweezers. a, Details of the time sequence. A $\pi/2$-pulse is applied when the atom is initially in trap 1, which has a depth of 500 μK. The atom is transferred to trap 2 in a time of 20 μs. After a time of 160 μs, the atom is transferred back to trap 1 and a second $\pi/2$-pulse is applied. **b**, The amplitude of the Ramsey oscillations as a function of the depth of the trap into which the atom is transferred. The error bars are the r.m.s. uncertainty obtained from the fit of the fringes. **c**, The phase of the Ramsey oscillations for different depths of the second trap. The solid line is a linear fit to the data. The dashed lines in **b** and **c** correspond to no transfer.

radial vibrational state. This absence of motional heating is a crucial feature for entanglement schemes on the basis of controlled collisions[16,23] and results from the adiabaticity of the displacement. A motion is adiabatic if the acceleration a fulfils $ma\sigma \ll \hbar\Omega$ (Ω is the oscillation frequency of the atom, m its mass and σ the extension of the ground-state wavefunction[24]). This gives a maximum acceleration of $\approx 10^4\,\mathrm{m\,s^{-2}}$, much larger than the experimentally measured $\approx 15\,\mathrm{m\,s^{-2}}$.

Second, we study the influence of the motion on the coherence of the qubit. As the duration of the transport is larger than the dephasing time of the qubit (630 μs), we apply the spin-echo sequence to rephase the qubit[21]. The time sequence of the experiment is shown in Fig. 2. Figure 3a shows the amplitude of the spin-echo fringes for various trap displacements along the y axis. This amplitude is constant when we scan the tweezer over the whole transverse field of the objective. This demonstrates that the motion does not affect the internal coherence of the qubit. To show the independent two-dimensional control of our system, we move the tweezer along the z axis and observe the same behaviour as along the y axis.

We also observe a phase shift of the spin-echo fringes, as shown in Fig. 3b. This is evidence that the two states of the qubit dephase with respect to each other during the motion (in a reproducible way), despite the presence of the rephasing π-pulse. We attribute this phase shift to the asymmetry of the trajectory during the first and second parts of the round-trip displacement. We have modelled this effect and found a good agreement with the data (see the Methods section). This understanding of the phase evolution of the qubit during the motion is crucial for a possible implementation in a quantum computer, where qubit phases need to be controlled.

With the idea of transferring an atom from the 'register' to the 'moving head', we have investigated the transfer of a qubit from one tweezer to a second one. For this experiment, the two traps are superimposed and the positions of both tweezers are fixed. The experimental sequence is shown in Fig. 4a. We load an atom in the first tweezer, transfer it to a second tweezer, and transfer it back to the first tweezer, with no measurable loss. When the two traps have the same depth, we measure a temperature of the atom after the double transfer of 56.3 ± 1.8 μK, whereas the temperature with no transfer is 53.4 ± 1.4 μK. Therefore, the transfer does not induce any significant motional heating.

We analyse the influence of the transfer on the coherence of the qubit by inserting the double transfer between the two $\pi/2$-pulses of a Ramsey sequence, as shown in Fig. 4a. Figure 4 presents the amplitude and the phase of the Ramsey fringes after this sequence for depths of the second tweezer ranging from 0.2 to 0.6 mK. This transfer does not affect the amplitude of the Ramsey signal when the depth of the second trap is varied, thus showing that the coherence is robust against the transfer between the two traps.

Figure 4c shows that the phase of the Ramsey fringes varies linearly with respect to the depth of the second trap. This is explained by the differential potential experienced by the two states, which is proportional to the depth of the trap U. If the depths of the two traps differ by ΔU, the Ramsey fringes are shifted after a

Nature Physics **3**, 696 (2007).

holding time T by a phase proportional to $\Delta UT/\hbar$, with respect to the situation where no transfer is applied. This phase is thus a useful tool to make sure that the two traps are identical.

In conclusion, we have shown that we can move and transfer a single qubit between two tweezers with no measurable motional heating. We have also shown no loss of coherence of the atomic qubit under transfer and displacement. In combination with our holographic array of dipole traps[4], and efficient single-qubit operation and readout[21], we have made a first step towards designing a scalable architecture of a quantum computer on the basis of neutral atoms.

METHODS

TEMPERATURE MEASUREMENT

After trapping a single atom, we switch off the dipole trap for a time adjustable between 1 and ~30 μs. We then turn the trap back on and check for the presence of the atom. We repeat this sequence 100 times for each release time and calculate the probability of recapturing the atom after the corresponding time of flight. We compare our data with a three-dimensional Monte Carlo simulation, taking into account the potential produced by the gaussian trapping beam, and assuming a thermal distribution of the position and the velocity of the atom at the beginning of the time of flight. The error bar of this fitted temperature corresponds to one standard deviation in the least-square-based fit.

PHASE SHIFT DURING THE MOTION

The hyperfine splitting of 6.8 GHz means that the dipole trap detuning is slightly larger for $|0\rangle$ than for $|1\rangle$, giving rise to a small differential light-shift. Therefore, the qubit transition frequency is $\omega_{\rm hf}+\eta U/\hbar$, with U the depth of the dipole trap and $\eta = 7\times10^{-4}$ for our trap. If the tweezer is not moved, the π-pulse compensates for the phase accumulated during the two parts of the motion. When the tweezer is moved off axis, the waist of the beam increases slightly, resulting in a shallower trap. Figure 2a shows that with the tweezer starting on axis the atom spends more time far from the axis, where the dipole trap is shallower, whereas on the way back it spends more time around the axis, where the dipole trap is stronger. The average depths are then different for the two parts of the motion, and so are the phases. As the phase of the spin-echo signal is the difference of the phases accumulated during the two periods of the motion, it is expected to vary as we move the tweezer further away off axis. We have modelled this effect by calculating the dephasing accumulated during the transport, taking into account the actual displacement of the tweezer from the sensor curve and the measured Rabi frequencies for different positions of the tweezer off axis. The result of this model is shown as circles in Fig. 3b and is consistent with the data.

Received 27 April 2007; accepted 12 July 2007; published 12 August 2007.

References

1. Nielsen, M. A. & Chuang, I. L. *Quantum Computation and Quantum Information* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2000).
2. Kielpinski, D., Monroe, C. & Wineland, D. J. Architecture for a large-scale ion-trap quantum computer. *Nature* **417**, 709–711 (2002).
3. Calarco, T., Dorner, U., Julienne, P. S., Williams, C. J. & Zoller, P. Quantum computations with atoms in optical lattices: Marker qubits and molecular interactions. *Phys. Rev. A* **70**, 012306 (2004).
4. Bergamini, S. *et al.* Holographic generation of micro-trap arrays for single atoms using a programmable phase modulator. *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 1889–1894 (2004).
5. Dumke, R. *et al.* Micro-optical realization of arrays of selectively addressable dipole traps: A scalable configuration for quantum computation with atomic qubits. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 097903 (2002).
6. Miroshnychenko, Y. *et al.* Quantum engineering: An atom-sorting machine. *Nature* **442**, 151 (2006).
7. Chiaverini, J. *et al.* Implementation of the semiclassical quantum Fourier transform in a scalable system. *Science* **308**, 997–1000 (2005).
8. Seidelin, S. *et al.* Microfabricated surface-electrode ion trap for scalable quantum information processing. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 253003 (2006).
9. Rowe, M. A. *et al.* Transport of quantum states and separation of ions in a dual RF ion trap. *Quantum Inf. Comput.* **2**, 257–271 (2002).
10. Schrader, D. *et al.* Neutral atom quantum register. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 150501 (2004).
11. Greiner, M., Mandel, O., Esslinger, T., Hänsch, T. W. & Bloch, I. Quantum phase transition from a superfluid to a Mott insulator in a gas of ultracold atoms. *Nature* **415**, 39–44 (2002).
12. Lee, P. J. *et al.* Sublattice addressing and spin-dependent motion of atoms in a double-well lattice. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 020402 (2007).
13. Jaksch, D., Briegel, H. J., Cirac, J. I., Gardiner, C. W. & Zoller, P. Entanglement of atoms via cold controlled collisions. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1975–1978 (1999).
14. Brennen, G. K., Caves, C. M., Jessen, P. S. & Deutsch, I. H. Quantum logic gates in optical lattices. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1060–1063 (1999).
15. Jaksch, D. *et al.* Fast quantum gates for neutral atoms. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2208–2211 (2000).
16. Dorner, U., Calarco, T., Zoller, P., Browaeys, A. & Grangier, P. Quantum logic via optimal control in holographic dipole traps. *J. Opt. B* **7**, S341–S346 (2005).
17. Kuhr, S. *et al.* Coherence properties and quantum state transportation in an optical conveyor belt. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 213002 (2003).
18. Mandel, O. *et al.* Coherent transport of neutral atoms in spin-dependent optical lattice potentials. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 010407 (2003).
19. Schlosser, N., Reymond, G. & Grangier, P. Collisional blockade in microscopic optical dipole traps. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 023005 (2002).
20. Sortais, Y. R. P. *et al.* Diffraction-limited optics for single-atom manipulation. *Phys. Rev. A* **75**, 013406 (2007).
21. Jones, M. P. A. *et al.* Fast quantum state control of a single trapped neutral atom. *Phys. Rev. A* **75**, 040301(R) (2007).
22. Lett, P. D. *et al.* Observation of atoms laser cooled below the Doppler limit. *Phys. Rev. Lett.* **61**, 169–172 (1988).
23. Mandel, O. *et al.* Controlled collisions for multi-particle entanglement of optically trapped atoms. *Nature* **425**, 937–940 (2003).
24. Browaeys, A. *et al.* Transport of atoms in a quantum conveyor belt. *Phys. Rev. A* **72**, 053605 (2006).

Acknowledgements

We would like to thank W. D. Phillips, T. Porto, I. Deutsch and P. Jessen for stimulating discussions. We acknowledge financial support from IFRAF, ARDA/DTO and the European Integrated project SCALA. LCFIO is CNRS UMR8501. M.P.A.J. and A.M.L. are supported by Marie Curie Fellowships. A.G. is supported by a DGA Fellowship.
Correspondence and requests for materials should be addressed to A.B.

Competing financial interests

The authors declare no competing financial interests.

Reprints and permission information is available online at http://npg.nature.com/reprintsandpermissions/

Chapitre 5

Projet : Vers des interfaces atome-champ

Depuis plusieurs années, nous menons en parallèle, dans le groupe d'Optique Quantique de l'Institut d'Optique, d'une part des travaux relatifs à la manipulation d'atomes uniques ou de petits nuages d'atomes et d'autre part des travaux sur la cryptographie quantique en variables continues et la production d'états non classiques du champ. Il est aujourd'hui naturel de lancer un projet qui se situe à la croisée de ces deux activités : le développement d'interfaces entre les atomes et les photons pour transférer les propriétés de corrélations quantiques des uns aux autres. De telles interfaces présentent un intérêt évident pour la réalisation de mémoires quantiques atomiques et, à plus long terme, de répéteurs quantiques pour les communications quantiques en variables continues.

5.1 Contexte

5.1.1 Problématique

D'importants efforts ont été fait, ces dernières années, pour parvenir à transférer les corrélations quantiques depuis des atomes vers le champ lumineux ou dans l'autre sens. Cela est bien sûr largement lié à l'émergence récente du domaine du traitement quantique de l'information et des communications quantiques. Les atomes sont des candidats naturels pour le stockage et le traitement de l'information, tandis que la lumière est une candidate naturelle pour le transport de l'information. Aussi, être capable de transférer des corrélations quantiques entre ces deux systèmes est clairement un élément central du développement de réseaux quantiques, comme nous l'avons d'ailleurs vu au chapitre précédent.

Mais c'est également un problème fondamental qui a été central depuis des années dans la communauté de l'optique quantique comme dans la communauté de la physique atomique. De fait, le pompage optique constituait déjà une tentative de transférer les propriétés de cohérence des lasers à la matière. Plus tard, avec l'obtention de la condensation de Bose-Einstein, s'est posée la question de savoir s'il était possible de transférer les corrélations du second ordre de la matière au champ lumineux de façon à pouvoir bénéficier des outils de l'optique quantique pour caractériser la condensation. En même temps, la communauté de l'optique quantique, en se penchant sur la question des mesures quantiques non destructives

ne faisait rien d'autre qu'essayer de transférer des corrélations quantiques d'un système à un autre.

Parce que certains états du champ ou certaines opérations sur des états du champ, relativement faciles à produire avec des photons, sont très difficiles à obtenir avec des atomes (et inversement) tout dispositif permettant de transférer des corrélations quantiques entre de la lumière et des atomes serait d'un intérêt certain pour l'ensemble de la communauté quantique. A cet égard, le protocole téléportation joue évidemment un rôle central : elle donne un cadre au transfert d'un état quantique d'un système à un autre. Les états «téléportables» ne sont pas limités à deux systèmes quantiques à deux états : le protocole peut être généralisé à des variables continues [154, 155, 156] ou à des systèmes à n bits quantiques [157, 158]. La difficulté du transfert d'états entre lumière et matière se situe dans la mesure de Bell ou dans la production d'états EPR : pour transférer un état entre de la lumière et des atomes, il faut pouvoir produire des états intriqués atome-champ ou être capable d'effectuer une mesure de Bell sur un système atome-champ. Il est donc nécessaire de disposer de systèmes atomiques et d'états du champ «compatibles» entre eux.

5.1.2 Savoir-faire du groupe d'Optique Quantique

Au sein du groupe d'optique quantique de l'Institut d'Optique, nous avons travaillé ces dernières années à différents types de projets. Une partie du groupe travaille avec des atomes — j'en faisais partie il y a encore peu de temps. Une autre partie travaille essentiellement avec des photons — ce que j'ai fait moi-même au début de mon activité de recherche. C'est donc tout naturellement que j'ai commencé à envisager un projet qui se situerait dans l'entre-deux. Parce que je pense que c'est le bon moment pour lancer un tel projet, j'ai décidé, sous l'impulsion de Philippe Grangier, de démarrer une nouvelle expérience qui va dans ce sens : la production de vide comprimé impulsionnel avec des vapeurs atomiques. Avant de préciser ce qu'est cette expérience et en quoi elle constitue le début de la construction d'interfaces atome-champ, je voudrais en quelques mots situer le degré d'expertise que nous avons développé dans le groupe.

En ce qui concerne les atomes, notre savoir-faire comprend le piégeage d'atomes uniques ou de petits nuages d'atomes de ^{87}Rb, la réalisation de sources de photons uniques avec un unique atome piégé ou encore l'utilisation d'un unique atome comme bit d'information quantique contrôlé optiquement. Les travaux actuels se développent dans deux directions : d'une part, le refroidissement de petit nuages d'atomes dans des pièges dipolaires très confinants — avec l'idée de produire une sorte de «nano-condensat» à petit nombre d'atomes — et d'autre part, l'excitation dans des états de Rydberg d'atomes uniques piégés à des positions contrôlées. Avant de rejoindre le groupe, ma connaissance de la physique quantique était essentiellement académique. Avoir travaillé de 2003 à 2007 sur les expériences d'atomes froids m'a permis d'accéder à un savoir opérationnel minimal en physique atomique. De plus, les interactions entre ces expériences d'atomes froids et celle que j'ai l'intention de développer devraient aller en s'accroissant avec le temps et le savoir que le groupe continue d'accumuler sur ces expériences devrait bientôt pouvoir être utile à mon projet.

Dans la partie du groupe tournée vers la «photonique», un dispositif de distribution quantique de clés reposant sur des impulsions cohérentes de faible amplitude [159] a été développé jusqu'à un stade très appliqué : c'est aujourd'hui un système automatisé et fibré construit uniquement avec des composants télécom standards.

Ce dispositif est limité en termes de portée à causes des inévitables pertes lors de la propagation. Pour construire un système de communication quantique fonctionnant sur de

longues distances, il est nécessaire de développer des répéteurs quantiques reposant sur la téléportation en variables continues et l'utilisation de mémoires quantiques. Pour que la téléportation présente un avantage, il est nécessaire de construire des sources d'états EPR présentant une fidélité aussi élevée que possible. Pour ce faire, on peut utiliser des protocoles de purification d'intrication [160, 161]. Un point fondamental dans ce contexte est que cette purification ne peut se faire par des opérations classiques de l'optique linéaire sur des états gaussiens[108] : il est donc intéressant de disposer d'états non classiques du champ.

Le groupe a déjà obtenu d'importants résultats en ce qui concerne la production d'états fortement non classiques du champ lumineux. Les sources qui ont été développées dans cette optique reposent sur la production d'états comprimées du champ lumineux en régime impulsionnel femtoseconde. Pour caractériser les états produits, un dipositif de détection homodyne optique fonctionnant en régime impulsionnel a été développé. Il permet de mesurer complètement les états du champ produits [162]. Ce système de détection a été utilisé pour mesurer la fonction de Wigner d'un état à deux photons [163] et d'états intriqués en quadrature [164]. De nouveaux protocoles pour la production d'états non classiques du champ lumineux ont été développés. Ils combinent les techniques de détection de photons uniques et les techniques de détection homodyne en régime impulsionnel. L'un de ces protocoles est une procédure de «dégaussification» qui permet la production de «chatons» de Schrödinger à partir de vide comprimé impulsionnel [165]. Un autre de ces protocoles permet de produire des chats de Schrödinger à partir d'états de Fock [166].

L'expertise que notre groupe a développée nous dispose naturellement à chercher à développer des interfaces atome-champ en régime impulsionnel pour des variables continues.

5.2 Sources de lumières pour les interfaces atome-champ

5.2.1 Vide comprimé impulsionnel avec des vapeurs atomiques

Tous les progrès décrits ci-dessus ouvrent sans aucun doute des perspectives très stimulantes ; toutefois, ils sont obtenus en régime femtoseconde, ce qui a pour conséquences que leurs propriétés spectrales ne sont pas adaptées à l'interfaçage avec des atomes. C'est pour cette raison que nous souhaitons à présent développer une source impulsionnelle d'états comprimés du vide produits par interaction directe avec un milieu atomique — une vapeur atomique — en régime nanoseconde, de façon à ce que les caractéristiques spectrales des impulsions soient compatibles avec celles d'une mémoire atomique.

L'idée fondamentale sous-jacente à cette expérience est d'utiliser la saturation de la transition atomique : le mode de polarisation du champ de l'incident induit un effet Kerr croisé qui peut être exploité pour produire du vide comprimé sur la polarisation orthogonale. Ces idées sont proches de ce qui a été utilisé dans notre groupe de recherche par le passé pour des mesures de quantiques non destructives [167]. Il s'agit également d'un effet proche de ce qui a été observé au Laboratoire Kastler Brossel avec des nuages froids d'atomes de césium dans des cavités optiques, sous excitation continue [168]. Après de fécondes discussions avec nos collègues du groupe d'optique quantique du LKB [169], nous avons entrepris des études théoriques préliminaires et nous sommes arrivés à la conclusion que des impulsions de vide comprimé pouvaient être obtenues en utilisant des impulsions nanoseconde traversant une cellule de ^{87}Rb chauffée dans la gamme 70-110° C, avec des puissances crêtes de l'ordre de quelques watts, un taux de répétition de 5 MHz, et un désaccord par rapport à la résonance atomique de l'ordre de la largeur Doppler.

La nouveauté de notre approche est l'utilisation de vapeurs atomiques en régime d'excitation impulsionnelle plutôt que d'utiliser des atomes froids sous excitation continue. Des travaux comparables, mais avec l'excitation continue d'une vapeur atomique, ont été menés récemment en Allemagne par Lvovsky *et al.* [170]. Le groupe d'Optique Quantique du LKB à Paris, ainsi que le groupe de Ping Koy Lam à l'Australian National University à Canberra ont tenté sans succès de reproduire les résultats allemands. Une analyse conjointe de l'expérience par les deux groupes de Paris et Canberra a conduit à la conclusion que le régime continu était très défavorable à la production d'états comprimés et que le régime impulsionnel pourrait être nettement plus favorable. C'est l'une des raisons pour lesquelles, compte-tenu de l'expérience de notre groupe en ce qui concerne la génération de vide comprimé en régime impulsionnel, nous avons commencé à nous intéresser à ces expériences.

J'envisage, en plus de l'idée de produire du vide comprimé en régime impulsionnel par effet Kerr croisé dans une vapeur, d'essayer également une situation expérimentale un peu plus complexe : la production, toujours en régime impulsionnel nanoseconde d'état intriqués de la lumière en utilisant du mélange à quatre ondes dans une vapeur. L'idée serait de transposer au régime impulsionnel les travaux de Paul Lett *et al.* menés au NIST qui ont mené à l'observation d'importantes corrélations d'intensité produites par mélange à quatre ondes dans une vapeur de rubidium [171].

5.2.2 Perspectives

Lorsque des impulsions nanosecondes de vide comprimé ou des paires d'impulsions nanosecondes corrélées en intensité seront produites, nous pourrons appliquer les protocoles que nous avons déjà développé (ou d'autres qui pourraient être inventés entre temps) pour produire des états non-gaussiens du champ lumineux compatibles avec des atomes.

Bien entendu, il ne s'agit là que des premières étapes d'un projet à plus long terme. Le but ultime est le développement de répéteurs quantiques pour les communications quantiques en variables continues. de tels répéteurs nécessitent des mémoires quantiques. L'étape suivante sera donc la réalisation de mémoires atomiques capables de stocker les états non classiques du champ qui auront été produits.

L'une des voies les plus prometteuses pour le stockage de l'information en variables continues est l'utilisation du spin collectif d'un ensemble d'atomes. A ma connaissance, trois directions principales ont été explorées. Le groupe de Lukin à Harvard a utilisé la transparence induite électromagnétiquement pour stocker de l'information dans un spin collectif atomique, mais seuls des états classiques du champ ont été utilisés jusqu'à maintenant [172]. Le groupe de Polzik à Copenhague a réalisé l'intrication de deux ensembles atomiques[173] et le transfert de vide comprimé [174], mais les efficacités de transfert restent très faibles. Enfin, les groupes de Kuzmich et Wineland ont exploré le transfert d'un état du champ (et en particulier le transfert d'un état comprimé) vers un ensemble atomique, mais il semble que les applications soient surtout de nature métrologique. D'un autre côté, une protocole tel que DLCZ [98], utilisé avec succès par Kimble *et al.* pour produire et stocker des photons uniques, intriquer deux ensembles atomiques ou stocker un état intriqué photonique dans une mémoire quantique atomique [175] paraît très prometteur.

Une direction recherche pourrait être d'explorer la possibilité d'adapter le protocole DLCZ aux variables continues avec de petits nuages atomiques piégés dans des pièges dipolaires très confinants. J'espère pouvoir utiliser les techniques de formation de nanocondensats qui sont actuellement en développement pour produire des épaisseurs optiques

suffisantes pour absorber des états du champ à petit nombre de photons avec une grande efficacité. L'un des problèmes principaux que cela pose est qu'avec des nuages très petits, il devient difficile dans un protocole du type DLCZ de séparer les impulsions de lecture et d'écriture du signal émis (qui indique le succès de l'écriture ou qui constitue le résultat de la lecture lui-même). Il me semble que ces problèmes peuvent être contournés en utilisant des nuages très anisotropes de façon à pouvoir exploiter d'éventuels effets de super-radiance. Evidemment ces idées sont fort spéculatives, mais il s'agit justement d'explorer leur pertinence et de les rendre plus réalistes dans les années à venir.

Conclusion

S'il a fallu attendre aussi longtemps entre l'introduction de la notion de photon et la production d'états à un seul photon, c'est sans doute parce que le laser est un élément central pour la réalisation de sources de photons uniques, que ce soit des sources déclenchées comme celles que nous avons présentées ici, ou des sources de photons uniques annoncés. Le laser n'est pas le seul ingrédient. Il aura aussi fallu que soient développés des dispositifs électroniques capables de résoudre la nanoseconde. La théorie de l'information, formulée par Shannon en 1948 [176], n'est pas étrangère à ces développements : elle a contribué à l'évolution effrénée de l'électronique dont la forme la plus visible aujourd'hui est ce qu'il est convenu d'appeler l'*informatique*. D'un point de vue purement technologique, il s'agit du développement de circuits capables de traiter l'information à des fréquences qui dépassent le gigabit, soit plus d'un bit d'information par nanoseconde. Sa généralisation aux systèmes quantiques a largement contribué à l'intérêt marqué pour les sources de photons uniques en raison de leur application potentielle à la cryptographie quantique.

Les sources de photons uniques, initialement considérées comme des curiosités de laboratoire destinées à montrer la nature quantique de la lumière et à en explorer les propriétés, sont devenues des ressources pour les *communications quantiques* et, même si elles ne seront probablement jamais utilisées pour réaliser des dispositifs de distributions quantique de clé comme BB84, elle ont encore de l'avenir pour la réalisation de calculateurs quantiques reposant sur KLM.

Plus généralement, et c'est sans doute l'argument principal du travail que je présente ici, les sources de lumière quantiques sont devenues des outils de choix pour les deux domaines émergents que sont les nanosciences et l'information quantique. Cela est vrai pour les sources de photons uniques, mais ça l'est aussi pour les sources de paires de photons qui sont aujourd'hui au cœur de nombreux projets de communication ou de traitement de l'information quantiques.

Comme on l'a vu au chapitre 4 et comme cela apparaît de façon centrale dans mon projet, il est de plus en plus difficile de parler des états du champ produits sans se préoccuper de l'émetteur et des échanges d'informations entre les deux. Cela laisse penser que l'avenir est aux interfaces entre des états quantiques du champ à petit nombres de photons et des systèmes matériels qui seront inévitablement sujets à miniaturisation jusqu'à se réduire à des objets quantiques nanométriques.

Au-delà des applications à l'information quantique, la production d'états quantiques du champ lumineux à petit nombre de photons relève du contrôle quantique d'objets individuels. Cela est vrai aussi du contrôle d'émetteurs individuels ou de mémoires quantiques nanométriques.

Il me paraît qu'une double révolution est en train de se produire dans ce domaine de recherche : d'une part, nous arrivons au stade où il devient possible de préparer des systèmes

à petit nombre de particules, atomes, ions, photons dont les corrélations sont complètement contrôlées et d'autre part se développe une version quantique de la théorie de l'information dont les conséquences sont peut-être encore sous-estimées.

Je ne peux m'empêcher de penser qu'une telle révolution technologique n'ira pas sans une révolution des fondements de la physique elle-même et que, comme de coutume, la lumière y aura une contribution majeure.

Je crois que l'information, que l'on pensait être un dérivé de l'activité humaine, relevant plus des mathématiques ou de la linguistique que de la physique est en train de prendre une place très centrale dans la physique elle-même.

Annexe A

Compléments

A.1 Caractérisation du groupement et du dégroupement

A.1.1 Fonction $g^{(2)}(\tau)$

Le groupement ou le dégroupement de photons se caractérise par la mesure de la fonction de corrélation du second ordre associée à l'intensité lumineuse $I(t)$, définie en régime stationnaire par :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(0)I(\tau)\rangle}{\langle I\rangle^2} \ , \tag{A.1}$$

où la moyenne est prise au sens de la moyenne d'ensemble. C'est une fonction qui est toujours paire à cause de l'hypothèse de stationnarité. De plus, si le flux est ergodique, les corrélations d'intensité disparaissent lorsque τ tend vers l'infini, si bien que :

$$\lim_{\tau\to\pm\infty} g^{(2)}(\tau) = 1 \ . \tag{A.2}$$

La définition de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ repose sur le fait que, dans le domaine optique, la densité de probabilité conjointe de détecter un photon au point $\mathbf{r}_1$ à l'instant t_1 et de détecter un photon au point $\mathbf{r}_2$ à l'instant t_2 prend la forme, dans une théorie semi-classique de la photodétection :

$$p(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = \eta_1\eta_2\langle I(\mathbf{r}_1, t_1)I(\mathbf{r}_2, t_2)\rangle \ , \tag{A.3}$$

où $I(\mathbf{r}, t)$ est l'intensité lumineuse au point $\mathbf{r}$ à l'instant t et η_i représente la sensibilité du détecteur placé au point $\mathbf{r}_i$. Ainsi la fonction $g^{(2)}(\tau)$ exprime la probabilité de détecter au même point un photon à $t = 0$ et un photon à τ, normalisée de façon à faire disparaître l'influence de la sensibilité des détecteurs.

Dans le cas quantique, l'intensité est représentée par un opérateur $\hat{I}$ proportionnel à $\hat{\mathbf{E}}^{(-)}.\hat{\mathbf{E}}^{(+)}$ où $\hat{\mathbf{E}}^{(+)}$ est la partie de fréquence positive de l'opérateur champ électrique. La fonction de corrélation du second ordre, parfois appelée fonction de corrélation *normale* du second ordre, est alors définie par :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle :\hat{I}(0)\hat{I}(\tau): \rangle}{\langle \hat{I}\rangle^2} \tag{A.4}$$

où les deux points indiquent qu'il faut prendre les opérateurs création et annihilation de photons dans l'ordre normal. L'ordre normal assure que le terme au numérateur est proportionnel à la probabilité de détecter un photon à l'instant $t = 0$ et un autre à $t = \tau$ au même point de l'espace [3].

Ainsi, dans tous les cas, la théorie de la photodétection permet d'interpréter le $g^{(2)}(\tau)$ en termes de probabilités de détection. La probabilité de double détection d'un photon à t et d'un autre à $t + \tau$ s'écrit :

$$p(t, t+\tau) = \eta^2 \langle :\hat{I}(t)\hat{I}(t+\tau): \rangle$$

où η est une constante qui caractérise l'efficacité du détecteur. De même, la probabilité de simple détection s'écrit $p(t) = \eta \langle \hat{I}(t) \rangle$. Si l'on introduit la probabilité conditionnelle $p(t+\tau|t)$ de détecter un photon à $t + \tau$ sachant qu'on en a détecté un à t, on obtient simplement :

$$g^{(2)}(\tau) \; = \; \frac{p(\tau|0)}{p(0)} \; . \tag{A.5}$$

A.1.2 Cas monomode transverse

Dans le cas fréquemment rencontré en pratique d'un champ monomode transverse, c'est-à-dire une seule direction de propagation et une seule polarisation, on peut exprimer le champ en un point donné de l'espace sous forme scalaire :

$$\hat{E}(t) = \hat{E}^{(+)}(t) + \hat{E}^{(-)}(t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} K(\omega) \hat{a}_\omega \mathrm{e}^{-i\omega t} + \int \frac{d\omega}{2\pi} K(\omega) \hat{a}^\dagger_\omega \mathrm{e}^{+i\omega t}$$

où l'on prendra $K(w) = 1$ pour exprimer les intensités en unités photoniques. Avec ces notations, pour l'état $|\psi\rangle$ du champ, le $g^{(2)}(\tau)$ prend la forme :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle\psi|\hat{E}^{(-)}(0)\hat{E}^{(-)}(\tau)\hat{E}^{(+)}(\tau)\hat{E}^{(+)}(0)|\psi\rangle}{\langle\psi|\hat{E}^{(-)}(0)\hat{E}^{(+)}(0)|\psi\rangle^2} \; . \tag{A.6}$$

A.1.3 Lien entre fonction de corrélation et fluctuations

Toujours dans le cas d'un champ monomode transverse, en utilisant les relations de commutation du champ libre suivantes, qui se déduisent de celles des opérateurs création et annihilation :

$$[\hat{E}^{(-)}(t_1), \hat{E}^{(+)}(t_2)] = \delta(t_1 - t_2) \; ,$$

on peut écrire :

$$\langle \hat{I}(0)\hat{I}(\tau) \rangle = \langle :\hat{I}(0)\hat{I}(\tau): \rangle + \delta(\tau)\langle \hat{I} \rangle \; .$$

Cette relation permet de relier l'expression de la fonction d'autocorrélation relative aux fluctuations d'intensité $\delta\hat{I}(t) = \hat{I}(t) - \langle I \rangle$ et la fonction de corrélation du second ordre :

$$\langle \, \delta\hat{I}(0)\delta\hat{I}(\tau) \, \rangle \; = \; [\, g^{(2)}(\tau) - 1 \,] \, \langle \hat{I} \rangle^2 \; + \; \delta(\tau) \, \langle \hat{I} \rangle \; . \tag{A.7}$$

Le terme $\delta(\tau)\langle\hat{I}\rangle$ est la contribution poissonnienne aux fluctuations d'intensité. Si l'on définit le nombre de photodétections pendant une durée T par :

$$\hat{n}_T = \int_0^T \hat{I}(t) dt$$

où l'intensité est exprimée en photons par seconde, la relation (A.7) se traduit, en terme de variance du nombre de photodétections, par :

$$(\Delta\hat{n}_T)^2 = \langle\hat{n}_T\rangle \left[1 + \langle\hat{n}_T\rangle \frac{\Theta(T)}{T}\right] \tag{A.8}$$

avec :

$$\Theta(T) = \int_{-T}^{+T} \left[1 - \frac{|\tau|}{T}\right] \left(g^{(2)}(\tau) - 1\right) d\tau \; .$$

Ce résultat se réduit, dans la limite où le temps d'intégration est court devant les variations de la fonction $g^{(2)}(\tau)$, à :

$$(\Delta\hat{n}_T)^2 = \langle\hat{n}_T\rangle \left(1 + \left[g^{(2)}(\tau) - 1\right] \langle\hat{n}_T\rangle\right) \; . \tag{A.9}$$

A.1.4 Effet des pertes

Si l'on considère un faisceau lumineux monomode transverse qui subit des pertes, la fonction d'autocorrélation avant et après les pertes reste inchangée à cause de la normalisation par $\langle I\rangle^2$. En revanche, ce n'est pas le cas pour les fluctuations d'intensité comme on le voit avec l'expression (A.7). En effet, si l'on note $\hat{I}_\zeta$ l'opérateur représentant l'intensité diminuée des pertes et $\zeta = \langle\hat{I}_\zeta\rangle/\langle\hat{I}\rangle$ le facteur d'atténuation par les pertes, on obtient :

$$\langle\, \delta\hat{I}_\zeta(0)\delta\hat{I}_\zeta(\tau)\,\rangle \;=\; [\, g^{(2)}(\tau) - 1\,]\,\zeta^2\langle\hat{I}\rangle^2 \;+\; \delta(\tau)\,\zeta\,\langle\hat{I}\rangle \; .$$

Lorsque les pertes sont très importantes, c'est-à-dire lorsque ζ tend vers zéro, le terme en ζ^2 devient négligeable et donc :

$$\lim_{\zeta\to 0}\langle\, \delta\hat{I}_\zeta(0)\delta\hat{I}_\zeta(\tau)\,\rangle \;=\; \delta(\tau)\,\langle\hat{I}_\zeta\rangle \; , \tag{A.10}$$

ce qui est la caractéristique d'un flux poissonnien.

On peut montrer à partir de cette expression que le nombre de photodétections dans une durée T arbitraire suit, à la limite des fortes pertes, une loi de Poisson. La variance du nombre de photodétections pendant une durée T après des pertes caractérisées par une atténuation par un facteur ζ s'obtient à partir de l'expression (A.9). On obtient, avec des notations évidentes :

$$(\Delta\hat{n}_{\zeta,T})^2 = \zeta\langle\hat{n}_T\rangle \left[1 + \zeta\langle\hat{n}_T\rangle \frac{\Theta(T)}{T}\right] \underset{\zeta\to 0}{\sim} \langle\hat{n}_{\zeta,T}\rangle \; . \tag{A.11}$$

Ce résultat signifie que les pertes ramènent toujours les fluctuations d'intensité au bruit de Poisson. On pourra ainsi toujours considérer que des impulsions de lumière très atténuées suivent une statistique poissonnienne.

A.1.5 Mesure de la fonction de corrélation du second ordre

Pour mesurer la fonction d'autocorrélation, la méthode la plus utilisée est un montage de type Hanbury Brown et Twiss dans lequel le faisceau lumineux est scindé en deux par une lame semi-réfléchissante 50/50. On montre facilement que la quantité :

$$g_c^{(2)}(\tau) = \frac{\langle :\hat{I}_t(t)\hat{I}_r(t+\tau):\rangle}{\langle\hat{I}_t\rangle\langle\hat{I}_r\rangle} \; , \tag{A.12}$$

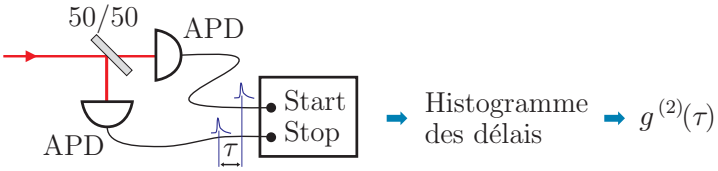


FIG. A.1 – *Montage de type Hanbury Brown et Twiss. Les délais entre photodétections provenant des deux photodiodes à avalanche (APD) sont enregistrés au moyen d'un dispositif de type «start-stop». On en tire l'histogramme $N_c(\tau)$ des coïncidences de photodétection en fonction du délai qui les sépare et que l'on le normalise en utilisant les taux de comptage n_r et n_t sur chaque voie pour obtenir une évaluation de la fonction $g^{(2)}(\tau)$.*

où $\hat{I}_t$ et $\hat{I}_r$ sont les intensités transmises et réfléchies par la lame, coïncide avec $g^{(2)}(\tau)$.

En pratique, le processus de mesure consiste à répéter un grand nombre N de fois la même opération : pendant une durée T_s, on attend une première détection qui se produit à un instant t_i, puis on enregistre le délai τ qui s'écoule jusqu'à la détection suivante avec une précision $\Delta\tau$. On forme ensuite l'histogramme $N_c(\tau)$ de ces délais (voir figure A.1). A condition que durant T_s la probabilité d'avoir plus de deux photodétections soit négligeable, cet histogramme coïncide, à une normalisation près, avec la fonction $g^{(2)}(\tau)$. En effet, la probabilité de détecter un photon dans un intervalle de durée $\Delta\tau$ au bout d'un temps τ après une détection à t_i s'écrit $p(\tau+t_i|t_i)\Delta\tau$, si bien que $N_c(\tau)$, qui correspond à l'intégration sur toutes les valeurs possibles de t_i, prend la forme :

$$N_c(\tau) = \int_0^{T_s} [Np(\tau + t_i|t_i)\Delta\tau]\, p(t_i)dt_i = N\Delta\tau \int_0^{T_s} p(t, t+\tau)dt \ .$$

Sachant que la probabilité conjointe de détecter un photon à t dans un intervalle de durée Δt et un photon à t' dans un intervalle de durée $\Delta t'$ avec des détecteurs d'efficacité quantique η vaut :

$$p(t,t')\Delta t\Delta t' = \eta^2 \langle : \hat{I}(t)\hat{I}(t') : \rangle \Delta t\Delta t' \ ,$$

on en déduit, compte tenu de la stationnarité :

$$N_c(\tau) = \eta^2 N T_s \Delta\tau \langle : \hat{I}(0)\hat{I}(\tau) : \rangle \ .$$

La normalisation est simple si l'on connaît les taux de comptage sur les deux détecteurs $n_r = \eta\langle\hat{I}_r\rangle$ et $n_t = \eta\langle\hat{I}_t\rangle$:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{N_c(\tau)}{n_t n_r N T_s \Delta\tau} \ . \tag{A.13}$$

Le terme au dénominateur est le nombre de coïncidences que l'on attend, pour tout délai τ, lorsque les photodétections sur chaque détecteur sont complètement décorrélées.

Il faut noter que le résultat obtenu, $n_c(\tau) = N_c(\tau)/n_t n_r N T_s \Delta\tau$, est une bonne estimation de $g^{(2)}(\tau)$ tant que les temps τ et T_s sont suffisamment courts devant $1/\langle I\rangle$. En effet, on n'enregistre par cette méthode que les nombres de coïncidences entre photodétections qui se suivent et non pas l'ensemble de toutes les coïncidences. Ainsi, pour un flux parfaitement poissonnien, le $g^{(2)}$ attendu doit être égal à l'unité quelque soit τ, alors que $n_c(\tau)$ présente une décroissance en $\exp(-\langle I\rangle\tau)$. Il est cependant possible de corriger les signaux obtenus dans ce cas (voir par exemple [25]).

Notons, pour terminer, que cette technique de mesure de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ avec deux détecteurs a été introduite dans le but d'accéder aux signaux à $\tau = 0$. De façon à obtenir à la fois à des délais positifs et négatifs et pour s'affranchir des différents temps morts de l'électronique de comptage, une ligne à retard est introduite sur la voie «start» du dispositif. Si l'on ne s'intéresse qu'à des délais τ supérieurs aux temps morts de détection, un seul détecteur placé directement dans le flux et qui génère successivement des impulsions électriques «start» et «stop» est suffisant.

A.1.6 Groupement et dégroupement de photons

Dans une approche classique de la lumière où le flux est décrit par un champ classique aléatoire, la fonction de corrélation $\langle I(t)I(t+\tau)\rangle$ vérifie l'inégalité de Schwartz :

$$[\langle I(t)I(t+\tau)\rangle]^2 \leqslant \langle I(t)^2\rangle\langle I(t+\tau)^2\rangle \ ,$$

si bien qu'en régime stationnaire, compte tenu du fait que les intensités sont des grandeurs positives, cela conduit à :

$$g^{(2)}(\tau) \ \leqslant \ g^{(2)}(0) \ . \tag{A.14}$$

La variance de $I(t)$ étant toujours positive, on obtient également que :

$$g^{(2)}(0) \ \geqslant \ 1 \ . \tag{A.15}$$

Ces résultats signifient que pour un flux lumineux stationnaire, la fonction $g^{(2)}(\tau)$ présente un maximum en 0 qui est supérieur ou égal à 1 ou bien est constante. Si le flux est de plus ergodique, la fonction $g^{(2)}(\tau)$ tend vers 1 à l'infini. En termes de photodétections, cela se traduit par le fait que si un photon est détecté à $t = 0$, la probabilité d'en détecter un autre au bout du délai τ est égale ou plus faible à celle de le détecter immédiatement.

Notons dès maintenant que les inégalités (A.14) et (A.15) ne sont valable que dans une approche classique. Avec une description quantique de la lumière, il est possible de les violer. Lorsque la fonction $g^{(2)}(\tau)$ quantique présente un minimum strict en 0, on parle de dégroupement de photon, qui est un effet purement quantique.

On parle de groupement de photons lorsque la fonction $g^{(2)}(\tau)$ présente un maximum strict pour $\tau = 0$. Si $g^{(2)}(0) < 1$, on n'a pas automatiquement un minimum, donc on n'est pas forcément dans une situation de dégroupement. En revanche, la relation (A.7) indique que les fluctuations d'intensité sont sous-poissonniennes, ce qui est encore un effet non classique, mais dans un sens plus subtil : un traitement classique de la lumière n'interdit pas un bruit sous-poissonnien dans la mesure où la composante poissonnienne du bruit n'est prévue que par la mécanique quantique ; l'expression (A.9), obtenue par un calcul quantique, montre qu'une statistique sous-poissonnienne implique $g^{(2)}(0) < 1$, c'est-à-dire des états non classiques. Lorsque $g^{(2)}(0) = 0$, on dit que le dégroupement est total ; c'est le cas lorsque l'on a un émetteur unique qui ne peut jamais émettre deux photons simultanément. Enfin, lorsque le $g^{(2)}(\tau)$ est constant et égal à l'unité, l'expression (A.7) indique que l'on est en présence d'un flux dont les fluctuations d'intensité sont poissonniennes. On n'a alors ni groupement ni dégroupement. La figure A.2 illustre ces différentes situations.

Groupement

Dans le cas d'une source thermique, c'est-à-dire un corps noir filtré spectralement, le champ peut être décrit par une variable aléatoire gaussienne, ce qui permet d'écrire que

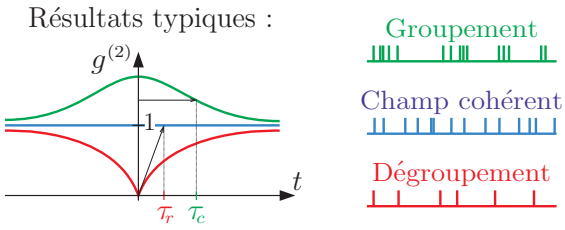


FIG. A.2 – *Formes typiques de la fonction $g^{(2)}(\tau)$. Le flux issu d'une source thermique présente du groupement, caractérisé par une largeur temporelle τ_c qui correspond au temps de cohérence ; la distribution temporelle des photons présente des «paquets». Un laser idéal fonctionnant très au-dessus du seuil produit un champ très cohérent dont le $g^{(2)}(\tau)$ vaut 1 ; la distribution des photons dans le temps est poissonnienne. La fluorescence d'un émetteur unique à un seul état radiatif présente du dégroupement avec un temps de montée τ_r égal à la durée d'un cycle excitation-émission ; la distribution temporelle des photons est plus régulière que dans le cas poissonnien.*

tous les moments du champ se décomposent en somme de produits de moment d'ordre deux. Dans le cas d'un flux stationnaire, polarisé et gaussien (au sens où l'amplitude complexe du champ fluctue autour de la valeur moyenne nulle selon une loi de probabilité gaussienne bivariée), on montre que la fonction $g^{(2)}(\tau)$ s'écrit :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \,, \tag{A.16}$$

où la fonction $g^{(1)}(\tau)$ est la fonction d'autocorrélation du *champ* normalisée. Elle est définie par :

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E^*(0)E(\tau)\rangle}{\langle I\rangle}$$

où $E(t)$ est la représentation analytique du champ. On notera que la transformée de Fourier de cette fonction donne la densité spectrale de l'intensité lumineuse, qui caractérise la cohérence du champ. On vérifie que $|g^{(1)}(\tau)|$ prend ses valeurs entre 0 et 1, avec $g^{(1)}(0) = 1$ et, si l'hypothèse d'ergodicité est vérifiée, $g^{(1)}(\infty) = 0$. On a donc toujours groupement, avec $g^{(2)}(0) = 2 \geqslant g^{(2)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau) \geqslant 1$ pour tout τ.

Dans une approche quantique, le flux de photons peut être vu comme une succession de paquets d'ondes (mode spatio-temporel du champ dans lequel est chaque photon, peuplé en général d'un photon seulement, ce qui est le propre des sources thermiques). Lorsque deux paquets se recouvrent, l'interférence des champs et la symétrisation des états à 1 photon (indiscernables) conduisent à une interférence constructive qui tend à grouper les photons (parce que ce sont des bosons).

Dans une approche classique, le flux est vu comme une suite de paquets d'ondes identiques dont chacun se divise en deux au passage d'une lame séparatrice : il y a toujours coïncidence dans la durée du paquet. Pour deux paquets d'ondes différents, la phase relative est aléatoire donc en moyenne seule une moitié donne des coïncidences. Il y a donc deux fois plus de coïncidences pour un délai inférieur au temps de corrélation que pour un délai plus grand et comme à très grand délai le $g^{(2)}(\tau)$ tend vers 1, on en déduit un maximum de 2 à $\tau = 0$.

Lumière cohérente

Lorsque $g^{(2)}(\tau) = 1$, les photons sont répartis complètement aléatoirement dans le flux, comme dans un processus de Poisson. C'est-à-dire que le nombre n de photons dans un intervalle de temps T suit la loi de Poisson :

$$p(n) = \mathrm{e}^{-\langle I\rangle T}\,\frac{(\langle I\rangle T)^n}{n!}\ ,$$

et que les nombres de photons dans deux intervalles de temps qui ne se recouvrent pas sont des variables aléatoires indépendantes. Autrement dit, $I(t)$ et $I(t+\tau)$ sont indépendants et l'on a :

$$\langle I(t)I(t+\tau)\rangle = \langle I(t)\rangle\langle I(t+\tau)\rangle = \langle I\rangle^2\ .$$

C'est ce que l'on obtient dans le cas d'une lumière monochromatique de durée de cohérence infinie. Le calcul classique du $g^{(2)}(\tau)$ pour un champ $E(t) = E_0\exp(-i\omega t)$, tout comme le calcul quantique pour lequel on choisit un état cohérent $|\alpha\rangle$, donnent comme résultat l'unité, quelque soit τ. Cela signifie que pour un champ cohérent $I(t)$ et $I(t+\tau)$ sont indépendants.

Contrairement à une idée reçue, les lasers ne produisent généralement pas des états cohérents. La plupart du temps, ils présentent même des effets de groupement et des bruits techniques qui les éloignent largement de la catégorie des sources poissonniennes. Une diode laser typique présente un excès de bruit important jusqu'à quelques centaines de kHz ; son oscillation de relaxation aux alentours de quelques GHz est responsable d'un bruit très important sur la phase, susceptible de se transformer en bruit d'intensité dès qu'un effet non linéaire entre en jeu. La plupart des lasers hélium-néon courants présentent quant à eux des bruits techniques très importants et la densité spectrale de puissance des fluctuations d'intensité lumineuse fait apparaître des séries de pics très au-dessus du niveau poissonnien.

Il existe cependant des lasers qui produisent des états relativement proches d'états cohérents. Un laser tel qu'un titane-saphir continu est connu pour avoir des fluctuations poissonniennes au-dessus du MHz (en-dessous, il présente en général un fort bruit technique). De façon générale, un laser continu constitué d'un milieu amplificateur à trois ou quatre niveaux placé en cavité, pompé optiquement par un autre laser ne présentant pas trop de bruit technique et fonctionnant très au dessus du seuil voit sa largeur spectrale s'affiner lorsque l'intensité intracavité augmente. Cela a pour effet de rapprocher son émission d'un état cohérent ou plus exactement d'un mélange statistique d'états cohérents de même amplitudes et de phases aléatoires. En termes de fluctuations d'intensité, l'excès de bruit sur l'intensité à l'intérieur de la cavité laser (ou la réduction de bruit éventuelle) par rapport au niveau de bruit poissonnien est fortement atténué lorsque la lumière produite sort du laser par le coupleur de sortie, qui a en général une transmission qui n'excède pas quelques pourcents.

Considérons le cas d'un champ de fréquence ω, avec une amplitude E_0 fixée et des fluctuations de phases comme c'est le cas pour un laser idéal (sans bruit de pompe ni bruit technique) fonctionnant très au dessus du seuil. Le signal analytique s'écrit simplement $E(t) = \tilde{E}_\omega \exp -i\omega t$ avec $\tilde{E}_\omega = E_0 \exp i\phi(t)$ où $\phi(t)$ est une fonction aléatoire. Quelles que soient les corrélations de phase entre deux instants, on obtient en régime stationnaire :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(0)I(\tau)\rangle}{\langle I\rangle^2} = \frac{\langle E^*(0)E(0)E^*(\tau)E(\tau)\rangle}{\langle E^*(0)E(0)} = \frac{E_0^4\langle \mathrm{e}^{-i\phi(t)}\mathrm{e}^{+i\phi(t)}\rangle}{(E_0^2)^2} = 1\ .$$

Il faut bien noter qu'un $g^{(2)}(\tau) = 1$ n'indique en rien une absence de fluctuations. C'est très clair en ce qui concerne les fluctuations de phases comme nous venons juste de le voir. En revanche ça l'est moins en ce qui concerne les fluctuations d'intensité. Un traitement quantique montre que les fluctuations d'intensité sont poissonniennes, comme l'indique l'expression (A.7). En effet, le $g^{(2)}(\tau)$ et la variance de l'intensité lumineuse diffèrent par l'ordre des opérateurs. Ainsi, même un $g^{(2)}(\tau) = 1$ dans le cas classique, qui correspond à un champ classique d'amplitude constante, possède des fluctuations qui apparaissent à cause des aspects quantiques de la lumière, que le modèle ondulatoire classique est impuissant à reproduire.

On peut cependant artificiellement construire un modèle corpusculaire classique qui fait apparaître ces fluctuations et qui donne un $g^{(2)}(\tau)$ égal à l'unité, à condition d'incorporer une hypothèse d'insécabilité des photons. Considérons un flux de corpuscules classiques répartis aléatoirement dans le temps décrit par :

$$I(t) = \sum_i \delta(t - t_i)$$

où les t_i sont des variables aléatoires. Si ce flux est stationnaire, ses fluctuations vérifient :

$$\langle \delta I(t)\delta I(t+\tau)\rangle = \delta(\tau)\langle I\rangle + \sum_{i\neq j}\langle \delta(t-t_i)\delta(t_i - t_j + \tau)\rangle - \langle I\rangle^2 \ .$$

Si, de plus, les instants t_i constituent un processus de Poisson, les délais entre corpuscules sont indépendants et distribués suivant une loi exponentielle décroissante $p(\tau) = \theta(\tau)\lambda\exp(-\lambda\tau)$, tout comme les délais entre un instant arbitraire et le passage d'un corpuscule quelconque. On montre alors que la somme pour $i \neq j$ dans l'expression précédente vaut simplement $\langle I\rangle^2$, si bien que :

$$\langle \delta I(t)\delta I(t+\tau)\rangle = \delta(\tau)\langle I\rangle \ ,$$

ce qui est caractéristique d'un processus de Poisson et qui conduit, si l'on intègre sur une durée T pour obtenir un nombre n_T de corpuscules, à une variance de n_T égale à sa moyenne. Les fluctuations sont donc bien poissonniennes.

Le $g^{(2)}(\tau)$ classique ne donne évidement pas l'unité ici. En revanche, si l'on calcule le $g_c^{(2)}(\tau)$ défini par la procédure de mesure décrite au §A.1.5, on trouve l'unité. Il faut pour cela spécifier ce qui se passe lorsque qu'un corpuscule rencontre une lame séparatrice. On va supposer que pour chaque corpuscule i, une variable aléatoire π_i qui ne peut valoir que 0 avec la probabilité R ou 1 avec la probabilité $T = 1 - R$ indique s'il y a réflexion ou transmission. Cette hypothèse signifie que l'on n'autorise pas les corpuscules à se couper en deux et qu'on leur assure un comportement indépendant. Dans ces conditions, le $g_c^{(2)}(\tau)$ s'écrit :

$$g_c^{(2)}(\tau) = \frac{\sum_{i,j}\langle \pi_i(1-\pi_j)\delta(t-t_i)\delta(t-t_j+\tau)\rangle}{R\langle I\rangle T\langle I\rangle} \ .$$

En séparant au numérateur les contributions pour $i = j$ et $i \neq j$ et en remarquant que $\pi_i(1-\pi_i)$ vaut toujours 0, on arrive à :

$$g_c^{(2)}(\tau) = \frac{RT\sum_{i\neq j}\langle \delta(t-t_i)\delta(t-t_j+\tau)\rangle}{R\langle I\rangle T\langle I\rangle} \ ,$$

qui vaut simplement 1 car la somme pour $i \neq j$ vaut $\langle I\rangle^2$.

Dégroupement de photons

On voit facilement que le modèle corpusculaire présenté plus haut permet d'observer du dégroupement : il suffit d'imposer un délai minimal entre deux corpuscules par exemple. Evidemment il n'y a dégroupement sur la fonction $g^{(2)}(\tau)$ classique, mais seulement sur la fonction $g_c^{(2)}(\tau)$ et à la condition d'introduire l'hypothèse de corpuscules insécables. Cela nous donne des conditions suffisantes pour observer du dégroupement avec de la lumière : les photons *sont* des particules quantiques insécables [10], il suffit donc de les émettre un à un avec un délai. C'est à peu de choses près ce que fait un émetteur unique qui ne possède qu'une transition radiative lorsqu'on l'excite en permanence : deux émissions sont séparées par un cycle excitation-émission qui, en moyenne, prend un temps fini.

Considérons un émetteur à deux niveaux sans cohérence. C'est en général un émetteur dont le niveau excité est un quasi-continuum qui relaxe très rapidement vers un état radiatif, si bien qu'il peut être décrit pas des équations de taux pour les populations ρ_e de l'état excité et ρ_f de l'état fondamental de la forme :

$$\dot{\rho}_e(t) = +W\rho_g(t) - \Gamma\rho_e(t) \tag{A.17}$$
$$\dot{\rho}_g(t) = -W\rho_g(t) + \Gamma\rho_e(t) \tag{A.18}$$

où Γ est le taux d'émission spontanée depuis l'état radiatif excité et où W est le taux de pompage depuis l'état fondamental vers cet état radiatif. Le taux de pompage W tient compte de deux processus : d'abord l'excitation vers un état excité non radiatif, ensuite une relaxation très rapide vers l'état excité radiatif. Le temps relaxation de l'état excité non radiatif est en général négligeable devant le terme qui, dans le cas d'un pompage optique, est proportionnel à l'intensité lumineuse de la pompe, si bien que W est en première approximation proportionnel à l'intensité de pompe.

La densité de probabilité d'émission d'un photon à un instant t vaut $\Gamma\rho_e(t)$, si bien que l'expression (A.5) du $g^{(2)}(\tau)$ quantique s'écrit simplement, pour $\tau \geqslant 0$:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\rho_e(\tau)}{\rho_e(\infty)} ,$$

à condition de supposer que $\rho_e(0) = 0$. La résolution des équations de taux conduit immédiatement à :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \mathrm{e}^{-(W+\Gamma)\tau} . \tag{A.19}$$

Notons que le temps de montée de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ dépend de l'intensité de la pompe puisque W est proportionnel à l'intensité d'excitation, ce qui sera surtout visible en régime de fort pompage lorsque la transition est saturée.

Le traitement complètement quantique d'un véritable émetteur à deux niveaux, dont les cohérences ne sont pas nulles, est évidemment plus compliqué. Cependant le principe du calcul est le même : on résout les équations de Bloch optiques du système à partir de l'état fondamental à $\tau = 0$ et l'on relie la population de l'état excité à la probabilité d'émettre un photon au bout de τ. Pour le calcul détaillé, voir par exemple le chapitre 15 de l'ouvrage de Mandel et Wolf [177]. On obtient ainsi, pour une excitation résonante de faible intensité, pour $\tau \geqslant 0$:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \mathrm{e}^{-3\tau\Gamma/4}\left(\cosh(\Gamma\rho\tau) + \frac{3}{4\rho}\sinh(\Gamma\rho\tau)\right) , \tag{A.20}$$

où ρ est relié à la fréquence de Rabi Ω_R, proportionnelle à la racine de l'intensité d'excitation, par :

$$\rho = \sqrt{\left(\frac{1}{4}\right)^2 - \left(\frac{\Omega}{\Gamma}\right)^2} \, .$$

On voit clairement que l'on est en présence d'un effet de dégroupement complet puisque $g^{(2)}(0) = 0$. Dans la limite des très faibles intensités, on trouve un comportement similaire au système à deux niveaux sans cohérence : le $g^{(2)}(\tau)$, nul à zéro, tend vers 1 avec un temps de montée de l'ordre de $1/\Gamma$. Lorsque l'intensité est suffisamment élevée, ρ devient imaginaire pur et l'expression du $g^{(2)}(\tau)$ devient, pour $\tau \geqslant 0$:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \mathrm{e}^{-3\tau\Gamma/4} \left(\cos(\kappa\tau) + \frac{3\Gamma}{4\kappa} \sin(\kappa\tau) \right) \, , \tag{A.21}$$

où κ vaut :

$$\kappa = \sqrt{\Omega^2 - \left(\frac{\Gamma}{4}\right)^2} \, .$$

On voit ainsi apparaître, dans la limite des très fortes intensités, tous les temps caractéristiques du système : l'enveloppe donne le taux d'émission spontanée et la fréquence des oscillations la fréquence de Rabi. Il est à noter que l'amortissement du $g^{(2)}(\tau)$, qui provient de l'amortissement de la population excitée lorsque l'atome est initialement dans son état fondamental, ne doit pas faire penser que l'atome cesse d'osciller : il oscille en permanence, mais ces oscillations se brouillent à cause des émissions spontanées, au bout d'un temps caractéristique de l'ordre de $1/\Gamma$.

Remarquons enfin qu'en vertu (A.9), le fait que $g^{(2)}(0) = 0$ indique clairement qu'aux temps courts la statistique du nombre de photons est sous-poissonnienne. Cela est également vrai aux temps longs : en effet, la fonction $\Theta(T)$ qui apparaît dans (A.8) tend, lorsque T devient grand, vers :

$$\Theta(\infty) = -\frac{3\Gamma}{\Omega^2 + \Gamma^2/2} \, .$$

On voit clairement sur ces exemples, qui correspondent aux situations expérimentales décrites au chapitre 2, que l'on a un effet de dégroupement complet lié au fait de disposer d'un émetteur unique. Toute la difficulté de l'observation du dégroupement est là : il faut isoler un unique émetteur.

A.1.7 Dynamique de l'émetteur

Le $g^{(2)}(\tau)$ est un outil puissant d'analyse de la dynamique des sources lumineuses. En régime stationnaire, il renseigne sur certains temps caractéristiques du système : temps de cohérence pour une lampe thermique, absence de tout temps caractéristique pour un état cohérent du champ, taux d'émission spontanée pour un émetteur unique (avec apparition d'oscillations à la fréquence de Rabi si les cohérences de l'émetteur ont un amortissement de l'ordre de la durée de vie radiative).

Un autre cas intéressant est celui d'un grand nombre d'émetteurs indépendants uniformément excités, en mouvement de diffusion dans un disque d'épaisseur négligeable et dont l'efficacité de collection varie sur la surface du disque selon une loi gaussienne. Cela correspond à une situation fréquemment rencontrée en pratique : des émetteurs dans une solution,

observés au moyen d'un microscope. Le traitement de ce problème, détaillé dans [26], permet de relier l'expression du $g^{(2)}(\tau)$ de l'ensemble des émetteurs en fonction de la fonction de corrélation du second ordre d'un seul émetteur immobile, $g_1^{(2)}(\tau)$:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{1}{M(1 + 4D\tau/\pi\omega^2)}\, g_1^{(2)}(\tau)\ , \tag{A.22}$$

où D est le coefficient de diffusion, ω est la demi-largeur à $1/e^2$ de l'efficacité de collection et M est le nombre moyen d'émetteurs dans le volume observé, relié à la concentration d'émetteurs C par $M = C\pi\omega^2$. Même si chaque émetteur présente un dégroupement total, le $g^{(2)}(\tau)$ reste supérieur ou égal à 1, donc la source est au mieux poissonnienne. Cela n'empêche pas une éventuelle observation de groupement, d'autant plus marquée que M est petit : la fonction $g^{(2)}(\tau)$ croît dans ce cas à partir de 1 avec un temps de montée caractéristique de l'émission spontanée jusqu'à un maximum de l'ordre de $1 + 1/M$, puis décroît vers 1 avec un temps caractéristique qui est le temps de diffusion dans la zone d'observation, de l'ordre de ω^2/D.

Dans le cas d'un petit nombre N d'émetteurs fixes, indépendants, uniformément excités et pour lesquels on collecte la même fraction de fluorescence, la fonction de corrélation du second ordre de l'intensité totale produite par ces émetteurs, $g_N^{(2)}(\tau)$, s'exprime en fonction de celle d'un seul émetteur, $g_1^{(2)}(\tau)$:

$$g_N^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{g_1^{(2)}(\tau) - 1}{N}\ . \tag{A.23}$$

On voit en particulier que même si chacun des N émetteurs présente un dégroupement complet, ce n'est plus le cas pour l'ensemble car $g_N^{(2)}(0) = 1 - 1/N$. Les temps caractéristiques propres à l'émetteur unique subsistent, mais le contraste du signal est d'autant plus faible que le nombre d'émetteurs est important.

Citons enfin le cas du clignotement, responsable d'un effet de groupement. Considérons un émetteur qui produit une intensité de la forme $I(t) = I_{on}(t)S(t)$ où $S(t)$ est une fonction aléatoire qui vaut soit 0, soit 1 et qui modélise le clignotement. Si l'on suppose $I_{on}(t)$ et $S(t)$ statistiquement indépendantes, il est facile de voir que la fonction $g^{(2)}(\tau)$ de l'intensité se factorise en un produit de la fonction $g_{on}^{(2)}(\tau)$ associé à l'intensité $I_{on}(t)$ par la fonction de corrélation du second ordre $g_S^{(2)}(\tau)$ associée à $S(t)$. Dans le cas où $S(t)$ est une bascule poissonnienne à deux temps caractéristiques t_{on} et t_{off} associées respectivement à $S = 1$ et $S = 0$, on vérifie :

$$g^{(2)}(\tau) = \left(1 + \frac{t_{off}}{t_{on}}\, \mathrm{e}^{-|\tau|(1/t_{on} + 1/t_{off})}\right) g_{on}^{(2)}(\tau)\ . \tag{A.24}$$

Le clignotement induit donc un effet de groupement caractérisé par une durée τ_g telle que $1/\tau_g = 1/t_{on} + 1/t_{off}$. Le maximum $g_{\max}^{(2)}$ atteint par la fonction de corrélation pour des délais inférieurs à τ_g est égale à l'inverse de la fraction $\Theta = t_{on}/(t_{on} + t_{off})$ du temps passé à émettre. L'amplitude du groupement et sa durée caractéristique permettent donc facilement de déterminer les deux paramètres du clignotement t_{on} et t_{off}.

A.2 Caractérisation d'une source de photons uniques déclenchée

L'émission de photons à la demande est un processus périodique dans lequel l'émission est déclenchée avec une période T qui doit être bien supérieure à la durée du processus d'émission τ_r. La qualité de cette émission se caractérise au moyen d'un dispositif de type Hanbury Brown et Twiss identique à celui utilisé pour caractériser le dégroupement.

A.2.1 Mesure de l'histogramme des coïncidences

On construit l'histogramme $N_c(\tau)$ des délais observés entre les photodétections séparées d'un délai τ avec des canaux de largeur $\Delta\tau$ de la même façon que dans le cas stationnaire. En pratique, on construit un histogramme des nombres de coïncidences en effectuant un nombre N de mesures successives en prenant à chaque fois l'instant $t = t_i$ comme origine des temps. Ceci revient mesurer la moyenne sur tous les instants t_i de N fois la probabilité conditionnelle d'observer une photodétection entre $t_i + \tau$ et $t_i + \tau + \Delta\tau$ sachant que l'a observé une photodétection à t_i. Soit, si T_s est la durée d'intégration pour t pour chacune des N mesures :

$$N_c(\tau) = \int_0^{T_s} \left[p(\tau + t_i|t_i)\, N\, \Delta\tau\right]\, p(t_i)\, dt_i = N \int_0^{T_s} p(t, t+\tau)\, \Delta\tau\, dt\ ,$$

Or, la probabilité d'avoir une photodétection entre t et $t + \Delta t$ et une autre entre $t + \tau$ et $t + \tau + \Delta\tau$ est proportionnelle à la fonction de corrélation du second ordre non normalisée $G^{(2)}$:

$$p(t, t+\tau)\Delta t\Delta\tau = \eta^2 G^{(2)}(t, t+\tau)\Delta t\Delta\tau = \eta^2 \langle : \hat{I}(t)\hat{I}(t+\tau) : \rangle \Delta t\Delta\tau\ ,$$

où le coefficient η est l'efficacité quantique des détecteurs si $I(t)$ est exprimé en photons par seconde. Ainsi, le nombre de photodétections séparées de τ prend la forme :

$$N_c(\tau) = \eta^2 \Delta\tau N \int_0^{T_s} G^{(2)}(t, t+\tau) dt\ . \tag{A.25}$$

Evidemment cette quantité est celle que l'on mesure réellement uniquement en régime de comptage faible[1] puisque la plupart des dispositifs réels ne mesurent que les délais entre deux détections successives et non les délais entre deux détections quelconques.

A.2.2 Signal attendu

On s'attend à observer des pics séparés de T et d'une largeur de l'ordre de τ_r. Si la source est bien une source de photons uniques, autour du délai nul le nombre de coïncidences doit être nul puisqu'un photon ne peut être détecté deux fois : le pic à délai nul doit donc être absent. D'un point de vue mathématique cela se traduit par le fait que l'opérateur $\hat{I}(t)\hat{I}(t+\tau)$ est une somme de termes de la forme $\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_i$ dont l'action sur tout état à un seul photon donne zéro. Les autres pics correspondent en revanche toujours à la détection de deux photons différents séparés d'un nombre entier de fois T et doivent donc être tous identiques en raison de la périodicité du processus si l'émetteur n'a pas de temps caractéristique plus

[1] Si n est le taux moyen de comptage par détecteur et T_s la durée d'intégration des signaux pour la détection d'une coïncidence, il faut que $(nT_s)^2$, qui évalue le nombre de doubles photodétections pendant T_s, soit au plus de l'ordre de l'unité.

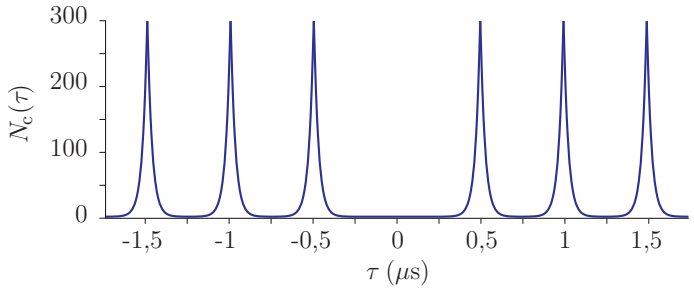


FIG. A.3 – *Nombre de coïncidences $N_c(\tau)$ théorique pour une source de photons uniques caractérisée par une durée de vie de l'état excité de 25 ns, excité avec une fréquence de 2 MHz, pour une durée de mesure arbitraire.*

grand ou de l'ordre de T. La figure A.3 représente le résultat du calcul quantique de l'histogramme attendu pour un émetteur à deux niveaux excité par des impulsions courtes devant la durée de vie radiative du niveau excité. La largeur des pics observés est l'autocorrélation de l'enveloppe temporelle des photons émis. On peut d'ailleurs en faire un calcul rapide en considérant une intensité classique pour tout $t \in [(k-1/2)T, (k+1/2)T]$ de la forme :

$$\langle I(t) \rangle = \theta(t - kT)\Gamma \mathrm{e}^{-\Gamma(t-kT)} \ ,$$

où $\theta(t)$ est la fonction d'Heaviside et où $\Gamma = 1/\tau_r$. On suppose de plus que $T \gg \tau_r$. Cela correspond à une succession d'émissions spontanées de durée τ_r avec une période T bien séparées temporellement. Si l'on suppose que deux émissions distinctes sont indépendantes, on obtient, pour $\tau \in [(k-1/2)T, (k+1/2)T]$ avec $k \neq 0$:

$$N_c(\tau) = \eta^2 \, N \, \Delta\tau \, \frac{\Gamma}{2} \mathrm{e}^{-\Gamma|\tau - kT|} \ .$$

A.2.3 Fonction $C_N(k)$

Le fait de ne pas être en régime stationnaire ouvre à plusieurs possibilités de normalisation. Le plus simple est de ne pas normaliser $N_c(\tau)$, mais l'histogramme des aires des pics. On définit ainsi un corrélogramme normalisé :

$$C_N(k) = \frac{1}{T} \int_{kT-T/2}^{kT+T/2} \frac{N_c(\tau)}{n_t n_r \Delta\tau N T_s} d\tau \ , \tag{A.26}$$

où n_r et n_t sont les taux de comptages moyens enregistrés par les détecteurs placés en réflexion et transmission de part et d'autre de la séparatrice du montage de mesure de coïncidences. Avec cette normalisation, $C_N(k)$ vaut l'unité si les impulsions séparées de kT sont décorrélées les unes des autres.

Si l'on dispose d'une source pour laquelle la probabilité P_2 d'émettre deux photons par impulsion est faible devant la probabilité P_1 de n'en émettre qu'un seul et la probabilité d'en émettre plus de deux est négligeable, alors un moyen simple de quantifier sa qualité est d'évaluer $C_N(0)$. En effet, pour une telle source, la surface du pic correspondant à $k = 0$ est proportionnelle à $P_2/2$ puisque si deux photons tombent sur lame séparatrice, ils sont

séparés la moitié du temps. La surface des pics correspondant à des impulsions décorrélées doit être proportionnelle à $P_1/2 \times P_1/2$. Le rapport de l'aire du pic central par l'aire des pics correspondant à des impulsions décorrélées, qui n'est autre que $C_N(0)$, vaut donc $2P_2/P_1^2$. Dans le cas d'une source de photons uniques parfaite, $P_2 = 0$ et donc $C_N(0) = 0$. Si en revanche on a affaire à une source d'impulsions classiques très atténuée, P_1 et P_2 sont donnés par la loi de Poisson[2] et sous l'hypothèse que $P_2 \ll P_1$ on a $P_2 = P_1^2/2$ si bien que $C_N(0) = 1$. On voit clairement ici la différence fondamentale entre une impulsion ne contenant qu'un seul photon et une impulsion atténuée, même au point de contenir en moyenne bien moins d'un photon.

A.2.4 Facteur de mérite et optimisation

Il ne suffit pas d'avoir une source qui émet des photons uniques. Il faut aussi qu'elle émette le plus souvent possible et que de surcroît on puisse collecter le plus grand nombre possible de photons émis. Suivant les applications envisagées, ces différents critères pourront être combinés différemment.

Sources pour la cryptographie quantique

Pour la cryptographie quantique, le critère le plus important est appelé le facteur de fuite d'information. Il est défini par :

$$F_{fi} = \frac{P_{\geqslant 2}}{P_{\geqslant 1}} \,, \tag{A.27}$$

où $P_{\geqslant n}$ est la probabilité d'émettre au moins n photons. C'est la quantité que l'on cherche à optimiser dans le cas d'une source de photons uniques pour la cryptographie tout en ayant une probabilité d'émettre un photon aussi proche de 1 que possible. Pour la minimiser, il faut diminuer la probabilité d'avoir 2 photons (et plus). Dans le cas d'une source d'impulsions atténuées, il faut pour cela diminuer la probabilité d'avoir un photon puisque $P_2 = P_1^2 \exp(\langle n \rangle)/2$. On ne peut pas à la fois avoir un facteur de fuite proche de 0 et la probabilité d'émettre au moins un photon proche de 1. En revanche, cela est possible avec une source de photons uniques, pour laquelle idéalement $P_{\geqslant 2}$ est nul. Pour une source dont la probabilité d'émettre deux photons est faible devant celle d'en émettre un et pour laquelle on peut négliger l'émission de plus de deux photons, on a $P_2 = C_N(0)P_1^2/2$ et le facteur de fuite d'information s'écrit :

$$F_{fi} \simeq \frac{P_2}{P_1} = \frac{C_N(0)P_1}{2} \,. \tag{A.28}$$

D'autres critères importants sont l'efficacité quantique d'émission et l'efficacité de collection. En général, ce qui est mesuré est le taux de détection qui permet, si l'on connaît l'efficacité quantique des détecteurs, d'obtenir directement le produit de l'efficacité de collection et de l'efficacité quantique d'émission à condition de s'être assuré que l'on était bien en régime de photons uniques. Pour séparer ces deux quantités il faut pouvoir mesurer l'efficacité de collection séparément, ce que l'on peut souvent faire en remplaçant la source de photons uniques par une source intense calibrée. L'efficacité quantique d'émission est propre à l'émetteur : c'est la probabilité d'émettre au moins un photon $P_{\geqslant 1}$. L'efficacité de collection $\eta_c oll$ est une caractéristique du système optique dans lequel il est placé et qui peut, *a priori*, être améliorée. Elle dépend cependant d'une qualité intrinsèque de la source : sa directionnalité. Elle dépend également de ce que l'on veut faire du photon : pour pouvoir

[2]Une forte atténuation ramène toujours à une statistique poissonnienne, comme expliqué au §A.1.4.

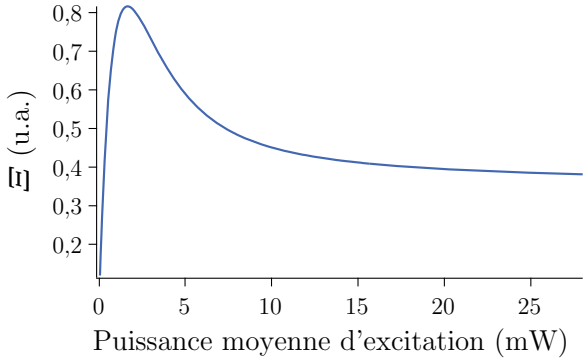


FIG. A.4 – *Courbe de mérite d'une source de photon unique composée d'un émetteur unique à deux niveaux sans cohérence, excité par des impulsions de durée* $0,033/\Gamma$ *et une efficacité de collection* $\eta_{coll} = 2,1\%$.

être utilisé, le photon unique doit pouvoir être couplé à un mode transverse de faible divergence et souvent de polarisation bien définie ; l'efficacité de collection est relative à ce mode «utile».

Pour tenir compte de tous ces aspects, on définit le facteur de mérite d'une source destinées à la cryptographie quantique :

$$\Xi = \frac{P_{\geqslant 1}\eta_{coll}}{C_N(0)} \ . \tag{A.29}$$

$P_{\geqslant 1}$ est la probabilité d'émettre au moins un photon lors d'une excitation, aussi appelé efficacité quantique d'émission. η_{coll} est la probabilité de le collecter avec la polarisation voulue et dans le mode spatial désiré. $C_N(0)$ s'interprète comme le rapport de la probabilité d'émettre deux photons pour la source considérée par la probabilité d'émettre deux photons pour une source poissonnienne produisant le même flux moyen. Cette quantité est à comparer à ce que donnerait une source atténuée, produisant le même nombre d'impulsions à deux photons, soit $\Xi_{att} = P_{\geqslant 1}\sqrt{C_N(0)}$.

Lorsque l'on considère un émetteur à deux niveaux sans cohérence, caractérisé par son taux de relaxation radiative, on peut calculer, pour une durée des impulsions d'excitation, la valeur de la fonction de mérite en fonction de l'intensité d'excitation (voir figure A.4). Il existe un maximum qui se situe au voisinage de l'intensité de saturation de l'émetteur : lorsque l'intensité d'excitation croît, la probabilité d'émettre augmente jusqu'à saturation puis reste constante ; la probabilité d'émettre plus d'un photon continue quant à elle d'augmenter lorsque l'on atteint la saturation et fait ainsi chuter le facteur de mérite.

Notons pour terminer qu'il est souvent d'usage de corriger du bruit de fond les mesures de la fonction de corrélation du second ordre. Lorsque le facteur de mérite est évalué pour la cryptographie quantique, il ne faut pas faire cette correction : le fond sera là lorsque l'on voudra utiliser la source et il fait partie des défauts dont il faut tenir compte pour garantir la sécurité du protocole de cryptographie.

Emission par un système quantique à deux niveaux

Un émetteur quantique à deux niveaux (avec cohérences) oscille entre son état fondamental et son état excité lorsqu'il est soumis à une excitation constante. En l'absence d'émission spontanée ou si la durée d'excitation considérée est négligeable devant la durée de vie de l'état excité, il s'agit d'une simple oscillation sinusoïdale. Ainsi, une excitation résonante d'une durée égale à une demi période de Rabi porte l'atome dans son état excité avec une probabilité proche de 1.

Pour une durée d'excitation donnée, en tenant compte de l'émission spontanée et éventuellement de la présence d'autres niveaux d'énergie, on peut déterminer au moyen des équations de Bloch, pour toute puissance, la population excitée au cours du temps $\rho_{ee}(t)$ (cf. figure A.5). La probabilité d'émission d'un photon à l'instant t est donnée par $\Gamma\rho_{ee}(t)$, ce qui permet de déterminer l'intensité qui maximise la probabilité d'émission d'un photon.

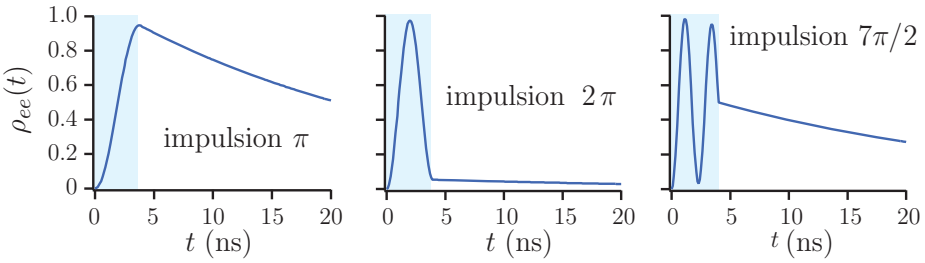


FIG. A.5 – *Population théorique de l'état excité en fonction du temps pour des impulsions carrées de 4 ns, pour diverses puissances d'excitation, pour un système à deux niveaux caractérisé par une durée de vie de l'état excité de 26 ns et une intensité de saturation de 1,7 mW/cm^2. Impulsion π : 0,8 W/cm^2, impulsion 2π : 2,9 W/cm^2, impulsion $7\pi/2$: 8,7 W/cm^2.*

Connaissant la fonction $\rho_{ee}(t)$ pour toute durée d'excitation, il est possible de calculer la probabilité d'émettre deux photons pour une impulsion. En effet, pour une impulsion de durée finie τ_o, à chaque instant t_o durant l'impulsion, il existe une probabilité non nulle d'émettre un premier photon, à la suite de quoi l'atome voit encore une impulsion de durée $\tau_o - t_o$ susceptible de l'exciter à nouveau et donc de générer un second photon. La probabilité d'émettre plus d'un photon se calcule par intégration de ce processus lorsque t_o parcourt $[0, \tau_o]$. On peut ainsi chercher à minimiser l'émission de plus d'un photon plutôt que de chercher à maximiser la probabilité d'émission d'au moins un photon. Ce calcul peut être généralisé à un système à plusieurs niveaux radiatifs pour étudier l'influence de la durée des impulsions d'excitation : lorsque les impulsions deviennent trop courtes, leur spectre s'élargit et on commence à exister les autres niveaux même si la fréquence des impulsions n'est résonante qu'avec une seule transition.

A.3 Source de photons uniques annoncés

Nous donnons ici, pour mémoire, le principe d'une source annoncée reposant sur l'émission de fluorescence paramétrique.

Un moyen simple d'obtenir des photons annoncés est d'utiliser un cristal non linéaire de type $\chi^{(2)}$ pour produire des paires de photons par fluorescence paramétrique. Les faisceaux signal et complémentaire sont séparés et l'on utilise le complémentaire pour annoncer les photons du faisceau signal : comme les photons sont produits par paire, la détection d'un photon complémentaire indique la présence au même instant d'un photon signal (voir figure A.6).

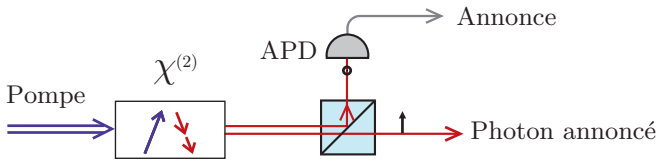


FIG. A.6 – *Principe d'une source de photons uniques annoncés. Des paires de photons sont produites par fluorescence paramétrique dans un cristal $\chi^{(2)}$, par exemple. Les photons sont produits simultanément dans deux modes distincts. Une photodiode à avalanche (APD) détecte la présence d'un photon dans l'un des mode, ce qui indique la présence d'un photon unique dans l'autre mode.*

Afin de comprendre pourquoi la détection d'un photon sur l'un des deux modes jumeaux d'une source de paire atténuée projette sur un état à un photon, considérons la fluorescence paramétrique produite par un cristal $\chi^{(2)}$ de type II fonctionnant à dégénérescence en fréquence. L'état produit en sortie est de la forme [178, 179] :

$$|\psi\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} \sqrt{\frac{\langle N\rangle^n}{(\langle N\rangle+1)^{n+1}}}\, |n\rangle_{I_x} \otimes |n\rangle_{S_y} \,,$$

où $\langle N\rangle$ est le nombre moyen de photons par mode. Si l'on considère par exemple le mode du signal, la probabilité d'avoir deux photons vaut $P_2 = \langle N\rangle^2/(1+\langle N\rangle)^3$. Pour la diminuer, il faut diminuer $\langle N\rangle$, comme c'est le cas pour les impulsions de lumière atténués. Si $\langle N\rangle$ est faible devant l'unité, la probabilité d'avoir deux photons avec une source atténuée produisant le même nombre moyen de photons vaudrait $P_1^2/2$, où P_1 est la probabilité d'avoir un seul photon. On peut ainsi évaluer la qualité de cette source par rapport à une source atténué en calculant le rapport $2P_2/P_1^2$ lorsque $\langle N\rangle \ll 1$. On obtient :

$$\frac{2P_2}{P_1^2} = 2(1+\langle N\rangle) \simeq 2\,.$$

On constate un effet de groupement : on a plus de photons que dans le cas d'une source poissonnienne, même si le nombre de photons moyen par mode tend vers zéro. En revanche, si l'on détecte un photon dans le mode complémentaire, l'état du signal se trouve projeté sur l'état :

$$|\psi_S\rangle = \sqrt{\frac{1+\langle N\rangle}{\langle N\rangle}} \sum_{n=1}^{\infty} \sqrt{\frac{\langle N\rangle^n}{(\langle N\rangle+1)^{n+1}}}\, |n\rangle_{S_y} \,,$$

où la racine devant le signe somme sert à normaliser l'état après la mesure. Le rapport $2P_2/P_1^2$ devient alors :

$$\frac{P_2}{P_1^2/2} = 2\langle N \rangle$$

qui peut être arbitrairement petit : il suffit que le nombre moyen de paires produites soit très faible pour avoir une source de photons uniques annoncée de bonne qualité.

Annexe B

Dossier administratif

B.1 Curriculum Vitæ

B.1.1 Etat Civil

Nom : Gaétan Messin
Né le : 21 avril 1968 (40 ans)
Statut actuel : Maître de Conférences
Etablissement : Institut d'Optique
Laboratoire : Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, groupe d'Optique Quantique.
E-mail : gaetan.messin@institutoptique.fr
Pages web : http ://www.iota.u-psud.fr/∼grangier/Optique_quantique.html

B.1.2 Titres Universitaires

1991 : Ingénieur de l'Ecole Supérieure d'Optique, Orsay.

2000 : Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, spécialité : Optique et photonique.

B.1.3 Parcours

1991-1996 :

- *Master en marketing à HEC (1991-1992),*
- *Valeo : chargé d'études marketing (1992-1993),*
- *Service national de la coopération, Ambassade de France à Pékin, service nucléaire (1993-1995),*
- *NewPol Technology : formation et conseil en informatique (1995-1996).*

Dispense de DEA accordée par Paris VI : le diplôme d'Ingénieur de l'Ecole Supérieure d'Optique dispensait, en 1991, de l'obtention d'un DEA pour l'inscription en thèse dans la spécialité Optique et Photonique.

1996-2000 : Thèse de doctorat de l'Université Paris VI.

- « Luminescence, bruit et effets non linéaires dans des microcavités semi-conductrices ». Laboratoire Kastler Brossel. Équipe « Optique Quantique », dirigée par E. Giacobino.

1996-1999 : Bourse DGA – 1999-2000 : ATER de l'Université Paris VII.

2000-2001 : Post-doctorat en tant qu'ATER de l'Université Paris VI.

- « Photophysique des nano-cristaux CdSe, sources de photons uniques ». Laboratoire Kastler Brossel dans l'équipe « Optique et Biologie », animée par M. Dahan et P. Desbiolles.

2001-2002 : Post-doctorat au M.I.T., Cambridge, USA.

- « Production de paires de photons par amplification paramétrique ». Research Laboratory of Electronics. « Optical and Quantum Communications Group » dirigé par N.C. Wong.

2002- ... : Maître de Conférences à l'Institut d'Optique.

Recherche effectuée au sein du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, dans le groupe « Optique Quantique » dirigée par P. Grangier.

Sur la thématique Cryptographie quantique :

- 2002–2003 « Cryptographie quantique avec des photons uniques ».

Sur la thématique Atome piégé unique, en équipe avec A. Browaeys (CR) :

- 2003–2004 « Émission de photons uniques par un atome de Rb unique piégé »,
- 2004–2005 « Coalescence de deux photons émis par deux atomes uniques piégés »,
- 2005–2006 « Manipulation des états internes et externes d'un atome piégé unique »,
- 2006–2007 « Transport et transfert d'un unique qubit atomique dans des pinces optiques ».

Sur la thématique Interface atome-champ :

- 2008–... « Vide comprimé impulsionnel avec des vapeurs atomiques ».

B.2 Enseignement, encadrement et autres activités liées à la recherche

B.2.1 Activités d'enseignement

1996 - 1999 : Vacations pendant la thèse.

Environ 120 heures de travaux dirigés portant sur les phénomènes de transport dans les solides (2e année, IUT d'Evry), la physique atomique et moléculaire (Maîtrise à l'Université d'Evry), la mécanique quantique (3e année de l'ESIEE) et la physique des lasers (DEA de l'Université Pierre et Marie Curie).

1999 - 2000 : ATER à Paris VII.

Demi-service d'enseignement comprenant des TD de traitement d'images (DESS), des TP d'optique (Institut de Formation des Maîtres, préparation à l'Agrégation) et un cours sur les détecteurs et le traitement du signal (Maîtrise).

2000 - 2001 : ATER à Paris VI.

Service complet d'enseignement composé de TP de mécanique (Licence), de séances de corrections de problèmes de physique (Institut de Formation des Maîtres, préparation au CAPES), TP et TD d'électrocinétique et mécanique (DEUG).

Depuis 2002 : Maître de Conférence à l'Institut d'Optique.

J'ai assuré, depuis ma nomination en septembre 2002 à l'Institut d'Optique[1], différents cours (mécanique quantique, interaction matière-rayonnement, bruit et détecteurs, fonctions aléatoires et bruits, probabilités et variables aléatoires), travaux dirigés (calcul numérique, bruits et détecteurs, fonctions aléatoires et bruits, physique atomique, conduite de projets) et travaux pratiques (optique géométrique, optique physique, détecteurs et bruits, projets systèmes), relatifs aux trois années de Sup'Optique.

En compléments de ces enseignements, j'assure la rédaction des supports de cours magistraux. J'assure également la correction d'une partie de l'examen de physique atomique, la rédaction et la correction des examens du cours de mécanique quantique et de signaux aléatoires et je participe à l'élaboration des sujets de TD associés à ces cours. J'assure la correction des comptes-rendus des TP encadrés, la mise à jour des sujets de TP et les examens associés. Enfin, je participe à l'évaluation de soutenances de stage en seconde et en troisième années.

J'assurais, pendant l'année 2006-2007, le cours de mécanique quantique et les TD de physique atomique, le cours et les TD de fonctions aléatoires et bruits, ainsi que des TP d'optique. Tous ces enseignements sont destinés aux élèves ingénieurs en première année à Sup'Optique.

Je suis en délégation CNRS pour l'année 2007-2008 et je n'ai conservé de ma charge d'enseignement que les cours magistraux de mécanique quantique, probabilités et variables aléatoires, ainsi que fonctions aléatoires et bruits.

B.2.2 Encadrement de la Recherche

Cette partie détaille mes encadrements au niveau M2, thèse et post-doc, au cours des différentes étapes de ma carrière.

Thèse et ATER, LKB

Pendant ma première année de thèse, j'ai encadré un scientifique du contingent. L'année suivante j'ai encadré un stagiaire de DEA, J.-P. Karr. Ce stage ayant débouché sur une thèse au laboratoire, je l'ai formé sur l'expérience que j'avais mise en place pour qu'il puisse

[1] Depuis 2007 l'Institut d'Optique et l'Ecole Supérieure d'Optique, surnommée Sup'Optique, portent le même nom officiel : *INSTITUT d'OPTIQUE - Graduate School*.

prendre la relève. En septembre 2000, un second thésard est venu travailler sur l'expérience. J'ai eu la charge de suivre ces deux étudiants et de les guider dans leur recherche à court terme pendant l'année 2000-2001.

Post-doc, MIT

De septembre 2001 à août 2002, au MIT, j'ai eu la charge de suivre et d'assister deux étudiants : l'un, C. Kuklewicz, préparait son PhD, l'autre, M. Albota, était sur le point de soutenir sa thèse de Master. Encadrements à 50%, conjointement avec le chef d'équipe, F. Wong.

Maître de conférences, LCFIO

Durant ma première année au sein du groupe d'optique quantique (2002-2003), j'ai co-encadré avec P. Grangier un stagiaire de DEA(M2), M. Ferreira (P.G. : 20%, G.M. 80%). Il a contribué à l'automatisation du dispositif de cryptographie quantique avec lequel nous avons pu effectuer une démonstration de transmission de clé de chiffrage en conditions « réelles », en espace libre, entre deux ailes du bâtiment de l'institut d'optique, de nuit et en présence de l'éclairage du campus.

De septembre 2003 à décembre 2007, j'ai rejoint A. Browaeys, chargé de recherche recruté en 2002, sur des expériences de piégeage d'atomes uniques. J'ai co-encadré avec lui, sous la direction de P. Grangier, les thésards et post-doctorants travaillant sur nos expériences. Se sont succédés sur ces expériences, durant les quatre dernières années, quatre étudiants en thèse et sept post-docs, ainsi que des stagiaires de niveau M2 (je n'ai participé qu'à l'encadrement de ceux qui ont poursuivi par une thèse). Mon taux d'encadrement moyen s'est situé entre 30 et 40%, celui d'A. Browaeys représentant 40 à 50% et celui de P. Grangier environ 20% (cf. tableaux B.1 et B.2).

Depuis janvier 2008, je construis une nouvelle expérience à laquelle je travaille pour l'instant seul, mais je vais recruter un post-doc dès que possible.

Je bénéficie depuis 2005 de la Prime d'Encadrement Doctoral et de Recherche (PEDR).

Doctorants

B. Darquié a soutenu en novembre 2005 une thèse, commencée en septembre 2002, intitulée « Manipulation d'atomes dans des pièges dipolaires microscopiques et émission contrôlée de photons par un atome unique ». Il a été rejoint en septembre 2004 par J. Beugnon, dont la soutenance a eu lieu en septembre 2007. Deux nouveaux doctorants, A. Gaëtan et C. Tuchendler, sont arrivés en septembre 2006, après un stage de M2 dans notre groupe, et travaillent chacun sur l'une des deux expériences de piégeage d'atome froids. Les taux d'encadrement correspondants sont regroupés dans le tableau B.1.

	2003-2004	2004-2005	2005-2006	2006-2007
B. Darquié	50%	30%		
J. Beugnon		50%	40%	20%
A. Gaëtan				40%
C. Tuchendler				20%

TAB. B.1 – *Estimation du taux d'encadrement des doctorants.*

Les publications en premier auteur dans des revues internationales à comité de lecture de ces doctorants sont les suivantes :

B. Darquié *et al.*, Science **309**, 454 (2005).
J. Beugnon *et al.*, Nature **440**, 779 (2006).
J. Beugnon *et al.*, Nature Physics **3**, 696 (2007).

Post-doctorants

S. Bergamini (Italie) était déjà post-doc lorsque j'ai rejoint l'équipe « atomes uniques » ; elle est restée jusqu'en septembre 2004. Se sont joints à nous deux autre post-docs en novembre 2003 : J. Dingjan (Pays-Bas) qui est resté jusqu'en septembre 2005 et M. Jones (Angleterre) qui vient de nous quitter en octobre 2006. Y. Sortais (France), qui est toujours dans le groupe, est arrivé en post-doc en septembre 2004. Il a été rejoint pour un an par un autre post-doc, H. Marion (France) en septembre 2005. Deux nouveaux post-docs , A. Lance (Australie) et Y. Miroshnychenko (Ukraine) nous ont rejoint en septembre 2006. Les taux d'encadrement correspondants sont regroupés dans le tableau B.2.

	2003-2004	2004-2005	2005-2006	2006-2007
S. Bergamini	30%			
J. Dingjan	50%	50%		
M. Jones	20%	20%	20%	
Y. Sortais		20%	20%	20%
H. Marion			40%	
A. Lance				30%
Y. Miroshnychenko				40%

TAB. B.2 – *Estimation du taux d'encadrement des post-docs.*

La liste des publications en premier auteur dans des revues internationales à comité de lecture de ces post-doctorants s'établit comme suit :

S. Bergamini *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **21**, 1889 (2004).
J. Dingjan *et al.*, Appl. Phys. B : Lasers and Optics **82**, 47 (2005).
M. Jones *et al.*, Phys. Rev. A **75**, 040301(R) (2007).
Y. Sortais *et al.*, Phys. Rev. A **75**, 013406 (2007).

B.2.3 Autres activités liées à la recherche

Activités liées à l'administration

De 1996 à 2001, pendant la thèse et les postes d'ATER au LKB :

J'ai assumé pendant deux ans durant ma thèse la fonction de représentant des thésards du Laboratoire Kastler Brossel auprès du Conseil de Laboratoire.

Depuis 2002, à l'Institut d'Optique :

Je suis membre suppléant de la commission de spécialistes en 30ème à l'Université Paris-Sud. Je suis également membre titulaire de la commission de spécialistes « Institut d'Optique » qui examine, avec les membres de la commission de l'Université Paris-Sud, les candidatures de Professeurs et Maîtres de Conférence à l'Institut d'Optique.

Administration liée à la recherche

De façon ponctuelle, je suis amené à rédiger des éléments de rapports d'activités concernant les différents programmes dans lesquels nous sommes impliqués, ainsi que des éléments de projets de recherche destinés à obtenir des financements. Je suis également conduit à rédiger ou à superviser la rédaction de demandes de bourses pour des doctorants et post-docs.

De façon plus suivie, j'ai été chargé de la gestion du projet CONQUEST[2] pour notre équipe et l'équipe de l'ENS avec lequel nous sommes associés dans ce projet. Je suis maintenant le correspondant du coordinateur du projet européen qui doit succéder à CONQUEST.

Referee, Editorial boards

Dans le cadre de mes activités de recherche, je suis régulièrement conduit à produire des comptes-rendus critiques sur des articles soumis à divers journaux scientifiques. J'ai été sollicité par des journaux tels que *Physical Review Letters* et *Physical Review A* de l'American Physical Society (APS), *Applied Optics* de l'Optical Society of America (OSA), le *Journal of Physics B* et le *New Journal of Physics* d'IOP Publishing et l'*European Physical Journal B* d'EDP Sciences.

Editeur invité, chargé de l'élaboration, avec J. Rarity, B. Sanders et D. Petrosyan, d'un numéro spécial du *Journal of Physics B* sur le thème « Few Photons Optics » qui devra voir le jour en juin 2009.

Programmes d'échanges, collaborations, réseaux internationaux, projets nationaux et européens

Depuis la thèse, je participe aux GDR en adéquation avec mon activité de recherche : pendant ma thèse, j'étais membre du GDR « Microcavités et Cristaux Photoniques », je suis maintenant membre du GDR « Information et Communication Quantique ».

L'ensemble de l'équipe impliquée dans les expériences de piégeage d'atomes neutres uniques participe à divers réseaux et projets :

- Nous avons obtenu des financements français de la part de l'Institut Francilien pour la Recherche sur les Atomes Froids (IFRAF), de l'ANR (projet PROSPIQ du programme PNANO 2006) ou du ministère de la recherche (projet « Nano-Condensats » du programme Action Concerté Nanosciences 2003).
- Nous bénéficions ou avons bénéficié de financements européens s'inscrivant dans les programmes-cadre européens de recherche et de développement technologique : nous avons notamment participé aux projets «QUBITS» puis «QGATES» du 5ème programme-cadre. Nous avons participé au projet «QIPC» des 5ème et 6ème programmes-cadre et nous coordonnons le projet «SCALA» du 6ème programme-cadre. Nous avons été coordinateur du Research Training Network «QUEST» du programme Marie Curie du 5ème programme-cadre, puis participant au réseau «CONQUEST» qui lui à succédé dans le cadre du 6éme programme-cadre et nous sommes aujourd'hui impliqués dans la mise en œvre du réseau qui devrait suivre.
- Plusieurs de nos post-docs ont bénéficié de bourses européennes Marie Curie ; j'ai personnellement supervisé l'obtention de l'une d'entre elle (Marie Curie Incoming International Fellowship obtenue pour A. Lance l'an dernier).

[2] CONQUEST était un « Marie Curie Research Training Program », s'inscrivant dans le 6ème programme-cadre européen.

- Nous bénéficions de financements américains (ARDA / DTO) via une collaboration avec le NIST.

Le groupe a participé, dans le cadre de ses activités sur les sources de photons uniques avec des nanocristaux de diamant, au projet «SP4» du 5ème programme cadre européens de recherche et de développement technologique.

Pour la nouvelle expérience de production de vide comprimé dans des vapeurs atomiques que je viens de démarrer, je bénéficie de la participation du groupe à des projets européens pour ses activités sur l'information quantique en variables continues. Il s'agit notamment du projet intégré «SECOQ» du 6éme programme cadre de recherche et développement technologique (qui se termine) et au projet «COMPAS» du 7éme programme-cadre (qui débute).

Par ailleurs, je suis, avec A. Aspect, co-représentant de l'Institut d'Optique pour le Programme PICS Franco-Chinois «Atomes et Photons» destiné à initier et entretenir des collaborations entre les deux pays. Je me rend régulièrement en Chine (juil. 2005, nov. 2006, sept. 2007). J'ai obtenu en 2006, avec E. Giacobino (LKB) et M. Leduc (LKB, IFRAF), de l'Ambassade de France en Chine une aide financière pour la collaboration sur le thème « atomes, photons et physique quantique », de bon augure pour l'obtention future d'un Programme Avancé de Recherches (PRA) dans notre domaine de recherche. J'ai, dans ce contexte, tissé des liens avec les professeurs Xuzong Chen et Guo Hong de l'université de Pékin. Tous deux sont d'ailleurs venus à Paris en février 2007 visiter les laboratoires de l'IFRAF et de l'Institut d'Optique. Mon dernier voyage, en octobre 2007, était destiné à mettre en place l'organisation d'un workshop franco-germano-chinois qui aura lieu en octobre 2008 à Pékin et Shanghai, avec le soutien financier de l'Ambassade de France en Chine, du PICS-CNRS et de l'IFRAF.

Participation à des comités, organisation de colloques et séminaires

Pendant la dernière année thèse et jusqu'en août 2001, j'ai participé en tant qu'animateur à l'atelier de réflexion « Effets quantiques dans les structures de dimensionnalité réduite ». Cet atelier faisait partie du groupe de travail sur la physique, initié par le Conseil Scientifique de l'UFR 925 (UFR de Physique de l'Université Pierre et Marie Curie, Paris VI).

Co-organisation du workshop annuel du GDR Information Quantique, avec A. Browaeys et J.-P. Poizat, les 16 et 17 Novembre 2006, à l'Institut d'Optique, à Palaiseau.

Co-organisateur d'un workshop franco-germano-chinois, en collaboration avec M. Leduc (LKB, IFRAF), Xuzong Chen (Peking University, Pékin) et Heping Zeng (East China Normal University, Shanghai), W. Ertmer et E. Rasel (Leibniz Universität, Hannovre) à Pékin, en 2008.

Vulgarisation et diffusion de la connaissance

Participation régulière à la fête de la Science sur le stand de l'Institut d'Optique à Orsay. Présentation d'expériences sur l'astronomie et l'optique en octobre 2004, sur le photon en octobre 2005 et sur les instruments d'optique en octobre 2007, Orsay.

Séminaires pour les élèves de l'Ecole Supérieur d'Optique, à Orsay. « Cryptographie quantique » en mars 2005 et « Piégeage d'atomes uniques pour l'information quantique » en mars 2006.

Articles de vulgarisation publiés dans le journal du CNRS Images de la physique :

- « Photons uniques et cryptographie quantique », G. Messin, F. Treussart. Images de la physique 2005 (CNRS), pp 118-125 (2005).
- « Photons indiscernables : qui se ressemblent s'assemblent », A. Browaeys, G. Messin, I. Robert-Philips. Images de la Physique 2006 (CNRS), pp. 106-112 (2007).

B.3 Publications

B.3.1 Tableau récapitulatif

	Thèse	Post-docs	MCF	Total
Articles dans des revues internationales à comité de lecture	4	5	7	16
Articles dans des revues nationales à comité de lecture	1		2	3
Actes de conférences internationales avec comité de lecture	1	3	3	7
Actes de conférences nationales avec comité de lecture	1	1	2	4
Posters *	4		4	8
Communications orales *	1	1	6	8
Séminaires *			7	7

TAB. B.3 – *Tableau récapitulatif des publications.* * *: ne sont comptées que les présentations que j'ai données moi-même.*

B.3.2 Articles

Articles dans des revues internationales à comité de lecture

Travaux de thèse

[1] « **Squeezed states and quantum noise of light in semiconductor microcavities** », *G. Messin, J.-Ph. Karr, H. Eleuch, J.-M. Courty et E. Giacobino.*
J. Phys. : Condens. Matter **11**, 6069 (1999).

[2] « **Cavity QED effects in semiconductor microcavities** », *H. Eleuch, J.-M. Courty, G. Messin, C. Fabre et E. Giacobino.*
J. Opt. B : Quantum Semiclass. Opt. **1**, p. 1-7 (1999).

[3] « **Parametric polariton amplification in semiconductor microcavities** », *G. Messin, J.-Ph. Karr, A. Baas, G. Khitrova, R. Houdré, R. P. Stanley, U. Oesterle, and E.Giacobino.*
Phys. Rev. Lett. **87**, 127403 (2001).

[4] « **Quantum coherent effects in cavity exciton polariton systems** », *E. Giacobino, J.-P. Karr, A. Baas, G. Messin, M. Romanelli, A. Bramati.*
Solid State Com. **134**, 97 (2005).

Post-doc au LKB

[5] « **Bunching and Antibunching in the Fluorescence of Single Nanocrystals** », *G. Messin, J.-P. Hermier, E. Giacobino, P. Desbiolles, M. Dahan.*
Optics Letters **26**, 1891 (2001).

[6] « **Statistical Aging and Non Ergodicity in the Fluorescence of Single Nanocrystals** », *X. Brokmann, J.-P. Hermier, G. Messin, P. Desbiolles, J.-Ph. Bouchaud, M. Dahan.*
Phys. Rev. Lett. **90**, 120601 (2003).

[7] « **Colloidal CdSe/ZnS quantum dots as single-photon sources** », *X. Brokmann, G. Messin, P. Desbiolles, E Giacobino, M. Dahan, J.-P. Hermier.*
New J. Phys. **6**, 99 (2004).

Post-doc au MIT

[8] « **High-flux source of polarization-entangled photons from a periodically-poled KTiOPO4 parametric downconverter** », *C. E. Kuklewicz, M. Fiorentino, G. Messin, F. N.C. Wong, J. H. Shapiro.*
Phys. Rev. A **69**, 013807 (2004).

[9] « **Generation of ultrabright tunable polarization entanglement without spatial, spectral, or temporal constraints** », *M. Fiorentino, G. Messin, C. E. Kuklewicz, F. N.C. Wong, J. H. Shapiro.*
Phys. Rev. A **69**, 041801(R) (2004).

Maître de conférences : Cryptographie quantique

[10] « **Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source** », *R. Alléaume, F. Treussart, G. Messin, Y. Dumeige, J.-F. Roch, A. Beveratos, R. Brouri-Tualle, J.-P. Poizat, P. Grangier.*
New J. Phys. **6**, 92 (2004).

Maître de conférences : Atomes uniques piégés

[11] « **A frequency-doubled laser system producing ns pulses for rubidium manipulation** », *J. Dingjan, B. Darquié, J. Beugnon, M. P. A. Jones, S. Bergamini, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.*
Appl. Phys. B : Lasers and Optics **82**, 47 (2005).

[12] « **Controlled Single-Photon Emission from a Single trapped Two-Level Atom** », *B. Darquié, M.P.A. Jones, J. Dingjan, J. Beugnon, S. Bergamini, Y. Sortais, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.*
Science **309**, 454 (2005).

[13] « **Quantum interference between two single photons emitted by independently trapped atoms** », *J. Beugnon, M. P. A. Jones, J. Dingjan, B. Darquié, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.*
Nature **440**, 779 (2006).

[14] « **Diffraction limited optics for single atom manipulation** », *Y. R. P. Sortais, H. Marion, C. Tuchendler, A. M. Lance, M. Lamare, P. Fournet, C. Armellin, R. Mercier, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.*
Phys. Rev. A **75**, 013406 (2007).

[15] « **Fast Quantum State Control of a Single Trapped Neutral Atom** », *M. P. A. Jones, J. Beugnon, A. Gaëtan , J. Zhang, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.*
Phys. Rev. A **75**, 040301(R) (2007).

[16] « **Two-dimensional transport and transfer of a single atomic qubit in optical tweezers** », *J. Beugnon, C. Tuchendler, H. Marion, A. Gaëtan, Y. Miroshnychenko, Y.R.P. Sortais, A.M. Lance M.P.A. Jones, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.*
Nature Physics 3, **696** (2007).

Articles dans des revues nationales à comité de lecture

Travaux de thèse

[17] « **Quantum optical effects in semiconductor microcavities** », *E. Giacobino, J.-P. Karr, G. Messin, H. Eleuch, A. Baas.*
C. R. Physique **3** (1), 41 (2002).

Maître de conférences

[18] « **Photons uniques et cryptographie quantique** », *G. Messin, F. Treussart.*
Images de la Physique 2005 (CNRS), pp 118-125, (2005).

[19] « **Photons indiscernables : qui se ressemble s'assemble** », *A. Browaeys, G. Messin, I. Robert-Philips.*
Images de la Physique 2006 (CNRS), pp 106-112, (2007).

Actes de conférences internationales avec comité de lecture

Travaux de thèse

[20] « **Giant nonlinear emission in semiconductor microcavities** », *G. Messin, J.-P. Karr et E. Giacobino.*
in *International Quantum Electronics Conference, 2000 (IQEC). Conference Digest*, (IEEE 2000).

Post-doc au MIT

[21] « **Quantum Interference from a High-Flux Collinear PPKTP Parametric Downconverter** », *C. E. Kuklewicz, G. Messin, F. N.C. Wong, and J. H. Shapiro.*
in *Quantum Electronics and Laser Science Conference, 2002. QELS '02. Technical Digest*, (IEEE 2002), p. 28.

[22] « **Generation of Polarization Entanglement from a PPKTP Parametric Downconverter** », *C. E. Kuklewicz, G. Messin, F. N.C. Wong, J. H. Shapiro.*
in *Quantum Electronics and Laser Science, 2003. QELS. Postconference Digest*, (IEEE 2003).

[23] « **Ultrabright tunable photon-pair source with total-flux polarization-entanglement** », *M. Fiorentino, G. Messin, C. E. Kuklewicz, F. N.C. Wong, J. H. Shapiro.*
in *Quantum Electronics and Laser Science, 2003. QELS. Postconference Digest*, (IEEE 2003).

Maître de conférences

[24] « **Experimental open air quantum cryptography with single photons** », *G. Messin, A. Beveratos, J.-P. Poizat, R. Brouri, P. Grangier R. Alléaume, Y. Dumeige, F. Treussart, J.-F. Roch.*
in *Trends in Optics and Photonics (TOPS) Vol. 97, International Quantum Electronics Conference*, Technical Digest, Postconference Edition (Optical Society of America, Washington, DC 2004), pp. 1148-1149.

[25] « **Controlled photon emission and Raman transition experiments with a single trapped atom** », *M. P. A. Jones, B. Darquié, J. Beugnon, J. Dingjan, S. Bergamini, Y. Sortais, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.*
in *Laser Spectroscopy - Proceedings of the XVII International Conference* (ICOLS 05), E. A. Hinds, A. Ferguson & E. Riis Eds., (World Scientific, Singapore 2005), pp. 413-420.

[26] « **Recent progress on the manipulation of single atoms in optical tweezers for quantum information processing** », *A. Browaeys, J. Beugnon, C. Tuchendler, H. Marion, A. Gaëtan, Y. Miroshnychenko, B. Darquié, J. Dingjan, Y.R.P. Sortais, A.M. Lance, M.P.A. Jones, G. Messin, P. Grangier.*
in *Laser Spectroscopy - Proceedings of the XVIII International Conference* (ICOLS 07), L. Hollberg, J. Bergquist & M. Kasevich Eds., (World Scientific, Singapore 2007).

Actes de conférences nationales avec comité de lecture

Travaux de thèse

[27] « **Effets d'électrodynamique quantique dans des microcavités semi-conductrices** », *H. Eleuch, G. Messin, C. Begon, J.-M. Courty, C. Fabre et E. Giacobino.*
in *COLOQ 5 - 5ème Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique, Strasbourg, France, Sept. 1997.* Ann. Phys. Fr. **23** (1998), C1-213.

Post-doc au LKB

[28] « **Étude photophysique de nanocristaux semi-conducteurs de CdSe** », *J.-P. Hermier, G. Messin, E. Giacobino, P. Desbiolles, M. Dahan.*
in *COLOQ 7 - Septième colloque sur les lasers et l'optique quantique, Rennes, France, Sept. 2001.* J. Phys. IV France **12** Pr5 (2002), p. 281.

Maître de conférences

[29] « **Emission de photons uniques par un atome unique piégé** », *B. Darquié, J. Beugnon, M. P. A. Jones, J. Dingjan, Y. Sortais, A. Browaeys, G. Messin, P. Grangier.*
in *COLOQ 9 - 9ème Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique, Dijon, France, Sept. 2005.* J. Phys. IV **135** (2006), pp. 97-98.

[30] « **Manipulating single atoms in microscopic dipole traps : a new generation apparatus** »,
Y.R.P. Sortais, A. Lance, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier. in *COLOQ 9 - 9ème Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique, Dijon, France, Sept. 2005.* J. Phys. IV **135** (2006), pp. 301-302.

B.3.3 Communications

Note : ne sont listées que les présentations que j'ai effectuées moi-même

Présentations Orales dans des conférences

Travaux de thèse

[1] « **Effets d'électrodynamique quantique dans des microcavités semi-conductrices à puits quantiques** », *G. Messin, H. Eleuch, C. Begon, J.-M. Courty, C. Fabre, E. Giacobino.* Réunion du GdR Microcavités et Cristaux Photoniques, en décembre 1998, à Orsay.

Post-doc au LKB

[2] « **Dégroupement de photons dans les nanocristaux CdSe** », *G. Messin, P. Desbiolles, M. Dahan, E. Giacobino.* Réunion du GdR Microcavités et Cristaux Photoniques, en décembre 2000, à Lyon.

Maître de conférences

[3] « **Cryptographie Quantique avec des Photons Uniques** », *A. Beveratos, J.-P. Poizat, R. Tualle-Brouri, G. Messin, P. Grangier.* Conférence invité A. Bouyssy, en février 2003, à l'Université d'Orsay.

[4] « **Experimental open air quantum cryptography with single photons** », *G. Messin, A. Beveratos, J.-P. Poizat, R. Brouri, P. Grangier (Institut d'Optique). R. Alléaume, Y. Dumeige, F. Treussart, J.-F. Roch (ENS Cachan).* Post-deadline paper, à l'*International Quantum Electronics Conference (CLEO/IQEC)*, en mai 2004, à San Francisco, USA.

[5] « **Single photons from a single trapped atom** », Conférence invité, rencontre franco-chinoise *Atoms and photons for Quantum Information*, en juillet 2005, à Shanghai, Chine.

[6] « **Quantum interference between two single photons emitted by two single trapped atoms** », Conférence invité, *European-Australian Workshop on Quantum-Atom Optics*, en février 2006, à l'Australian National University, Canberra et Kioloa, Australie.

[7] « **Moving atomic qubits** », Conférence invité, *Hot-topics paper*, à la *Gordon Research Conference on Quantum Information Science*, du 15 au 20 avril 2007, à Il Ciocco, Italie.

Posters présentés dans des conférences

Travaux de thèse

[8] « **Effets d'électrodynamique quantique dans des microcavités semi-conductrices** », *G. Messin, H. Eleuch, E. Giacobino.* Poster présenté au Congrès de la Société Française de Physique, en juillet 1997, à Paris.

[9] « **Quantum electrodynamics effects in semiconductor microcavities** », *G. Messin, H. Eleuch, E. Giacobino.* Poster présenté à l'*European Research Conference on Quantum Optics*, en septembre 1997, à Castelvecchio, Italie.

[10] « **Quantum electrodynamics effects in semiconductor microcavities** », *G. Messin, H. Eleuch, C. Begon, J.-M. Courty, C. Fabre, E. Giacobino.* Poster présenté à l'École de Physique d'Été de l'Institut d'Études Scientifiques de Cargèse, août 1998, sur le thème *QED Phenomena and Applications of Microcavities and Photonic Crystals.*

[11] « **Luminescence, noise and nonlinear effects in semiconductor microcavities** », *G. Messin, J.-P. Karr, E. Giacobino.* Poster présenté à l'*European Research Conference on Quantum Optics*, en octobre 1999 à Palma, Espagne. Maître de conférences

Maître de conférence

[12] « **Cryptography : From Jules Cesar to Quantum Mechanics** », *A. Beveratos, R. Brouri, G. Messin, T. Gacoin, J.-P. Poizat, P. Grangier (Institut d'Optique). R. Alleaume, F. Treussart, Y. Dumeige, J.-F. Roch (ENS Cachan).* Poster présenté à l'*European Research Conference on Quantum Optics*, en septembre 2003, à Grenade, Espagne.

[13] « **Two-photon Interference and Single Qubit Operations with Single Neutral Atoms** », *J. Beugnon, M.P.A. Jones, B. Darquié, J. Dingjan, A. Gaëtan, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.* « **Trapping & Moving Single Qubits with Microscopic Optical Tweezers** », *J. Beugnon, H. Marion, C. Tuchendler, A. Gaëtan, Y. Miroshnychenko, M.P.A. Jones, A.M. Lance, Y.R.P. Sortais, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.* Posters présentés à la *Gordon Research Conference on Quantum Information Science*, en avril 2007, à Castelvecchio, Italie.

[14] « **Control, transport and transfert of a single qubit stored in a single trapped atom** », *J. Beugnon, C. Tuchendler, H. Marion, A. Gaëtan, Y. Miroshnychenko, Y.R.P. Sortais, A.M. Lance, M.P.A. Jones, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier.* Poster présenté à la *Gordon Research Conference on Atomic Physics*, en juillet 2007, à Tilton, NH, Etats-Unis.

Séminaires

[15] « **Sources de Lumière Quantique** », au LPMC de l'Université de Nice, en avril 2002.

[16] « **Cryptographie quantique** », séminaire pour les élèves de l'Ecole Supérieur d'Optique, Orsay, en mars 2005.

[17] « **Single photon emission from a single trapped atom** », au *Research Laboratory of Electronics* du MIT, en juin 2005, à Cambridge, USA.

[18] « **Single photons from a single trapped atom** », à l'*Institute of Opto-Electronics, Shanxi University*, en juillet 2005, à Taiyuan, Chine.

[19] « **Piégeage d'atomes uniques pour l'information quantique** », séminaire pour les élèves de l'Ecole Supérieure d'Optique, Orsay, en mars 2006.

[20] « **Interférence quantique à deux photons, émis par deux atomes piégés uniques** », au laboratoire PMC de l'Ecole Polytechnique, en juin 2006, à Palaiseau.

[21] « **Quantum interference between two single photons emitted by two single trapped atoms** », à l'*Institute of Quantum Electronics of Peking University*, en novembre 2006, à Pékin, Chine.

[22] « **Quantum interference between two single photons emitted by two single trapped atoms** », à l'*Institute of Opto-Electronics, Shanxi University*, en novembre 2006, à Taiyuan, Chine.

[23] « **Manipulation optique d'atomes neutres uniques piégés dans des pinces optiques** », au Laboratoire Kastler Brossel, à l'Ecole Normale Supérieure, en mai 2007, à Paris.

[24] « **Moving atomic qubits** », séminaire donné en septembre 2007 en Chine, successivement à Shanghai, à l'*East China Normal University*, puis à Pékin, à l'*Institute of Quantum Electronics of Peking University*, au *Physics department of Tsinghua University* et au *Physics department of the Chinese Academy of Science*.

Bibliographie

[1] R. Handbury Brown, R. Q. Twiss, « Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light », *Nature* **177**, 27 (1956) et « A Test of a New Type of Stellar Interferometer on Sirius », *Nature* **178**, 1046 (1956).

[2] E. M. Purcell, « The Question of Correlation between Photons in Coherent Light Rays », *Nature* **178**, 1449 (1956).

[3] R. J. Glauber, « The Quantum Theory of Optical Coherence », *Phys. Rev.* **130**, 2529 (1963) et « Coherent and Incoherent States of the Radiation Field », *Phys. Rev.* **131**, 2766 (1963).

[4] L. Mandel, E. C. G. Sudarshan, E. Wolf, « Theory of Photoelectric Detection of Light Fluctuations », *Proc. Phys. Soc.* **84**, 435 (1964).

[5] B. L. Morgan, L. Mandel, « Measurement of Photon Bunching in a Thermal Light Beam », *Phys. Rev. Lett.* **16**, 1012 (1966) et D. T. Philips, H. Kleiman, S. P. Davis, « Intensity-Correlation Linewidth Measurement », Phys. Rev. *153*, 113 (1967).

[6] C. A. Kocher, E. D Commins, « Polarization Correlation of Photons Emitted in an Atomic Cascade », *Phys. Rev. Lett.* **18**, 575 (1967).

[7] S. J. Freedman, J. F. Clauser, « Experimental test of Local Hidden-Variable Theories », *Phys. Rev. Lett.* **28**, 938 (1972).

[8] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich, « Generation of optical Harmonics », *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).

[9] D. C. Burnham, D. L. Weinberg, « Observation of Simultaneity in Parametric Production of Optical Photon Pairs », *Phys. Rev. Lett.* **25**, 84 (1970).

[10] P. Grangier, G. Roger, A. Aspect, « Experimental Evidence for a Photon Anticorrelation Effect on a Beam Splitter : A New Light on Single-Photon Interferences », *EuroPhys. Lett.* **1**, 173 (1986).

[11] C. K. Hong, L. Mandel, « Experimental realisation of a Localized One-Photon State », *Phys. Rev. Lett.* **56**, 58 (1986).

[12] H. J. Kimble, M Dagenais, L. Mandel, « Photon Antibunching in Resonance Fluorescence », *Phys. Rev. Lett.* **39**, 691 (1977) et M. Dagenais, L. Mandel, « Investigation of two-time correlations in photon emissions from a single atom », *Phys. Rev. A* **18**, 2217 (1978).

[13] C. H. Bennett, G. Brassard « Quantum Cryptography : Public Key Distribution and Coin Tosing », in *Proceedings of IEEE Intl. Conf. on Computer, Systems and Signal Processing*, Bangalore, India, pp. 175-179, Décembre 1984.

[14] E. Knill, R. Laflamme, G. J. Milburn, « A scheme for efficient quantum computation with linear optics », *Nature* **409**, 46 (2001).

[15] C. K. Hong, Z. Y. Ou, L. Mandel, « Measurement of Subpicosecond Time Intervals between Two Photons by Interference », *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2044 (1987).

[16] C. H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres, W. Wootters, « Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels », *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1895 (1993).

[17] D. L. Moehring, P. Maunz, S. Olmschenk, K. C. Younge, D. N. Matsukevich, L.-M. Duan, C. Monroe, « Entanglement of single-atom quantum bits at a distance » *Nature* **449**, 68 (2007).

[18] A. Ourjoumtsev, A. Dantan, R. Tualle-Brouri, P. Grangier, « Increasing entanglement between Gaussian states by coherent photon subtraction », *Phys. Rev. Lett.* **98**, 030502 (2007).

[19] M.D. Eisaman, A. André, F. Massou, M. Fleischhauer, A.S. Zibrov, M.D. Lukin, « Electromagnetically induced transparency with tunable single-photon pulses », *Nature* **438**, 837 (2005).

[20] O. R. Frisch, « Take a Photon... », *Contemp. Phys.* **7**, 45 (1965).

[21] S. Reynaud, « Introduction à la réduction du bruit quantique », *Ann. Phys. Fr.* **15**, 63 (1990).

[22] R. Short, L. Mandel, « Observation of Sub-Poissonian Photon Statistics », *Phys. Rev. Lett.***51**, 384 (1983).

[23] F. Diedrich, H. Walther, « Nonclassical Radiation of a Single Stored Ion », *Phys. Rev. Lett.* **58**, 203 (1987).

[24] T. Basché, W. E. Mœrner, M. Orrit, H. Talon, « Photon Antibunching in the Fluorescence of a Single Dye Molecule Trapped in a Solid », *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1516 (1992).

[25] L. Fleury, J.-M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, U. P. Wild « Nonclassical Photon Statistics in Single-Molecule Fluorescence at Room Temperature », *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1148 (2000).

[26] S. C. Kitson, P. Jonsson, J. G. Rarity, and P. R. Tapster, « Intensity fluctuation spectroscopy of small numbers of dye molecules in a microcavity », *Phys. Rev. A* **58**, 620 (1998).

[27] F. De Martini, G. Di Giuseppe, M. Marrocco, « Single-Mode Generation of Quantum Photon States by Excited Single Molecules in a Microcavity Trap », *Phys. Rev. Lett.* **76**, 900 (1996).

[28] C. Brunel, B. Lounis, P. Tamarat, M. Orrit, « Triggered source of single photons based on controlled single molecule fluorescence », *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2722 (1999).

[29] « Single Photons on Demand », *P. Grangier, B. Sanders, J. Vukovic, Eds., New J. Phys.* **6**, 85–100, 129–163 (2004).

[30] G. Brassard, « Brief History of Quantum Cryptography : A Personal Perspective », in *Proceedings of IEEE Information Theory Workshop on Theory and Practice in Information Theoretic Security*, Awaji Island, Japan, pp. 19-23, Octobre 2005. arXiv :quant-ph/0604072v1.

[31] C. H. Bennett, F. Bessette, G. Brassard, L. Salvail, J. Smolin, « Experimental Quantum Cryptography », *Journal of Cryptology* **5**, 3 (1992).

[32] C. H. Bennett, G. Brassard, A. Ekert, « Quantum Cryptography », *Scientific American* **267**, 50 (1992).

[33] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu, A. Imamoğlu, « A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device », *Science* **290**, 2282 (2000).

[34] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, Y. Yamamoto, « Triggered Single Photons from a Quantum Dot », *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1502 (2001).

[35] P. Michler, A. Imamoğlu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, S. K. Buratto, « Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature », *Nature* **406**, 968 (2000).

[36] G. Messin, J.-P. Hermier, E. Giacobino, P. Desbiolles, and M. Dahan, « Bunching and Antibunching in the Fluorescence of Single Nanocrystals », *Optics Letters* **26**, 1891 (2001).

[37] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, H. Weinfurter, « Stable Solid-State Source of Single Photons », *Phys. Rev. Lett.* **85**, 290 (2000).

[38] R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat, P. Grangier, « Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond », *Opt. Lett.* **25**, 1294 (2000).

[39] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, P. Grangier, « Nonclassical radiation from diamond nanocrystals », *Phys. Rev. A* **64**, 061802(R) (2001).

[40] M. Keller, B. Lange, K. Hayasaka, W. Lange, H. Walther, « Continuous generation of single photons with controlled waveform in an ion-trap cavity system », *Nature* **431**, 1075 (2004).

[41] A. Kuhn, M. Hennrich, G. Rempe, « Deterministic Single-Photon Source for Distributed Quantum Networking », *Phys. Rev. Lett.* **89**, 067901 (2002)

[42] J. McKeever, A. Boca, A. D. Boozer, R. Miller, J. R. Buck, A. Kuzmich, H. J. Kimble, « Deterministic Generation of Single Photons from One Atom Trapped in a Cavity », *Science* **303**, 1992 (2004).

[43] C. W. Chou, S. V. Polyakov, A. Kuzmich and H. J. Kimble, « Single-Photon Generation from Stored Excitation in an Atomic Ensemble », *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 213601 (2004).

[44] C. A. Fuchs, N. Gisin, R. B. Griffiths, C.-S. Niu, A. Peres, « Optimal eavesdropping in quantum cryptography. I. Information bound and optimal strategy, », *Phys. Rev. A* **56**, 1163 (1997). P. W. Shor, J. Preskill « Simple Proof of Security of the BB84 Quantum Key Distribution Protocol », *Phys. Rev. Lett.* **85**, 441 (2000).

[45] F. Grosshans, P. Grangier, « Continuous variable quantum cryptography using coherent states », *Phys. Rev. Lett.* **88**, 057902 (2002).

[46] W.-Y. Hwang, « Quantum Key Distribution with High Loss : Toward Global Secure Communication », *Phys. Rev. Lett.* **91**, 057901 (2003).

[47] X. Brokmann, « Propriétés de fluorescence de nanocristaux de CdSe individuels », Thèse de doctorat, Université Paris VI (2004).
Disponible sur internet : http ://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00007873/

[48] X.-F. He, N. B. Manson, P. T. H. Fisk, « Paramagnetic resonance of photoexcited N-V defects in diamond. I. Level anticrossing in the ^3A ground state », *Phys. Rev. B* **47**, 8809 (1993).
A. Lenef, S. W. Brown, D. A. Redman, S. C. Rand, J. Shigley, E. Fritsch « Electronic structure of the N-V center in diamond : Experiments », *Phys. Rev. B* **53**, 13427 (1996).
A. Lenef, S. C. Rand, « Electronic structure of the N-V center in diamond : Theory », *Phys. Rev. B* **53**, 13441 (1996).

[49] A. Beveratos, « Réalisation expérimentale d'une source de photon uniques par fluorescence de centres colorés dans le diamant : Application à la cryptographie quantique », Thèse de doctorat, Université Paris XI (2002).
Disponible sur internet : http ://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00008487/

[50] M. Minsky, « Microscopy apparatus », brevet US # 3,013,467, nov. 1957.
« Memoir on inventing the confocal scanning microscope », *Scanning* **10**, 128 (1988).

[51] N. Schlosser, G. Reymond, P. Grangier, « Collisional blockade in microscopic optical dipole traps », *Phys. Rev. Lett.* **89**, 023005 (2002).

[52] N. Schlosser, « Etude et réalisation de micro-pièges dipolaires optiques pour atomes neutres », Thèse de doctorat, Université Paris XI (2001).
Disponible sur internet : http ://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00001195/

[53] Y. Sortais, H. Marion, C. Tuchendler, A. Lance, M. Lamare, P. Fournet, C. Armellin, R. Mercier, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier, « Diffraction limited optics for single atom manipulation », *Phys. Rev. A* **75**, 013406 (2007).

[54] J.P. Bouchaud, A. Georges, « Anomalous diffusion in disordered media : Statistical mechanisms, models and physical applications », *Phys. Rep.* **195**, 127 (1990).

[55] F. Bardou, J.P. Bouchaud, A. Aspect, C. Cohen-Tannoudji, « Lévy statistics and laser cooling », Cambridge University Press (2001).

[56] S. Hohng, T. Ha, « Near-Complete Suppression of Quantum Dot Blinking in Ambient Conditions », *J. Am. Chem. Soc.* **126**, 1324 (2004).

[57] X. Brokmann, E. Giacobino, M. Dahan, J. P. Hermier, « Highly efficient triggered emission of single photons by colloidal CdSe / ZnS nanocrystals », *Appl. Phys. Lett.* **85**, 712 (2004).

[58] A. Beveratos, S.Kühn, R. Brouri, T.Gacoin, J.-P. Poizat, and P. Grangier, « Room temperature stable single-photon source », *Eur. Phys. J. D* **18**, 191 (2002).

[59] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat, and P. Grangier, « Single Photon Quantum Cryptography », *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187901 (2002).

[60] B. Darquié, « Manipulation d'atomes dans des pièges dipolaires microscopiques et émission contrôlée de photons par un atome unique », Thèse de doctorat, Université Paris XI (2005).
Disponible sur internet : http ://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011604/

[61] D. A. Steck, « Rubidium 87 D Line Data », Los Alamos National Laboratory (2001).
Disponible sur internet : http ://steck.us/alkalidata

[62] J. Dingjan, B. Darquié, J. Beugnon, M.P.A. Jones, S. Bergamini, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier, « A frequency-doubled laser system producing ns pulses for rubidium manipulation », *Appl. Phys. B : Lasers and Optics* **82**, 47 (2005).

[63] G. Messin, F. Treussart, « Photons uniques et cryptographie quantique », *Revue du CNRS « Images de la physique 2005 »*, pp 118-125 (2005).
Disponible sur internet : http ://www.cnrs.fr/publications/imagesdelaphysique/

[64] Logiciel « QUCRYPT », Louis Salvail.
Disponible sur internet : http ://www.cki.au.dk/experiment/qrypto/doc/

[65] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, « Quantum cryptography », *Rev. Mod. Phys.* **74**, 145 (2002).

[66] G. Messin, J. P. Hermier, E. Giacobino, P. Desbiolles, M. Dahan, « Bunching and antibunching in the fluorescence of semiconductor nanocrystals », *Opt. Lett.* **26**, 1891 (2001).

[67] X. Brokmann,J. -P. Hermier, G. Messin, P. Desbiolles, J.-P. Bouchaud, M. Dahan, « Statistical Aging and Nonergodicity in the Fluorescence of Single Nanocrystals », *Phys. Rev. Lett.* **90**, 120601 (2003).

[68] X. Brokmann , G. Messin, P. Desbiolles, E. Giacobino, M. Dahan, J.-P. Hermier, « Colloidal CdSe/ZnS quantum dots as single-photon sources », *New J. Phys.* **6**, 99 (2004).

[69] R. Alléaume, F. Treussart, G. Messin, Y. Dumeige, J.-F. Roch, A. Beveratos, R. Brouri-Tualle, J.-P. Poizat, P. Grangier, « Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source », *New J. Phys.* **6**, 92 (2004).

[70] B. Darquié, M. P. A. Jones, J. Dingjan, J. Beugnon, S. Bergamini,Y. Sortais, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier, « Controlled Single-Photon Emission from a Single Trapped Two-Level Atom », *Science* **309**, 454 (2005).

[71] A. Einstein, B. Podolsky, N. Rosen, « Can Quantum-Mechanical Description of Physical Reality Be Considered Complete ? », *Phys. Rev.* **47**, 777 (1935).

[72] D. Deutsch, « Quantum theory, the Church-Turing principle and the universal quantum computer », *Proc. R. Soc. Lond. A* **400**, 97 (1985). D. Deutsch, « Quantum computational networks », *Proc. R. Soc. Lond. A* **425**, 73 (1989).

[73] A. K. Ekert, « Quantum Cryptography Based on Bell's Theorem », *Phys. Rev. Lett.* **67**, 661 (1991).

[74] C. H. Bennett, G. Brassard, N. D. Mermin, « Quantum Cryptography without Bell's Theorem », *Phys. Rev. Lett.* **68**, 557 (1992).

[75] C. H. Bennett, S. J. Wiesner, « Communication via One- and Two-Particle Operators on Einstein-Podolsky-Rosen States » *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2881 (1992).

[76] D. Bouwmeester, J.-W. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter, A. Zeilinger, « Experimental quantum teleportation », *Nature* **390**, 575 (1997).

[77] M. Riebe, H. Häffner, C. F. Roos, W. Hänsel, J. Benhelm, G. P. T. Lancaster, T. W. Körber, C. Becher, F. Schmidt-Kaler, D. F. V. James, R. Blatt, « Deterministic quantum teleportation with atoms », *Nature* **429**, 734 (2004) et M. D. Barrett, J. Chiaverini, T. Schaetz, J. Britton, W. M. Itano, J. D. Jost, E. Knill, C. Langer, D. Leibfried, R. Ozeri, D. J. Wineland, « Deterministic quantum teleportation of atomic qubits », *Nature* **429**, 737 (2004).

[78] G. Brassard, S. Braunstein, R. Cleve, « Teleportation as a quantum computation », *Physica D* **120**, 43 (1998).

[79] D. Gottesman, I. L. Chuang, « Demonstrating the viability of universal quantum computation using teleportation and single-qubit operations », *Nature* **402**, 390 (1999).

[80] J. H. Shapiro, « Long-distance high-fidelity teleportation using singlet states », in *Quantum Communication, Measurement, and Computing*, Vol. 3, eds. O. Hirota and P. Tombesi (New York, Kluwer), pp 367-374 (2001).
Disponible sur internet : arXiv :quant-ph/0105055v1.

[81] W. K. Wooters, W. Zurek, « A single quantum cannot be cloned », *Nature* **299**, 802 (1982).
G. Lindbald, « A General No-Cloning Theorem », *Lett. Math. Phys.* **47**, 189 (1999).

[82] J. S. Bell, « On the Einstein Podolsky Rosen Paradox », *Phys.* **1**, 195 (1964).

[83] L. Kasday, J. Ullman, C.-S. Wu, « The Einstein-Podolsky-Rosen Argument : Positron Annihilation Experiment », *Bull. Am. Phys. Soc.* **15**, 586 (1970).

[84] Z. Y. Ou, L. Mandel, « Violation of Bell's Inequality and Classical Probability in a Two-Photon Correlation Experiment », *Phys. Rev. Lett.* **61**, 50 (1988) et Y. H. Shih, C. O. Alley, « New Type of Einstein-Podolsky-Rosen-Bohm Experiment Using Pairs of Light Quanta Produced by Optical Parametric Down Conversion », **61**, 2961 (1988).

[85] J. G. Rarity, P. R. Tapster, « Experimental Violation of Bell's Inequality Based on Phase and Momentum », *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2495 (1990).

[86] E. Hagley, X. Maître, G. Nogues, C. Wunderlich, M. Brune, J. M. Raimond, S. Haroche, « Generation of Einstein-Podolsky-Rosen Pairs of Atoms », *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1 (1997).

[87] D. N. Klyshko, « Combined EPR and Two-Slit Experiments : Interference of Advanced Waves », *Phys. Lett. A* **132**, 299 (1998).

[88] L. Hardy, « Sources of photons with correlated polarisations and correlated directions », *Phys. Lett. A* **161**, 326 (1992).

[89] P. G. Kwiat, P. H. Eberhard, A. Steinberg, R. Y. Chiao, « Proposal for a loophole-free Bell inequality experiment », *Phys. Rev. A* **49**, 3209 (1994).

[90] P. G. Kwiat, K. Mattle, H. Weinfurter, A. Zeilinger, A. V. Sergienko, Y. Shih, « New High-Intensity Source of Polarization-Entangled Photon Pairs », *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4337 (1995).

[91] N. Lütkenhaus, J. Calsamiglia, K.-A. Suominen, « Bell measurements for teleportation », *Phys. Rev. A* **59**, 3295 (1999).

[92] P. G. Kwiat, H. Weinfurter, « Embedded Bell-state analysis », *Phys. Rev. A* **58**, R2623 (1998).

[93] M. G. A. Paris, M. B. Plenio, S. Bose, D. Jonathan, G.M. d'Ariano, « Optical Bell measurement by Fock filtering », *Phys. Lett. A* **273**, 153 (2000).

[94] J. H. Shapiro, N. C. Wong, « An ultrabright narrowband source of polarization-entangled photon pairs », *J. Opt. B : Quantum Semiclass. Opt.* **2**, L1 (2000).

[95] S. Lloyd, M. S. Shahriar, J. H. Shapiro, P. R. Hemmer, « Long Distance, Unconditional Teleportation of Atomic States via Complete Bell State Measurements » *Phys. Rev. Lett.* **87**, 167903 (2001).

[96] J. H. Shapiro, « Architectures for long-distance quantum teleportation » *New. J. Phys.* **4**, 47 (2002).

[97] M. Razavi, J. H. Shapiro, « Long-distance quantum communication with neutral atoms » *Phys. Rev. A* **73**, 042303 (2006).

[98] L.-M. Duan, M. D. Lukin, J. I. Cirac, P. Zoller, « Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics » *Nature* **414**, 413 (2001).

[99] M. Razavi « Long-distance Quantum Communication with Neutral Atoms », PhD Thesis, Massachusetts Institute of Technology (2006).
Disponible sur internet : http ://hdl.handle.net/1721.1/33961

[100] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan, « Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric », *Phys. Rev.* **127**, 1918 (1962).

[101] M. Houé, P. D. Townsend, « An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation », *J. Phys. D : Appl. Phys.* **28**, 1747 (1995).

[102] E. J. Mason, M. A. Albota, F. König, F. N. C. Wong, « Efficient generation of tunable photon pairs at 0.8 and 1.6 μm », *Opt. Lett.* **27**, 2115 (2002).

[103] F. König, E. J. Mason, F. N. C. Wong, M. A. Albota « Efficient and spectrally bright source of polarization-entangled photons », *Phys. Rev. A* **71**, 033805 (2005).

[104] M. A. Albota, « Single-Photon Frequency Upconversion for Long-Distance Quantum Teleportation and Communication », PhD Thesis, Massachusetts Institute of Technology (2006).
Disponible sur internet : http ://hdl.handle.net/1721.1/33794

[105] M. A. Albota, F. N. C. Wong, « Efficient single-photon counting at 1.55 μm by means of frequency upconversion », *Opt. Lett.* **29**, 1449 (2004).

[106] J. F. Clauser, M. A. Horne, A. Shimony, R. A. Holt, « Proposed experiment to test local hidden-variable theories », *Phys. Rev. Lett.* **23**, 880 (1969).

[107] Y.-H. Kim, M. V. Chekhova, S. P. Kulik, M. H. Rubin, Y. Shih, « Interferometric Bell-state preparation using femtosecond-pulse-pumped spontaneous parametric down-conversion », *Phys. Rev. A* **63**, 062301 (2001).

[108] J. Eisert, S. Scheel, M. B. Plenio, « Distilling Gaussian States with Gaussian Operations is Impossible », *Phys. Rev. Lett* **89**, 137903 (2002).

[109] C. E. Kuklewicz, M. Fiorentino, G. Messin, F. N.C. Wong, and J. H. Shapiro, « High-flux source of polarization-entangled photons from a periodically-poled KTiOPO4 parametric downconverter », *Phys. Rev. A* **69**, 013807 (2004).

[110] M. Fiorentino, G. Messin, C. E. Kuklewicz, F. N.C. Wong, and J. H. Shapiro, « Generation of ultrabright tunable polarization entanglement without spatial, spectral, or temporal constraints », *Phys. Rev. A* **69**, 041801(R) (2004).

[111] R. P. Feynman, « Simulating Physics with Computers », *Int. J. Theo. Phys.* **21**, 467 (1982).

[112] P. Benioff, « Quantum Mechanical Models of Turing Machines That Dissipate No Energy », *Phys. Rev. Lett.* **48**, 1581 (1982).

[113] D. Z. Albert, « On Quantum-Mechanical Automata », *Phys. Lett. A* **98**, 249 (1983).

[114] D. Deutsch, R. Jozsa, « Rapid solution of problems by quantum computation », *Proc. R. Soc. Lond. A* **439**, 553 (1992).

[115] P. W. Shor, « Algorithms for quantum computation : discrete logarithms and factoring », in *Proceedings 35th Annual Symposium on Foundations of Computer Science*, IEEE Press (Los Alamitos, 1994), pp. 124-134.

[116] L. K. Grover, « A fast quantum mechanical algorithm for database search », in *Proceedings of the 28th Annual ACM Symposium on Theory Of Computing*, (STOC'96), 1996, pp. 212-219 et « Quantum Mechanics Helps in Searching for a Needle in a Haystack », *Phys. Rev. Lett.* **79**, 325 (1997).

[117] D. P. DiVicenzo, « Two-bit gates are universal for quantum computation », *Phys. Rev. A* **51**, 1015 (1995).

[118] D. Deutsch, A. Barenco, A. Ekert, « Universality in quantum computation », *Proc. R. Soc. Lond. A* **449**, 669 (1995).

[119] A. Barenco, D. Deutsch, A. Ekert, R. Jozsa, « Conditional Quantum Dynamics and Logic Gates », *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4083 (1995) et A. Barenco, C. H. Bennett, R. Cleve, D. P. DiVincenzo, N. Margolus, P. Shor, T. Sleator, J. A. Smolin, H. Weinfurter, « Elementary gates for quantum computation », *Phys. Rev. A* **52**, 3457 (1995).

[120] D. P. DiVincenzo, P. W. Shor, « Fault-Tolerant Error Correction with Efficient Quantum Codes », *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3260 (1996).

[121] J. I. Cirac, P. Zoller, « Quantum Computation with Cold Trapped Ions », *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4091 (1995).

[122] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, W. M. Itano, D. J. Wineland, « Demonstration of a Fondamental Quantum Logic Gate », *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4714 (1995).

[123] L. M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood, I. L. Chuang, « Experimental realization of Shor's quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance », *Nature* **414**, 883 (2001).

[124] K.-A. Brickman, P. C. Haljan, P. J. Lee, M. Acton, L. Deslauriers, C. Monroe, « Implementation of Grover's quantum search algorithm in a scalable system », *Phys. Rev. A* **72**, 050306(R) (2005).

[125] S. Gulde, M. Riebe, G. P. T. Lancaster, C. Becher, J. Eschner, H. Häffner, F. Schmidt-Kaler, I. L. Chuang, R. Blatt, « Implementation of the Deutsch-Jozsa algorithm on an ion-trap quantum computer », *Nature* **421**, 48 (2003).

[126] R. Cleve, A. Ekert, C. Macchiavello, M. Mosca, « Quantum Algorithms Revisited », *Proc. R. Soc. Lond. A* **454**, 339 (1998).

[127] D. P. DiVincenzo, « Quantum Computation », *Science* **270**, 255 (1995).

[128] D. P. DiVincenzo, « The Physical Implementation of Quantum Computation », *Fortschritte der Physik* **48**, 771 (2000).

[129] F. Schmidt-Kaler, H. Häffner, M. Riebe, S. Gulde, G. P. T. Lancaster, T. Deuschle, C. Becher, C. F. Roos, J. Eschner, R. Blatt, « Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate », *Nature* **422**, 408 (2003) et M. Riebe, H. Häffner, C. F. roos, W. Hänsel, J. Benhelm, G. P. T. Lancaster, T. W. Körber, C. Becher, F. Schmidt-Kaler, D. F. V. James, R. Blatt, « Deterministic quantum teleportation with atoms », *Nature* **429**, 734 (2004).

[130] D. Leibfried, B. Demarco, V. Meyer, D. Lucas, M. Barrett, J. Britton, W. M. Itano, B. Jelenkovic, C. Langer, T. Rosenband, D. J. Wineland, « Experimental demonstration of a robust, high-fidelity geometric two ion-qubit phase gate », *Nature* **422**, 412 (2003) et M. D. Barrett, J. Chiaverini, T. Schaetz, J. Britton, W. M. Itano, J. D. Jost, E. Knill, C. Langer, D. Leibfried, R. Ozeri, D. J. Wineland, « Deterministic quantum teleportation of atomic qubits », *Nature* **429**, 737 (2004).

[131] L. Childress, M. V. G. Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer, M. D. Lukin, « Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond », *Science* **314**, 281 (2006).

[132] R. Hanson, L. P. Kouwenhoven, J. R. Petta, S. Tarucha, L. M. K. Vandersypen, « Spins in few-electron quantum dots », *Rev. Mod. Phys.* **79**, 1217 (2007).

[133] J. H. Plantenberg, P. C. de Groot, C. J. P. M. Harmans, J. E. Mooij, « Demonstration of controlled-NOT quantum gates on a pair of superconducting quantum bits », *Nature* **447**, 836 (2007).

[134] J. M. Raimond, M. Brune, S. Haroche, « Manipulating quantum entanglement with atoms and photons in a cavity », *Rev. Mod. Phys.* **73**, 565 (2001).

[135] O. Mandel, M. Greiner, A. Widera, T. Rom, T. W. Hänsch, I. Bloch, « Controlled collisions for multi-particle entanglement of optically trap- ped atoms », *Nature* **425**, 937 (2003).

[136] M. Anderlini, P. J. Lee, B. L. Brown, J. Sebby-Strabley, W. D. Phillips, J. V. Porto, « Controlled exchange interaction between pairs of neutral atoms in an optical lattice », *Nature* **448**, 452 (2007).

[137] R. Dumke, M. Volk, T. Müther, F. B. J. Buchkremer, G. Birkl, W. Ertmer, « Micro-optical Realization of Arrays of Selectively Addressable Dipole Traps : A Scalable Configuration for Quantum Computation with Atomic Qubits », *Phys. Rev. Lett.* **89**, 097903 (2002).

[138] D. Schrader, I. Dotsenko, M. Khudaverdyan, Y. Miroshnychenko, A. Rauschenbeutel, D. Meschede, « Neutral Atom Quantum Register », *Phys. Rev. Lett.* **93**, 150501 (2004).

[139] S. Bergamini, B. Darquié, M. Jones, L. Jacubowiez, A. Browaeys, P. Grangier, « Holographic generation of microtrap arrays for single atoms by use of a programmable phase modulator », *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 1889 (2004).

[140] S. L. Braunstein, A. Mann, M. Revzen, « Maximal violation of Bell inequalities for mixed states », *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3259 (1992).

[141] I. L. Chuang, Y. Yamamoto, « Simple quantum computer », *Phys. Rev. A* **52**, 3489 (1995).

[142] P. Kok, W. J. Munro, T. C. Ralph, J. P. Dowling, G. J. Milburn, « Linear optical quantum computing with photonic qubits », *Rev. Mod. Phys.* **79**, 135 (2007).

[143] R. Raussendorf, H. J. Briegel, « A One-Way Quantum Computer », *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5188 (2001).

[144] J. L. O'Brien, G. J. Pryde, A. G. White, T. C. Ralph, D. Branning, « Demonstration of an all-optical quantum controlled-NOT gate », *Nature* **426**, 264 (2003).

[145] P. Walther, K. J. Resch, T. Rudolph, E. Schenck, H. Weinfurter, V. Vedral, M. Aspelmeyer, A. Zeilinger, « Experimental one-way quantum computing », Nature 434, 169 (2005).

[146] C.-Y. Lu, D. E. Browne, T. Yang, J.-W. Pan, « Demonstration of a Compiled Version of Shor's Quantum Factoring Algorithm Using Photonic Qubits », *Phys. Rev. Lett.* **99**, 250504 (2007).

[147] M. S. Tame, R. Prevedel, M. Paternostro, P. Böhi, M. S. Kim, A. Zeilinger, « Experimental Realization of Deutsch's Algorithm in a One-Way Quantum Computer », *Phys. Rev. Lett.* **98**, 140501 (2007).

[148] S. Llyod, « Quantum search without entanglement », *Phys. Rev. A* **61**, 010301(R) (1999).

[149] G. Messin, A. Browaeys, I. Robert-Philip, « Photons indiscernables : qui se ressemble s'assemble », *Revue du CNRS « Images de la physique 2006 »*, pp 106-112 (2006).
Disponible sur internet : http ://www.cnrs.fr/publications/imagesdelaphysique/

[150] J. Beugnon, « Contrôle de l'état interne d'un atome unique piégé et expériences d'interférences à deux photons : vers l'information quantique avec des atomes neutres », Thèse de doctorat, Université Paris XI (2007).
Disponible sur internet : http ://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00185446/

[151] M. Jones, J. Beugnon, A. Gaëtan, J. Zhang, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier, « Ultrafast Quantum State Control of a Single Trapped Neutral Atom », *Phys. Rev. A* **75**, 040301(R) (2007).

[152] J. Beugnon, M. P. A. Jones, J. Dingjan, B. Darquié, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier, « Quantum interference between two single photons emitted by independently trapped atoms », *Nature* **440**, 779 (2006).

[153] J. Beugnon, C. Tuchendler, H. Marion, A. Gaëtan, Y. Miroshnychenko, Y.R.P. Sortais, A.M. Lance M.P.A. Jones, G. Messin, A. Browaeys, P. Grangier, « Two-dimensional transport and transfer of a single atomic qubit in optical tweezers », *Nature Physics* **3**, 696 (2007).

[154] L. Vaidman, « Teleportation of quantum states », *Phys. Rev. A* **49**, 1473 (1994).

[155] S. L. Braunstein, H. J. Kimble, « Teleportation of Continuous Quantum Variables », *Phys. Rev. Lett.* **80**, 869 (1998).

[156] A. Furusawa, J. L. Sørensen, S. L. Braunstein, C. A. Fuchs, H. J. Kimble, E. S. Polzik, « Unconditional Quantum Teleportation », *Science* **282**, 706 (1998).

[157] G. Rigolin, « Quantum teleportation of an arbitrary two-qubit state and its relation to multipartite entanglement », *Phys. Rev. A* **71**, 032303 (2005).

[158] Q. Zhang, A. Goebel, C. Wagenknecht, Y.-A. Chen , B. Zhao, T. Yang, A. Mair, J. Schmiedmayer, J.-W. Pan, « Experimental quantum teleportation of a two-qubit composite system », *Nature Physics* **2**, 678 (2006).

[159] F. Grosshans, G. Van Assche, J. Wenger, R. Brouri, N. J. Cerf, P. Grangier, « Quantum key distribution using gaussian-modulated coherent states », *Nature* **421**, 238 (2003).

[160] C. H. Bennett, G. Brassard, S. Popescu, B. Schumacher, J. A. Smolin, W. K. Wootters, « Purification of Noisy Entanglement and Faithful Teleportation via Noisy Channels », *Phys. Rev. Lett.* **76**, 722 (1996) et *erratum*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2031 (1997).

[161] L.-M. Duan, G. Giedke, J. I. Cirac, P. Zoller, « Entanglement Purification of Gaussian Continuous Variable Quantum States », *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4002 (2000).

[162] J. Wenger, R. Tualle-Brouri, P. Grangier, « Pulsed homodyne measurements of femtosecond squeezed pulses generated by single-pass parametric deamplification », *Opt. Lett.*, **29**, 1267 (2004).

[163] A. Ourjoumtsev, R. Tualle-Brouri, P. Grangier, « Quantum Homodyne Tomography of a Two-Photon Fock State », *Phys. Rev. Lett.* **96**, 213601 (2006).

[164] J. Wenger, A. Ourjoumtsev, R. Tualle-Brouri, P. Grangier, « Time-resolved homodyne characterization of individual quadrature-entangled pulses », *Eur. Phys. J. D* **32**, 391 (2005).

[165] A. Ourjoumtsev, R. Tualle-Brouri, J. Laurat, P. Grangier, « Generating Optical Schrödinger Kittens for Quantum Information Processing », *Science* **312**, 83 (2006).

[166] A. Ourjoumtsev, H. Jeong, R. Tualle-Brouri, P. Grangier, « Generation of optical 'Schrödinger cats' from photon number states », *Nature* **448**, 784 (2007).

[167] J.-F. Roch, K. Vigneron, P. Grelu, A. Sinatra, J.-P. Poizat, P. Grangier, « Quantum Nondemolition measurements using cold trapped atoms », *Phys. Rev. Lett.* **78**, 634 (1997) et P. Grangier, J. A. Levenson, J.-P. Poizat, « Quantum non-demolition measurements in optics », *Nature* **396**, 537 (1998).

[168] V. Josse, A. Dantan, L. Vernac, A. Bramati, M. Pinard, E. Giacobino, « Polarization Squeezing with Cold Atoms », *Phys. Rev. Lett.* **91**, 103601 (2003).

[169] A. Dantan, J. Cviklinski, M. Pinard, P. Grangier, « Dynamics of a pulsed continuous-variable quantum memory », *Phys. Rev. A* **73**, 032338 (2006).

[170] J. Ries, B. Brezger, A. I. Lvovsky, « Experimental vacuum squeezing in rubidium vapor via self-rotation », *Phys. Rev. A* **68**, 025801 (2003).

[171] C. F. McCormick, V. Boyer, E. Arimondo, P. D. Lett, « Strong relative intensity squeezing by four-wave mixing in rubidium vapor », *Opt. Lett.* **32**, 178 (2007).

[172] M. Bajcsy, A. S. Zibrov, M. D. Lukin, « Stationary pulses of light in an atomic medium », *Nature* **426**, 638 (2003).

[173] B. Julsgaard, A. Kozhekin, E. S. Polzik, « Experimental long-lived entanglement of two macroscopic objects », *Nature* **413**, 400 (2001).

[174] C. Schori, B. Julsgaard, J. L. Sørensen, E. S. Polzik, « Recording Quantum Properties of Light in a Long-Lived Atomic Spin State : Towards Quantum Memory », *Phys. Rev. Lett.* **89**, 057903 (2002).

[175] K. S. Choi, H. Deng, J. Laurat, H. J. Kimble, « Mapping photonic entanglement into and out of a quantum memory », *Nature* **452**, 67 (2008).

[176] C. E. Shannon, « A Mathematical Theory of Communication », *The Bell System Technical Journal* **27**, 379 (1948).

[177] L. Mandel, E. Wolf, « Optical Coherence and Quantum Optics », Cambridge University Press (1995).

[178] J. H. Shapiro « High-efficiency upconversion for photon counting and quantum-state frequency conversion », Technical report, MIT Lincoln Laboratory, 67 Group, July 2004.

[179] C. E. Kuklewicz, « Ultrabright source of polarization-entangled photons from cavity-enhanced downconversion », PhD Thesis, Massachusetts Institute of Technology (2005).
Disponible sur internet : http ://hdl.handle.net/1721.1/34647