



HAL
open science

Imagerie de la génération et de la propagation des condensats de polaritons dans les microcavités ZnO

Rereao Hahe

► **To cite this version:**

Rereao Hahe. Imagerie de la génération et de la propagation des condensats de polaritons dans les microcavités ZnO. Autre [cond-mat.other]. Université de Montpellier, 2015. Français. NNT: . tel-01334745v1

HAL Id: tel-01334745

<https://theses.hal.science/tel-01334745v1>

Submitted on 21 Jun 2016 (v1), last revised 31 Jan 2019 (v2)

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

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



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0 International License

THÈSE

Pour obtenir le grade de
Docteur

Délivré par l'**Université de Montpellier**

Préparée au sein de l'école doctorale **Information
Structures et Systèmes (I2S)**
et de l'unité de recherche **L2C-UMR 5221**

Spécialité : **Physique**

Présentée par **Rereao HAHE**

**Imagerie de la génération et de la propagation des
condensats de polaritons dans les microcavités
ZnO.**

Soutenue le 11/12/15 devant le jury composé de

M. Brahim GUIZAL	Président
M. Bruno GAYRAL	Rapporteur
M. Mathieu GALLART	Rapporteur
M. Jesús ZUNIGA-PEREZ	Examineur
Mme. Sihem JAZIRI	Examineur
M. Benoît RUFFLE	Examineur
M. Thierry GUILLET	Directeur de thèse
M. Christelle BRIMONT	Co-encadrante de thèse



Table des matières

Remerciements	i
Introduction	iii
1 Les polaritons : du couplage exciton-photon au laser à polaritons	1
1.1 De l'exciton au polariton de microcavité	1
1.1.1 Exciton de Wannier-Mott	1
1.1.2 Confinement des photons au sein d'une microcavité planaire	5
1.1.3 Exciton et photon en couplage fort : le polariton en microcavité	11
1.2 Un nouveau type d'émetteur optique : le laser à polaritons	15
1.3 La route vers le laser à polaritons à 300 K	18
1.3.1 Histoire des microcavités ZnO au sein du laboratoire Charles Coulomb	18
1.3.2 Etat de l'art des lasers à polaritons à température ambiante	21
2 Microcavité à mesas : vers les condensats à géométrie contrôlée	23
2.1 Etat de l'art des cavités à couche active massive ZnO	23
2.2 Cavité à mesas	24
2.3 Caractérisation de la cavité	28
2.4 Spectroscopie linéaire : mesure du couplage fort	32
2.4.1 Mesures expérimentales	32
2.5 Photoluminescence résolue en angle et laser à polaritons	35
2.6 Contrôle de la géométrie des condensats	40
3 Propagation des condensats de polaritons dans une cavité à gradient d'épaisseur	47
3.1 Introduction	47
3.2 Topographie du paysage photonique et choix des points d'étude	51
3.3 Imagerie des condensats par tomographie	52
3.4 Modélisation de la propagation	60
3.4.1 Choix des paramètres du modèle	61
3.4.2 Modélisation d'un condensat à désaccord nul	63
3.4.3 Modélisation d'un condensat de polaritons à désaccord positif	65

3.4.4 Discussion	66
3.5 Conclusion	68
Conclusion	73
Bibliographie	75
A Dispositifs expérimentaux	83
B Résolution numérique par la méthode de Runge Kutta d'ordre 4	87

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au laboratoire Charles Coulomb à l'Université de Montpellier. Je considère ce travail comme un accomplissement collectif, pour lequel je tiens à remercier tous ceux qui, directement ou indirectement, ont contribué à sa réussite.

Je remercie tous les membres de mon jury : Bruno Gayral, Mathieu Gallart, Jesús Zúñiga-Pérez, Sihem Jaziri et Benoît Rufflé pour avoir attentivement examiné et évalué mon manuscrit. Merci à Brahim Guizal d'avoir accepté de présider ce jury.

Je tiens à particulièrement exprimer ma gratitude à mon directeur de thèse Thierry Guillet, qui a été durant ses trois années de thèse un soutien infailible et qui a toujours fait preuve d'une grande patience et de beaucoup de pédagogie. Ce travail n'aurait certainement pas abouti sans l'aide de ma co-directrice de thèse Christelle Brimont, qui a toujours été de bon conseil et toujours disponible pour passer des (longues) heures en salle de manip en ma compagnie.

Merci à Bernard Gil pour son accompagnement constant et sa sollicitude constante pour l'avancée de ce projet. Un grand merci à mes collègues doctorants Julien Sellés et Daniel Rosales, fidèles compagnons d'armes avec qui j'ai eu des discussions plus qu'intéressantes sur des sujets aussi divers que la géopolitique, les conditionnements induits ou le système capitaliste. Merci également à Olfa Kamoun et Hamis Gargoubi sans qui la compréhension sur les phénomènes physiques induits dans la génération et la propagation des polaritons n'aurait pas pu avancé.

Une pensée particulière pour Pierre Valvin qui, bien plus qu'un collègue de travail qui m'a permis de devenir un meilleur expérimentateur, a été une source d'ouverture d'esprit sur l'astronomie et le jazz. Je tiens également à remercier Boris Chenaud pour m'avoir ouvert les portes du monde militant ainsi que pour m'avoir donné la chance de participer à la fête des Sciences.

Je remercie également Christelle Eve et Patrick Ejarque pour leur aide au combien nécessaire pour les formalités administratives, ainsi que pour m'avoir convier à l'organisation de la conférence PLMCN2014.

Merci à ma femme pour avoir toujours été à mes côtés et pour avoir toujours eu foi en moi. Je ne serai sans doute pas aller au bout de cette aventure sans toi.

Merci à ma famille pour m'avoir soutenu jusqu'au bout de la thèse. Papa, Maman, Ariitu et Timeri, ce manuscrit vous est dédié.

Enfin, un grand merci à mes amis sportifs : Caro dit "Lucette" et Nico dit "Francis",

le couple infatigable qui aura sans doute fait un million de burpees avant la fin de l'année 2016. Vincent et Claudia, les marathoniens de l'effort, Mathieu alias "Robin Dude" et Flo la femme aux cuisses "pumpées", Isa la championne des tractions, Yohann le "bébé heureux" ainsi que Pascal et Laure.

Introduction

Le condensat de Bose-Einstein à atomes froids est un état de la matière prédit par Albert Einstein en 1925. Sa particularité provient du fait qu'il s'agit d'un état quantique macroscopique, c'est-à-dire un regroupement d'atomes (ou plus exactement de bosons) dans un même état quantique. Ce phénomène expérimental remarquable a été réalisé plus de 70 ans après sa prédiction par les équipes de Wolfgang Ketterle, Eric Cornell et Carl Wieman dans des gaz d'atomes très dilués et à des températures de l'ordre de 10^{-7} K.

Outre les gaz d'atomes froids, d'autres systèmes bosoniques ont été explorés, par exemple dans les matériaux semiconducteurs et leurs hétérostructures. C'est le cas notamment des polaritons de microcavités, qui sont des bosons composites issus du couplage fort entre les excitons (électrons et trous en interaction coulombienne au sein d'une couche active semiconductrice) et les photons (ici confinés dans une microcavité). Du fait de leur masse effective de près de huit ordres de grandeur inférieure à celle des atomes, les polaritons ont la possibilité de condenser à des températures supérieures à celles des gaz d'atomes dilués.

Depuis la démonstration expérimentale du couplage fort exciton-photon [WNIA92] puis celle de la condensation de Bose-Einstein de polaritons dans une microcavité CdTe [KRK⁺06], un panel de recherche fertile a émergé. Il est basé d'une part sur l'étude des propriétés physiques des condensats de polaritons, dans une voie analogue à celle des condensats d'atomes froids, et d'autre part sur l'obtention d'un émetteur optique cohérent à faible seuil, analogue à un laser. La condensation des polaritons a été pour la première fois obtenue dans une cavité CdTe à des températures cryogéniques [DHA⁺98]. Dans l'optique de la réalisation de dispositifs basés sur la physique des polaritons à température ambiante, l'étude de matériaux possédant des propriétés intrinsèques plus robustes s'avère prometteuse. Récemment le couplage fort et la condensation des polaritons ont été réalisés à température ambiante dans des microcavités GaN [CvHG⁺07], [BLC⁺09] mais également dans des microcavités ZnO [SGRC⁺08, LOK⁺13, ZPMH⁺14, XXL⁺14]. En effet, l'énergie de liaison des excitons de ces deux matériaux (respectivement 25 et 60 meV) est supérieure à celle de l'agitation thermique à température ambiante (25 meV), leur permettant ainsi de ne pas s'ioniser à 300 K. De plus, ils possèdent une grande force d'oscillateur permettant l'observation du couplage fort à cette même température. Dans le cas particulier de ZnO, la très grande force d'oscillateur assure théoriquement l'accès à des condensats à la fois très excitoniques ou très photoniques, renforçant l'intérêt

expérimental de ce matériau.

Nos travaux portant sur l'étude du comportement dynamique des polaritons dans les microcavités ZnO, ont été menés en collaboration étroite avec J. Zúñiga-Pérez, F. Semond, M. Leroux et J.Y. Duboz du Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications (CRHEA), S. Bouchoule du Laboratoire de Photonique et de Nanostructure (LPN) et les équipes de J. Leymarie et G. Malpuech de l'Institut Pascal. Les débuts de la collaboration (2007-2011) se sont concentrés sur l'obtention du couplage fort et du laser à polaritons pour des microcavités contenant une couche active de ZnO massif. Le facteur limitant était le facteur de qualité des miroirs de Bragg utilisés. Celui-ci a finalement pu être dépassé : l'ensemble de ces travaux ont fait l'objet, entre autres, des thèses de Stéphane Faure [Fau09] et Feng Li [Li13]. Mon travail de thèse a consisté à étudier les propriétés physiques des condensats de polaritons générés dans ces cavités, en particulier à température ambiante.

Le contrôle des condensats et leur manipulation est une problématique qui a mené à des expériences de contrôle de la géométrie des condensats dans les microcavités GaAs [CDC⁺13, AOK⁺13] mais n'a pas fait l'objet de recherches poussées dans les cavités CdTe, GaN ou les matériaux organiques. Dans cette thèse, nous avons étudié des condensats de polaritons étendus et contrôlés à 300 K : pour cela, une nouvelle microcavité spécifique a été caractérisée et nous avons considéré ses propriétés suffisamment homogènes pour réaliser des condensats de polaritons étendus. Généralement, les condensats ne suivent pas le profil du laser d'excitation car ils ne sont pas statiques et interagissent avec leur environnement et avec les excitons non condensés. Sur une autre microcavité dont la variation de l'épaisseur est importante, nous avons étudié la propagation des condensats de polaritons à 80 K et à température ambiante. La modélisation de cette propagation nous a notamment permis de mieux comprendre quels étaient les phénomènes mis en jeu dans le régime d'excitation fortement focalisée ou en excitation étendue.

Le premier chapitre, introductif, sera découpé en trois sections. La première portera sur la description des polaritons de microcavité. Après avoir introduit les deux briques de base de cette quasiparticule (l'exciton et le photon de microcavité), une comparaison entre les caractéristiques intrinsèques de ZnO avec celles des autres matériaux sera apportée, justifiant ainsi la pertinence de ZnO pour la conception de dispositifs à température ambiante. La deuxième partie sera consacrée au laser à polaritons. Enfin l'historique des microcavités ZnO conçues au sein de notre collaboration sera rappelé et nous dresserons l'état de l'art des lasers à polaritons opérationnels à température ambiante.

Dans le chapitre suivant, nous présentons une nouvelle microcavité ZnO d'épaisseur constante et de facteur de qualité important développée au sein de notre collaboration. Dans un premier temps, nous avons déduit ces paramètres caractéristiques en modélisant les résultats expérimentaux obtenus : cartographies spatiale et angulaire de l'émission, réflectivité en régime linéaire et laser à polaritons. Ensuite nous avons effectué des expériences de contrôle de la géométrie de condensats de polaritons : excitation allongée,

limitée à une dimension et annulaire.

Enfin, le troisième chapitre est consacré aux expériences de propagation des condensats de polaritons. Dans un premier temps, nous décrivons l'expérience d'imagerie de photoluminescence en champ proche et en champ lointain que nous avons mise en place dans le cadre de la thèse. Par la suite, nous montrons les résultats expérimentaux de condensats créés sur deux zones très différentes de l'échantillon. Enfin en nous appuyant sur la modélisation de ces résultats, nous concluons sur les phénomènes mis en jeu dans la propagation et plus précisément lorsque nous utilisons une excitation fortement focalisée.

Chapitre 1

Les polaritons : du couplage exciton-photon au laser à polaritons

Ce chapitre est une introduction aux polaritons de microcavité et à l'une de ses applications expérimentales : le laser à polaritons. Dans un premier temps, nous rappellerons les propriétés des deux briques de base du polariton que sont les excitons et les photons confinés dans des microcavités planaires et nous verrons ensuite les conditions nécessaires au couplage fort exciton-photon, autrement dit, à l'existence du polariton. Dans un deuxième temps, nous parlerons de la condensation des polaritons et plus spécifiquement du laser à polaritons. Nous dresserons par la suite l'état de l'art des recherches sur le laser à polaritons à température ambiante et un historique des travaux récents au sein du laboratoire Charles Coulomb. Ces avancées technologiques ont été possibles par l'utilisation de la filière ZnO (oxyde de zinc).

1.1 De l'exciton au polariton de microcavité

1.1.1 Exciton de Wannier-Mott

Les matériaux semiconducteurs sont des cristaux, décrits comme un agencement périodique d'atomes placés aux nœuds d'un réseau. La structure énergétique de ces matériaux est gouvernée par les interactions électroniques des atomes le constituant. Dans le cas général, celles-ci sont relativement complexes à décrire, toutefois il est possible de faire des approximations facilitant la résolution du problème : nous pourrions par exemple citer la méthode LCAO (Linear Combinations of Atomic Orbitals), la méthode OPW (Orthogonalized Plane Waves) ou la méthode du pseudopotentiel [Mat04]. La structure énergétique d'un atome est décrite en terme d'orbitales atomiques, ce qui se traduit par l'existence de niveaux d'énergie discrets disponibles. Au sein du réseau cristallin, les orbitales atomiques se couplent pour constituer des orbitales moléculaires qui deviennent les nouveaux états propres du système. Le système passe alors d'une configuration en niveaux d'énergie discrets disponibles pour les électrons, à des continums d'états représentés sous la forme

1.1 De l'exciton au polariton de microcavité

d'une structure de bandes (figure 1.1).

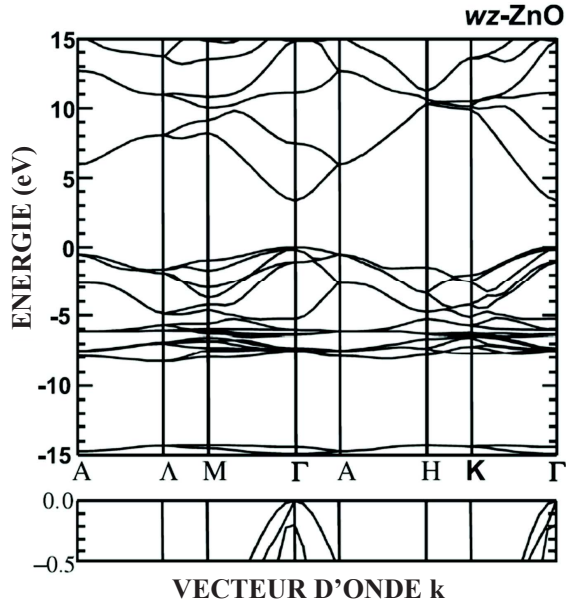


FIGURE 1.1 – Exemple d'une structure de bande : ZnO sous forme wurtzite calculée par la méthode empirique des pseudopotentiels [JC12].

La bande interdite, aussi appelée gap E_g du matériau est l'énergie minimum séparant les bandes supérieures, dites de conduction, des bandes inférieures appelées bandes de valence. La figure 1.1 indique que ZnO est un semiconducteur dans lequel le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction se situe au même point de l'espace k (ici au centre de la zone de Brillouin en Γ) ce qui en fait un semiconducteur à gap direct. Dans l'état fondamental du cristal, tous les électrons du réseau sont dans la bande de valence. En optique, l'état excité est obtenu en portant un électron de la bande de valence à la bande de conduction, ce qui laisse un état inoccupé dans la bande de valence. C'est ainsi qu'est introduit le concept de trou, quasiparticule de charge opposée à celle de l'électron, créée par l'absence d'un électron dans la bande de valence. L'interaction coulombienne non négligeable pouvant exister entre électron et trou donne lieu à la formation d'un nouvel état lié : l'exciton.

Relation de dispersion Les états propres de l'exciton peuvent être calculés en résolvant l'équation de Schrödinger. L'hamiltonien du système est la somme des hamiltoniens du trou et de l'électron, décrits dans l'approximation de la masse effective, et du terme d'interaction coulombienne :

$$H = -\frac{\hbar^2 \nabla_e^2}{2m_e^*} - \frac{\hbar^2 \nabla_h^2}{2m_h^*} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r \|\vec{R}_e - \vec{R}_h\|} \quad (1.1)$$

où $\vec{R}_{e,h}$ est la coordonnée de l'électron (trou), $m_{e,h}^*$ la masse effective de l'électron (trou), $\nabla_{e,h}$ l'opérateur laplacien dans le système de coordonnées de chacune des particules, ϵ_0 la permittivité du vide et ϵ_r la permittivité relative du semiconducteur étudié. Ce

système peut-être assimilé à un atome d'hydrogène, le trou remplaçant ici le proton, dont les énergies de liaison E_n^l sont bien connues. Par résolution de l'équation de Schrödinger, la relation de dispersion des excitons s'écrit :

$$E_X(\vec{K}) = E_g - E_n^l + \frac{\hbar^2 K^2}{2M} \quad \text{avec} \quad E_n^l = \frac{E_{Ry}}{n^2} \frac{\mu}{m_0(\epsilon_0\epsilon_r)^2} \quad (1.2)$$

avec μ la masse effective des excitons : $\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}$ et $E_{Ry}=13.6$ eV l'énergie de liaison de l'atome d'hydrogène. \vec{K} est le vecteur d'onde du centre de masse de l'exciton, de nombre quantique (n, l, m) . La taille caractéristique de l'exciton est son rayon de Bohr (a_B^*) :

$$a_B^* = \frac{\hbar^2 \epsilon_0 \epsilon_r}{\mu e^2} \quad (1.3)$$

L'énergie de liaison et le rayon de Bohr sont les deux paramètres clés pour caractériser les excitons des différents matériaux. Ils interviennent notamment dans la détermination du couplage fort exciton-photon, concept que nous nous aborderons après avoir vu les spécificités des photons en microcavité. Les particularités des excitons de Wannier-Mott sont :

- Une énergie de liaison E_n^l que nous renommons E_{Ry^*} (Rydberg effectif) faible devant le gap du matériau. ($E_{Ry^*} < E_g$)
- Un rayon de Bohr grand devant le paramètre de maille a du cristal. ($a_B^* > a$)

Comparaison des caractéristiques des excitons dans différents semiconducteurs : le cas particulier de ZnO Les excitons de ZnO, comparativement aux autres semiconducteurs possèdent une des plus fortes énergies de liaison et un des plus petits rayons de Bohr (voir tableau 1.1). Leur ratio $\frac{a_B^*}{a}$ est très faible, ce qui fait de l'exciton de ZnO un cas limite des excitons de Wannier-Mott.

	GaAs	GaN	ZnO
Rayon de Bohr a_B^* (nm)	13.6	2.8	1.4
Energie de liaison E_{Ry^*} (meV)	4.8	25	60
Gap E_g à 300K(meV)	1420	3420	3370
Paramètre de maille a (nm)	0.565	0.319	0.325
Splitting longitudinal-transverse $\hbar\omega_{LT}$ (meV)	0.08 (X_{HH})	4.7 ($X_A + X_B$)	6.3 ($X_A + X_B$)

Tab. 1.1 – Paramètres des excitons, gap et paramètre de maille de différents semiconducteurs. X_{HH} désigne la transition exciton lourd de GaAs (symétrie blende de zinc), X_A et X_B désignent respectivement les transitions excitons A et B de ZnO et GaN (symétrie wurtzite) [Law71, SSDD73, GCB97, GA97, ZKG⁺02, STZ⁺04, VM03].

L'agitation thermique à température ambiante (300 K) vaut 26 meV et seuls des excitons possédant une énergie de liaison supérieure peuvent rester stables, autrement dit

1.1 De l'exciton au polariton de microcavité

ne pas s'ioniser en électrons et trous. Ici réside l'intérêt pour les excitons de ZnO, GaN ou encore CdSe dans le cas des semiconducteurs inorganiques. Bien que le contrôle dans la fabrication de nanostructures soit à un stade moins avancé qu'un matériau comme GaAs (sur lequel les recherches sur les polaritons sont à un stade plus abouti : nous citerons notamment les travaux portant sur leur polarisation de spin, la superfluidité ou les vortex [TS12, KBML07, DHY10, CC13]). La robustesse des polaritons de ZnO permet en théorie la réalisation de dispositifs polaritoniques fonctionnant à température ambiante, et éventuellement plus ($60\text{meV} \equiv 700\text{K}$).

Force d'oscillateur L'exciton peut en première approximation être décrit comme un oscillateur classique ayant une fréquence de résonance ω_0 (liée à l'énergie de résonance excitonique) et un élargissement homogène γ_h qui traduit l'absorption du matériau. Celui-ci répond à une excitation électromagnétique par l'apparition d'une onde de polarisation proportionnelle au champ électrique $\vec{E}(\omega)$:

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.4)$$

avec χ la susceptibilité diélectrique du matériau. L'exciton suit une relation de dispersion $\hbar\omega(\vec{k})$ et cette dépendance se répercute sur la polarisation [HK94] :

$$\vec{P}(\omega, \vec{k}) = \frac{\epsilon_b \omega_p^2}{\omega_0^2(\vec{k}) - \omega^2 - i\omega\gamma} \vec{E}(\omega) \quad (1.5)$$

avec ϵ_b la constante diélectrique en l'absence de résonances excitoniques et ω_p la pulsation propre à l'oscillation collective de charges. Pour des valeurs proches de la fréquence de résonance, la constante diélectrique ϵ vaut [KBML07] :

$$\epsilon = \epsilon_b + \frac{\epsilon_b \omega_{LT}}{\omega_0(\vec{k}) - \omega - i\gamma_h} \quad (1.6)$$

avec $\omega_{LT} = \omega_p^2/(2\omega_0)$ le splitting longitudinal-transverse. Il caractérise la force du couplage exciton-photon et sa valeur pour différents matériaux est donnée dans le tableau 1.1. Il est directement proportionnel à la force d'oscillateur de l'exciton [KBML07] :

$$f_{osc} = \frac{4\pi\epsilon_0\sqrt{\epsilon_b} m_0 c}{\pi e^2} \omega_{LT} \quad (1.7)$$

Élargissement de la transition excitonique Le profil d'émission de l'exciton est la manifestation optique de la transition quantique d'un état excité à un état de plus basse énergie. Dans les cas les plus courants (exciton lié à une impureté, exciton localisé, exciton dans des puits quantiques 2D) cette émission est quasi-monochromatique et sa largeur ΔE_{if} est déterminée par le principe d'incertitude d'Heisenberg. Expérimentalement, un élargissement de la transition apparaît systématiquement et ses causes peuvent être regroupées en deux catégories dites élargissement *homogène* et élargissement *inhomogène* :

- Dans le cas de l’élargissement homogène γ_h , tous les émetteurs sont identiques. Sa première source est le temps de vie fini de la transition τ : une transition d’un état initial i =exciton, vers un état final f =état vide, a une probabilité finie $1/\tau$ par unité de temps de se produire. Elle ne peut être déterminée avec une précision supérieure à $\Delta E_{if} \approx \hbar/\tau$. Une autre source est le déphasage des particules (élastiques ou inélastiques) par collision ou interaction avec les phonons ; l’élargissement de la transition $\gamma_{h,if}$ s’écrit alors :

$$\gamma_{h,if} = \hbar \left(\frac{1}{\tau_X} + \frac{2}{\tau_{coll}} \right) \quad (1.8)$$

avec τ_X respectivement le temps de vie des excitons et τ_{coll} le temps moyen entre deux collisions. Cette composante dépend donc d’une part de la densité d’excitons dans le système mais également de la température via les interactions avec les phonons. Autrement dit, elle augmente avec la température.

- Lorsque les émetteurs sont différents, ce qui arrive du fait des défauts structuraux (cracks, différences de compositions) de la cavité, nous parlons alors d’élargissement inhomogène. Chaque émetteur ayant une énergie de transition différente, l’énergie des excitons suit une distribution gaussienne de largeur γ_{inh} . Cette source d’élargissement n’étant dépendante que de la qualité de conception de l’échantillon, elle est celle à prendre en compte principalement à basse température.

Limite de l’approximation bosonique : transition de Mott L’augmentation de la densité d’excitons au-delà d’une certaine valeur n_{sat} diminue la stabilité des excitons. Le système final n’est plus un ensemble d’excitons mais plutôt un plasma d’électron-trou et par conséquent les propriétés bosoniques disparaissent pour laisser place à un ensemble de fermions régis par le principe d’exclusion de Pauli. Cette transition est appelée *transition de Mott* et son principe est schématisé sur la figure 1.2. La nature de cette transition (abrupte ou continue) est encore discutée dans les matériaux massifs [Mot78, Zim88]. A température ambiante, celle-ci a été estimée autour de $0.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ [KHF07].

1.1.2 Confinement des photons au sein d’une microcavité plane

Une microcavité est un résonateur optique dont les dimensions sont comparables à la longueur d’onde de la lumière. Elle permet de confiner les photons et par interférences successives de sélectionner les états de la lumière désirés : les modes de cavité. La cavité plane de type Fabry-Pérot sera brièvement décrite et nous nous intéresserons particulièrement au cas où les miroirs la constituant ne sont plus de simples miroirs métalliques mais des miroirs interférentiels dit de Bragg. En effet, toutes les microcavités sur lesquelles nous avons travaillé durant cette thèse font partie de cette dernière catégorie.

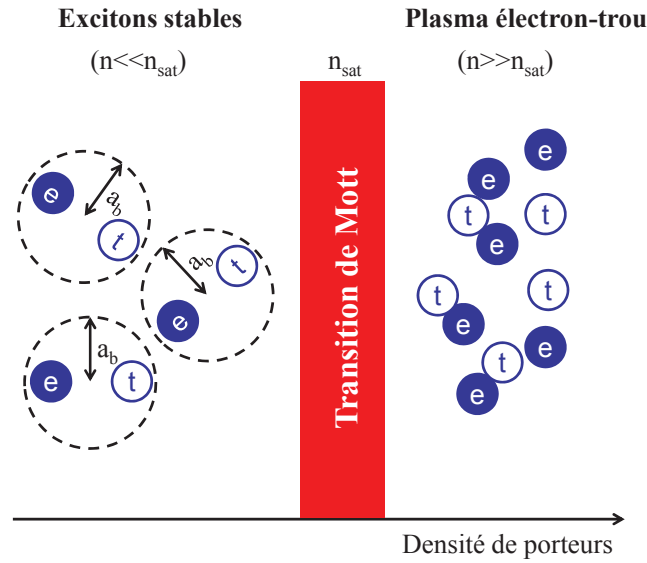


FIGURE 1.2 – Schéma de principe de la transition de Mott.

Propriétés optiques des microcavités Fabry-Pérot Cette cavité est composée de deux miroirs M_1 et M_2 . Ils sont séparés par une couche d'indice n_c et d'épaisseur L_c de seulement quelques longueurs d'onde λ de la lumière. C'est de cette particularité que vient l'appellation *microcavité*. Nous ferons l'approximation que les miroirs sont infinis dans le plan (x,y) (voir figure 1.3).

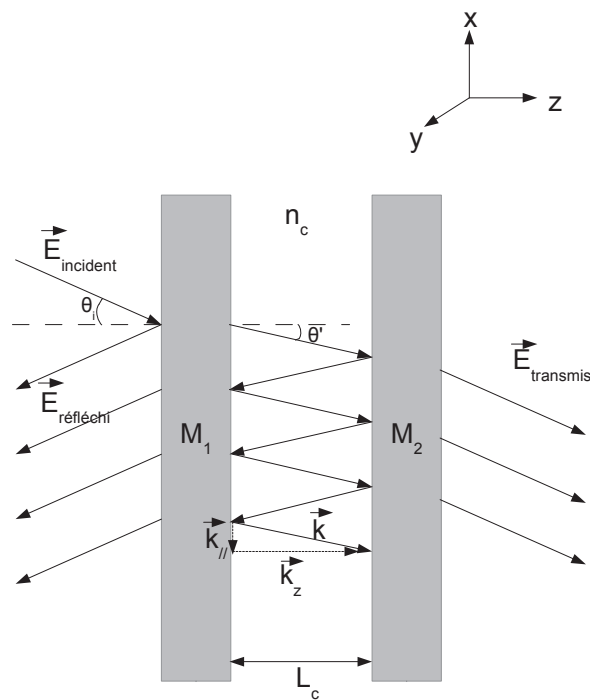


FIGURE 1.3 – Schéma d'un résonateur Fabry-Pérot.

Soit une onde électromagnétique entrant par cette structure du côté de M_1 . La partie transmise va se réfléchir plusieurs fois à l'intérieur de la cavité, et les champs transmis sont en interférence constructive si l'onde satisfait la règle de sélection [Sav99] :

$$k_z L_c = p\pi \quad (1.9)$$

avec k_z la composante suivant z du vecteur d'onde \vec{k} du photon à l'intérieur de la microcavité.

L'intensité réfléchie R est déterminée en fonction des indices de réflexion des miroirs de la cavité r_1 et r_2 et du déphasage ϕ entre chaque onde réfléchie dû à la différence de chemin optique :

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2n_c L_c \cos(\theta') \quad (1.10)$$

avec λ la longueur d'onde de la lumière et θ' l'angle de réfraction dans la cavité (fig.1.3) [BWB+99] :

$$R = \frac{4\sqrt{|r_1|^2 |r_2|^2} \sin^2(\phi/2) / (1 - \sqrt{|r_1|^2 |r_2|^2})^2}{1 + \frac{4\sqrt{|r_1|^2 |r_2|^2}}{(1 - \sqrt{|r_1|^2 |r_2|^2})^2} \sin^2(\frac{\phi}{2})} \quad (1.11)$$

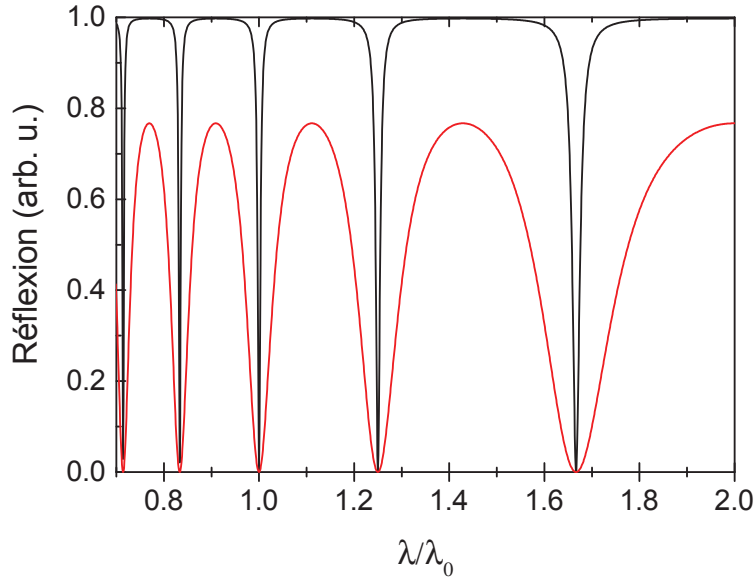


FIGURE 1.4 – Réflexion en incidence normale d'une cavité Fabry-Pérot pour $r_1 = r_2 = 0.95$ (courbe noire) et $r_1 = r_2 = 0.75$ (courbe rouge) pour une couche centrale d'épaisseur $\frac{5\lambda_0}{2}$ avec λ_0 la longueur d'onde d'utilisation désirée.

Nous observons alors des minima en réflexion (maxima en transmission) aux longueurs d'onde $\lambda_p = \frac{L_c}{p2n_c}$: ce sont les modes de la cavité. Pour des miroirs de coefficients de réflexion en amplitude $r_{1,2} < 1$, ces modes ont une largeur spectrale γ_c :

$$2\gamma_c = \frac{1 - |r_1 r_2|}{\sqrt{|r_1 r_2|}} \frac{v}{L_c} \quad (1.12)$$

avec $v = \frac{c}{n_c}$ la célérité de la lumière dans la couche centrale. La sélectivité de la cavité est caractérisée par sa finesse \mathcal{F} , qui est, dans le cas d'une structure passive (c'est à dire sans interaction particulière avec la couche centrale) le rapport entre l'énergie séparant deux modes ΔE et leur largeur à mi-hauteur δE :

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta E}{\delta E} = \pi \frac{\sqrt{|r_1 r_2|}}{1 - |r_1 r_2|} \quad (1.13)$$

Pour les cavités à couche active que nous étudierons, une caractéristique importante est le facteur de qualité Q qui est le rapport entre l'énergie du mode E étudié et sa largeur à mi-hauteur δE :

$$Q = \frac{E}{\delta E} = p\mathcal{F} = p\pi \frac{\sqrt{|r_1 r_2|}}{1 - |r_1 r_2|} \quad (1.14)$$

En effet, le facteur de qualité permet de connaître une propriété importante des photons de la microcavité, à savoir leur temps de vie τ_c (autrement dit, le temps que le photon passe à l'intérieur de la cavité) :

$$\tau_c = \frac{\hbar Q}{E} \quad (1.15)$$

Ainsi plus le facteur de qualité sera grand et plus le temps de vie des photons sera grand, ce qui augmente les possibilités d'interaction entre photons et excitons.

Les microcavités que nous étudions sont des cavités Fabry-Pérot à miroir de Bragg. Dans la suite de cette section, nous verrons les spécificités de ce type de miroir et notamment leur intérêt pour la génération du couplage-fort exciton-photon.

Miroir de Bragg C'est un empilement périodique de deux semiconducteurs d'indices différents n_1 et n_2 (nous noterons qu'il s'agit maintenant des indices de deux couches composant *un seul* miroir). Il est constitué de N paires de couches d'épaisseurs respectives :

$$L_{1,2} = \frac{\lambda_0}{4n_{1,2}} \quad (1.16)$$

où λ_0 est la longueur d'onde d'utilisation du miroir de Bragg. Cette structure est interférentielle pour le champ électromagnétique. Ces interférences sont constructives en réflexion et destructives en transmission. Le coefficient de réflexion total présente une valeur plateau maximale autour d'une longueur d'onde λ_0 : la "stop-band", qui est l'équivalent photonique de la bande interdite des semiconducteurs. Sa valeur autour de λ_0 se détermine analytiquement par la méthode de matrice de transfert, qui est décrite plus en détail dans [Yeh05] :

$$R = \left(\frac{1 - \frac{n_s}{n_0} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N}}{1 + \frac{n_s}{n_0} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N}} \right)^2 \quad (1.17)$$

avec n_s l'indice du substrat, n_0 celui du milieu d'incidence et N le nombre de paires semiconductrices. Un grand nombre de paires N et un contraste d'indice $\Delta n = n_1 - n_2$ élevé permettent d'augmenter à la fois la largeur du plateau et sa valeur maximale, ce qui fait du miroir de Bragg un excellent miroir pour des longueurs d'onde proche de λ_0 . Un exemple de réflectivité d'un tel miroir est donné sur la figure 1.5.

Ainsi :

- si nous augmentons l'épaisseur des couches alors la longueur d'onde centrale de la "stop-band" augmente elle aussi et celle-ci se décale vers les basses énergies.
- si nous augmentons le contraste d'indice, la largeur de la "stop band" augmente.
- si nous augmentons le nombre de paires, le réflectivité maximale $R(\lambda_0)$ se rapproche de 100%.

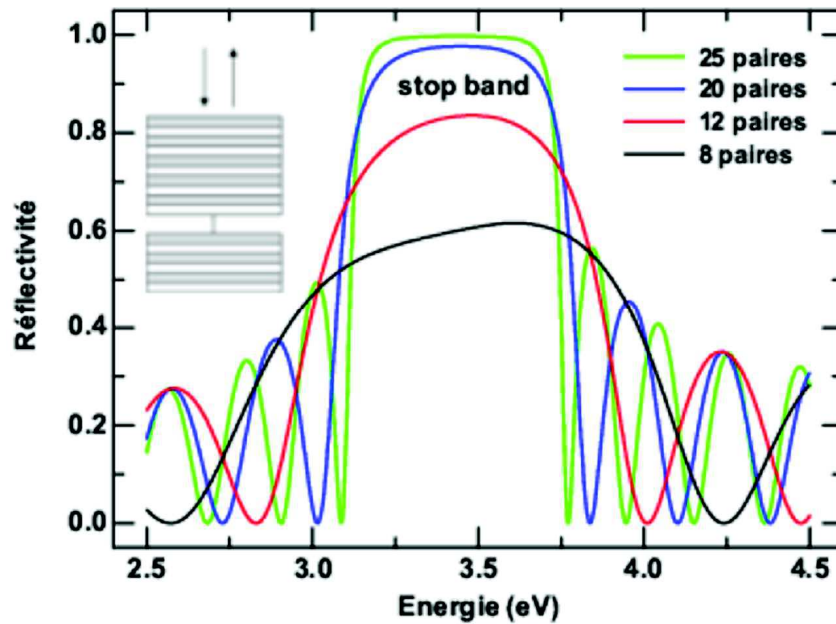


FIGURE 1.5 – Calcul de la réflectivité d'un miroir de Bragg Si_3N_4/SiO_2 de 8, 12, 20 et 25 paires. Un schéma de la structure du miroir est donné en haut à gauche [Fau09].

Microcavité à miroirs de Bragg C'est une microcavité Fabry-Pérot composée de deux miroirs de Bragg séparés par une couche active semiconductrice. L'assemblage de ces deux structures favorise la sélection exclusive d'une longueur d'onde transmise, facilitant le couplage exciton-photon. L'épaisseur de la couche active est déterminée par :

1.1 De l'exciton au polariton de microcavité

$$n_c L_c = p \frac{\lambda_0}{2} \quad (1.18)$$

(où p est l'ordre de la cavité) ainsi que l'équation 1.16. La réflectivité de la cavité prend alors la forme d'une "stop-band" dans laquelle apparaissent des pics en transmission, aux longueurs d'onde respectant la condition de l'équation 1.18 et comprises dans la largeur de la bande interdite photonique, avec une transmission maximale pour $\lambda = \lambda_0$ (les nouveaux modes de la cavité). La faible épaisseur de la couche active L_c (une à deux fois $\frac{\lambda_0}{2}$) limite le nombre de modes inclus dans la "stop-band" (un seul dans la figure 1.6).

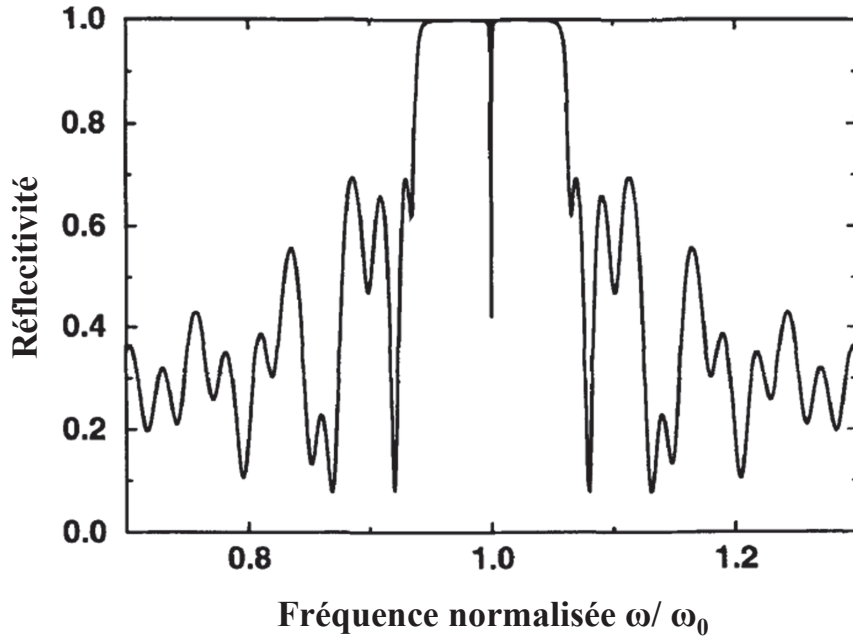


FIGURE 1.6 – Réflectivité d'une microcavité λ à miroir de Bragg en fonction de la fréquence normalisée. L'indice de la couche active n_c vaut 3.5. Pour le DBR : $n_2 = 3$ and $n_1 = 1$, avec 13 paires pour le DBR de gauche et 21.5 paires pour celui de droite [Sav99].

La largeur du mode de cavité γ_c se calcule de la même façon que l'équation 1.12 à une différence près : dans un miroir de Bragg, l'onde électromagnétique pénètre dans les premières couches semiconductrices. Cette longueur de pénétration L_{DBR} va dépendre des indices n_1 et n_2 des couches diélectriques [Sav99] :

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_0}{2} \frac{n_1 n_2}{n_1(n_1 - n_2)} \quad (n_1 > n_2) \quad (1.19)$$

Il faut alors prendre en compte la largeur effective $L_{eff} = L_c + L_{DBR1} + L_{DBR2}$ de la couche active dans l'équation 1.12 :

$$2\gamma_c = \frac{1 - |r_1 r_2|}{\sqrt{|r_1 r_2|}} \frac{v}{L_{eff}} \quad (1.20)$$

Il existe des creux de réflectivité en-dehors de la "stop-band". Ces modes secondaires appelés modes de Bragg sont liés à la pénétration plus lointaine du champ électromagnétique dans les miroirs. Ils sont moins bien confinés au sein de la cavité et par conséquent leur largeur spectrale est supérieure à celle du mode de cavité. Nous reviendrons sur ces modes particuliers lorsque nous évoquerons le couplage fort exciton-photon.

Relation de dispersion des modes Les modes de cavités sont sujets aux mêmes conditions évoquées dans le paragraphe sur les miroirs de Bragg concernant leur vecteur d'onde. La valeur du vecteur d'onde k_z du photon est déterminée par la relation :

$$k_z = \frac{2\pi n_c}{\lambda_c} \quad (1.21)$$

avec λ_c la longueur d'onde de résonance en incidence normale ($\theta_i = 0$ sur la figure 1.3). En revanche le vecteur d'onde \vec{k}_{\parallel} dépend de la valeur de l'angle θ' dans chacune des couches traversées par l'onde électromagnétique. Il est alors possible de donner une relation de dispersion aux photons confinés dans la cavité, leur énergie dépendant explicitement de \vec{k}_{\parallel} :

$$E_c(\vec{k}_{\parallel}) = \frac{\hbar c}{n_c} k = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_{\parallel}^2 + k_z^2} \quad (1.22)$$

Cette nouvelle relation de dispersion permet notamment de faire l'approximation d'une masse effective à petit \vec{k} pour les photons (comme cela a été fait pour les excitons), qui est définie en fonction de la courbure de la relation de dispersion en $\vec{k}_{\parallel} = \vec{0}$:

$$\frac{1}{m_c} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k^2} (\vec{k}_{\parallel} = \vec{0}) \quad (1.23)$$

et donc :

$$m_c = \frac{n_c^2 E_c}{c^2} = \frac{p \hbar \pi n_c}{L_{eff} c} \quad (1.24)$$

Nous noterons que cette masse effective est très faible par rapport à celle de l'exciton (de l'ordre de $10^{-4} m_0$). La courbure de la relation de dispersion étant inversement proportionnelle à la masse de la particule étudiée, nous négligerons dorénavant la courbure des excitons devant celle des photons.

1.1.3 Exciton et photon en couplage fort : le polariton en microcavité

Nous avons vu dans la section précédente quelles étaient les briques de base constituant le polariton : l'exciton et le photon en microcavité. Ces deux éléments sont liés l'un à l'autre dans la microcavité et si la force de couplage est plus grande que les pertes par amortissement, le régime de couplage fort est alors atteint. Le polariton est une

1.1 De l'exciton au polariton de microcavité

particule dont les propriétés varient en fonction de la fraction excitonique (respectivement photonique) de sa fonction d'onde. Le traitement du couplage fort sera fait dans l'approximation semi-classique.

Modèle d'oscillateurs couplés Le système exciton-photon est ramené à celui de deux oscillateurs couplés soumis à des forces d'amortissement représentées par γ_c pour les photons et γ_X pour les excitons. Sachant qu'il y a trois états excitoniques présents dans ZnO, le couplage "un-un" d'un photon avec un état excitonique particulier va dépendre de la valeur de son vecteur d'onde $k_{||}$ et de sa polarisation.

La matrice de quasi-particules qui décrit les interactions exciton-photon proche de la résonance, dans la base des états exciton $|X\rangle$ et photon $|\nu\rangle$ s'écrit :

$$M_{QP}(\vec{k}_{||}) = \begin{pmatrix} E_c(\vec{k}_{||}) - i\gamma_c & V \\ V & E_X(\vec{k}_{||}) - i\gamma_X \end{pmatrix} \quad (1.25)$$

avec $E_c(\vec{k}_{||})$ et $E_X(\vec{k}_{||})$ respectivement l'énergie du photon et de l'exciton. Le terme de couplage V s'écrit [KBML07] :

$$V = \sqrt{\frac{2E_c\omega_{LT}L_c}{\hbar(L_{DBR} + L_c)}} \quad (1.26)$$

Les nouveaux états stationnaires du système sont les vecteurs propres de la matrice 1.25. Il s'agit de deux états d'énergies distincts appelés branche haute polaritonique (Upper Polariton Branch ou UPB) et branche polariton basse (Lower Polariton Branch ou LPB). Leurs relations de dispersion s'écrivent :

$$E_{UPB}(\vec{k}_{||}) = \frac{1}{2}(E_c(\vec{k}_{||}) + E_X(\vec{k}_{||})) - \frac{i}{2}(\gamma_c + \gamma_X) + \frac{\hbar\Omega_R}{2} \quad (1.27)$$

$$E_{LPB}(\vec{k}_{||}) = \frac{1}{2}(E_c(\vec{k}_{||}) + E_X(\vec{k}_{||})) - \frac{i}{2}(\gamma_c + \gamma_X) - \frac{\hbar\Omega_R}{2} \quad (1.28)$$

E_{UPB} et E_{LPB} sont des nombres complexes : leur partie réelle représente l'énergie des modes propres et leur partie imaginaire leur élargissement homogène. La nature du couplage va dépendre de la valeur de la pulsation de Rabi Ω_R :

$$\Omega_R = \sqrt{4V^2 + (\delta - i(\gamma_c - \gamma_X))^2} \quad (1.29)$$

avec $\delta(\vec{k}_{||}) = E_\nu(\vec{k}_{||}) - E_X(\vec{k}_{||})$ le désaccord de la cavité. Celui-ci est un paramètre important car il permet de déterminer la nature du polariton. Nous nous placerons dans le cas où le désaccord $\delta(\vec{k}_{||})$ est nul pour $\vec{k}_{||} = \vec{0}$ (autrement dit, l'exciton et le photon sont en résonance), deux régimes de couplages sont définis à partir de la valeur de la pulsation de Rabi :

$$\text{Si } 4V^2 < |\gamma_X - \gamma_c|^2, \quad (1.30)$$

alors la pulsation de Rabi est un nombre complexe et E_{UPB} et E_{LPB} sont aussi deux nombres complexes qui ne diffèrent que par leur partie imaginaire. Or cela signifie que la branche supérieure et inférieure de polaritons ont la même énergie mais ont des élargissements homogènes différents. Les deux états propres sont alors dégénérés : il n'y a pas de *dédoublment de Rabi*. Ce régime d'interaction est appelé couplage faible. L'approximation du couplage "un pour un" n'est pas valide et c'est le formalisme de la règle d'or de Fermi qui décrit convenablement le système exciton-photon.

En revanche dans le cas où :

$$4V^2 > |\gamma_X - \gamma_c|^2, \quad (1.31)$$

la pulsation de Rabi est un nombre réel et il y a une levée de dégénérescence des états propres polaritoniques. Il s'agit du régime de couplage fort.

Les nouveaux états correspondants s'écrivent comme une combinaison linéaire des états d'exciton $|X\rangle$ et de photon $|\nu\rangle$:

$$|LPB\rangle = X_{\vec{k}_{||}} |X\rangle - C_{\vec{k}_{||}} |\nu\rangle \quad (1.32)$$

$$|UPB\rangle = C_{\vec{k}_{||}} |X\rangle + X_{\vec{k}_{||}} |\nu\rangle \quad (1.33)$$

avec $X_{\vec{k}_{||}}$ (représentant le poids exciton des polaritons) et $C_{\vec{k}_{||}}$ (représentant le poids photon) les coefficients de Hopfield [Hop58]. Ils satisfont la condition : $|X_{\vec{k}_{||}}|^2 + |C_{\vec{k}_{||}}|^2 = 1$ et dépendent directement du désaccord δ de la cavité :

$$X_{\vec{k}_{||}} = \frac{2V}{\sqrt{4V^2 + (\delta(\vec{k}_{||}) + \Omega_R(\vec{k}_{||}))^2}} \quad (1.34)$$

$$C_{\vec{k}_{||}} = \frac{\delta(\vec{k}_{||}) + \Omega_R(\vec{k}_{||})}{\sqrt{4V^2 + (\delta(\vec{k}_{||}) + \Omega_R(\vec{k}_{||}))^2}} \quad (1.35)$$

Le signe du désaccord δ donne accès à la nature de la branche polaritonique étudiée (excitonique ou photonique). Ainsi, il est possible d'ajuster le poids excitonique (ou photonique) du polariton, et donc ses propriétés, en fonction de nos objectifs expérimentaux :

- Dans le cas où δ est négatif, le terme $|C_{\vec{k}_{||}}|^2$ devient plus grand que $|X_{\vec{k}_{||}}|^2$ et le polariton est donc majoritairement photonique : sa masse effective est faible et la force des interactions polariton-polariton aussi. La branche polaritonique basse a une relation de dispersion proche de celle du photon pour des vecteurs d'onde $k_{||}$ proche de 0 et suit celle des excitons à plus grand $k_{||}$ (figure 1.7).a.
- Dans le cas où δ est positif, le terme $|X_{\vec{k}_{||}}|^2$ prend l'ascendant et le polariton est plutôt excitonique : sa masse effective augmente et la force des interactions polariton-polariton augmente (figure 1.7).c.
- Enfin à désaccord nul, le polariton est équilibré (figure 1.7).b.

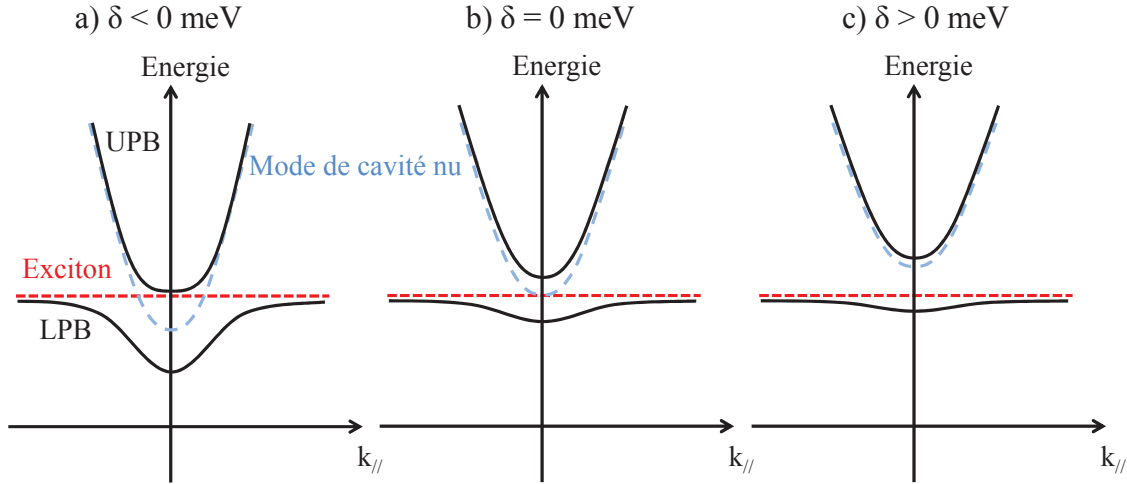


FIGURE 1.7 – Energie des modes de polaritons haut et bas en fonction du vecteur d'onde à désaccord (a) négatif, (b) nul et (c) positif. Les modes non couplés sont représentés en pointillés.

Nous nous intéresserons dans le cas des microcavités ZnO que nous avons étudiées à la branche basse de polariton car les états de la branche haute sont résonants dans le continuum d'états de la bande de conduction et par conséquent celle-ci n'est pas observable dans des expériences de photoluminescence ou de réflectivité (voir [FGL⁺08]).

Autre condition nécessaire au couplage fort et implications sur la microcavité

La réalisation du couplage fort ne dépend pas uniquement de l'équation 1.31 ; il faut également prendre en compte le comportement dynamique de l'interaction lumière-matière. Cette deuxième condition au couplage fort s'écrit :

$$V > \gamma_c, \gamma_X. \quad (1.36)$$

Du point de vue de la structure, il est donc nécessaire d'une part d'optimiser le temps de vie τ_c des photons au sein de la microcavité i.e. le facteur de qualité Q . D'autre part il faut minimiser l'élargissement homogène γ_h : celui-ci est principalement dû aux différentes interactions au sein de la microcavité (exciton-électron, exciton-exciton, exciton-phonon) qui provoquent un déphasage de l'exciton. A faible densité de porteurs γ_h est dominé par les interactions des excitons avec les phonons (vibrations du réseau) qui augmentent avec la température. A plus haute densité, les interactions exciton-exciton et exciton-électron prennent le dessus. L'élargissement inhomogène des excitons n'a pas été traité ici mais peut lui ici intervenir dans la transition vers le couplage faible. La température n'influent généralement pas sur l'élargissement inhomogène, celui-ci devient négligeable devant γ_h à température ambiante. Il ne sera donc pas pris en compte dans la suite de ce chapitre.

1.2 Un nouveau type d'émetteur optique : le laser à polaritons

Polaritons et condensation de Bose-Einstein Les polaritons étant des bosons et ce même à des densités très élevées (jusqu'à 10^{14} excitons/cm²) [SBS⁺00, SCB⁺01], leur comportement collectif est régi par la statistique de Bose-Einstein [Bos24], ils peuvent donc au même titre que les gaz d'atomes froids réaliser la condensation de Bose-Einstein. Du fait de leur composante photonique, leur masse effective est de l'ordre de 10^{-8} fois celle des atomes et 10^{-3} celle des excitons. Or la température critique T_c de condensation est inversement proportionnelle à la masse de la particule étudiée. En effet, d'après [DLR96], pour un gaz de Bose idéal à 3D à une densité n donnée :

$$k_B T_c = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \left(\frac{n}{2.612} \right)^{2/3}, \quad (1.37)$$

avec k_B la constante de Boltzmann et m la masse de la particule étudiée. Cette équation induit une température critique de condensation pour les polaritons bien supérieure à celle des atomes. Typiquement, celle-ci varie expérimentalement de $T=4-50$ K pour les polaritons de GaAs et CdTe [KRK⁺06] à $T=300-450$ K pour ZnO et GaN, à comparer avec 10^{-6} K pour les atomes froids.

Sur le plan expérimental, les condensats de polaritons sont plus faciles à étudier que leurs homologues atomiques car ils ne nécessitent pas de matériel de refroidissement lourd (par hélium liquide contre piégeage laser) et les échantillons utilisés peuvent être inclus dans des dispositifs optoélectroniques. De plus, l'émission mesurée du condensat fournit de nombreuses informations (énergie propre, vecteur d'onde, cohérence) sur le condensat [KBML07].

Néanmoins, contrairement aux gaz d'atomes froids, les polaritons en microcavités sont des systèmes ouverts (interagissant avec leur environnement), ne sont pas en équilibre thermodynamique et ont un temps de vie très faibles (de l'ordre de la ps contre la ms pour les atomes). Ces différents temps caractéristiques et leur impact sur la nature du processus de condensation sont discutés ci-après.

La première démonstration du condensat de Bose-Einstein polaritonique a été réalisée dans une microcavité CdTe [KRK⁺06]. Auparavant, des expériences réalisées sur une microcavité CdTe ont montré une relaxation stimulée des polaritons vers l'état fondamental à $k = 0$ [DHA⁺98] donnant lieu à une émission de lumière non linéaire similaire à celle d'un laser (monochromatique, cohérente et directionnelle). C'est le laser à polaritons.

Dans les microcavités GaAs aux excitons les plus fragiles (voir tableau 1.1), un deuxième seuil de non-linéarité apparaît si la puissance d'excitation continue d'augmenter : la densité de porteurs élargit la transition excitonique qui, lorsqu'elle devient comparable au dédoublement de Rabi, détruit le régime de couplage fort. L'émission laser est alors stimulée par la population de photons : le système devient un VCSEL (Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser). La comparaison des trois régimes est discutée

1.2 Un nouveau type d'émetteur optique : le laser à polaritons

avec pédagogie dans l'article de revue [BKY14].

Dynamique des porteurs dans le processus de condensation La figure 1.8 présente les différents processus menant à la formation d'un condensat de polaritons en microcavité (polaritons 2D). Le système est tout d'abord pompé hors résonance par le laser d'excitation : un grand nombre de paires électrons-trous sont créées dans le continuum d'absorption de la zone active. Ces paires se lient alors pour former des excitons qui relaxent jusqu'à la LPB et, en régime de couplage fort, former des polaritons. Dans un premier temps, le processus de relaxation n'est pas assez efficace pour que les polaritons atteignent l'état de plus basse énergie : l'émission est principalement située à grand angle dans la zone dite de "bottleneck", signature de la nature hors d'équilibre du système. Au-delà d'une certaine densité de polaritons dans l'état $k = 0$ de la branche polaritonique basse, autrement dit d'une certaine densité de porteurs dans le réservoir (seuil de condensation), la relaxation est stimulée par l'état final et une population macroscopique de polaritons se forme dans l'état fondamental ($k = 0$). Si les polaritons de la branche polaritonique basse sont à l'équilibre thermodynamique à $n < n_{seuil}$, nous parlerons de condensat de Bose-Einstein polaritonique, dans le cas contraire, de laser à polaritons.

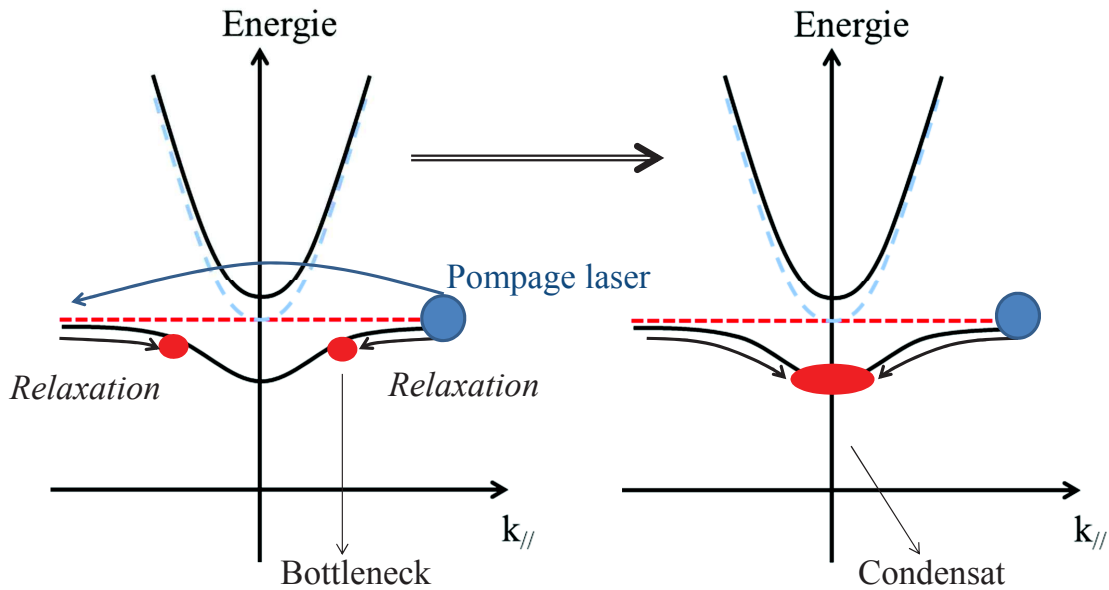


FIGURE 1.8 – Schéma représentant les processus de la condensation des polaritons au niveau de plus basse énergie.

Expérimentalement, l'émission des polaritons devient alors non linéaire et s'affine spectralement comme nous pouvons le voir sur la figure 1.9.a et b. En continuant d'augmenter la puissance d'excitation, cette émission se décale vers les hautes énergies (ce phénomène est aussi appelé blueshift, figure 1.9.c) à cause de l'interaction polariton-réservoir qui augmente, la densité de porteurs peuplant le condensat augmentant elle

aussi.

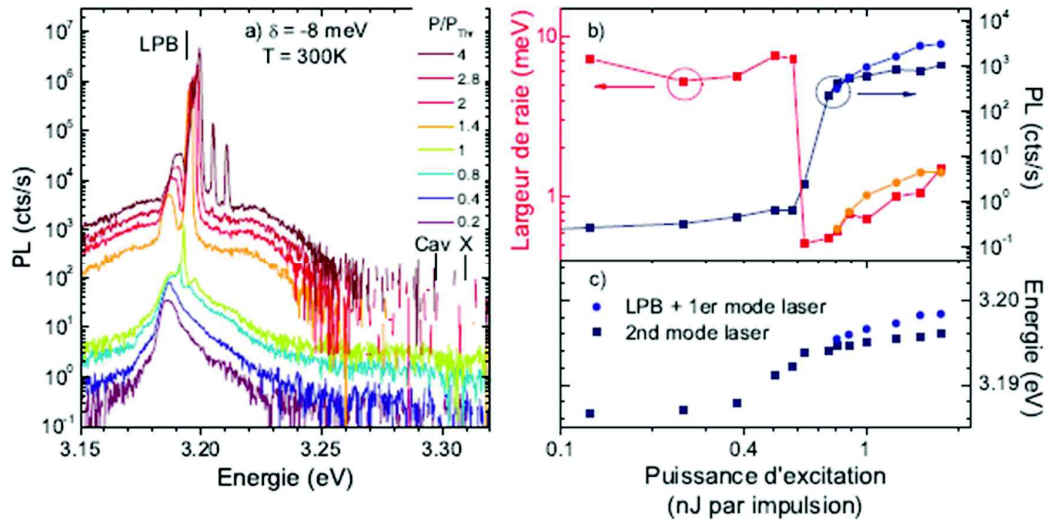


FIGURE 1.9 – (a) Spectres de photoluminescence intégrée en angle pour la cavité ZFeng1 (voir section 1.3) à $T=300\text{ K}$ en fonction de la puissance d’excitation du laser d’excitation. Les énergies de la branche polaritonique basse polaritonique (LPB) et des modes de cavité (Cav) et d’exciton (X) non couplés sont indiquées par des traits verticaux. La structure à 3.188 eV dans les spectres aux 4 plus fortes puissances est un artefact lié au spectromètre. (b,c) Amplitude, largeur et énergie des modes observés (LPB sous le seuil, et deux modes laser au-dessus du seuil). [Gui12, LOK⁺13]

La différence avec le laser traditionnel vient donc principalement du processus d’amplification. En effet, là où l’amplification de l’émission nécessite pour ce dernier une inversion de population, dans le cas du laser à polaritons, le taux de relaxation des porteurs dans l’état de plus basse énergie doit être supérieure au taux de fuite des polaritons (lié au temps de vie des polaritons dans la microcavité). L’état stationnaire du condensat est assuré par l’équilibre dynamique entre les pertes liées à son émission et un remplissage continu du réservoir par pompage optique.

1.3 La route vers le laser à polaritons à 300 K

La thématique des polaritons a fait l'objet de plusieurs travaux de recherche du fait de leurs propriétés collectives intéressantes. Les limites intrinsèques de GaAs et CdTe (énergie de liaison des excitons faible devant l'agitation thermique à 300 K et faible force d'oscillateur) ont orienté la recherche vers d'autres matériaux dont la maîtrise technologique n'était pas aussi grande, afin d'étendre la plage de température accessible aux phénomènes polaritoniques (laser à polaritons, condensation de Bose-Einstein). Les semi-conducteurs à large bande interdite et organiques représentent les matériaux de base à la conception des lasers à polaritons à 300 K principalement car l'énergie de liaison des excitons E_{Ry^*} est comparable sinon supérieure à l'agitation thermique à température ambiante (25 meV). Des expériences ont été menées sur plusieurs candidats (GaN, ZnO, CuCl). Les premières démonstrations du laser à polaritons dans les microcavités CdTe étaient des condensats fragiles, avec un blueshift très élevé au seuil de condensation et un contrôle quasi-nul du désaccord.

1.3.1 Histoire des microcavités ZnO au sein du laboratoire Charles Coulomb

Nous dressons ici un panorama des différentes générations de microcavités ZnO (de 2006 à 2011 fig.1.10) ayant menées à la démonstration du laser à polaritons à 300 K dans la collaboration Charles Coulomb/CRHEA/Institut Pascal/LPN, qui a joué un rôle majeur par ses travaux sur ces microcavités ZnO.

Couplage fort et mesure du dédoublement de Rabi Au sein de la collaboration CRHEA, LPN, Institut Pascal et L2C, l'approche initiale pour la conception des microcavités s'est portée sur l'utilisation de DBR inférieurs AlN/AlGaN. En effet, la très bonne reprise d'épitaxie de ZnO sur AlN permet d'obtenir une couche active de bonne qualité. Le miroir supérieur est au départ métallique comme dans la cavité Z507 [MZPD⁺09, Fau09] (figure 1.10.a). Sur son spectre de réflectivité résolue en angle, nous pouvons observer l'anticroisement de la branche basse de polaritons (trait plein) avec le mode d'exciton nu (en pointillé) à grand angle : c'est l'une des premières cavités ZnO à avoir atteint le régime de couplage fort à 5 K [SXA⁺08]. La modélisation par matrice de transfert a permis de mesurer un Rabi $\hbar\Omega_R$ de 70 meV et un facteur de qualité $Q = 50$.

Bottleneck et relaxation stimulée Le miroir supérieur, au départ métallique, a été remplacé par des miroirs diélectriques dans les cavités suivantes car ils ont une absorption plus faible dans l'ultraviolet, typiquement de l'énergie des excitons de ZnO (3.31 eV à 300K) jusqu'à l'énergie du laser d'excitation (4.66 eV). Leur fabrication a été menée par Sophie Bouchoule au LPN. L'augmentation du facteur de qualité nécessite quant à lui l'augmentation du nombre de paires AlN/AlGaN dans le DBR inférieur. Cette

opération est délicate à mener en raison de la forte contrainte entre couches. La cavité Z536 [FBG⁺09] ($\hbar\Omega_R = 40$ meV à 300K et 60 meV à 77K et $Q = 120$) (figure 1.10.b) a permis de mettre en évidence les mécanismes de la relaxation des polaritons (à désaccord $\delta < 0$) : l'émission est principalement concentrée à $\theta = 15^\circ$ et -40° sur l'image de photoluminescence résolue en angle à $P = P_0$ (effet bottleneck dû à la faible composition excitonique des polaritons) et la relaxation s'accélère avec l'augmentation de la densité de porteurs grâce à l'amélioration de l'interaction des polaritons avec le réservoir.

Première démonstration du laser à polariton En 2011, la première démonstration du laser à polaritons dans une microcavité ZnO a été réalisée à 120 K sur la cavité "semi-hybride" Z739C, en collaboration avec l'équipe de N. Grandjean à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) pour la spectroscopie non-linéaire [GML⁺11] (figure 1.10.c). Les images de photoluminescence résolues en angle indiquent en effet les signatures du laser à polaritons une fois passé le seuil de condensation qui sont : l'affinement spectral de l'émission, le blueshift des polaritons dû aux interactions avec le réservoir de porteurs et l'augmentation non-linéaire de l'intensité de l'émission. Cette dernière cavité atteint les limites ($Q = 450$ et $\hbar\Omega_R = 130 \pm 10$ meV) des réalisations possibles avec des DBR AlGaIn/AlN monolithiques car il est difficile du fait de leurs propriétés structurales de dépasser les 10 paires de couches dans les miroirs de Bragg.

Cavité tout oxyde et diagramme de phase A mon arrivée en thèse en 2012, une nouvelle piste basée sur une approche "tout oxyde" avait été explorée. Les DBR de la cavité ZFeng1 sont en effet tous les deux diélectriques ($\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$) et d'excellente qualité. La difficulté de ce type de DBR vient de leur nature amorphe, qui fait qu'une reprise d'épitaxie de ZnO rend la couche active obligatoirement polycristalline [SGRC⁺08]. L'idée a alors été de partir d'un substrat de ZnO massif de très bonne qualité sur lequel a été déposé un DBR $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ qui deviendra le DBR du bas. L'échantillon a ensuite été reporté sur un substrat de verre. Le ZnO est alors aminci par un polissage et une attaque chimique jusqu'à atteindre une épaisseur inférieure au micron ; enfin, le deuxième miroir diélectrique est alors déposé. Ce procédé de fabrication quasi-artisanal a permis d'obtenir une cavité au facteur de qualité encore inégalé ($Q = 2600$ et $\hbar\Omega_R = 240$ meV) [LOK⁺13]. Elle est relativement épaisse ($5\lambda/2$) et n'ayant pas été épitaxiée, sa surface n'est pas homogène : elle possède des variations fortes d'épaisseur. Cette propriété a permis l'étude de condensats de nature différente (i.e. de polaritons très photoniques à très excitoniques) et pour la première fois dans une microcavité ZnO, le laser à polaritons a pu être obtenu en excitation non résonante jusqu'à $T=300$ K. La figure 1.10.d présente son diagramme de phase ainsi que sa modélisation. La dépendance du seuil en fonction du désaccord est analogue à celle mesurée dans d'autres matériaux [KSA⁺08, LBF⁺10, WFS⁺09]. Elle a été simulée par D. Solnyshkov et G. Malpuech de l'Institut Pascal en effectuant une résolution numérique des équations de Boltzmann [KBML07]. Les expériences de propagation

1.3 La route vers le laser à polaritons à 300 K

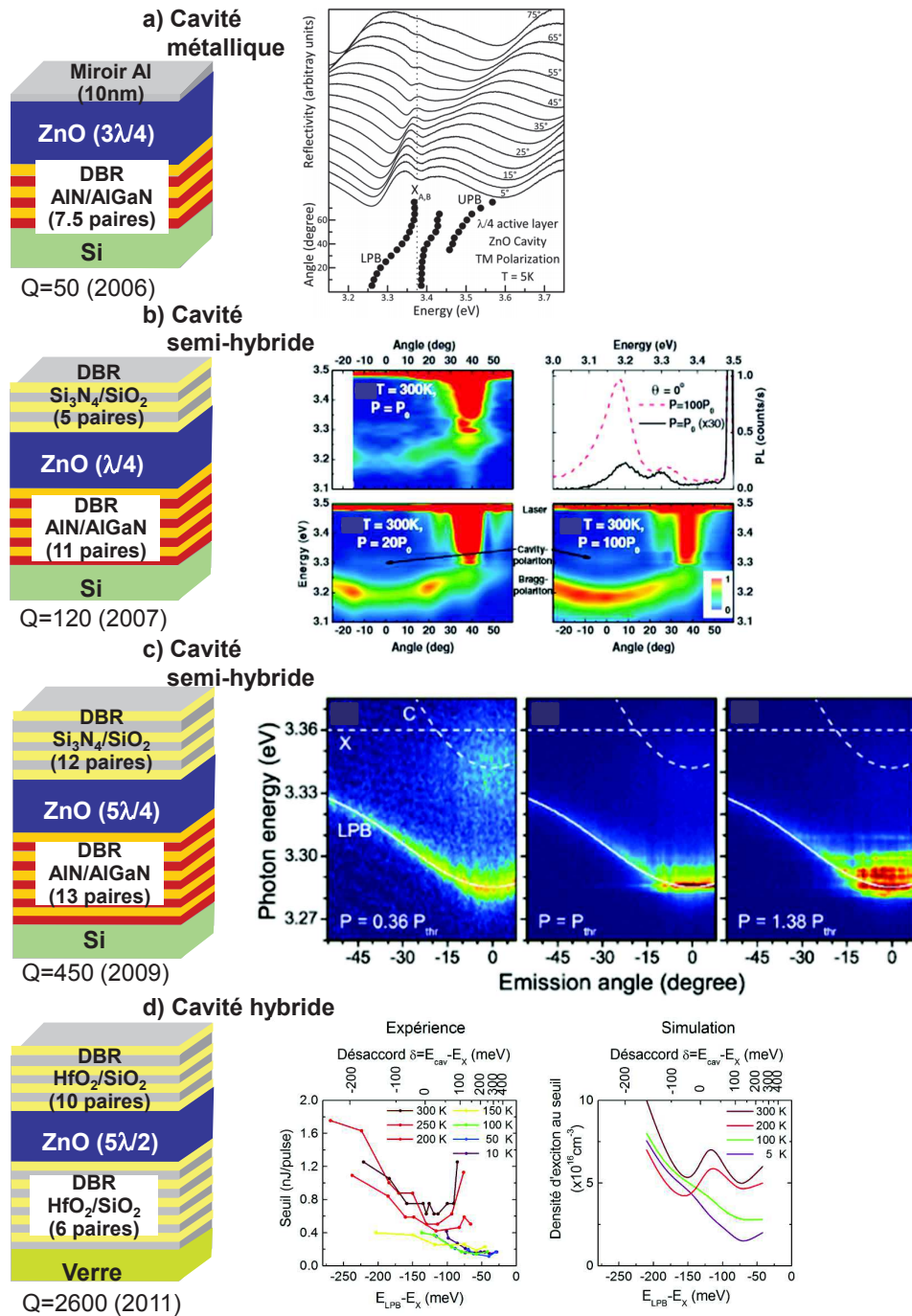


FIGURE 1.10 – Microcavités ZnO réalisées et étudiées au sein de la collaboration CRHEA, LPN, Institut Pascal et L2C. a) Microcavité à miroir inférieur nitrure et miroir supérieur métallique (Z507) et son spectre de réflectivité résolu en angle [MZPD⁺09, Fau09]. La modélisation par matrice de transfert a également été incluse; Microcavités "semi-hybride" à miroir inférieur nitrure et miroir supérieur diélectrique : b) Z536 [FBG⁺09], les images de photoluminescence résolues en angle indiquent les processus de relaxation et c) Z739C [GML⁺11], images de μ -PL résolues en angle; d) Microcavité "hybride" à miroirs de Bragg diélectriques ZFeng1, diagramme de phase et sa modélisation ([LOK⁺13, Li13]).

réalisées sur cette cavité font l'objet du chapitre 3 de cette thèse.

Cavité à mesas Durant ma thèse, une nouvelle microcavité semi-hybride fut conçue et une technique de structuration du substrat de silicium a permis de faire croître 30 paires de couches AlN/AlGaN sans relaxation de la contrainte. Le facteur de qualité a donc augmenté et la couche active a gardé une surface homogène et d'épaisseur $7\lambda/4$. L'étude de cette cavité est l'objet du second chapitre de cette thèse.

1.3.2 Etat de l'art des lasers à polaritons à température ambiante

La problématique du laser à polaritons, comme nous l'avons vue au début de ce chapitre, repose sur l'utilisation de matériaux dont les excitons sont suffisamment robustes pour résister à l'agitation thermique à 300 K. Dans les microcavités ZnO, d'autres équipes de recherche ont travaillé sur les mécanismes de relaxation des polaritons et notamment sur l'influence des phonons dans ce processus [ORM⁺12]. Des expériences de condensation par relaxation paramétrique ont notamment été réalisées sur des microfils de ZnO [XDZ⁺12] ainsi que la condensation de polaritons à 97% excitoniques [TDM⁺13]. Le couplage fort puis le laser à polaritons ont également été réalisés dans des microcavités GaN massives [CvHG⁺07, ZPMH⁺14], avec puits quantiques [BLC⁺09] mais également avec des nanofils de GaN [DHJ⁺11]. Cette diversité de résultats sur GaN s'explique par la meilleure maîtrise technologique de ce matériau comparé à ZnO (nous pourrions notamment citer l'élargissement inhomogène des puits de ZnO/ZnMgO qui est pour le moment trop important pour atteindre le régime de laser à polaritons [HKS⁺11, KSHH11]). Des expériences dans les matériaux organiques sont également menées et les plus récentes ont réussi à atteindre le régime de laser à polaritons à température ambiante dans des cavités d'anthracène [LBS⁺98, KCDF08, KCF10]. Les processus de relaxation sont différents dans les cavités organiques et une caractérisation quantitative des phénomènes impliqués a été traitée dans [MKCMLR13].

Injection électrique Toutes les cavités décrites précédemment dépendent d'une excitation optique afin de pomper le système et remplir le réservoir de porteurs. La question de l'injection électrique est un pas supplémentaire vers une éventuelle application du laser à polaritons. Celui-ci avec injection électrique a été démontré pour la première fois dans des expériences de photoluminescence sous champ magnétique dans une microcavité à multi-puits quantiques GaAs/AlAs par l'équipe de Sven Höfling [SRIK⁺13]. Plus récemment, l'équipe de recherche de Pallab Bhattacharya est la première à avoir réalisé le laser à polaritons par injection électrique à 300 K dans une microcavité GaN [BFD⁺14]. Ce dernier résultat est toutefois encore controversé.

Chapitre 2

Microcavité à mesas : vers les condensats à géométrie contrôlée

Dans ce chapitre, nous parlerons des expériences menées sur un nouveau type de cavité semi-hybride appelée cavité à mesas. Nous expliquerons comment la structuration de la cavité a permis d'augmenter le nombre de paires du DBR nitrure et *in fine* d'augmenter son facteur de qualité Q . Nous discuterons de la caractérisation de cette cavité et notamment celle de son état de surface car il est un facteur important pour la réalisation de condensats à géométrie contrôlée.

2.1 Etat de l'art des cavités à couche active massive ZnO

Dans le chapitre précédent, nous avons énuméré les principales cavités ZnO étudiées au laboratoire Charles Coulomb avant le début de cette thèse. Les critères importants dans la réalisation d'une microcavité sont : le facteur de qualité Q (car il est directement proportionnel au temps de vie τ_c des photons dans la cavité), l'homogénéité de la surface de la couche active (qui peut augmenter l'élargissement inhomogène et à terme empêcher le couplage fort) et la maîtrise du procédé de fabrication, autrement dit la reproductibilité de la structure. La figure 2.1 dresse un panorama de différentes microcavités ZnO en fonction de ces trois objectifs. L'approche dite "tout oxyde" vue avec ZFeng1 dans le chapitre 1 repose sur l'optimisation de la stop-band de la réflectivité par l'utilisation de miroirs diélectriques. En effet, ceux-ci apparaissent comme le meilleur choix pour constituer les miroirs de Bragg car leur contraste d'indice est particulièrement élevé ($n_{HfO_2}/n_{SiO_2} = 1.35$ contre $n_{AlGaIn}/n_{AlN} = 1.14$). Si cette démarche est celle à privilégier en théorie, il en va différemment concrètement. Comme nous l'avons vu précédemment, la croissance de ZnO sur ces DBR amorphes implique que la couche active sera polycristalline. La cavité de Grund-Schmidt (avec des DBR ZrO_2/MgO) est un exemple d'une cavité dont le facteur de qualité est bon ($Q=450$) mais dont la couche active de

ZnO revêt ce caractère polycristallin [SGRC+08].

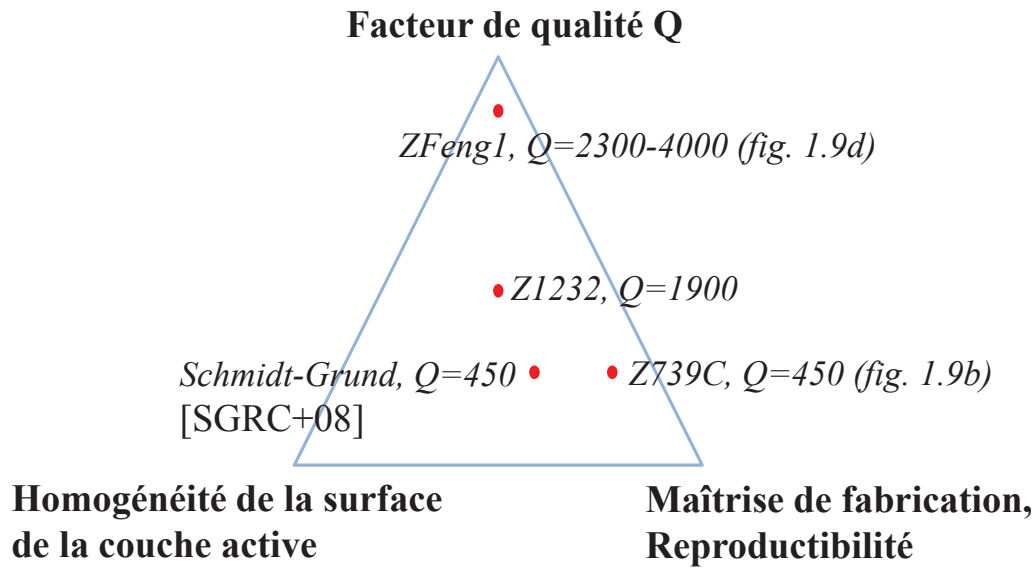


FIGURE 2.1 – Classement de différentes cavités en fonction : du facteur de qualité, l’homogénéité de la surface et la reproductibilité de la structure.

La cavité ZFeng1 fut l’une des premières cavités ZnO à atteindre le régime de laser à polaritons à température ambiante et la qualité exceptionnelle des DBR $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ lui a permis d’atteindre un facteur de qualité encore inégalé ($2300 < Q < 4000$) [Li13]. Malheureusement, en plus d’une variation d’épaisseur importante, le procédé de fabrication de cette cavité est complexe à reproduire. L’approche semi-hybride semblait atteindre ses limites avec la cavité Z739C [GBV+11]. Malgré des procédés de fabrication reproductibles, l’amélioration du facteur de qualité $Q = 450$ se heurtait aux fortes contraintes des couches AlN/AlGaN qui limitaient le nombre de paires. De plus, ces mêmes contraintes créent des cracks à la surface de l’échantillon ne permettant pas la génération d’un condensat de polaritons homogène. Dans ce chapitre, nous présenterons une nouvelle microcavité "semi-hybride" ZnO avec une couche active d’épaisseur $7\lambda/4$ et un nombre de paires de miroirs AlN/AlGaN encore jamais atteint. Comme nous pouvons le voir sur la figure 2.1, ces caractéristiques en font une cavité "équilibrée", vis-à-vis des 3 critères choisis, et les premières expériences de contrôle de la géométrie des condensats de polariton ont été réalisées sur cette cavité.

2.2 Cavité à mesas

Stratégie de fabrication Comme nous l’avons vu dans le chapitre 1, le défi expérimental des cavités à miroir inférieur AlN/AlGaN consiste principalement dans l’augmentation du nombre de paires du DBR et par extension celle du facteur de qualité Q . En effet le

potentiel des polaritons à être manipulés ou contrôlés va dépendre du temps de vie des photons au sein de la cavité, qui est proportionnel à Q . Le choix de Fabrice Semond et Jesus Zuniga-Perez du CRHEA s'est porté sur la réalisation d'un miroir de Bragg à base de couches AlN/AlGaN [ZPMH⁺14] :

- la croissance de ces couches s'est faite sur un substrat de silicium, ce qui est un avantage pour de futures applications.
- le paramètre de maille des DBR nitrure est proche de celui de ZnO ($a_{ZnO}/a_{AlN}=1.04$) ce qui permet une diminution de la contrainte exercée sur la couche active et donc la limitation de défauts de surface dans ZnO.

La nécessité d'avoir un nombre de paires N de couches semiconductrices supérieur à celui de miroirs diélectriques pour obtenir un facteur de qualité Q équivalent rend la tâche difficile car son accroissement pose plusieurs problèmes :

- Une importante contrainte interne se crée dans le DBR en raison de la différence de maille entre AlN et AlGaN.
- La différence de coefficient d'expansion thermique entre les nitrures et le substrat peut former des "cracks" lors du refroidissement de l'échantillon de la température de croissance à la température ambiante.
- Les variations d'épaisseur ou de composition des couches composant le DBR influencent les propriétés photoniques du miroir.

Afin de pallier à l'apparition des cracks, nos collaborateurs ont eu l'idée de faire croître les DBR sur des substrats de silicium préparés : des mesas de différentes tailles ($50 \times 50 \mu m^2$ à $500 \times 500 \mu m^2$) et de différentes formes (hexagonale, carré, etc...) ont été gravés dans le silicium avant de faire croître les miroirs. La figure 2.2 présente les différentes étapes de croissance de la cavité. Un masque représentant les motifs des mesas est placé sur le substrat de silicium. Une attaque chimique permet ensuite de créer les mesas (2.2.a).

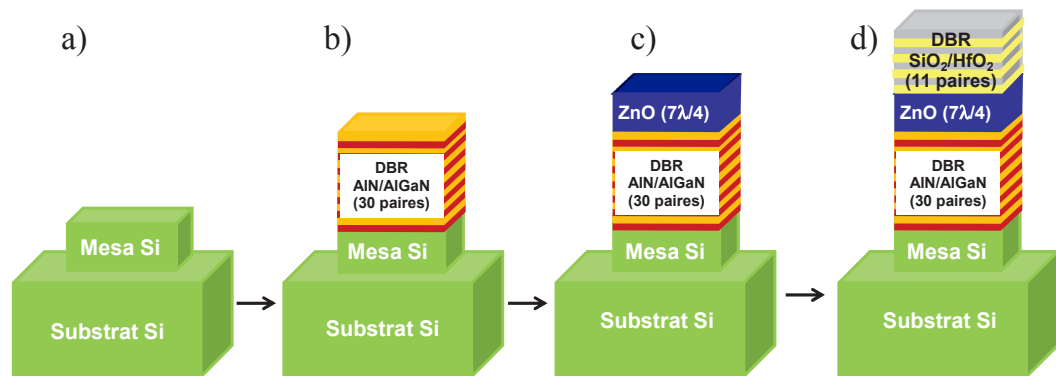


FIGURE 2.2 – Schéma du processus de fabrication de la cavité à mesas (les dépôts de couches sur les parties non structurées du substrat n'ont pas été représentés).

2.2 Cavité à mesas

Cette structuration du substrat permet la relaxation de la contrainte lors de la croissance du DBR nitrure sur les bords des mesas. Ainsi, un miroir de Bragg de 30 paires $\text{AlN}/\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ sans cracks a pu être réalisé (2.2.b) ce qui est une avancée importante en regard des premières cavités ZnO réalisées par le CRHEA (pour rappel, le DBR inférieur de la cavité semihybride Z739C ne comptait que 13 paires AlN/AlGaN). Par la suite, une couche active $7\lambda/4$ de ZnO a été crûe par Épitaxie à Jet Moléculaire (MBE) par Jesus Zuniga-Perez sans rotation du substrat (2.2.c), ce qui a eu pour effet de créer un léger gradient d'épaisseur (quelques dizaines de nanomètres le long d'un substrat de 2 pouces) sur l'échantillon. Le désaccord engendré permet l'étude de polaritons de différents désaccords exciton-photon. Enfin, un DBR diélectrique $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ de 11 paires conçu par Sophie Bouchoule au LPN a été déposé sur la couche active (2.2.d) [ZPMH⁺14].

Etat de surface La figure 2.3.a présente une image de Microscopie Electronique à Balayage (SEM) d'une mesa de la cavité Z1232. La résolution de l'image permet d'apprécier l'état de surface de la structure sur laquelle aucun crack n'est apparu à l'issue de la fabrication.

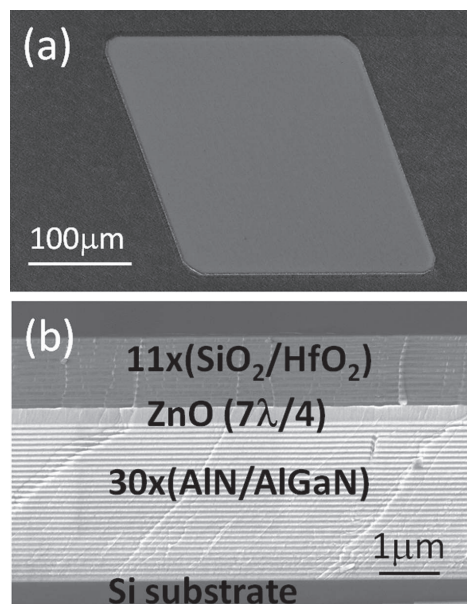


FIGURE 2.3 – Images de microscopie électronique à balayage de la cavité ZnO à mesas (a) Vue du dessus d'une mesa de forme "diamant" sans cracks visibles à la surface (b) Coupe complète de la microcavité avec indication de la composition des couches.

Une coupe de la structure complète est présentée sur la figure 2.3.b. Nous pouvons constater que la relaxation de la contrainte a lieu sur le côté de la mesa, ce qui explique l'absence de cracks sur l'image 2.3.a. Pour comparaison, la figure 2.4 montre deux parties distinctes de la cavité vue du dessus : à gauche la partie structurée de l'échantillon avec des mesas carré droits (partie centrale) et tournés à 45° (extrémités supérieure et inférieure), à droite une partie non structurée. Nous pouvons clairement distinguer une

densité de cracks beaucoup moins élevée sur la partie structurée (quelques cracks sur les mesas entourés en rouge) alors que l'intégralité de la surface sans traitement est craquelée, la contrainte étant relaxée sur toute la longueur de l'échantillon. La proportion de mesas sans fissures est de l'ordre de 50%.

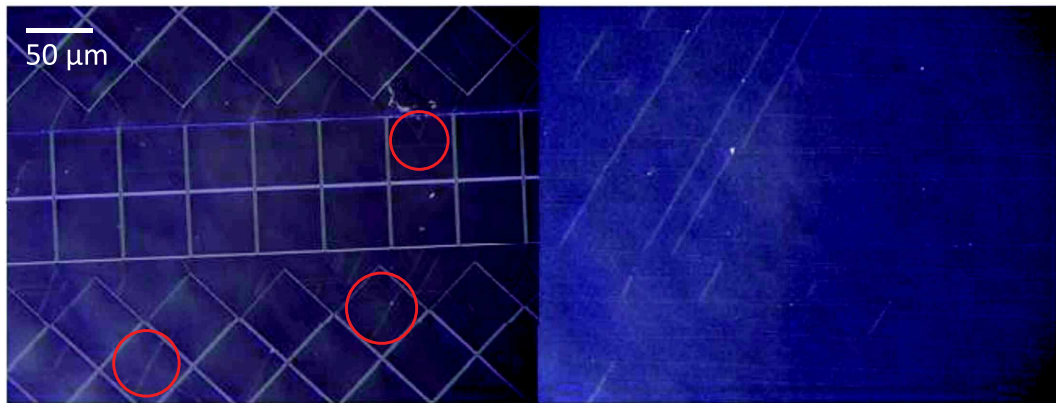


FIGURE 2.4 – Images de microscope montrant l'état de surface de microcavités crûes sur des mesas (à gauche) et sans gravure particulière du substrat (à droite). Les cercles rouges délimitent des zones fissurées sur la partie structurée en mesas.

2.3 Caractérisation de la cavité

Configuration expérimentale Un gradient d'épaisseur uniforme existe du fait de la technique de fabrication de l'échantillon. Afin de mesurer le facteur de qualité Q de la cavité, nous effectuons une cartographie calculée à partir des spectres de microphotoluminescence mesurés sur toute la surface d'une mesa. Pour cela, les mesures sont effectuées en microscopie confocale car cette configuration permet de mieux sélectionner spatialement le signal émis par l'échantillon. En plaçant un sténopé (ou pinhole) devant le détecteur, l'émission des points voisins à celui excité est éliminée. Dans notre montage expérimental présenté en annexe A, le sténopé est en fait remplacé par la combinaison d'un filtrage horizontal du signal par la fente d'entrée du spectromètre fermée à $20\ \mu\text{m}$ et d'un filtrage vertical basé sur la sélection de deux lignes de pixels de la caméra CCD (voir figure 2.5). La première mise en application de ce montage a été faite sur des cristaux photoniques à base d'AlN [BGR⁺13], et la résolution en mode confocal déduite des expériences est de $1.4\ \mu\text{m}$ et $1.0\ \mu\text{m}$ horizontalement et verticalement respectivement. La photoluminescence est mesurée en régime linéaire (excitation continue par un laser Crylas FQCW 266-50/100) à 300 K.

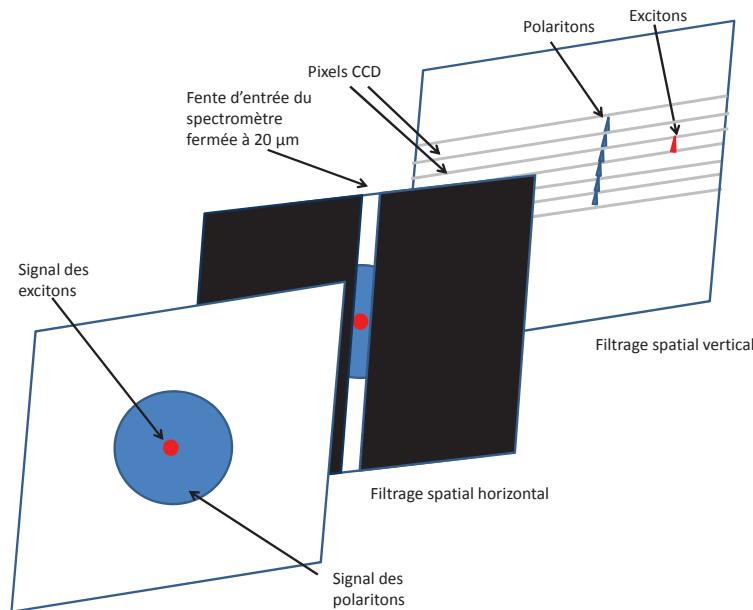


FIGURE 2.5 – Schéma du sténopé dans le montage de microscopie confocale. Le signal de micro-photoluminescence (panneau de gauche) est imagée sur la fente d'entrée du spectromètre, une première sélection spatiale est effectuée par la fente du spectromètre (panneau du milieu) et une deuxième par le choix des lignes CCD (panneau de droite)

Facteur de qualité Afin de mesurer Q , le diaphragme dans le plan focal arrière de l'objectif a été fermé afin de recevoir exclusivement l'émission à $\theta = 0^\circ \pm 2^\circ$. L'émission

des polaritons à grand vecteur d'onde est exclue, ce qui supprime la queue haute énergie du pic de la LPB observé en microphotoluminescence. Le diamètre du spot d'excitation est de $1 \mu\text{m}$. Nous mesurons un spectre de photoluminescence dans une zone très homogène (figure 2.6). Rappelons que $Q = E/\delta E$ avec E l'énergie au centre du pic de photoluminescence et δE la largeur à mi-hauteur du pic (FWHM).

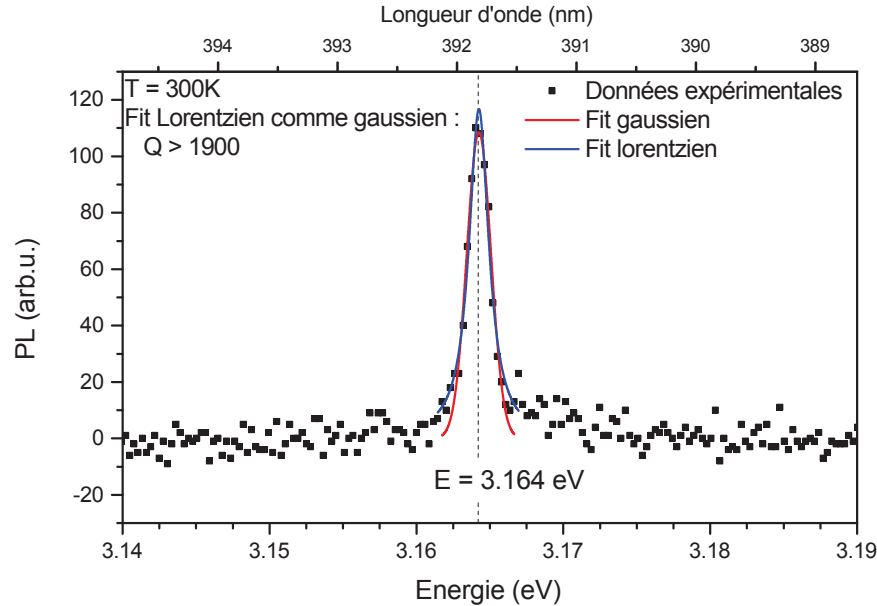


FIGURE 2.6 – Spectre de microphotoluminescence à $\theta=0^\circ$ mesuré à 300 K. En rouge et bleu sont représentés respectivement les fit gaussien et lorentzien de ce spectre. Pour une largeur à mi-hauteur mesurée à 1.6 meV, le facteur de qualité Q équivalent vaut 1975 et l'énergie du mode est $E=3.164$ eV.

Par une modélisation gaussienne comme lorentzienne, la largeur à mi-hauteur vaut $\delta E = 1.6$ meV. Le pic étant centré à $E = 3.164$ eV, le facteur de qualité Q vaut 1975. L'ajustement lorentzien semble plus adapté malgré un rapport signal sur bruit perfectible. Le facteur de qualité mesuré est certes inférieur à celui de la cavité ZnO hybride ($Q = 2600$) mais est bien supérieur aux premières cavités semi-hybrides ($Q < 500$) conçues avant 2010. De plus, l'intérêt de cette cavité par rapport à celle "tout oxyde" repose sur la grande reproductibilité de son procédé de fabrication mais aussi sur l'homogénéité de sa surface, la couche active ayant été épitaxiée et non pas amincie chimiquement.

Homogénéité de la cavité La cartographie d'une mesa est calculée à partir des spectres de photoluminescence acquis par pas de deux microns sur une surface de $90 \times 90 \mu\text{m}^2$. Une image de microscope de la mesa scannée est visible sur la figure 2.7.a. L'énergie de la mesa présentée sur la figure 2.7.b est issue du mode de polariton qui émet à une énergie comprise entre de 3.16 et 3.169 eV (nous noterons la proximité de la zone avec un bord de mesa). L'intensité de μPL correspondante est représentée sur la figure 2.7.d. Il

2.3 Caractérisation de la cavité

est également possible de tracer la carte du facteur de qualité Q (fig.2.7.c) qui n'est pas homogène sur toute la surface mais fluctue relativement peu.

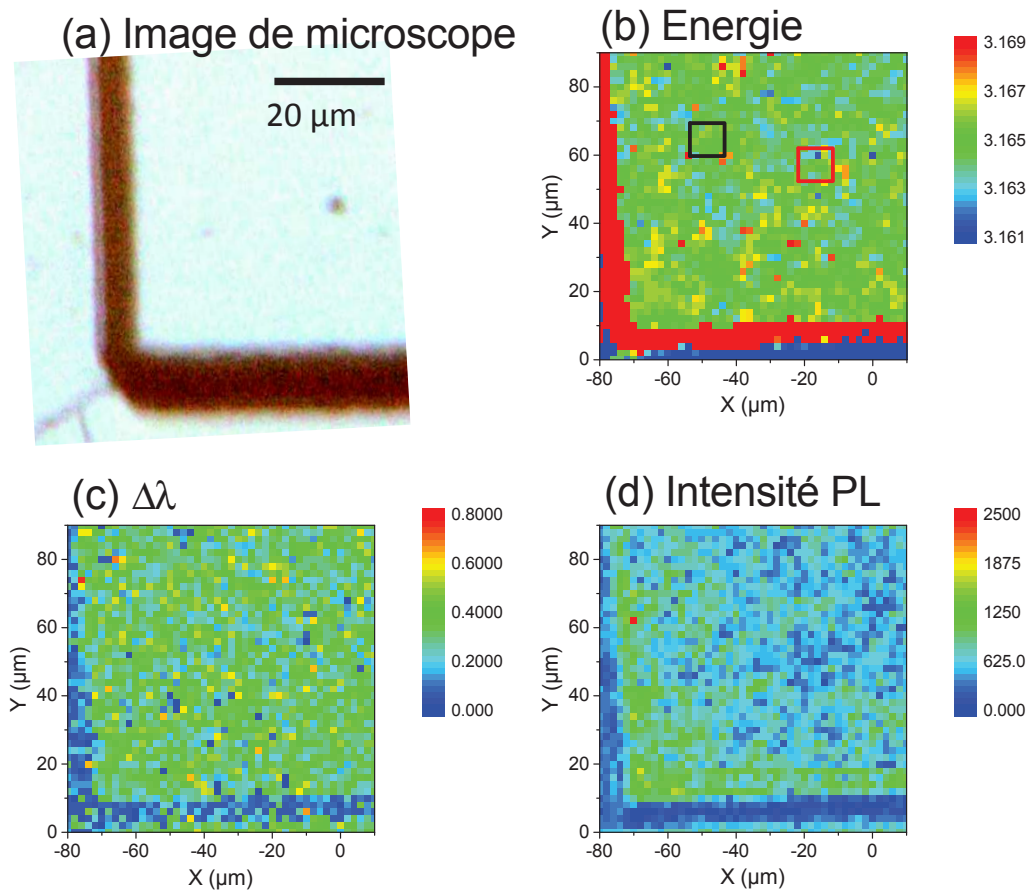


FIGURE 2.7 – a) Image de microscope d'une mesa de la cavité Z1232. Les figures (b) à (d) sont des cartographies d'une aire de $90 \times 90 \mu\text{m}^2$ de cette mesa effectuées à partir de mesures de microphotoluminescence à $T = 300 \text{ K}$. Chaque pixel est extrait d'un spectre mesuré tous les $2 \mu\text{m}$. (b) Energie d'émission du mode de cavité (comprise entre 3.161 et 3.169 eV). Le carré noir délimite une zone de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ très homogène de la mesa et le carré rouge une zone moins homogène. c) Largeurs à mi-hauteur calculées à partir d'une modélisation lorentzienne des spectres. d) Intensité d'émission pour les pixels à l'énergie du mode de cavité.

Une analyse plus poussée de cette portion de mesa a été faite sur deux zones de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$: l'une "très homogène" (carré noir sur la figure 2.7.b) et l'autre "moins homogène" (carré rouge). La distribution en énergie des pixels ($2 \times 2 \mu\text{m}^2$) de chaque zone a été représentée sur la figure 2.8. Dans la zone "moins homogène", 75% des pixels se situent dans un intervalle de 2 meV (3.163 à 3.165 meV) alors que dans la zone "très homogène", 85% des pixels sont dans la plage d'énergie : $3.164 \pm 0.5 \text{ eV}$.

Le choix de la croissance sur mesas a donc été judicieux et a significativement aug-

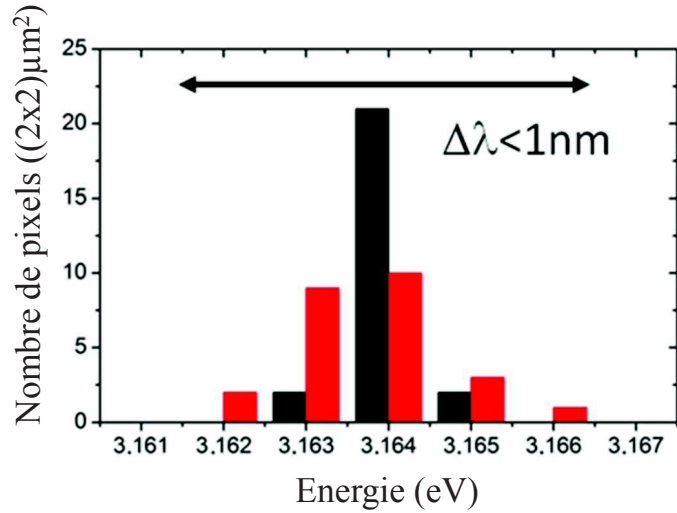


FIGURE 2.8 – Distribution en énergie des pixels ($2 \times 2 \mu\text{m}^2$) des zones rouge et noir de la figure 2.7.b [ZPMH⁺14].

menté le temps de vie des photons au sein de la cavité. De plus, l'homogénéité en énergie de l'échantillon a été grandement améliorée. Cette dernière propriété est en effet une condition critique pour obtenir des condensats étendus. En effet, le désordre photonique dû aux défauts de surface de l'échantillon a été identifié dans [KRK⁺06] comme étant la cause de la localisation des condensats avec une excitation laser étendue (diamètre de $25 \mu\text{m}$).

2.4 Spectroscopie linéaire : mesure du couplage fort

Le couplage fort se traduit au niveau de la relation de dispersion de polaritons par une levée de dégénérescence des énergies des branches haute et basse d'une énergie $\hbar\Omega_R$ appelée pulsation de Rabi à la résonance du mode nu de cavité et d'exciton. Expérimentalement, cela correspond à un anti-croisement des énergies des modes de polaritons, visible dans leur dispersion en k , *i.e* en angle.

2.4.1 Mesures expérimentales

Réflectivité résolue en angle Nous avons mis en place un dispositif expérimental permettant de réaliser des expériences de réflectivité résolues en angle de 8 à 80 °.

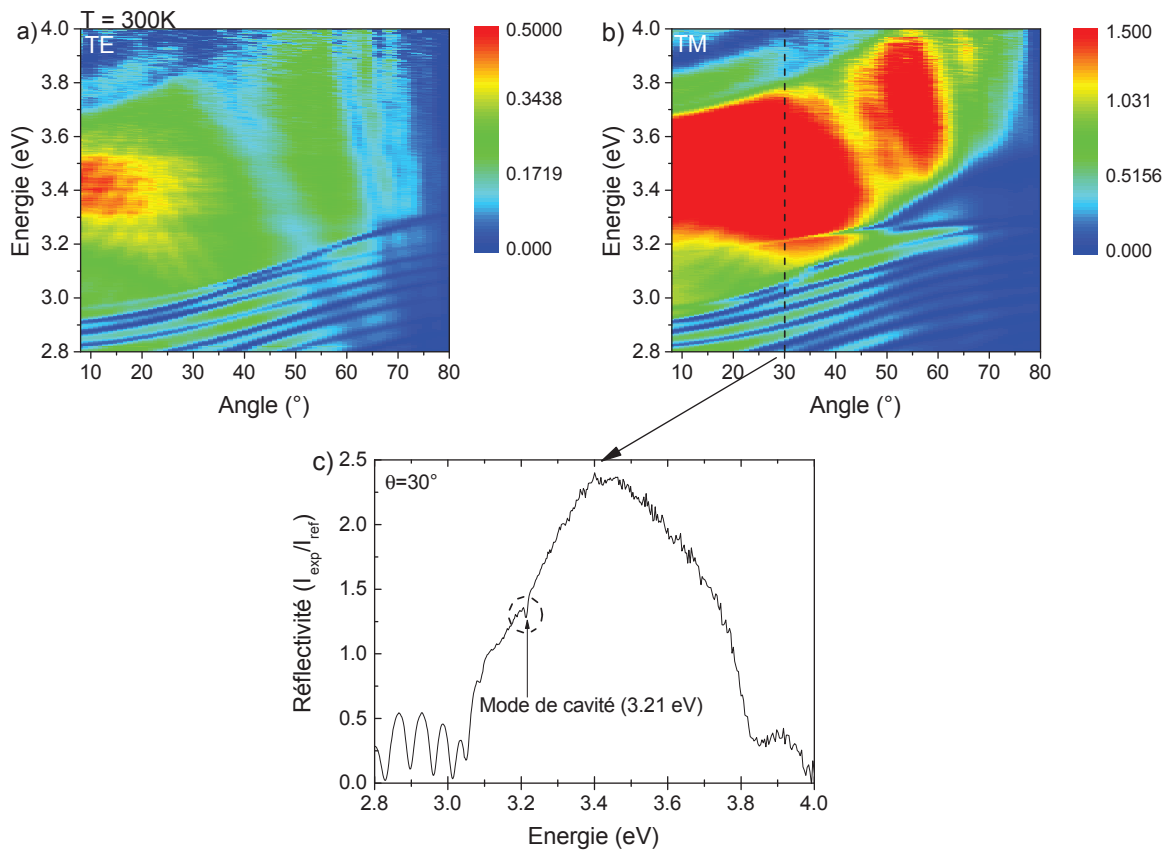


FIGURE 2.9 – Images de réflectivité résolues en angle à 300 K en (a) polarisation TE et en (b) polarisation TM. (c) Coupe de la réflectivité en polarisation TM effectuée à $\theta = 30^\circ$. Le creux en réflectivité du mode de cavité à 3.21 eV est indiqué.

Étant donné la large gamme angulaire à couvrir, nous sortons du cadre des mesures de micro-photoluminescence pour utiliser un goniomètre sur lequel nous plaçons, au niveau du bras de détection, un cube de Glan nous permettant de mesurer simultanément le signal dans les polarisations TE et TM (le montage correspondant est détaillé dans

l'annexe A). Les expériences présentées ont été réalisées à 300 K sur une mesa. Les figures 2.9.a et 2.9.b montrent les images de réflectivité résolues en angle, en polarisation TE et TM respectivement. La réflectivité est calculée en normalisant l'intensité de l'émission $I_{exp}(\theta)$ par celle mesurée en l'absence d'échantillon I_{ref} avec les bras alignés à 180° l'un de l'autre. La dispersion en angle de plusieurs modes de Bragg est visible dans les deux polarisations (paraboles avec des énergies inférieures à 3 eV à $\theta = 0$). Le mode de cavité apparaît uniquement en polarisation TM (creux en réflectivité entre 3.2 et 3.3 eV dans la portion angulaire comprise entre 20° et 50°). Cet artefact est sans doute causé par un léger défaut d'alignement des signaux arrivant sur les fibres TE et TM en $\theta = 0^\circ$: partant de ce constat nous avons choisi les images issues de la polarisation TM pour caractériser la cavité. Une coupe du spectre de réflectivité (figure 2.9.c) à $\theta = 30^\circ$ est extraite de l'image TM et montre à la fois les creux de réflectivité des modes de Bragg (oscillations à $E < 3.06$ eV) et le creux de réflectivité de la LPB dans la stop band (3.21 eV). Le faible contraste de ce creux s'explique par le déséquilibre engendré par la meilleure réflectivité du DBR diélectrique par rapport à celle du DBR nitrure. Ce déséquilibre est une conséquence immédiate de l'optimisation du facteur de qualité Q que nous avons privilégiée au détriment de la transmission du miroir supérieur à l'énergie du mode de cavité. Ce dernier facteur n'est pas le plus limitant dans notre expérience de photoluminescence car notre excitation est non-résonante. Un autre artefact lié aux aberrations chromatiques est la valeur maximale de la réflectivité qui atteint 2.5 dans la figure 2.9.c. Ainsi au lieu d'une "stop-band" plate à $R = 100\%$, celle que nous mesurons suit une allure atypique. Toutefois, cette mesure nous convient car elle permet non seulement de repérer et mesurer les facteurs de qualité des modes de Bragg et de la cavité, mais aussi de situer la "stop-band" et sa largeur afin de la comparer aux résultats numériques attendus.

Modélisation des spectres de réflectivité L'exploitation des données passe par une modélisation utilisant, dans un premier temps, la méthode des matrices de transfert prenant en compte la biréfringence de la couche active ZnO (développée par Jean-Roch Huntzinger au sein du Laboratoire Charles Coulomb, figure 2.10.c). Le profil du mode $7\lambda/4$, pour une épaisseur de 259.5 nm, à 3.164 eV (soit 391.8 nm) est tracé sur la figure 2.10.a. La faible longueur de pénétration du champ électrique dans le DBR $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ malgré un nombre de paires peu élevé est dû au contraste d'indice important des miroirs diélectriques. Par opposition, malgré l'augmentation conséquente du nombre de paires AlN/AlGaIn , le champ électrique n'est pas encore totalement annulé dans le DBR nitrure. L'épaisseur de la couche active non standard ($7\lambda/4$ à défaut de $\lambda/2$) permet de diminuer la densité de défauts dans ZnO. Des corrections sur les épaisseurs des couches ont été faites (-3% pour le DBR nitrure, -5% pour le DBR $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ par rapport aux valeurs nominales) pour suivre les données expérimentales. Cette modélisation permet de juger de la qualité de la cavité ainsi que d'ajuster les forces d'oscillateur des excitons de la couche active.

2.4 Spectroscopie linéaire : mesure du couplage fort

L'ajustement des modes couplés (en traits pleins sur la figure 2.10.b) indique que le mode de cavité se situe à 3.19 eV à $\theta = 8^\circ$ et anticroise deux modes : l'un à 50° (mode de Bragg 3.07 eV à $\theta = 8^\circ$) et l'autre à 65° . Les forces d'oscillateur correspondantes valent respectivement pour les excitons A, B et C : 170000, 110000 et 43000 meV² (identiques aux valeurs adoptées dans la cavité tout-oxyde ZFeng1 de la figure 1.10.d). Nous déduisons alors les modes nus (en pointillés sur la figure 2.10.b) en relançant la modélisation sans les forces d'oscillateur. L'énergie du mode de cavité nu (3.18 eV à $\theta = 0^\circ$ par extrapolation) indique que cette mesa est à désaccord négatif $\delta = -88$ meV. La valeur théorique du facteur de qualité de la cavité va dépendre de l'élargissement homogène des excitons γ_h que nous aurons fixé dans le modèle. Pour obtenir un Q de 1975 tel que nous l'avons mesuré, γ_h doit-être fixé à 10 meV.

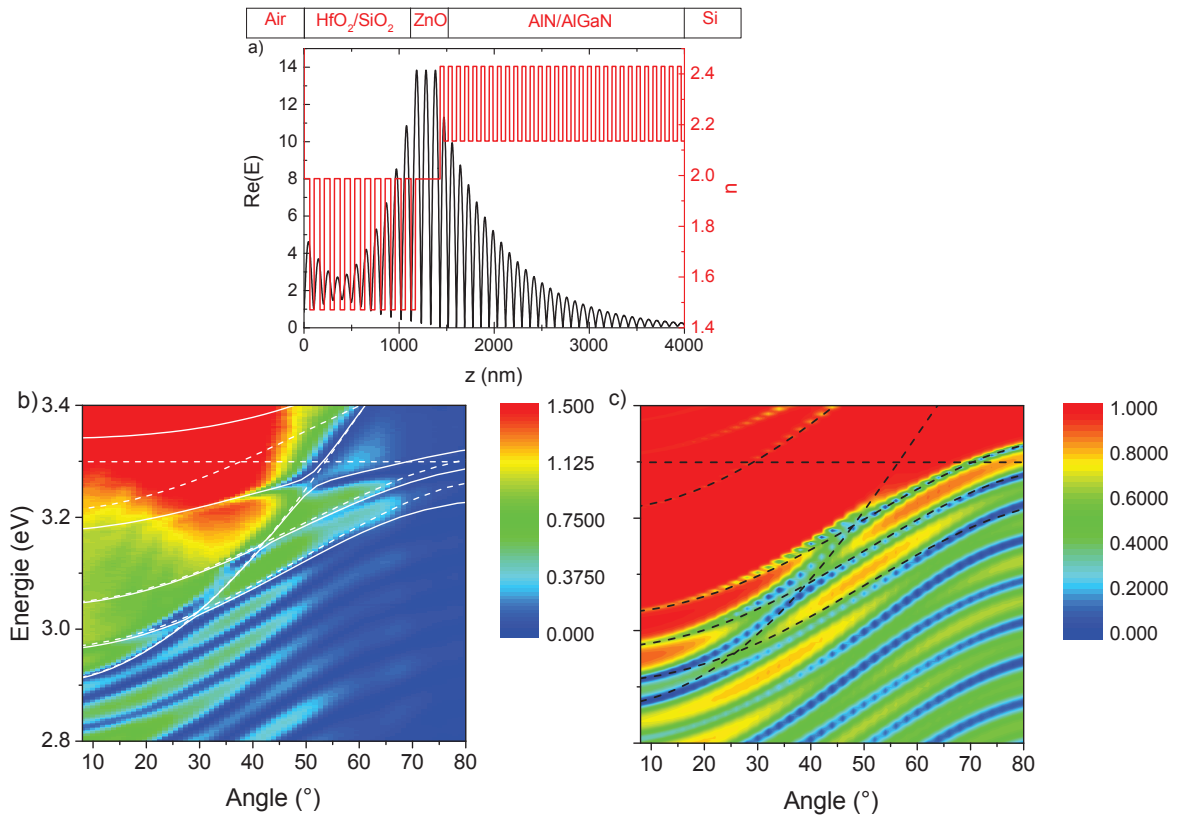


FIGURE 2.10 – (a) Modélisation du champ électrique dans la cavité en fonction de la position dans la cavité (en noir). Les indices des différentes couches sont également représentés (en rouge). Un schéma placé au-dessus du graphe rappelle les différents matériaux de la cavité en fonction de l'épaisseur de couche. (b) Image de réflectivité en polarisation TM avec la modélisation des modes nus (en pointillés) et des modes couplés (en trait plein). (c) Simulation obtenue par la méthode des matrices de transfert de la réflectivité TM présentée en figure b avec la modélisation des modes nus (en pointillés)

La modélisation selon la méthode des oscillateurs couplés suit directement celle des matrices de transfert et permet de déterminer la composition des états de polariton.

La connaissance des modes de cavité nus est indispensable car elle permet de limiter le nombre de paramètres à ajuster dans ce dernier modèle : en effet seule la valeur du Rabi va être ajustée pour reproduire les valeurs expérimentales, là où si le désaccord n'avait pas été fixé, un fit aurait fonctionné pour une large plage du dédoublement de Rabi. Pour un désaccord de -88 meV, le dédoublement de Rabi vaut $\hbar\Omega_R = 136$ meV. Il y a donc une réelle avancée en comparaison des premières cavités $\lambda/4$ et $5\lambda/4$ dont le dédoublement de Rabi était compris entre 30 et 80 meV. La dispersion en angle des modes identifiées montre le régime de couplage fort du mode de cavité avec l'exciton et nous pouvons également conclure au couplage fort du mode de Bragg à 3.05 eV à $\theta = 8^\circ$ car il anticroise l'énergie de l'exciton nu à grand angle.

2.5 Photoluminescence résolue en angle et laser à polaritons

Montage expérimental Sur le montage précédent, la lumière blanche a été remplacée par une excitation laser pulsée (pulse de 400 ps à une fréquence de 4 kHz) à 266 nm à angle fixe ($\theta_{laser} = -20^\circ$). En effet, dans l'étude de la cavité "tout oxyde", le régime de laser à polaritons avait été atteint avec cette source car la puissance de l'excitation continue était insuffisante. Le laser est focalisé sur l'échantillon par une lentille de focale courte et le spot d'excitation mesure 30 μm de diamètre (FWHM) (macrophotoluminescence). Nous pouvons réaliser pour cette expérience des mesures résolues en angle de -20 à 80° . Notons que de telles mesures à grand angle nécessitent un grand spot et n'étaient pas envisageables sur la cavité "tout oxyde".

Résultats en excitation CW Les figures 2.11.a et 2.11.b montrent l'émission en photoluminescence de l'échantillon à faible puissance ainsi que les modélisations des modes couplés (en trait plein) et des modes nus (en pointillés) obtenus par la méthode des oscillateurs couplés en polarisation TE et TM. La branche basse de polariton (LPB) émet sur toute la gamme angulaire, partant de 3.16 eV à $\theta = 0^\circ$. Les modes de Bragg sont visibles seulement pour $\theta > 30^\circ$ et nous pouvons remarquer en polarisation TM une émission intense à $\theta = 62^\circ$, le fameux "bottleneck". La branche haute (UPB) n'apparaît pas car elle est comprise dans la bande d'états de continuum de ZnO. L'exciton étant plus lourd d'au moins quatre ordres de grandeur par rapport au mode de cavité, sa dispersion angulaire est constante sur cette plage de données à 3.31 eV. Le couplage fort est encore visible ici car il affecte la masse effective de la LPB, qui est plus lourde comparée au mode de cavité nu. De plus, nous retrouvons également l'anticroisement du premier mode de Bragg avec le mode de l'exciton nu à grand angle (entouré en rouge sur les figures 2.11.a et 2.11.b, il se distingue mieux en polarisation TM). Celui-ci est donc également en régime de couplage fort. Les spectres à grand angle dans les deux polarisations diffèrent fortement d'une part par l'intensité récoltée, liée à la meilleure extraction en polarisation TM, et d'autre part

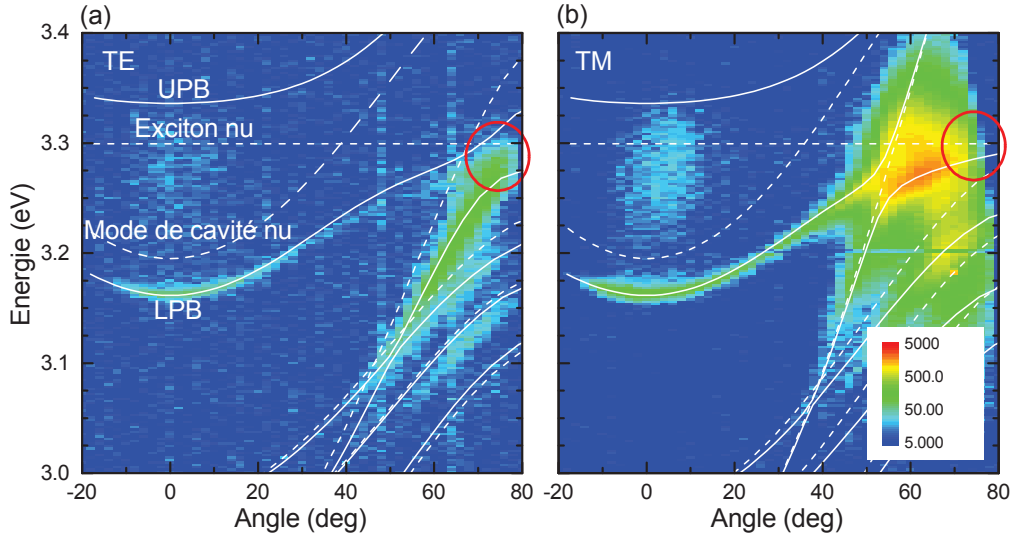


FIGURE 2.11 – Images de photoluminescence résolues en angle sous le seuil de condensation en (a) polarisation TE et en (b) polarisation TM avec la modélisation des modes nus (en pointillés) et des modes couplés (en trait plein). Les mesures ont été faites au goniomètre à 300 K. L’anticroisement du premier mode de Bragg avec le mode d’exciton nu est entouré en rouge sur les deux polarisations.

les dispersion angulaires très différentes des branches de polaritons, liées à la biréfringence de la couche active. L’accord entre les spectres mesurés, les dispersions calculées par les méthodes de matrices de transfert et d’oscillateurs couplés est remarquable et prouve la bonne maîtrise des paramètres de fabrication et des paramètres diélectriques et excitoniques intervenant dans la modélisation. Les forces d’oscillateur excitoniques sont les mêmes pour la cavité tout-oxyde.

Laser à polaritons La cavité à gradient d’épaisseur tout oxyde précédemment étudiée atteignait le régime de laser à polaritons à des températures allant de celle de l’hélium liquide (4 Kelvin) à l’ambiante (300 K). L’excitation pulsée a permis là encore sur la nouvelle cavité de démontrer le laser à polaritons en macro comme en microphotoluminescence. Des spectres de photoluminescence (figure 2.12) à $k = 0$ ont été mesurés à différents désaccord δ et à différentes puissances à température ambiante. Pour une puissance d’excitation inférieure au seuil de condensation ($P < P_s$), l’émission est spectralement large et son intensité augmente de façon linéaire avec la puissance. Au seuil de condensation P_s , l’émission se décale vers les hautes énergies (la valeur du blueshift est donnée pour chaque spectre), s’affine spectralement et l’intensité augmente de façon non linéaire. Le régime de laser à polaritons est atteint. En augmentant encore la puissance d’excitation, d’autres pics laser apparaissent à différentes énergies : le laser devient multimode.

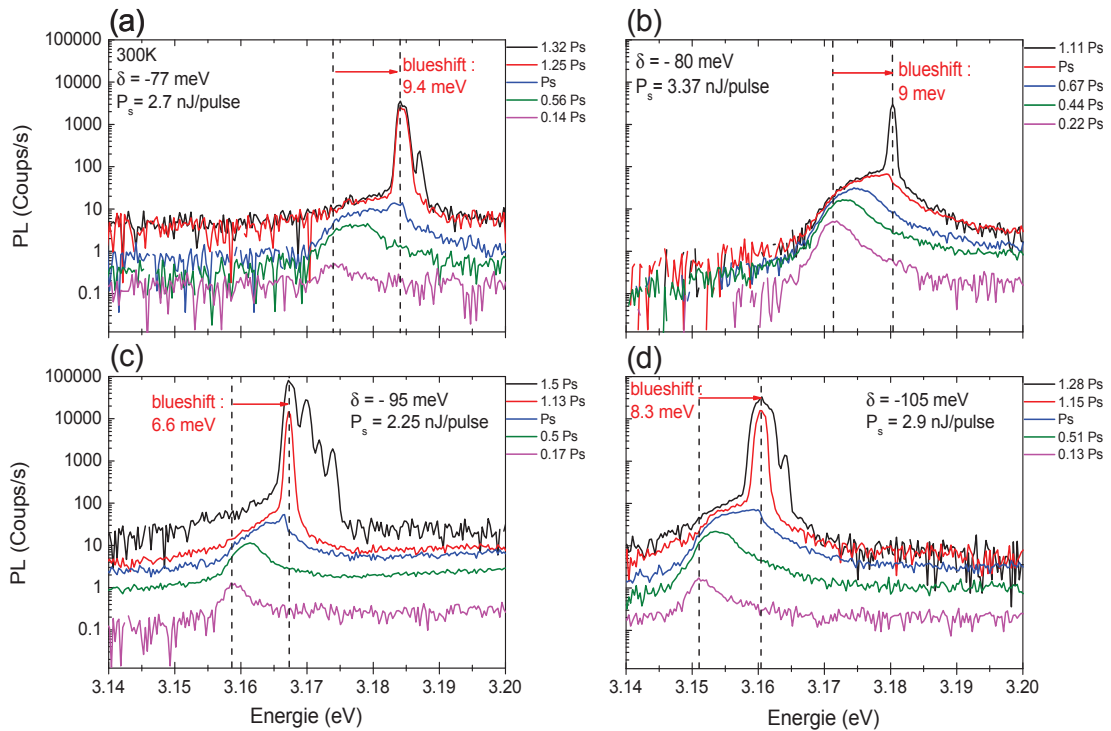


FIGURE 2.12 – Spectres en puissance réalisés à différents désaccords à 300K en macrophotoluminescence à $\theta = 0 \pm 2^\circ$. Pour chaque désaccord δ , la puissance d'excitation au seuil P_s est indiquée ainsi que le blueshift de l'émission au-dessus du seuil. Chaque spectre est tracé à une puissance relative à P_s .

2.5 Photoluminescence résolue en angle et laser à polaritons

Dépendance du seuil en fonction du désaccord à 300 K A 300 K, seuls les polaritons à désaccord négatif de la cavité ont réussi à condenser (figure 2.13.a). Nous comprenons au regard du diagramme de phase de la cavité à gradient ZFeng1 (voir la publication de Feng Li [LOK⁺13] et la figure 1.10.d) que cette difficulté à atteindre le régime de laser à polaritons à 300 K pour les polaritons majoritairement excitoniques dans ZnO vient d'une augmentation de la masse effective qui nécessite une densité critique de porteurs plus élevée pour condenser [LBF⁺10]. Le seuil, élevé pour les deux mesas à désaccords -163 et -148 meV (11.7 nJ/pulse) est relativement constant autour d'un minimum de 3 nJ/pulse pour des désaccords allant de -104 à -59 meV et remonte à 8.1 nJ/pulse pour $\delta = -40$ meV. Tout comme dans la cavité ZnO "tout-oxyde" [Li13], la valeur élevée de l'oscillation de Rabi $\hbar\omega_c = 136$ meV induit un minimum d'énergie profond de la LPB tout en préservant une grande densité d'états dans l'état final et donc la relaxation rapide des porteurs. Le "piège" énergétique favorise à 300 K la stabilité du condensat en minimisant l'effet de l'agitation thermique à 300 K (notamment observé dans les cavités GaN [LBF⁺10]). Le faible gradient de la microcavité à mesa ne permet pas de dresser un large diagramme de phase de cette cavité.

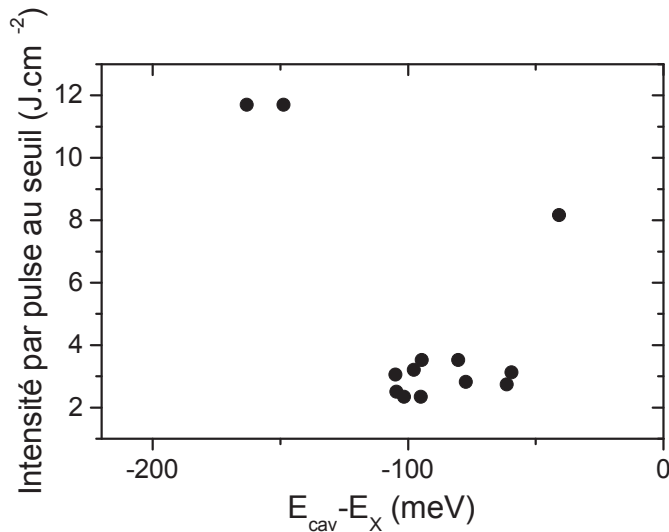


FIGURE 2.13 – Dépendance du seuil de la cavité à mesas à 300 K en fonction du désaccord $E_{cav} - E_X$. Les seuils sont issus des mesures effectuées en macrophotoluminescence à $\theta = 0^\circ$.

Le diagramme angulaire d'émission apporte des informations complémentaires sur la dynamique du laser à polaritons : la figure 2.14 présente la photoluminescence résolue en angle obtenue au goniomètre bien au-dessus du seuil ($1.5P_s$) (sur la même mesa où a été mesurée la figure 2.11). L'affinement spectral de l'émission est bien visible dans les deux polarisations pour la LPB1. Nous remarquons également qu'elle n'est pas concentrée en $\theta = 0^\circ$ mais plutôt étendue sur près de 10° . Le profil d'énergie en espace k dépendant de

la distribution spatiale du condensat en espace réel, nous comprenons que le condensat de polaritons n'est pas homogène mais est structuré. En effet, dans le cas où il aurait été homogène, nous aurions retrouvé une distribution "resserrée" en $\theta = 0^\circ$. Un deuxième point observable est le blueshift de l'énergie du condensat par rapport à l'énergie sous le seuil à $\theta = 0^\circ$. Les modélisations des modes nus et couplés sont les mêmes que celles tracées dans la figure 2.11 et nous constatons bien le décalage de l'énergie du condensat par rapport à celle de l'état fondamental LPB sous le seuil. Une dernière particularité vient de l'apparition très au-dessus du seuil d'une seconde émission non-linéaire à $\theta = 58^\circ$. Nous ne pensons pas qu'il s'agisse d'un second condensat de polaritons activé par la saturation du premier condensat. L'énergie d'émission étant la même qu'à $\theta = 0$ nous penchons plutôt pour une fuite des polaritons du condensat vers cette branche par la diffusion liée au désordre de la cavité ou par collisions polariton-polariton dans le condensat.

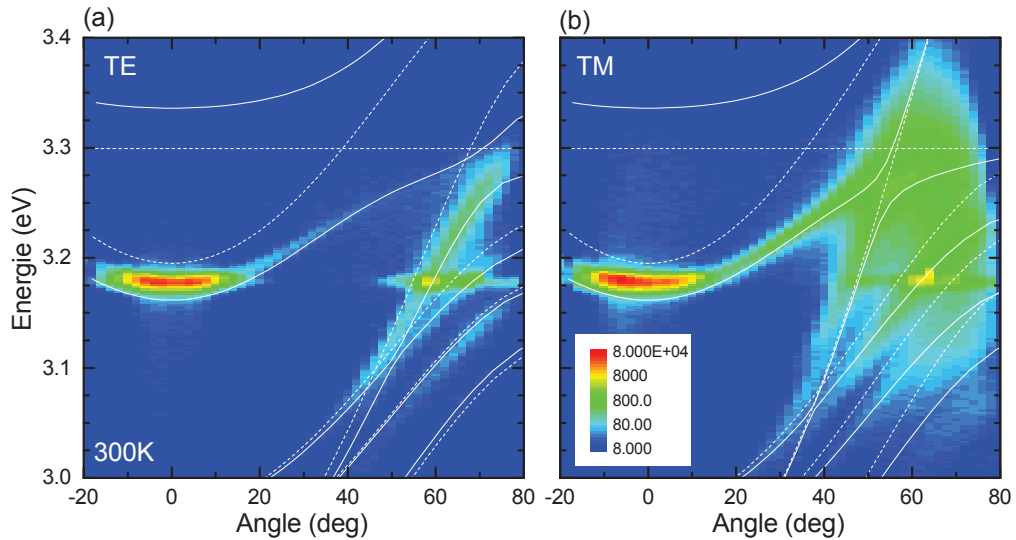


FIGURE 2.14 – Photoluminescence résolue en angle à $1.5P_s$: (a) polarisation TE (b) polarisation TM. Les modélisations des modes couplés (en trait plein) et des modes nus (en pointillés) ont également été placées, telles que calculées sous excitation CW sur la figure 2.11

2.6 Contrôle de la géométrie des condensats

L'homogénéité des mesas ainsi que l'obtention du laser à polaritons sous excitation à large spot (quelques dizaines de microns) sont les conditions fondamentales pour espérer réaliser des condensats dont la forme pourrait être contrôlée. A l'issue des expériences de caractérisation de la cavité, nous sommes revenus dans le cadre du montage de microphotoluminescence afin de pouvoir imager les condensats de polaritons obtenus. Leur géométrie va dépendre de la forme de l'excitation optique utilisée. Nous nous sommes placés sur des mesas à désaccord négatif (et donc principalement photoniques) et avons changé des éléments de la ligne d'excitation pour réaliser trois types d'excitations (figure 2.15) :

- Une excitation étendue obtenue en excitant l'échantillon par le côté (autrement dit, l'objectif de microscope ne sert ici qu'à recueillir l'émission du condensat).
- Une excitation dite "allongée" créée en plaçant après l'élargisseur de faisceau une lentille cylindrique.
- Une excitation en forme d'anneau nécessitant un système optique complexe basé sur une lentille axicon, analogue à celle utilisée dans la référence [AOK⁺13].

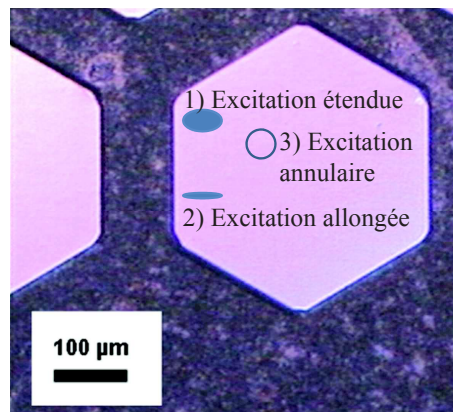


FIGURE 2.15 – Panorama des formes géométriques des excitations utilisées superposé à une image de microscopie d'une mesa de la microcavité. Les dimensions des formes ne sont pas à l'échelle.

Imagerie du condensat étendu à 2D Nous commençons par discuter du condensat étendu car il est un cas d'école pour comprendre les sources de la perte de contrôle de la géométrie. Expérimentalement, afin de garder le focus du microscope à la surface de l'échantillon, nous avons excité ce dernier par le côté en utilisant une lentille de focale courte. L'émission du condensat a été imagée par tomographie (cette méthode sera décrite plus en détail dans le chapitre 3, consacré à la propagation des condensats de polaritons). La figure 2.16.c présente l'image du condensat obtenu à désaccord nul. L'excitation par le côté explique l'allure elliptique plutôt que circulaire du condensat (il s'étend sur près de $100\ \mu\text{m}$ en X pour seulement $20\ \mu\text{m}$ en Y). Le premier point marquant est qu'à défaut

d'un condensat homogène, nous constatons une localisation de l'émission en deux points chauds (entourés en bleu). Nous constatons également des motifs fins (entourés sur la figure 2.16.c en rouge) du condensat que nous interprétons comme des trajectoires de propagation du condensat jusqu'à $40 \mu\text{m}$ des points chauds.

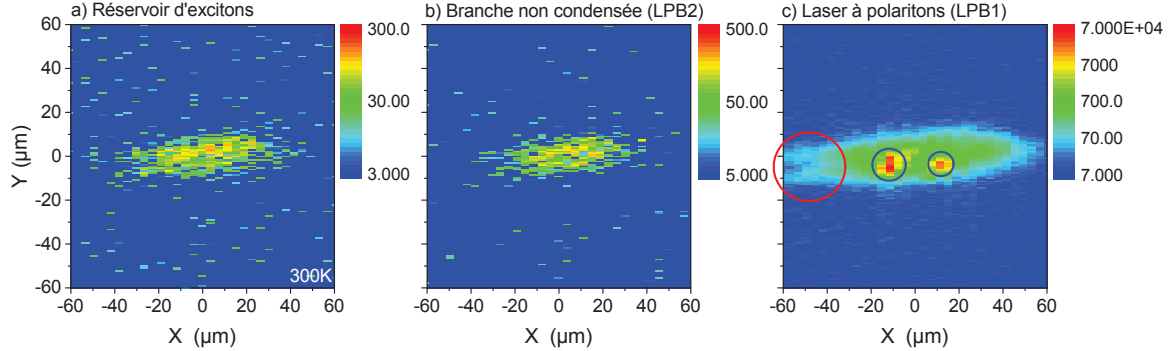


FIGURE 2.16 – Images de tomographie en espace réel au-dessus du seuil de condensation (a) du réservoir d'excitons, (b) de la branche de polaritons non condensés et (c) de la branche condensée à 300 K. Des trajectoires d'émission imputées à la propagation du condensat de polaritons sont entourées en rouge.

Nous avons étudié deux causes possibles à cette localisation : d'une part les inhomogénéités de l'échantillon que nous avons considérées comme négligeables, d'autre part la forme du réservoir d'exciton influencée par le laser. Cette deuxième hypothèse a été étudiée en imageant le réservoir d'exciton (fig.2.16.a). Afin d'éliminer d'éventuels artefacts liés aux différences de conditions expérimentales, l'expérience a été effectuée au réseau 150 traits du spectromètre afin de recueillir les émissions de chaque transition en une seule acquisition. Le réservoir d'excitons, bien qu'il ne soit pas parfaitement homogène, ne contient aucun point chaud. Nous avons ajouté l'image de la branche non condensée (2.16.b) car elle suit l'allure spatiale du réservoir d'exciton, appuyant ainsi l'idée que la cause principale des points chauds vient de la condensation elle-même. Peut-être est-ce, comme dans [KRK⁺06], une homogénéité insuffisante de notre échantillon.

Condensat 1D L'objectif est ici, de façon analogue à l'expérience menée dans [WAS⁺12], d'obtenir une condensation de polaritons confinée dans un cigare dont l'extension latérale est de l'ordre de la longueur d'onde de l'émission de sorte qu'un condensat unidimensionnel soit généré. L'intérêt réside dans la possibilité de générer un amplificateur optique (des détails sont fournis dans l'introduction du chapitre 3). Plutôt que de compter sur la géométrie de l'échantillon, nous créons une excitation 1D en mettant en place d'une lentille cylindrique sur la ligne d'excitation. Une coupe de ce condensat est présenté dans la figure 2.17.

Tout comme dans le cas de l'excitation étendue, nous retrouvons à défaut d'un condensat homogène, une émission structurée dont le profil indique deux point chauds à 0 et

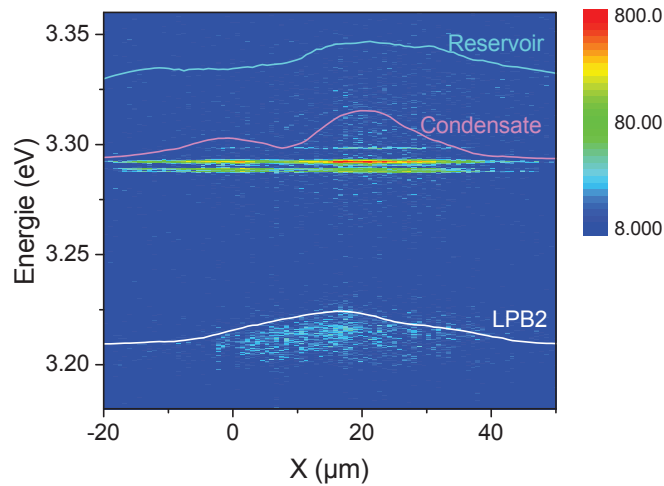


FIGURE 2.17 – Coupe du condensat à 1D à 300 K. Les émissions du réservoir d’exciton et de la branche non condensée sont également visibles et les profils de chaque transition sont tracés.

20 microns. Il est ici difficile de le comparer au profil du réservoir car celui-ci n’émet que très faiblement à 300 K. En revanche, la comparaison avec le profil de LPB2 indique un comportement différent des polaritons s’ils sont condensés ou non.

Excitation en forme d’anneau L’idée d’une excitation en forme d’anneau vient de la possibilité de créer un piège à 2 dimensions. Le réservoir d’excitons n’est plus au centre de l’excitation : il est donc à la fois la source des polaritons mais forme aussi les parois du puits de potentiel. Cette forme d’excitation, utilisés par des équipes de recherches de Cambridge et Southampton, a montré des résultats intéressants [CDC⁺13, AOK⁺13]. Dans le cas de l’équipe de Cambridge, en passant d’une excitation à plusieurs points à une excitation annulaire, les auteurs ont d’abord obtenus plusieurs condensats ponctuels dits "phase-locked" et finalement un condensat étendu piégé au centre de l’anneau. Ce phénomène est d’autant plus étonnant que le condensat piégé ne nécessitait pas une condensation des polaritons de l’anneau. Il y a donc ici, contrairement aux expériences de condensations traditionnelles, un découplage du réservoir de polaritons et du laser à polaritons. Grâce à un "zoom" optique installé sur la ligne d’excitation, nous avons réalisé des excitations annulaires dont nous avons fait varier le rayon entre X et Y afin d’en observer l’effet sur l’émission des polaritons à différentes puissances. La figure 2.18 montre l’émission d’un anneau de polaritons à 300 K sous le seuil de condensation. Les spectres de photoluminescence mesurés au point A et B (figure 2.18.b) indiquent une propagation des polaritons de l’anneau jusqu’à son centre.

En excitation pulsée, nous avons observé une condensation de polaritons à la périphérie d’un anneau de plus petit diamètre comme le montre la figure 2.19. Cette expérience a été faite sur la même mesa que celle de la figure 2.18. L’affinement spectral ainsi que

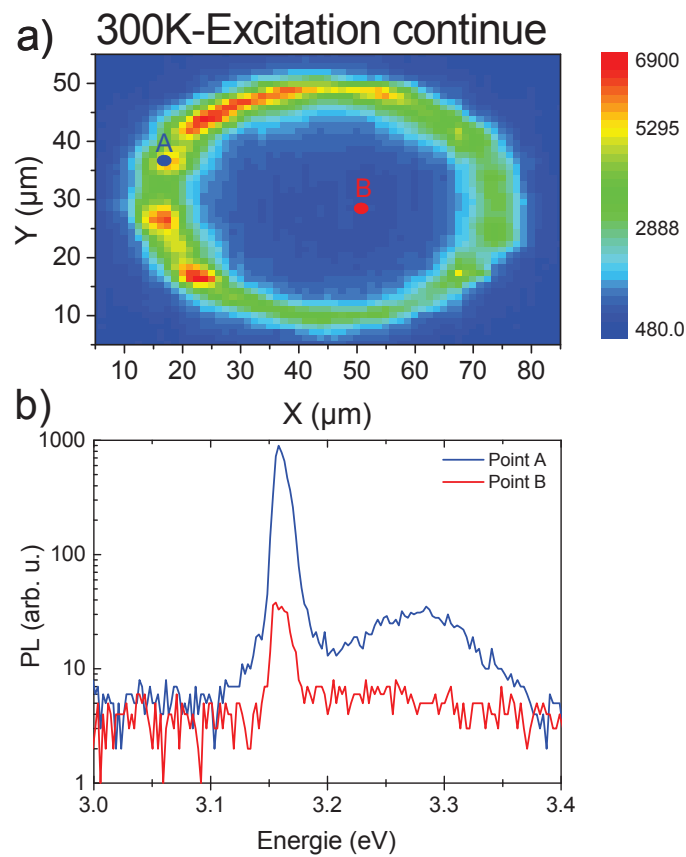


FIGURE 2.18 – (a) Image de tomographie d’un anneau de polaritons réalisée à 300 K sous excitation continue. (b) Spectres de photoluminescence mesurés au point A et B de la figure (a).

2.6 Contrôle de la géométrie des condensats

le blueshift de l'émission de la figure 2.19.b par rapport à celle de la figure 2.18.b prouve que le régime de laser à polaritons a bien été atteint. La condensation a lieu préférentiellement sur une portion de l'anneau (figure 2.19.a) et là encore un spectre mesuré au centre supposé (point B) de l'anneau non-condensé (représenté en pointillés) montre une propagation de polaritons condensés (même énergie d'émission qu'au point A) vers le centre de l'anneau. Nous pensons qu'il s'agit d'un déséquilibre au niveau de la génération du piège (ajouté aux causes développées dans le paragraphe du condensat étendu) qui est à l'origine de ce comportement.

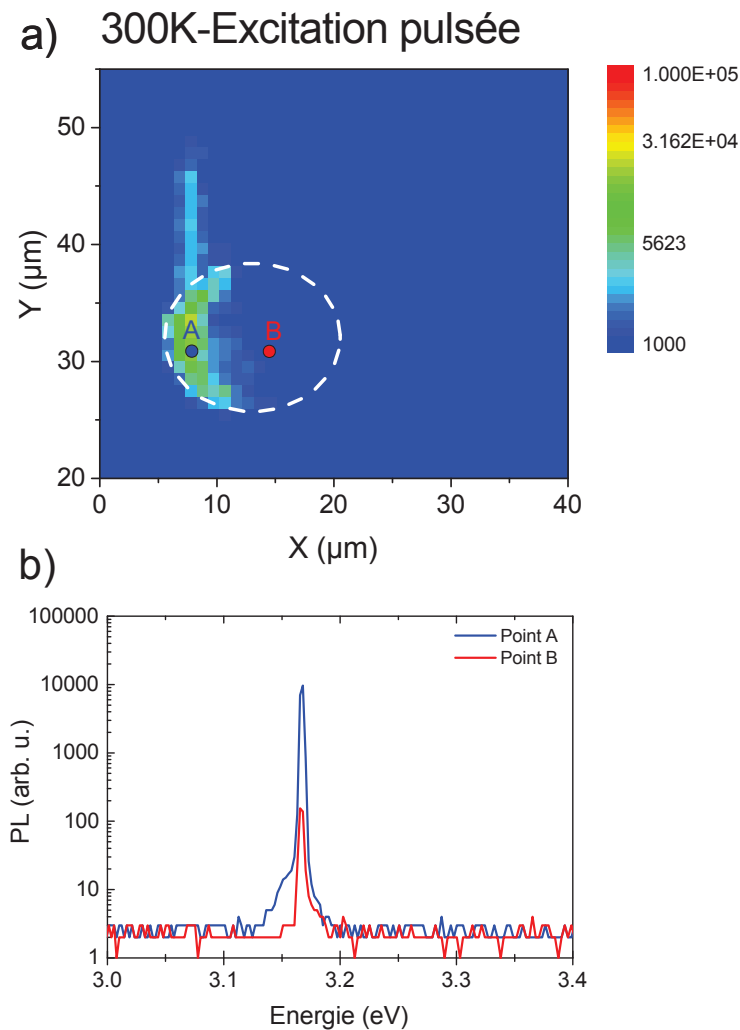


FIGURE 2.19 – (a) Image de tomographie d'un anneau de polaritons réalisée à 300 K sous excitation pulsée au-dessus du seuil de condensation. (b) Spectres de photoluminescence mesurés au point A et B de la figure (a). L'allure de l'anneau non condensé est représenté en pointillés.

Conclusion Une nouvelle microcavité ZnO "semi-hybride" basée sur l'idée d'une structuration en mesas a pour la première fois atteint un nombre important de paires AlN/AlGaN (30) pour le miroir inférieur nitrure. Cette avancée est cruciale car le facteur de qualité de ce type de cavité a longtemps été limité par cette contrainte technologique. L'homogénéité de ses propriétés a été mesurée par des expériences de photoluminescence en microscopie confocale. Son facteur de qualité étant peu fluctuant sur une mesa, nous avons pu prouver le couplage fort en macrophotoluminescence résolue en angle. En macro et en microphotoluminescence, le régime de laser à polaritons a été atteint et ce pour des mesas à désaccords négatif ou nul. Nous avons par la suite réalisé différentes expériences de contrôle de la géométrie des condensats : condensat étendu, confiné à 1D ou piégé dans une excitation annulaire. Les résultats indiquent qu'une meilleure homogénéité de la cavité ainsi qu'une bonne stabilité du laser d'excitation sont encore nécessaires pour éviter la localisation de la condensation. A l'avenir, l'amélioration des cavités et la meilleure maîtrise de la génération annulaire permettra l'émission de condensats piégés de différentes tailles grâce à l'ajustement du diamètre de l'excitation.

Chapitre 3

Propagation des condensats de polaritons dans une cavité à gradient d'épaisseur

3.1 Introduction

Propagation et dispositifs polaritoniques L'obtention du couplage fort exciton-photon et du condensat de Bose Einstein de polaritons a ouvert la voie à l'élaboration de dispositifs polaritoniques. En effet, le caractère hybride de ces particules leur octroie non seulement une vitesse de propagation élevée (de l'ordre de 1% de la vitesse de la lumière) mais aussi la possibilité d'interagir fortement entre elles. Les méthodes permettant de les faire se mouvoir exploitent la forte interaction répulsive polariton-polariton (composante excitonique de la particule) ou l'ingénierie des modes photoniques (dimensionnalité, gradient) des microcavités. Quelques dispositifs emblématiques exploitant la propagation des polaritons dans les microcavités GaAs sont présentés ci-après.

1. **Le transistor à condensat de polaritons [GEL⁺12]** : Un premier exemple de dispositif est le transistor à condensat de polaritons réalisé par les équipes de P.G. Savvidis et J. Baumberg. Il s'agit d'une porte logique fonctionnant à 40K dont la valeur du bit est déterminée par la collection (valeur 1) ou non (valeur 0) d'un condensat au "drain" du transistor, après génération de polaritons ("source" du transistor) et transport dans un bandeau (le "canal") contrôlé par un second faisceau (la "grille"). Des bandeaux de 20 x 300 microns (figure 3.1.(d)) ont été gravés dans une microcavité à puits quantiques GaAs de très bonne qualité $Q > 16000$ (figure 3.1.(c)). Cette microcavité comporte également un potentiel gradient lié au désaccord exciton-photon et les bandeaux sont gravés de telle sorte que la direction de propagation des polaritons soit alignée avec celle du gradient. Les figures 3.1.(a) et 3.1.(b) sont des schémas de principe du fonctionnement du dispositif.

A 60 μm de l'extrémité basse du barreau, l'échantillon est excité par un laser continu

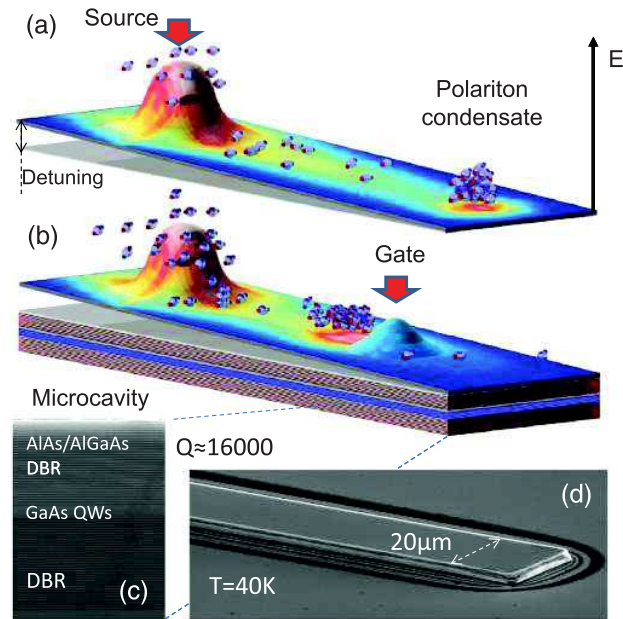


FIGURE 3.1 – Schéma de principe de fonctionnement du transistor à condensat de polaritons (a) sans et (b) avec grille. Images MEB (Microscopie Électronique à Balayage) (c) d’une coupe de l’échantillon utilisé (d) d’un bandeau de $20\ \mu\text{m}$ de large. D’après Gao et al. [GEL⁺12]

Ti-Saphir réglé à l’énergie du premier mode de Bragg à haute énergie de la cavité. Le condensat de polaritons créé en ce point est la source de polaritons. Au fur et à mesure qu’augmente l’intensité de l’excitation, autrement dit la densité de polaritons du réservoir, il se crée un "blueshift" localisé dans l’entourage du point excité du fait de la forte répulsion exciton-polariton. Celui-ci est le principal moteur de propagation : il éjecte les polaritons qui se déplacent sans perte d’énergie (propagation balistique) le long du barreau (Voir figure 3.1.a). Le gradient empêche l’oscillation des polaritons dans le canal, ceux-ci n’ayant pas assez d’énergie pour remonter la pente énergétique dont le désaccord est à l’origine. Ils se regroupent alors à l’autre extrémité (drain) et forment un nouveau condensat de polaritons. Il est possible de bloquer le canal de polaritons en utilisant un second faisceau issu du même laser. Cette grille optique est suffisamment forte pour changer le paysage énergétique perçu par les polaritons sans pour autant créer un nouveau réservoir.

2. La diode résonnante à double effet tunnel [NVS⁺13] :

Un deuxième dispositif réalisé par l’équipe de Jacqueline Bloch du LPN, est une diode résonnante à double effet tunnel (Double-Barrier Resonant Tunneling Diode). La modulation du paysage énergétique n’est plus effectuée par voie optique mais par la gravure même de l’échantillon. Il s’agit ici d’une cavité GaAs gravée sur un fil 1D ($3\ \mu\text{m}$ de large et $440\ \mu\text{m}$ de long) sur laquelle deux ressernements faisant office

de barrières à effet tunnel ont été gravés. Au centre de ces barrières se trouve un îlot équivalent à une boîte quantique à l'intérieur duquel existe des états polaritoniques discrets. Loin des microstructures (50 à $80\mu\text{m}$), l'échantillon est excité de manière

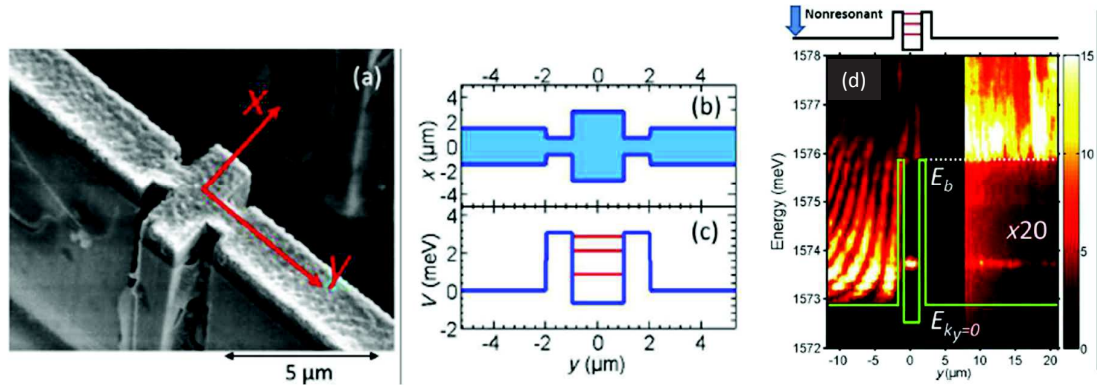


FIGURE 3.2 – (a) Image MEB de la microcavité filaire avec au centre, la structure de double barrière à effet tunnel créé par la gravure de deux resserrements. (b) Représentation schématique de la structure vue du dessus et (c) Profil énergétique correspondant avec en rouge les états polaritoniques discrets. (d) Image résolue spatialement et spectralement mesuré sous détection TM, quand l'échantillon est excitée par un laser à 1.62eV à $-50\mu\text{m}$. D'après NGuyen et al. [NVS⁺13]

non résonante par un laser Ti-Saphir focalisé à travers un microscope créant un spot de $2\mu\text{m}$ de diamètre. L'excitation non résonante crée des polaritons dans une gamme d'énergie étendue, qui se déplacent alors vers la microstructure. Le signal transmis montre que la propagation des polaritons dont l'énergie est supérieure à celle des barrières ($E > E_b = 1575.8\text{ meV}$) n'est pas perturbée par la présence de l'îlot. Pour les polaritons d'énergie inférieure à E_b , des pics d'émission sont visibles au-delà des barrières aux énergies des états discrets de l'îlot central : seuls les polaritons dont l'énergie est résonante avec les modes discrets peuvent se propager par effet tunnel. Ces modes peuvent être contrôlés par une deuxième excitation optique (grille) qui, appliquée sur l'îlot, exploite les fortes interactions polaritons-excitons pour induire un "blueshift" des états confinés.

3. Propagation et amplification de condensats de polaritons dans des structures à une dimension [WAS⁺12] :

Une autre expérience de propagation a été réalisée sur les microcavités 1D GaAs. Tout comme dans le cas du transistor à condensat de polariton, le réservoir excitonique génère un "blueshift" de 4 meV proche du centre d'excitation. Il fournit alors de l'énergie cinétique au condensat qui peut se propager de part et d'autre du

3.1 Introduction

centre d'excitation. La durée de vie des photons dans ces microcavités est estimée à 15 ps. L'échantillon est excité hors résonance et au-dessus du seuil par un laser Ti-saphir continu à $35 \mu\text{m}$ du bord du fil. Le but est ici d'augmenter la distance de propagation des polaritons en amplifiant le condensat à partir du réservoir d'excitons déjà créé. Comme le montre la figure 3.3.(a), les polaritons se propageant à droite du spot d'excitation sont réfléchis et à la fin du trajet retour ($t = 50\text{ps}$) le réservoir amplifie le condensat qui peut à nouveau se propager. Ce cycle se répète ainsi cinq fois sur la plage de temps. Il y a ainsi une augmentation de la distance de propagation des polaritons par une amplification similaire à celle des amplificateurs optiques (se basant donc sur la composante photonique des polaritons). Cette hypothèse d'amplification des polaritons est modélisée par une équation de Gross-Pitaevskii incluant des termes de restimulation et de non-linéarité.

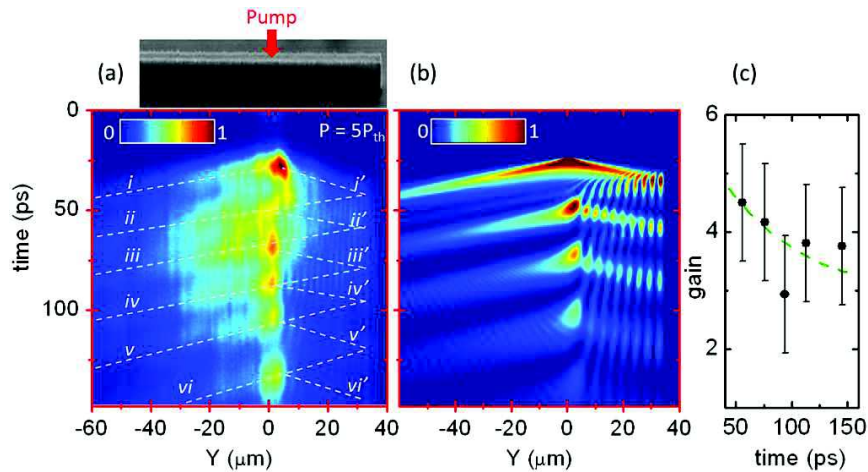


FIGURE 3.3 – (a) Intensité PL résolue spatialement et temporellement d'un condensat de polariton créé à $35 \mu\text{m}$ du bord de l'échantillon, une réalimentation continue du condensat s'opère par les réflexions successives des polaritons sur le bord du fil, augmentant indirectement ainsi leur distance de propagation. (b) Modélisation de l'amplification de polariton par une équation de type Gross-Pitaevskii (c) et gain correspondant à chaque réamplification du condensat. D'après E.Wertz et al. [WAS⁺12]

Les différences entre chaque dispositif rendent bien compte des possibilités qu'offre la nature composite des polaritons pour le contrôle de leur propagation :

- d'une part leur composante excitonique : dans les trois dispositifs, l'excitation utilisée est fortement focalisée par un objectif de microscope. L'interaction entre le réservoir d'exciton et les polaritons, qui se traduit par une transformation du blueshift dû à la force de répulsion polariton-exciton en énergie cinétique permet la propagation balistique des condensats. De plus c'est la création d'un blueshift qui permet dans le premier cas d'empêcher la circulation des polaritons dans le canal et dans le deuxième cas d'ajuster l'énergie du mode de l'îlot central.

- d'autre part leur composante photonique permet dans la troisième structure de réaliser des phénomènes d'amplification des polaritons par restimulations successives. La durée de propagation des polaritons est ainsi augmentée.

Tous ces dispositifs ont été réalisés sur des microcavités GaAs fonctionnant exclusivement à des températures cryogéniques. Cependant les phénomènes de propagation de condensat sont également observables dans les microcavités ZnO à température ambiante.

3.2 Topographie du paysage photonique et choix des points d'étude

L'étude a été réalisée sur la cavité ZFeng1 présentée dans le chapitre 1 (figure 1.10.d). Un gradient d'épaisseur non uniforme existe du fait de la technique de fabrication de l'échantillon, par conséquent, avant d'étudier la propagation des polaritons, il est nécessaire de connaître la configuration énergétique de la zone étudiée. Les mesures sont effectuées en microscopie confocale en utilisant le même montage expérimental décrit dans le chapitre précédent (vérification de l'homogénéité de la zone étudiée, figure 2.5).

Carte énergétique et choix des points d'étude La photoluminescence intégrée en angle présentée en figure 3.4.a) est mesurée en régime linéaire (excitation CW) à une température de 80 K. Le réseau du spectromètre est peu dispersif (150 traits/mm) afin d'obtenir le signal de toutes les branches polaritoniques, mais aussi celui du laser. La zone étudiée étant relativement épaisse, plusieurs branches de polaritons (LPB0 à LPB3) sont visibles ainsi que la raie excitonique. L'écart en énergie entre les branches polaritoniques observées permet de déduire, par comparaison avec les simulations des modes de cavité en fonction de l'épaisseur de la couche active, que la zone étudiée est de 890 nm d'épaisseur. Par la suite, plusieurs spectres sont acquis par pas de un micron sur une surface de $60 \times 60 \mu\text{m}^2$. Le paysage énergétique varie pour chacune des branches du fait de leur poids excitonique différent. La cartographie de l'environnement photonique de la microcavité présentée sur la figure 3.4.b est issue du mode de polariton LPB1. Celui-ci est le produit du couplage des excitons de ZnO avec le mode de cavité 4.5λ . La variation d'énergie sur l'ensemble de la carte va de 3.163 eV à 3.269 eV. Afin d'étudier le comportement spatial des condensats en fonction de la différence d'énergie dans leur voisinage, deux points d'études ont été choisis : d'une part, une "plaine" (point A sur la figure 3.4.b) avec un gradient en énergie de $0.5 \text{ meV} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ et d'autre part une "pente" (point B) avec un gradient plus important ($1.5 \text{ meV} \cdot \mu\text{m}^{-1}$). Pour mener à bien cette étude, il a fallu dans un premier temps mettre en place un système d'imagerie adéquat.

3.3 Imagerie des condensats par tomographie

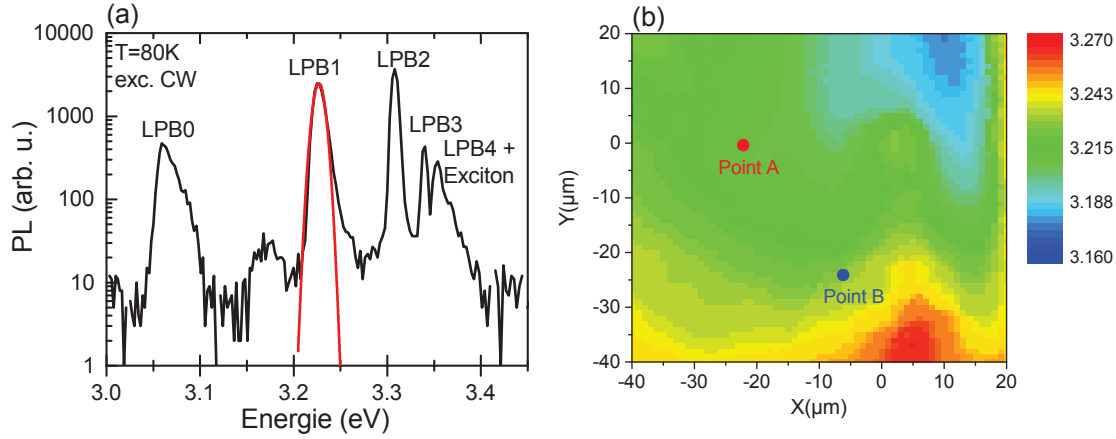


FIGURE 3.4 – Cartographie du paysage énergétique. (a) Spectre μ PL intégré en angle à 80 K avec ajustement par une gaussienne de la partie basse énergie du pic associé à LPB1. (b) Cartographie globale de la zone étudiée ajustée sur l'énergie de la branche LPB1. Les deux points d'étude A et B sont indiqués et le spectre de (a) est mesuré à la position $(-6 \mu m, -26 \mu m)$.

3.3 Imagerie des condensats par tomographie

Configuration expérimentale L'expérience est réalisée dans le régime d'excitation fortement focalisée ("tightly focused excitation" [WCC08]). Pour atteindre le seuil du laser à polaritons, le laser CW ne fournissant pas une puissance crête suffisante, l'échantillon est par conséquent soumis à une excitation pulsée à 266 nm [GBV⁺11],[LOK⁺13] (laser Teem Photonics avec une fréquence de 4 kHz, pour une impulsion de 400 ps). Le diamètre du spot est difficile à mesurer car la forme de l'excitation n'est pas homogène. On estime qu'il est comparable ou légèrement supérieur à celui mesuré pour le laser CW (environ 1.5-2 μm). La technique d'imagerie a changé : au lieu de ne détecter que le signal provenant du centre du point excité, il s'agit désormais de fixer le point d'excitation et de reconstituer l'image 2D en champ proche et en champ lointain (en utilisant une lentille de Fourier) du signal émis (cf. annexe A). A chaque position de la lentille d'imagerie LP2 correspond une tranche de l'image globale. En balayant l'ensemble de l'image et en regroupant toutes les tranches collectées, il est alors possible de reconstituer l'émission (voir figure 3.5). La lentille LP2 est posée sur une translation motorisée avec un moteur pas à pas (voir schéma du montage général en annexe A) et son déplacement est commandé informatiquement via LabView. Ce procédé d'imagerie est appelé tomographie. La plage spectrale accessible étant suffisante pour imager les émissions de chaque contribution à la photoluminescence, il devient possible de mieux comprendre les mécanismes de formation des polaritons.

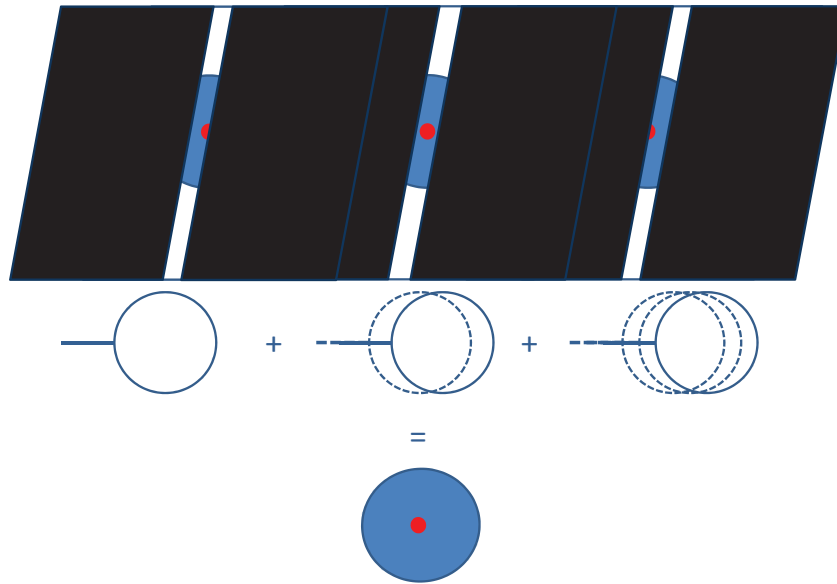


FIGURE 3.5 – Schéma représentant le procédé d'imagerie par tomographie. Le signal sélectionné par la fente d'entrée du spectromètre est représenté pour 3 positions de la lentille LP2 en amont de la fente du spectromètre.

Aperçu de la dynamique de formation des condensats à 80 K Dans un premier temps, nous présentons les mesures effectuées à 80 K au point A correspondant à "la plaine" de potentiel de la figure 3.4. Le spot d'excitation de $4 \mu\text{m}$ (figure 3.6.a) crée en premier lieu des excitons à 3.37 eV (spectre de la figure 3.4.a). Ces excitons relaxent ensuite sur les branches basses de polaritons disponibles, créant ainsi des polaritons dans les différentes branches. Nous observons la formation du réservoir d'excitons sous le spot laser, qui diffuse sur plusieurs microns. Le condensat de polaritons quant à lui se forme sous le réservoir d'excitons et se propage au-delà de $20 \mu\text{m}$ du centre de l'excitation (figure 3.6.c).

L'étude de l'imagerie de l'émission de la cavité est complémentaire de l'étude des spectres intégrés spatialement, présentés sur la figure 3.7.a). Il y a une compétition de mode entre les différentes branches polaritoniques. Dans le cas présent (fig.3.7.a), au-dessus du seuil, la branche la plus proche de l'énergie des excitons (LPB2) est celle dont les polaritons condensent (avec un désaccord positif estimé à $200 \pm 40 \text{ meV}$, et un coefficient d'exciton de Hopfield de 87%), ce qui est en accord avec les résultats de [LOK⁺13]. Le signal émis proche de l'énergie des excitons nus (3.34-3.37 eV) est dû à des modes de polaritons d'ordre supérieur à très forte composante excitonique ajouté au signal des excitons non-couplés. On considère que l'image 2D correspondante (figure 3.6.b) indique la distribution spatiale du réservoir d'excitons, que l'on peut ajuster avec une gaussienne. Le diamètre du réservoir (largeur à mi-hauteur de $4, 5 \mu\text{m}$) est comparable à celui du

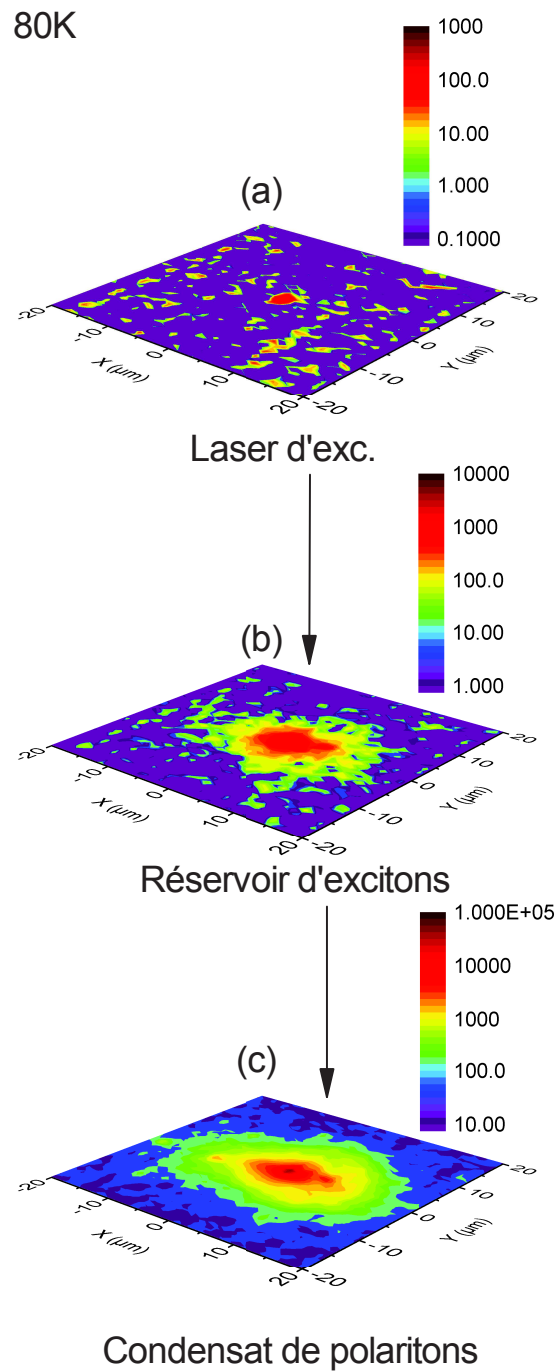


FIGURE 3.6 – Images de tomographie intégrées en angle du (a) laser d'excitation, (b) du réservoir d'excitons et (c) du condensat de polaritons réalisée à 80 K au point A identifié sur la figure 3.4 correspondant à une "plaine" en énergie.

laser ($4 \mu\text{m}$). La branche LPB2 a un profil centré en $Y = 0 \mu\text{m}$, tout comme le réservoir et la branche non condensée, toutefois, il est beaucoup plus piqué (fig. 3.7.b). De plus, l'intensité du pic central augmente beaucoup plus vite avec la puissance que les queues de propagation au-delà de $\pm 20 \mu\text{m}$ (fig. 3.7.c). Ces résultats seront discutés plus en détail lors de la comparaison avec le modèle dans la section 3.4.

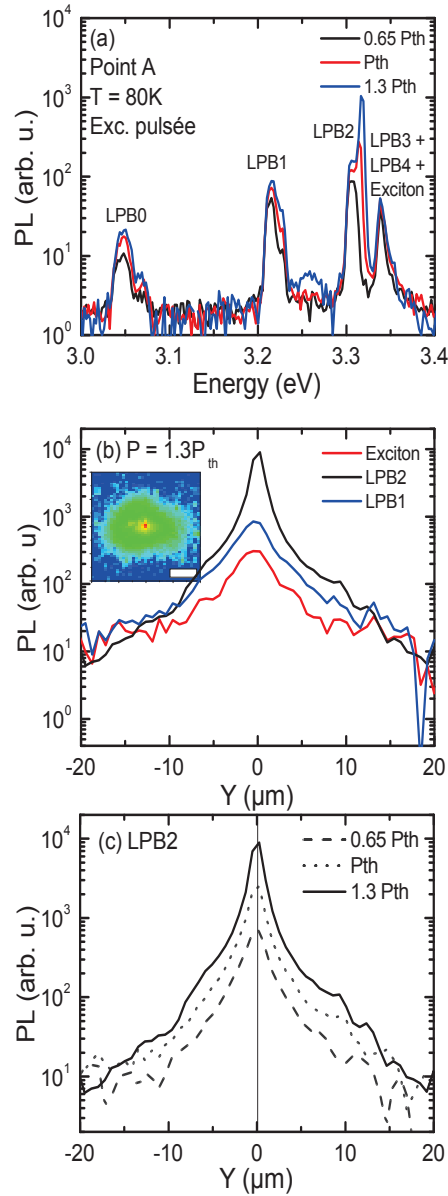


FIGURE 3.7 – (a) Spectre μPL en puissance sous excitation pulsée à 80 K au point A. (b) Coupes en intensité du réservoir d'excitons, de la branche non condensée LPB1 et du condensat de polaritons LPB2 à $P=1.3P_{th}$. L'encart de la figure est l'image en fausses couleurs du condensat de polaritons. (c) Coupe en intensité du condensat de polaritons (LPB2) en fonction de la puissance d'excitation.

3.3 Imagerie des condensats par tomographie

Étude quantitative de la dynamique de propagation à 300K Tout comme à 80 K, les mesures ont été faites avec une faible résolution spectrale pour imager toutes les composantes de l'émission. Dans un premier temps, on remarque que la branche qui condense à 300 K n'est plus LPB2 mais LPB1. Les composantes polaritoniques proches de l'énergie du mode d'exciton n'émettent plus à cette température (fig.3.8). Cette branche se situe à désaccord quasi-nul avec un coefficient d'exciton de Hopfield de 50%. Le blueshift à $1.8P_{th}$ vaut 12 meV ; il est symptomatique de l'effet de répulsion du réservoir d'excitons sur le condensat.

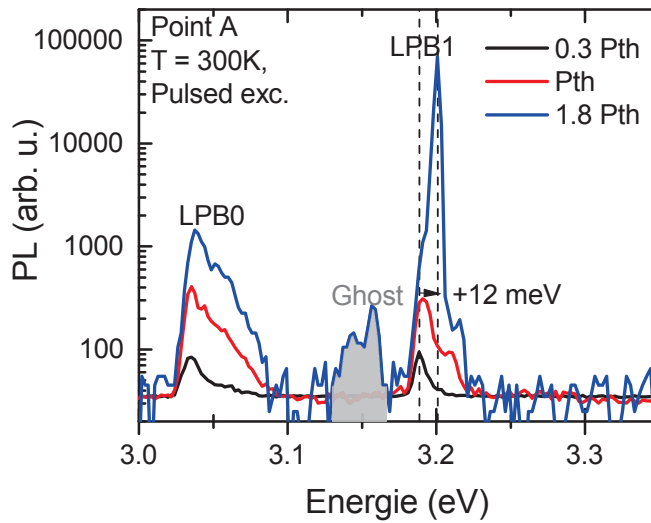


FIGURE 3.8 – Spectres intégrés en angle mesurés à différentes puissances au point A à 300 K. Les puissances d'excitation sont indiquées en fonction de la puissance seuil de condensation P_{th} . Le blueshift mesuré vaut 12 meV pour LPB1. Le ghost est lié au spectromètre, et au très fort contraste de signal entre le pic de LPB1 et le fond.

Les signaux des deux transitions ainsi que la faible émission du laser réfléchi sont alors mesurés en champ proche. Une lentille supplémentaire peut-être ajoutée pour projeter le plan focal arrière ("back focal plane") de l'objectif du microscope sur le plan d'entrée du spectromètre ; le plan de Fourier de l'émission (champ lointain) peut alors être imagé avec les mêmes conditions d'expériences. Les images correspondantes sont présentées sur les figures 3.9 (tomographie en champ proche) et 3.10 (tomographie en champ lointain) et ce pour les points A et B. Plusieurs conclusions naissent de cette comparaison :

- D'une part, la forme du signal collecté à l'énergie du laser d'excitation est commune aux deux paysages excités. Elle présente notamment une traînée d'émission dans une direction spécifique, qui est attribuée au caractère multimode du laser d'excitation. La puissance maximale de la source étant proche de celle du laser à polaritons au seuil (1 nJ/pulse), il n'est pas possible de faire un filtrage des modes du laser avant excitation de l'échantillon. Les conditions d'excitation sont alors considérées

équivalentes d'un point à l'autre.

- Les polaritons non condensés ont un profil plus étendu que le spot laser ($12 \mu\text{m}$) et se comportent différemment d'un environnement à l'autre. La comparaison des deux images en espace réel (fig.3.9.c et 3.9.d) indiquent que les polaritons glissent d'environ $3 \mu\text{m}$ du centre vers le bas de la pente en énergie (point B) alors que ceux de la plaine restent immobiles. Ceci implique que dans le cas de LPB0, la dynamique de propagation est dominée par le paysage énergétique. La distribution des énergies en espace k fait d'ailleurs écho à cette conclusion : elle est asymétrique au point B ce qui n'est pas le cas au point A (profils de LPB0 sur les panneaux d et f de la figure 3.9). Ce type de comportement se retrouve dans l'étude de polaritons de microcavités GaAs [SMKTM01],[NLS+13],[SLN+13].
- Les images de la branche condensée (LPB1, fig.3.9.e et 3.9.f) sont sensiblement similaires aux points A et B : l'émission est structurée et ne décroît pas de façon monotone en fonction de la distance au centre contrairement au cas LPB0. Ceci est clairement visible sur les coupes en intensité du condensat (fig.3.9.g et 3.9.h), de plus, la comparaison avec les coupes sous et au seuil de condensation indique bien qu'il s'agit d'un effet apparaissant à la condensation des polaritons. Elle n'est donc pas une conséquence du potentiel local aux points A et B. Les images en champ lointain montrent un premier anneau d'émission à $k \approx 2\text{-}3 \mu\text{m}^{-1}$ ainsi que d'autres anneaux ou portions d'anneaux à plus grand vecteur d'onde. L'extinction du signal à $k = 0$ et le caractère discret des vecteurs d'onde des condensats sont caractéristiques d'une propagation balistique : les polaritons sont générés au point d'excitation puis fortement expulsés par le potentiel répulsif du réservoir d'excitons [WAS+12],[FSSG+12],[ATV+11]. L'absence de symétrie cylindrique et les similarités observées aux deux positions A et B permettent de conclure que le profil du condensat est essentiellement dû à la forme de l'excitation causée par le caractère multimode du laser. La complexité de cette émission n'apparaît pas dans les images des coupes en champ lointain.

Finalement, pour une excitation fortement focalisée, les mécanismes de propagation sont radicalement différents pour les polaritons condensés ou non. L'énergie cinétique fournit au condensat lui permet une propagation quasi-indépendante du relief énergétique. Dans la suite de ce chapitre, nous essaierons de modéliser le génération et la propagation de ces condensats et nous verrons quels sont les paramètres décisifs pour différencier le cas à 80 K de celui à 300 K.

3.3 Imagerie des condensats par tomographie

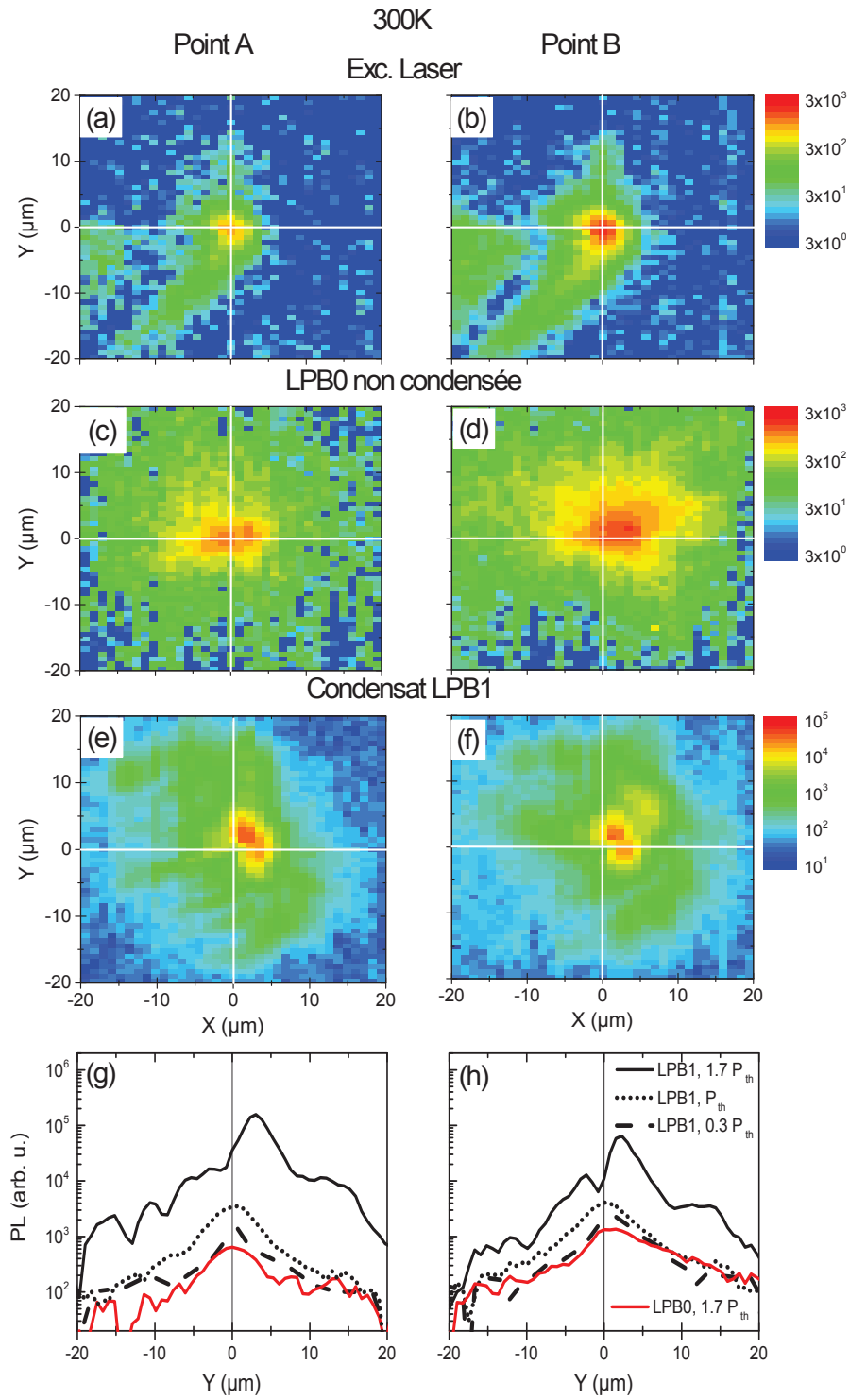


FIGURE 3.9 – Images 2D de tomographie du laser d’excitation, de la branche non-condensée LPB0 et du condensat de polaritons au point A (a,c,e respectivement) et au point B (b,d,f respectivement). Les coupes en intensité de LPB0 et LPB1 sont extraites suivant l’axe Y en $X = 0$ (g,h)

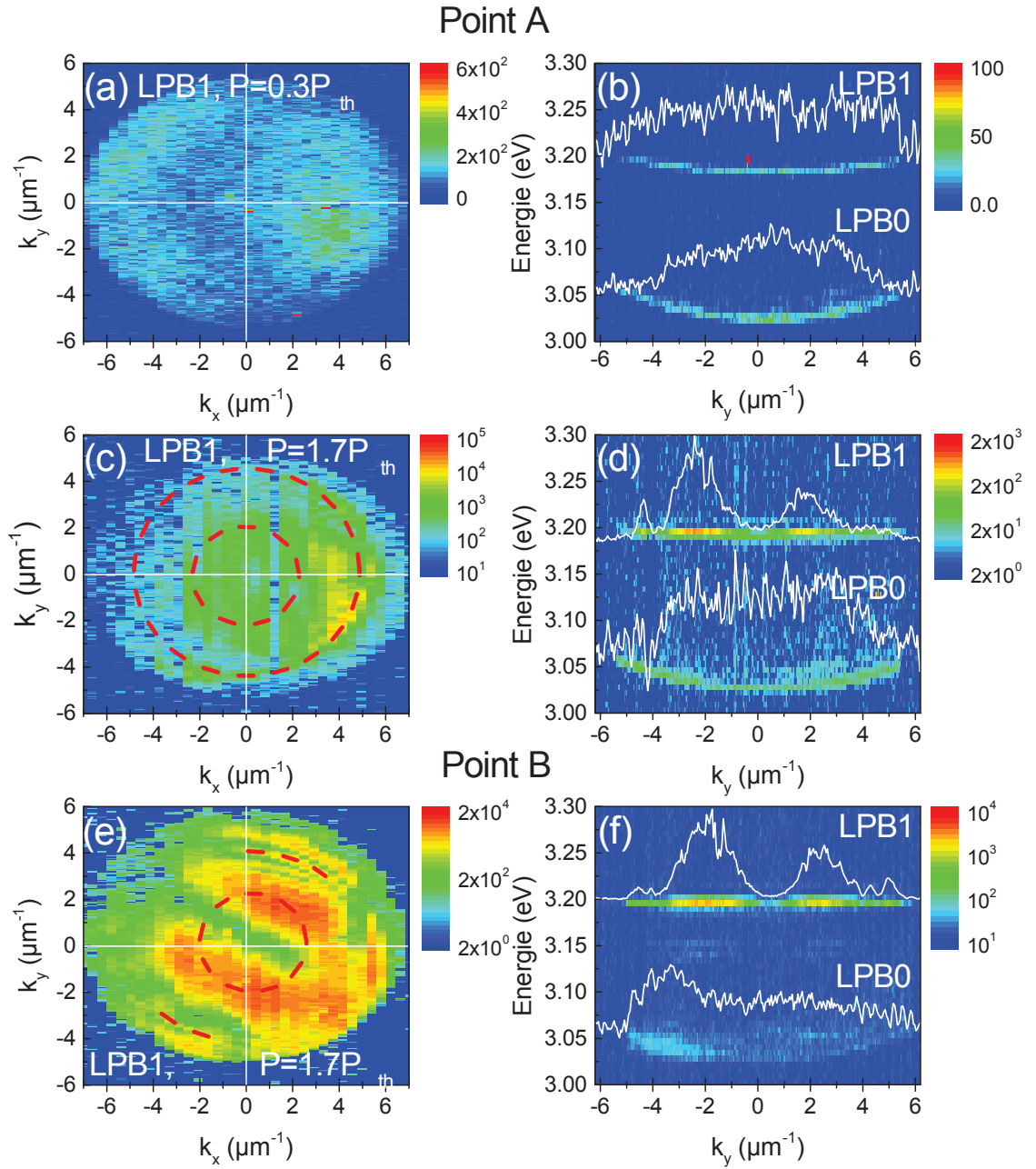


FIGURE 3.10 – Images de tomographies en champ lointain de la branche LPB1 au point A sous (a) et au-dessus du seuil (c) et au point B au-dessus du seuil (e) à $T = 300$ K. Les coupes spectrales aux puissances correspondantes sont extraites à $k_x=0$ (b,d,e).

3.4 Modélisation de la propagation

Modèle général et approximations Le modèle de génération et de propagation que nous avons développé est similaire à celui de M. Wouters *et al.* [WCC08]. Celui-ci y a défini très précisément le régime d'excitation fortement focalisé ("tightly-focused excitation regime") qui est le cadre de nos expériences. Notre modèle est adapté aux condensats de polaritons se déplaçant de façon balistique, *i.e.* avec un vecteur d'onde défini à une position donnée, comme dans le cas de la figure 3.10. Le modèle décrit la cinétique du réservoir d'excitons et d'un condensat de polariton unique. La densité n_R du réservoir est décrite par l'équation de variation :

$$\frac{dn_R(\mathbf{r})}{dt} = P(\mathbf{r}) - \gamma_R n_R(\mathbf{r}) - R n_R(\mathbf{r}) |\psi(\mathbf{r}, t)|^2 \quad (3.1)$$

Avec $P(\mathbf{r})$ le taux de pompage des polaritons dans le réservoir et γ_R leur taux de relaxation effectif. La fonction d'onde du condensat $\psi(\mathbf{r})$ est solution de l'équation de Gross-Pitaevskii (approximation en champ moyen) :

$$i\hbar \frac{\partial \psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = (\hbar\omega_0 - \frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla_r^2 + \frac{i\hbar}{2} (R n_R(\mathbf{r}) - \gamma_{pol}) + \hbar g_R n_R(\mathbf{r}) + \hbar g |\psi(\mathbf{r}, t)|^2) \psi(\mathbf{r}, t) \quad (3.2)$$

avec $\hbar\omega_0$, m^* et γ_{pol} qui sont respectivement l'énergie, la masse effective et la largeur homogène de la branche de polariton étudiée ; g_R et g sont les termes d'interaction exciton-polariton et polariton-polariton. $R n_R(\mathbf{r})$ est représentatif de la relaxation stimulée des polaritons du réservoir au condensat.

Le réservoir contient à la fois des excitons, dont les vecteurs d'onde se situent hors du cône de lumière dans la couche active ZnO, et des polaritons de haute énergie au delà de la zone dite de goulot d'étranglement ; le taux de perte du réservoir est appelé γ_R . En adoptant une démarche proche de celle développée dans [WCC08] pour de petites excitations en régime stationnaire, la fonction d'onde du condensat pour un certain blueshift ($\hbar\omega_c - \hbar\omega_0$) s'écrit $\psi(r, \theta, t) = \psi_m(r) e^{-i\omega_c t} e^{im\theta}$. Nous faisons l'hypothèse d'une absence de vortex au sein du condensat ($m = 0$ *i.e.* moment angulaire nul). Pour des rayons r supérieurs à la taille du spot, la solution stationnaire se propage librement avec un vecteur d'onde $k_c = \sqrt{2m^*/\hbar(\omega_c - \omega_0)}$ et sa propagation est limitée par sa durée de vie : elle prend alors la forme d'une fonction de Hankel $H_0^{(1)}(\sqrt{(2m^*/\hbar(\omega_c - \omega_0 + i\gamma_{pol}/2))}.r)$ aux limites asymptotiques. Pour $m = 0$ et un blueshift donné $\hbar(\omega_c - \omega_0)$, la fonction d'onde complète $\psi_0(r)$ est calculée numériquement par la méthode Runge-Kutta d'ordre 4. Le profil du taux de pompage du réservoir $P(\mathbf{r})$ est choisi comme étant gaussien.

Rappelons que le diamètre du réservoir d'excitons (4.5 μm FWHM) est proche de celui du laser d'excitation. Pour rester simple, nous n'incluons pas la relaxation dans la modélisation du pompage, et le taux de pompage est ajusté au profil du réservoir d'excitons. La résolution numérique du problème est effectuée dans le cas du réservoir non-déplété ($n_R(r) = (P(r)/\gamma_R)$) ou déplété ($n_R(r) = (P(r)/(\gamma_R + R|\psi_0(r)|^2))$). Cette

	T=300 K		T=80 K
	P=P _s	P=1.8P _s	P=1.3P _s
Branche condensée	LPB1		LPB2
Blueshift (meV)	4	12	11
$\frac{dE_{LPB}}{dE_X}$	0.47		0.87
Taux de perte des polaritons $\hbar\gamma_{pol}$ (meV)	0.35	1.8	0.35
Interaction exciton-exciton g_{XX}^b (eV. μm^2)	1.0E-8		
Interaction polariton-exciton $\hbar g_R$ (eV. μm^2)	5.0E-9		9.0E-9
Taux de relaxation stimulée $\hbar R$ (eV. μm^2)	3.3E-9		4.9E-10
Densité de porteurs dans le réservoir d'exciton $n_R(r=0)$ (μm^{-2})	8.5E+5	2.4E+6	1.2E+6
Seuil équivalent pour la condensation 2D (μm^{-2})	5.0E-4		5.2E+4
Vecteur d'onde de Hankel (μm^{-1})	2.8	4.9	9.2
Hypothèse de deux réservoirs			
Interaction exciton-exciton g_{XX}^a (eV. μm^2)	1.80E-9		
Interaction polariton-exciton $\hbar g_R$ (eV. μm^2)	8.6E-10		1.6E-9
Densité du réservoir de paires e-h (μm^{-2})	4.6E+7	1.4E+8	6.9E+7
Seuil équivalent pour la condensation 2D (μm^{-2})	2.9E-6		5.8E+4

Tab. 3.1 – Paramètres de la modélisation en fonction de la température et de la branche de polariton étudiée.

dernière valeur est déduite de l'équation 3.1. Ces deux hypothèses seront comparées pour déterminer le rôle de la déplétion dans la dynamique de condensation.

3.4.1 Choix des paramètres du modèle

Des expériences de photoluminescence résolues en temps menées avant cette thèse ont permis d'obtenir le temps de vie du réservoir d'excitons $\tau_R = 40$ ps, soit une largeur homogène de $\gamma_R = 0.016$ meV. L'élargissement homogène de la cavité $\gamma_{cav} = 0.8$ meV se calcule à partir de son facteur de qualité $Q = 4000$ [LOK⁺13]. Chaque branche polaritonique est caractérisée par une masse effective calculée à partir des images en champ lointain (dispersion angulaire des modes) à 300K pour LPB0 et LPB1. A 80 K, les simulations de matrices de transfert ont permis de déduire la masse effective de LPB2. Afin de faciliter la lecture de cette section, toutes les valeurs des paramètres sont reportées dans le tableau 3.1.

3.4 Modélisation de la propagation

Détermination des paramètres d'interaction Les paramètres d'interaction de polaritons (g_R , g) et le gain R ne peuvent être déterminés par les résultats d'expérience. Il est admis que g_R et g dépendent des coefficients de Hopfield de chacune des branches et de la constante d'interaction exciton-exciton g_{XX} . Dans notre modèle nous avons opté pour l'utilisation du facteur $x = \frac{dE_{LPP}}{dE_X}$ au lieu du coefficient de Hopfield tel que les termes d'interaction polariton-réservoir et polariton-polariton s'écrivent respectivement $g_R = x.g_{XX}$ et $g = x^2.g_{XX}$. Les valeurs de ces paramètres ont fait l'objet de nombreuses discussions dans les microcavités GaAs, et ne sont à l'heure actuelle pas connues dans ZnO. Des prédictions théoriques dans le cas d'excitons 3D dans un barreau [HK77] (système équivalent à notre couche de ZnO massif) donnent une valeur de $\hbar g_{XX}^a \approx 10E_b(a_B^3)/L_c \approx 1.8 \cdot 10^{-6} \text{ meV} \cdot \mu\text{m}^2$, avec $E_b = 60 \text{ meV}$ et $a_B = 1.4 \text{ nm}$ respectivement l'énergie de liaison et le rayon de Bohr des excitons de ZnO ; rappelons que l'épaisseur de la zone active étudiée vaut $L_c = 890 \text{ nm}$.

Le paramètre g_R peut aussi être déterminé par la mesure du blueshift de l'émission de la branche de polaritons au seuil :

$$\hbar(\omega_c - \omega_0) = \hbar g_R \cdot n_{Rth} \quad (3.3)$$

Aucune expérience spécifique n'a permis de mesurer la densité d'excitons au seuil n_{Rth} , toutefois celle-ci a été calculée par Dmitry Solnyshkov et Guillaume Malpuech dans un modèle cinétique, dans le cas 2D d'un spot infini dans la même microcavité [LOK⁺13],[KBML07] : $n_{Rth}^{2D} \approx 5 \cdot 10^4 \mu\text{m}^{-2}$ à température ambiante. En suivant cette approche, une deuxième valeur du paramètre d'interaction g_{XX} est extraite de nos simulations : $\hbar g_{XX}^b \approx 1.0 \cdot 10^{-5} \text{ meV} \cdot \mu\text{m}^2$, soit six fois supérieur à $\hbar g_{XX}^a$. Nous expliquerons cette divergence dans la suite de la section.

Détermination du gain Le gain R est phénoménologique ; dans le cas d'un spot infini à 2D, il est proportionnel lui aussi à la densité du réservoir au seuil n_{Rth}^{2D} mais aussi au taux de perte des polaritons γ_{pol} . En effet, les pertes du réservoir étant exactement compensées par le gain au seuil de condensation dans l'équation 3.2 :

$$R n_{Rth}^{2D} = \gamma_{pol} \quad (3.4)$$

Il dépend donc également, contrairement aux paramètres d'interaction g_R et g , de la température et du désaccord de la branche de polaritonique car il indique l'efficacité de la relaxation stimulée du réservoir d'excitons vers le condensat de polaritons.

Choix du jeu de paramètres Pour faciliter la comparaison avec les résultats du modèle présenté dans l'article de Feng Li [LOK⁺13], nous avons choisi un jeu de paramètres basé sur $n_{Rth}^{2D} \approx 5 \cdot 10^4 \mu\text{m}^{-2}$, *i.e.* $\hbar g_{XX}^b = 1.0 \cdot 10^{-5} \text{ meV} \cdot \mu\text{m}^2$ et $\hbar R = 3.3 \cdot 10^{-6} \text{ meV} \cdot \mu\text{m}^2$ à T=300 K. La densité d'excitons dans le réservoir n'intervient dans les termes $R n_R$ et

$g_R n_R$ que dans les équations principales 3.1 et 3.2. En l'absence de forte déplétion du réservoir ou de fortes interactions polariton-polariton, comme nous le verrons par la suite, le modèle donne des résultats identiques en utilisant le deuxième jeu de paramètres : $g_{XX}^a = 1.8 \cdot 10^{-6} \text{ meV} \mu\text{m}^2$ and $\hbar R = 8.6 \cdot 10^{-7} \text{ meV} \cdot \mu\text{m}^2$, et une densité d'excitons six fois supérieure dans le réservoir (voir tableau 3.1). Nous discuterons plus en détail de ce point dans la partie suivante.

3.4.2 Modélisation d'un condensat à désaccord nul

Les simulations présentées sur la figure 3.11 sont issues des résultats expérimentaux présentés dans la figure 3.9. L'ajustement des simulations se fait en trois étapes. En premier lieu, les paramètres sont ajustés pour suivre les traînées du profil du condensat :

- Le blueshift (4 meV au seuil et 12 meV à $1.7 P_{th}$) et la masse effective de la brache LPB2 permettent de calculer la valeur du vecteur d'onde des polaritons k_c loin du réservoir.
- L'ajustement de la pente des traînées nécessite par la suite un léger ajustement du taux de perte γ_{pol} .
- Enfin, la densité du réservoir d'excitons est ajustée pour reproduire l'allure du condensat au centre de l'excitation.

Evolution du taux perte γ_{pol} en fonction de la puissance Dans la figure 3.11.a, le taux de perte vaut $\gamma_{pol} = 0.35 \text{ meV}$, soit quasiment la moitié du taux de perte des photons de la cavité γ_{cav} . Cela signifie que la durée de vie des polaritons est deux fois plus longue que celle des photons ce qui est cohérent étant donné que la fraction photonique de LPB1 est 1/2. Avec l'augmentation de la puissance d'excitation ($P = 1.7P_{th}$, figure 3.11.c), le profil du condensat (pour des distances inférieures à $10 \mu\text{m}$) décroît plus rapidement quand r augmente qu'à $P = P_{th}$ malgré un plus grand vecteur d'onde (qui suit la même évolution que le blueshift). Ceci peut-être pris en compte par une augmentation du taux de perte des polaritons $\gamma_{pol} = 1.8 \text{ meV}$, *i.e.* si des canaux de fuite supplémentaires existent pour le condensat (par exemple une diffusion vers les autres états de polaritons). Nous expliciterons ce comportement dans la partie discussion de fin de chapitre.

Le calcul de la densité d'excitons dans le réservoir est plus direct. Leur nombre total est fixé à $N_R = 1.6 \cdot 10^7$ (respectivement $4.9 \cdot 10^7$) pour $P = P_{th}$ (respectivement pour $P = 1.7P_{th}$), ce qui correspond à une densité au centre du spot de $n_R(r = 0) = 8 \cdot 10^5 \mu\text{m}^{-2}$ (resp. $2.4 \cdot 10^6 \mu\text{m}^{-2}$). L'augmentation d'un facteur 3 de n_R au lieu de 1.7 montre que l'hypothèse d'une efficacité de relaxation constante de l'énergie du laser à celle du réservoir et/ou de l'énergie du réservoir à celle du condensat ne suit pas la réalité expérimentale.

La formation d'un profil de condensat avec un minimum local au centre de l'excitation laser et des maxima à $r = \pm 2 \mu\text{m}$ est une des propriétés saisissantes des images en champ proche présentées en figure 3.9. Même si l'expérience ne présente pas une symétrie cylindrique, telle que nous le supposons dans le modèle, elle est reproduite de façon qualitative

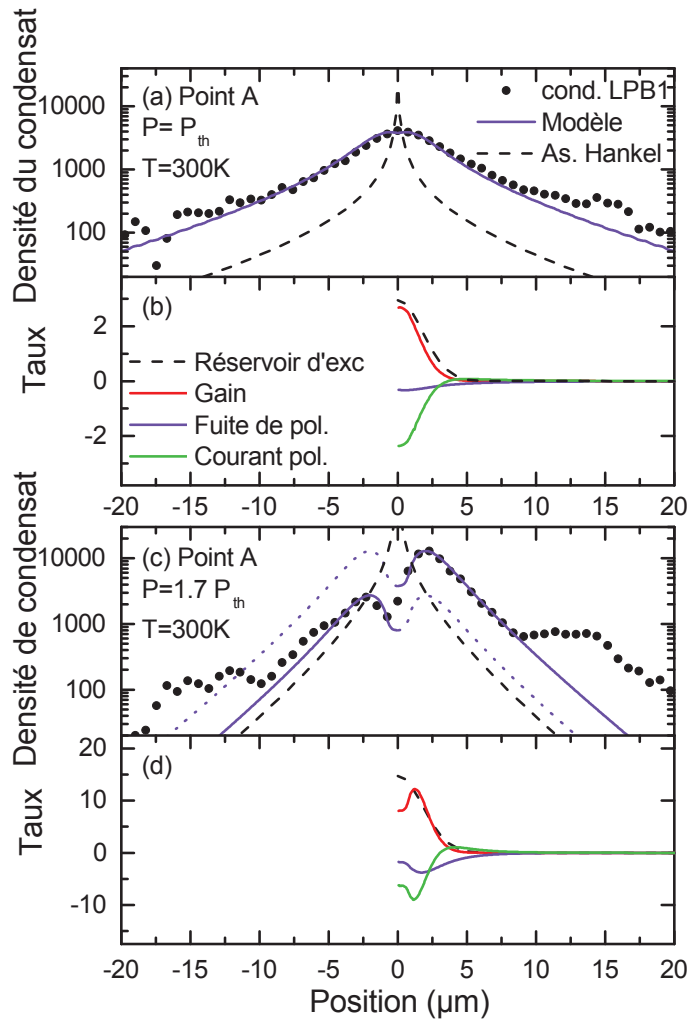


FIGURE 3.11 – (a) Profil en intensité suivant l’axe Y du condensat (pointillés) au seuil de laser à polaritons ($P=P_{th}$, LPB1, $T=300$ K), modélisation par l’équation de Gross-Pitaevskii (trait plein) et fonction asymptote d’Hankel (trait découpé); le blueshift du condensat est de 8 meV, tout comme dans l’expérience (figure 3.9) et la densité du réservoir au centre vaut $8 \cdot 10^5 \mu m^{-2}$. (b) Evolution des taux de gain, recombinaison et courant de polariton en fonction de r . (c,d) Mêmes données pour $P=1.7P_{th}$, avec un blueshift de 12 meV, et une densité du réservoir au centre de $2.4 \cdot 10^6 \mu m^{-2}$.

dans les simulations.

Dépendance du profil d'émission en fonction du réservoir Il faut remarquer que pour $P = 1.7P_{th}$, le profil est très sensible à la densité du réservoir : une quelconque inhomogénéité de l'excitation ou de l'efficacité de relaxation induit une grande variation de la densité locale du condensat. Ce phénomène est lié au caractère non-linéaire de la formation ; de tels inhomogénéités ont moins d'impact à $P = P_{th}$. L'analyse des contributions locales à la variation de la distribution du condensat permet de mieux comprendre le mécanisme de formation du condensat. A l'instar de [WCC08], l'équation de conservation des polaritons dans le régime stationnaire est la somme de trois termes (le gain, les pertes par recombinaison et le courant de polaritons) :

$$(Rn_R(r) - \gamma_{pol})|\psi(\mathbf{r})|^2 - \frac{\hbar}{m^*} \text{div}(|\psi(\mathbf{r})|^2 \cdot \mathbf{k}(\mathbf{r})) = 0 \quad (3.5)$$

avec $k(r)$ le vecteur d'onde local *i.e.* le gradient de la phase de la fonction d'onde des polaritons. Au seuil de condensation ($P = P_{th}$ sur la figure 3.11.b), bien que le profil du condensat soit maximum en $r = 0$, le courant de polariton est bien plus important que la recombinaison, d'où une densité du réservoir au centre $n_R(0) = 8 \cdot 10^5 \mu\text{m}^{-2}$ 16 fois supérieure à n_{Rth}^{2D} dans le cas 2D. A $P = 1.7P_{th}$ le courant et la recombinaison ont des amplitudes comparables. Le condensat accélère radialement et est amplifié sur les côtés du réservoir d'excitons, avec une densité maximum à $r = 2 \mu\text{m}$; en ce point, la relaxation stimulée à partir du réservoir remplit le condensat avec des polaritons de vecteur d'onde non nul.

Représentation en espace réciproque Afin de comparer les coupes en champ lointain du condensat (figure 3.12.a) et les simulations, nous avons tracé le vecteur d'onde local $k(r)$ sur la figure 3.12.b (trait plein blanc), et l'intensité d'émission à la même position est représentée en fausses couleurs. Sa moyenne spatiale permet de simuler le profil en champ lointain du condensat (figure 3.12.a). Les profils expérimentaux et simulés présentent tous les deux un maximum à $k \neq 0$, ce qui est la signature de la propagation balistique des polaritons. Cependant les valeurs de ces maxima diffèrent : $k = 2 \mu\text{m}^{-1}$ pour l'expérience et $5 \mu\text{m}^{-1}$ pour la simulation. Des pics d'émission plus faibles existent à $4 - 5 \mu\text{m}^{-1}$ sur la coupe expérimentale. Ce sont des anneaux partiels dans l'image 2D en espace de Fourier 3.10.e.

3.4.3 Modélisation d'un condensat de polaritons à désaccord positif

Le processus de génération dépend fortement du pourcentage excitonique de la branche polaritonique, *i.e.* du coefficient d'exciton de Hopfield et plus encore de la masse effective, comme le montre l'analyse des expériences sur LPB2 à 80 K de la figure 3.7. Cette

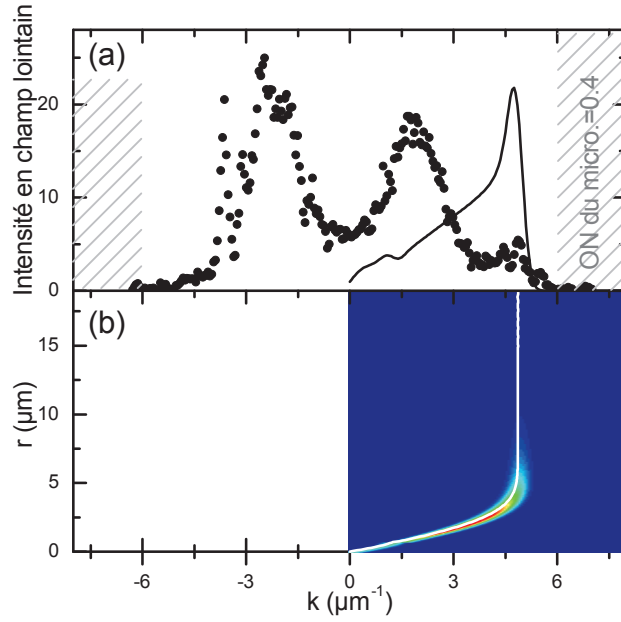


FIGURE 3.12 – (a) Profils expérimentaux en k_y du condensat en champ lointain (poinillés) au-dessus du seuil du laser à polaritons ($P = 1.7P_{th}$, LPB1, T=300 K), et simulation GPE liée aux figures 3.11.c et d (trait plein). (b) Relation entre vecteur d’onde et rayon de propagation du condensat. L’intensité d’émission est en fausses couleurs.

dernière a ici une masse effective 5 fois supérieure à celle de LPB1. Le profil expérimental du condensat ($P=1.3P_{th}$, figure 3.13.a) montre un maximum à $r = 0$ et des traînées de propagation. Le blueshift vaut 11 meV , d’où un vecteur d’onde loin du centre du spot à $9 \mu\text{m}^{-1}$ (au-delà de l’ouverture numérique de l’objectif de microscope) et une densité d’excitons au centre $n_R(r = 0) = 1.2 \cdot 10^6 \mu\text{m}^{-2}$, vingt fois plus grande que le seuil calculé pour un condensat 2D infini. Les paramètres de la modélisation sont les suivants : $\gamma_{pol} = 0.4 \text{ meV}$, comme pour la figure 3.11.a et $R = 1.2 \cdot 10^{-6} \text{ meV} \cdot \mu\text{m}^{-2}$ (il est inférieur à celui à T=300 K). La figure 3.13.b montre que le condensat est principalement généré au centre du spot, puis se déplace hors du spot sans être amplifié, ce qui explique le fait que son profil soit similaire à celui de la fonction d’Hankel.

3.4.4 Discussion

Différentes distributions spatiales du condensat de polaritons ont pu être observées en fonction du désaccord de la branche ou de la densité d’excitation. A la lumière des résultats fournis par l’étude quantitative du condensat de polariton dans les paragraphes précédents, il apparaît que le paramètre le plus important soit la masse effective de la branche étudiée. En effet, elle détermine la vitesse de propagation du paquet d’onde de polaritons loin du réservoir $v_c = \frac{\hbar k_c}{m^*}$ et l’ordre de grandeur du temps de transit des

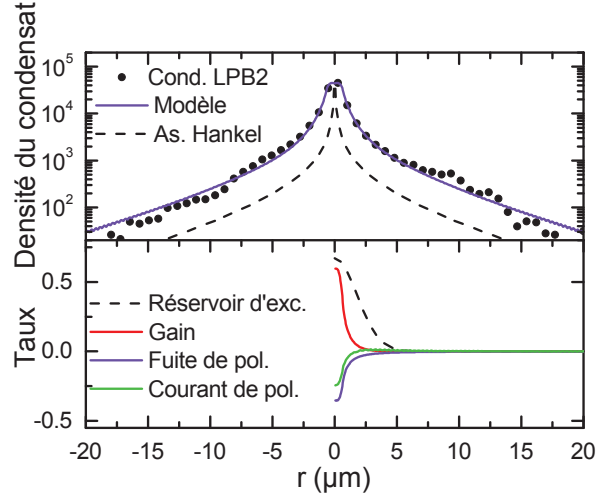


FIGURE 3.13 – (a) Profils expérimentaux du condensat (pointillés) au-dessus du seuil laser ($P = 1.3P_{th}$, LPB2, $T=80$ K), simulation GPE (trait plein) et fonction asymptotique d'Hankel (trait découpé); le blueshift du condensat est de 11 meV comme dans l'expérience de la figure 3.7 et une densité du réservoir au centre de $7 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}$. Le taux de fuite des polaritons vaut $\gamma_{pol} = 0.4 \text{ meV}$. (b) Evolution des taux de gain, de recombinaison et de courant de polariton en fonction de r .

polaritons dans le réservoir avant leur propagation, $t_1 = \sigma_R/v_c$ (0.24 ps pour LPB1 contre 0.5 ps pour LPB2 d'après les simulations) avec σ_R la largeur du profil gaussien du réservoir. Le temps t_1 doit être comparé à celui de la relaxation stimulée du réservoir au condensat, $t_2 = 1/(Rn_r)$, qui vaut 0.07 ps pour LPB1 à 300 K contre 0.8 ps pour LPB2 à 80 K :

- Dans le cas d'une branche de polariton "légère" (LPB1) et d'une relaxation efficace ($T=300$ K), $t_2 > t_1$, le condensat est donc amplifié à mesure qu'il s'éloigne du centre d'excitation. Cette situation peut-être rapprochée de celle présentée en introduction dans le cas du condensat réfléchi puis amplifié dans les barreaux 1D [WAS⁺12].
- Dans le cas d'une branche "lourde" (LPB2) et d'une relaxation moins efficace ($T=80$ K), le condensat se forme au centre du réservoir et se propage sans être amplifié, c'est l'équivalent d'un chute libre.

Théorie des deux réservoirs Le désaccord entre g_{XX}^a et g_{XX}^b peut-être expliqué par cette hypothèse. Le réservoir d'excitons, composé d'excitons et de polaritons à grand k , est impliqué dans le terme de relaxation, $\hbar Rn_1$ de l'équation 3.2 tandis qu'un deuxième réservoir composé de porteurs photo-générés (des paires électrons-trous, certaines d'entre elles n'ayant pas relaxé à l'énergie des excitons ou n'ont pas la relaxation stimulée jusqu'au condensat) contribue au potentiel répulsif, $\hbar Rn_2$ senti par le condensat. Cette théorie

3.5 Conclusion

des deux réservoirs est résumée dans le tableau 3.1 et est également discutée dans la formation de condensats de polaritons dans des microcavités GaAs et GaN [NLW⁺09, ALM⁺15, IGR⁺12].

Perspectives du modèle Une autre limite de notre modèle vient de l'absence de relaxation qui a récemment été prise en compte dans le modélisation théorique de la condensation de polaritons [STDM14]. En effet, nous n'observons pas de relaxation des polaritons au-dessus du seuil pour la branche condensée, donc l'hypothèse d'une relaxation négligeable dans nos expériences paraît pertinente. Toutefois, nous observons une divergence entre la distribution expérimentale en espace k du polariton et celle de la simulation ; les polaritons n'ont pas le vecteur d'onde estimé loin du spot d'excitation. Deux explications, dont la confirmation nécessiterait davantage d'expériences, sont avancées :

- Quand la densité de polaritons devient importante dans le condensat, une partie d'entre eux est éjectée du condensat vers d'autres branches de polaritons [XDZ⁺12] entraînant une diminution du temps de vie des polaritons ; nos simulations nous ont montré que même quadrupler le taux de perte des polaritons γ_{pol} n'est pas suffisant pour s'ajuster aux résultats expérimentaux.
- Sans perte d'énergie, les polaritons du condensat "perdent" du vecteur d'onde du fait de diffusions liées au désordre ou aux interactions polariton-polariton.

Déplétion Notre modèle permet d'estimer la population de porteurs dans le réservoir d'excitons (de l'ordre de 10^7 dans nos jeux de données) et dans le condensat (de l'ordre de 10^3). Nous en concluons que :

- il n'y a pas de déplétion du réservoir
- la répulsion polariton-polariton dans le condensat est négligeable comparée à celle du réservoir.

Il faut remarquer que l'absence de déplétion est sans doute spécifique à l'excitation pulsée à 400 ps que nous avons utilisé ici, mais également lors de travaux antérieurs sur la condensation de polaritons dans GaN et ZnO ; de telles impulsions sont relativement longues comparées aux échelles de temps typiques des excitons et photons du système. Néanmoins, elles sont probablement trop courtes pour atteindre un régime stationnaire où le nombre de particules dans le condensat serait limité par la déplétion du réservoir.

3.5 Conclusion

Nous avons modélisé la formation et la propagation d'un condensat de polaritons dans une microcavité ZnO dans le régime dit "fortement focalisé". L'imagerie à 2D de l'émission résolue spectralement en espace réel et réciproque fournit un ensemble complet de données expérimentales qui permet pour la première fois une comparaison avec un modèle simple basé sur l'équation de Gross-Pitaevskii ainsi qu'une évaluation du rôle

du désordre et des gradients. Nous avons décrit les rôles respectifs de la formation du condensat, de la répulsion par le réservoir d'excitons et de l'amplification du condensat. Deux régimes dépendant du désaccord δ de la branche condensée et de la température sont mis en évidence :

- les polaritons à désaccord presque nul se propagent lentement aux alentours du réservoir d'excitons et le condensat est amplifié au vol.
- les polaritons plus excitoniques ont une masse effective plus élevée accélèrent à grand vecteur d'onde k sans être amplifiés du fait de l'interaction exciton-exciton beaucoup plus élevée.

Enfin, nous pouvons estimer l'augmentation de la densité d'excitons au seuil en comparant le régime fortement focalisé au cas idéal d'une excitation infinie à 2D ; ce facteur est ici situé entre 10 et 20. Ces critères seront à prendre en compte lors de l'élaboration de futures laser à polaritons basés sur des réservoirs d'excitons micrométriques.

Conclusion

Dans ce travail de thèse, majoritairement expérimental, nous avons étudié le comportement dynamique des condensats de polaritons à température ambiante dans des microcavités massives à base d'Oxyde de Zinc (ZnO).

Le premier chapitre introduit les polaritons en microcavité. Cette quasi-particule issue du couplage fort exciton-photon, possible grâce au confinement des photons en microcavité, est un boson et peut donc réaliser des phénomènes exclusifs à ce type de particule tels que la condensation de Bose-Einstein (BEC). Nécessitant des températures de moins de 1.10^{-6} K pour les atomes froids, elle peut-être observée jusqu'à température ambiante avec les polaritons. C'est notamment l'une des possibilités qu'offre le matériau semiconducteur ZnO dont la force de liaison des excitons (60 meV) leur permet de résister à l'agitation thermique à 300 K (26 meV). La démonstration du laser à polaritons à cette température est le premier pas vers la réalisation de la BEC de polaritons et a été obtenue pour la première fois au Laboratoire Charles Coulomb en 2013 dans une microcavité ZnO tout-oxyde après divers essais sur des cavités semi-hybrides.

Le chapitre 2 présente une nouvelle cavité semi-hybride dont la structuration du substrat en mesa a permis une augmentation significative du facteur de qualité. Ce critère a été, dans les microcavités semi-hybrides étudiées précédemment au sein de la collaboration L2C, CRHEA, Institut Pascal, le facteur limitant la réalisation du laser à polaritons. La caractérisation de son homogénéité par des expériences de micro-photoluminescence (microscopie confocale) a confirmé l'absence de cracks sur les mesas et le facteur de qualité mesuré $Q = 1950$ est l'un des plus élevés mesuré sur des microcavités inorganiques. Des expériences de réflectivité résolue en angle ont été réalisées avec un goniomètre et un polariseur pour différencier les modes en polarisation TE et TM. Elles ont montré que le régime de couplage fort exciton-photon était atteint avec un dédoublement de Rabi important (136 meV). Par la suite, les expériences de macrophotoluminescence ont démontré la possibilité d'atteindre le régime de laser à polaritons avec un grand spot d'excitation, encourageant l'idée de la structuration de la géométrie de condensats de polaritons en microphotoluminescence. Trois formes de condensats ont ainsi été pu être étudiées : un condensat sous un spot d'excitation étendu à 2D, un condensat 1D et une tentative de piégeage d'un condensat en utilisant une excitation annulaire.

3.5 Conclusion

Par la suite, nous abordons dans le chapitre 3 des expériences de propagation des condensats de polaritons réalisées sur la cavité tout-oxide que nous avons présentée au chapitre 1. L'épaisseur de cet échantillon varie énormément ce qui induit une forte variation de l'énergie des polaritons. L'effet de cette variation sur la propagation des condensats a été étudiée en choisissant, sur une zone préalablement cartographiée, deux points d'étude dont le paysage énergétique est différent. L'imagerie de l'émission a été possible grâce à la mise en place d'un dispositif de tomographie. Les résultats obtenus ont permis de mettre en évidence les régimes de propagation balistique et d'amplification pendant la propagation. Les images modélisées en résolvant l'équation de Gross-Pitaveskii en champ moyen ont permis une comparaison quantitative des phénomènes mis en jeu dans une excitation fortement focalisée et une excitation 2D. Pour la première fois, des paramètres quantitatifs ont été déterminés et pour des mêmes résultats, une discussion détaillée des différents cadres théoriques d'interprétation a été menée.

Ce travail de thèse est le résultat d'une longue collaboration entre le laboratoire Charles Coulomb, le CRHEA, le LPN et l'Institut Pascal. Après plusieurs années de recherche ayant pour objet l'optimisation des microcavités ZnO pour réaliser le couplage fort et le laser à polaritons à 300 K, le niveau de maîtrise technologique des équipes du CRHEA et du LPN leur permet aujourd'hui, de manière reproductible, de réaliser des cavités semi-hybrides avec des facteurs de qualité et un état de surface suffisants pour obtenir le régime de laser à polaritons. Parallèlement, les dispositifs expérimentaux du Laboratoire Charles Coulomb se sont étoffés et diverses expériences sur les condensats de polaritons ont pu être menées (imagerie, étude de la dynamique temporelle, variation de la géométrie de l'excitation).

La perspective principale est la preuve expérimentale de la cohérence spatiale à longue portée du condensat afin de montrer qu'il s'agit bien d'un condensat de Bose-Einstein à température ambiante et pas seulement un laser à polaritons. Pour cela une meilleure stabilité de la condensation est nécessaire et plusieurs pistes peuvent être explorées :

- améliorer la qualité des microcavités afin d'atteindre le seuil laser en excitation continue.
- travailler à basse température afin de réduire le seuil de condensation et ainsi atténuer l'augmentation de température de l'échantillon dû aux fortes puissances d'excitation utilisées. Ce problème est d'autant plus important sur des échantillons à l'épaisseur non-homogène tel que la cavité ZFeng1.
- optimiser l'excitation en forme d'anneau afin de retrouver un condensat piégé comme celui de l'équipe de Southampton [AOK⁺13] ou de l'équipe de de Cambridge [CDC⁺13]. La baisse du seuil engendré réduirait mécaniquement l'augmentation de température liée à la puissance d'excitation.

Une autre perspective serait l'injection électrique dans une microcavité ZnO en configuration verticale [SRIK⁺13, BFD⁺14] ou guidée [STM14] afin de continuer le développement

de cette filière pour des applications dans des dispositifs intégrés.

Bibliographie

- [ALM⁺15] M. Amthor, T. C. H. Liew, C. Metzger, S. Brodbeck, L. Worschech, M. Kamp, I. A. Shelykh, A. V. Kavokin, C. Schneider, and S. Höfling. Optical bistability in electrically driven polariton condensates. *Physical Review B*, 91(8), February 2015.
- [AOK⁺13] A. Askitopoulos, H. Ohadi, A. V. Kavokin, Z. Hatzopoulos, P. G. Savvidis, and P. G. Lagoudakis. Polariton condensation in an optically induced two-dimensional potential. *Physical Review B*, 88(4) :041308, July 2013.
- [ATV⁺11] Marc Aßmann, Jean-Sebastian Tempel, Franziska Veit, Manfred Bayer, Arash Rahimi-Iman, Andreas Löffler, Sven Höfling, Stephan Reitzenstein, Lukas Worschech, and Alfred Forchel. From polariton condensates to highly photonic quantum degenerate states of bosonic matter. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 108(5) :1804–1809, January 2011.
- [BFD⁺14] Pallab Bhattacharya, Thomas Frost, Saniya Deshpande, Md Zunaid Baten, Arnab Hazari, and Ayan Das. Room Temperature Electrically Injected Polariton Laser. *Physical Review Letters*, 112(23) :236802, June 2014.
- [BGR⁺13] C. Brimont, T. Guillet, S. Rousset, D. Néel, X. Checoury, S. David, P. Boucaud, D. Sam-Giao, B. Gayral, M. J. Rashid, and F. Semond. Imaging of photonic modes in an AlN-based photonic crystal probed by an ultra-violet internal light source. *Optics Letters*, 38(23) :5059–5062, December 2013.
- [BKY14] Tim Byrnes, Na Young Kim, and Yoshihisa Yamamoto. Exciton-polariton condensates. *Nature Physics*, 10(11) :803–813, October 2014.
- [BLC⁺09] Raphaël Butté, Jacques Levrat, Gabriel Christmann, Eric Feltin, Jean-François Carlin, and Nicolas Grandjean. Phase diagram of a polariton laser from cryogenic to room temperature. *Physical Review B*, 80(23) :233301, December 2009.
- [Bos24] Bose. Plancks law and light quantum hypothesis. *Z. Phys*, 26 :178, 1924.
- [BWB⁺99] Max Born, Emil Wolf, A. B. Bhatia, P. C. Clemmow, D. Gabor, A. R. Stokes, A. M. Taylor, P. A. Wayman, and W. L. Wilcock. *Principles*

- of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Cambridge University Press, Cambridge ; New York, 7 edition, October 1999.
- [CC13] Iacopo Carusotto and Cristiano Ciuti. Quantum fluids of light. *Reviews of Modern Physics*, 85(1) :299–366, February 2013.
- [CDC⁺13] P. Cristofolini, A. Dreismann, G. Christmann, G. Franchetti, N. G. Berloff, P. Tsotsis, Z. Hatzopoulos, P. G. Savvidis, and J. J. Baumberg. Optical Superfluid Phase Transitions and Trapping of Polariton Condensates. *Physical Review Letters*, 110(18) :186403, May 2013.
- [CvHG⁺07] S. Christopoulos, G. Baldassarri Höger von Högersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Christmann, R. Butté, E. Feltn, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. Room-Temperature Polariton Lasing in Semiconductor Microcavities. *Physical Review Letters*, 98(12) :126405, March 2007.
- [DHA⁺98] Le Si Dang, D. Heger, R. André, F. Bœuf, and R. Romestain. Stimulation of Polariton Photoluminescence in Semiconductor Microcavity. *Physical Review Letters*, 81(18) :3920–3923, November 1998.
- [DHJ⁺11] Ayan Das, Junseok Heo, Marc Jankowski, Wei Guo, Lei Zhang, Hui Deng, and Pallab Bhattacharya. Room Temperature Ultralow Threshold GaN Nanowire Polariton Laser. *Physical Review Letters*, 107(6) :066405, August 2011.
- [DHY10] Hui Deng, Hartmut Haug, and Yoshihisa Yamamoto. Exciton-polariton Bose-Einstein condensation. *Reviews of Modern Physics*, 82(2) :1489–1537, May 2010.
- [DLR96] Bernard Diu, Danielle Lederer, and Bernard Roulet. *Physique statistique*. Hermann, July 1996.
- [Fau09] Stéphane Faure. *Interaction lumière-matière dans les microcavités massives à base de ZnO : du couplage fort à température ambiante vers le laser à polariton*. PhD thesis, Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, November 2009.
- [FBG⁺09] S. Faure, C. Brimont, T. Guillet, T. Bretagnon, B. Gil, F. Médard, D. Lagarde, P. Disseix, J. Leymarie, J. Zúñiga-Pérez, M. Leroux, E. Frayssinet, J. C. Moreno, F. Semon, and S. Bouchoule. Relaxation and emission of Bragg-mode and cavity-mode polaritons in a ZnO microcavity at room temperature. *Applied Physics Letters*, 95(12) :121102, September 2009.
- [FGL⁺08] S. Faure, T. Guillet, P. Lefebvre, T. Bretagnon, and B. Gil. Comparison of strong coupling regimes in bulk GaAs, GaN, and ZnO semiconductor microcavities. *Physical Review B*, 78(23) :235323, December 2008.

-
- [FSSG⁺12] Helena Franke, Chris Sturm, Rüdiger Schmidt-Grund, Gerald Wagner, and Marius Grundmann. Ballistic propagation of exciton-polariton condensates in a ZnO-based microcavity. *New Journal of Physics*, 14(1) :013037, January 2012.
- [GA97] Bernard Gil and Andenet Alemu. Optical anisotropy of excitons in strained GaN epilayers grown along the $\langle 101\bar{0} \rangle$ direction. *Physical Review B*, 56(19) :12446–12453, November 1997.
- [GBV⁺11] T. Guillet, C. Brimont, P. Valvin, B. Gil, T. Bretagnon, F. Médard, M. Mihailovic, J. Zúñiga-Pérez, M. Leroux, F. Semond, and S. Bouchoule. Laser emission with excitonic gain in a ZnO planar microcavity. *Applied Physics Letters*, 98(21) :211105, May 2011.
- [GCB97] Bernard Gil, Sandra Clur, and Olivier Briot. The exciton-polariton effect on the photoluminescence of GaN on sapphire. *Solid State Communications*, 104(5) :267–270, November 1997.
- [GEL⁺12] T. Gao, P. S. Eldridge, T. C. H. Liew, S. I. Tsintzos, G. Stavrinidis, G. Deligeorgis, Z. Hatzopoulos, and P. G. Savvidis. Polariton condensate transistor switch. *Physical Review B*, 85(23) :235102, June 2012.
- [GML⁺11] T. Guillet, M. Mexis, J. Levrat, G. Rossbach, C. Brimont, T. Bretagnon, B. Gil, R. Butté, N. Grandjean, L. Orosz, F. Réveret, J. Leymarie, J. Zúñiga-Pérez, M. Leroux, F. Semond, and S. Bouchoule. Polariton lasing in a hybrid bulk ZnO microcavity. *Applied Physics Letters*, 99(16) :161104, October 2011.
- [Gui12] Thierry Guillet. *Couplage exciton-photon dans les nanostructures semi-conductrices à grand gap*. Habilitation à diriger des recherches, Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, December 2012.
- [HK77] H. Haug and S. Koch. On the Theory of Laser Action in Dense Exciton Systems. *physica status solidi (b)*, 82(2) :531–543, August 1977.
- [HK94] Hartmut Haug and Stephan W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific Pub Co Inc, Singapore, 3 sub edition edition, September 1994.
- [HKS⁺11] S. Halm, S. Kalusniak, S. Sadofev, H.-J. Wünsche, and F. Henneberger. Strong exciton-photon coupling in a monolithic ZnO/(Zn,Mg)O multiple quantum well microcavity. *Applied Physics Letters*, 99(18) :181121, October 2011.
- [Hop58] J. J. Hopfield. Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals. *Physical Review*, 112(5) :1555–1567, December 1958.
-

- [IGR⁺12] Ivan Iorsh, Marlene Glauser, Georg Rossbach, Jacques Levrat, Munise Cobet, Raphaël Butté, Nicolas Grandjean, Mikhail A. Kaliteevski, Richard A. Abram, and Alexey V. Kavokin. Generic picture of the emission properties of III-nitride polariton laser diodes : Steady state and current modulation response. *Physical Review B*, 86(12) :125308, September 2012.
- [JC12] S.-H. Jang and S. F. Chichibu. Structural, elastic, and polarization parameters and band structures of wurtzite ZnO and MgO. *Journal of Applied Physics*, 112(7) :073503, October 2012.
- [KBML07] Alexey Kavokin, Jeremy J. Baumberg, Guillaume Malpuech, and Fabrice P. Laussy. *Microcavities*. Series on Semiconductor Science and Technology 16, December 2007.
- [KCDF08] S Kéna-Cohen, M. Davanço, and S. R. Forrest. Strong Exciton-Photon Coupling in an Organic Single Crystal Microcavity. *Physical Review Letters*, 101(11) :116401, September 2008.
- [KCF10] S. Kéna-Cohen and S. R. Forrest. Room-temperature polariton lasing in an organic single-crystal microcavity. *Nature Photonics*, 4(6) :371–375, June 2010.
- [KHFK07] Claus Klingshirn, Robert Hauschild, Johannes Fallert, and Heinz Kalt. Room-temperature stimulated emission of ZnO : Alternatives to excitonic lasing. *Physical Review B*, 75(11) :115203, March 2007.
- [KRK⁺06] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymańska, R. André, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, and Le Si Dang. Bose-Einstein condensation of exciton polaritons. *Nature*, 443(7110) :409–414, September 2006.
- [KSA⁺08] J. Kasprzak, D. D. Solnyshkov, R. André, Le Si Dang, and G. Malpuech. Formation of an Exciton Polariton Condensate : Thermodynamic versus Kinetic Regimes. *Physical Review Letters*, 101(14) :146404, October 2008.
- [KSHH11] S. Kalusniak, S. Sadofev, S. Halm, and F. Henneberger. Vertical cavity surface emitting laser action of an all monolithic ZnO-based microcavity. *Applied Physics Letters*, 98(1) :011101, January 2011.
- [Law71] P. Lawaetz. Valence-Band Parameters in Cubic Semiconductors. *Physical Review B*, 4(10) :3460–3467, November 1971.
- [LBF⁺10] Jacques Levrat, Raphaël Butté, Eric Feltin, Jean-François Carlin, Nicolas Grandjean, Dmitry Solnyshkov, and Guillaume Malpuech. Condensation phase diagram of cavity polaritons in GaN-based microcavities : Experiment and theory. *Physical Review B*, 81(12) :125305, March 2010.

-
- [LBS⁺98] D. G. Lidzey, D. D. C. Bradley, M. S. Skolnick, T. Virgili, S. Walker, and D. M. Whittaker. Strong exciton-photon coupling in an organic semiconductor microcavity. *Nature*, 395(6697) :53–55, September 1998.
- [Li13] Feng Li. *Fabrication et caractérisation des microcavités à base de ZnO en régime de couplage fort : laser à polaritons*. Nice, November 2013.
- [LOK⁺13] Feng Li, L. Orosz, O. Kamoun, S. Bouchoule, C. Brimont, P. Disseix, T. Guillet, X. Lafosse, M. Leroux, J. Leymarie, M. Mexis, M. Mihailovic, G. Patriarche, F. Réveret, D. Solnyshkov, J. Zuniga-Perez, and G. Malpuech. From Excitonic to Photonic Polariton Condensate in a ZnO-Based Microcavity. *Physical Review Letters*, 110(19) :196406, May 2013.
- [Mat04] Henry Mathieu. *Physique des semiconducteurs et des composants électroniques*. Dunod, Paris, 5e edition edition, July 2004.
- [MKCMLR13] L. Mazza, S. Kéna-Cohen, P. Michetti, and G. C. La Rocca. Microscopic theory of polariton lasing via vibronically assisted scattering. *Physical Review B*, 88(7) :075321, August 2013.
- [Mot78] N. F. Mott. Continuous and discontinuous metal-insulator transitions. *Philosophical Magazine Part B*, 37(3) :377–386, March 1978.
- [MZPD⁺09] F. Médard, J. Zuniga-Perez, P. Disseix, M. Mihailovic, J. Leymarie, A. Vasson, F. Semond, E. Frayssinet, J. C. Moreno, M. Leroux, S. Faure, and T. Guillet. Experimental observation of strong light-matter coupling in ZnO microcavities : Influence of large excitonic absorption. *Physical Review B*, 79(12) :125302, March 2009.
- [NLS⁺13] Bryan Nelsen, Gangqiang Liu, Mark Steger, David W. Snoke, Ryan Balili, Ken West, and Loren Pfeiffer. Dissipationless Flow and Sharp Threshold of a Polariton Condensate with Long Lifetime. *Physical Review X*, 3(4), November 2013.
- [NLW⁺09] G. Nardin, K. G. Lagoudakis, M. Wouters, M. Richard, A. Baas, R. André, Le Si Dang, B. Pietka, and B. Deveaud-Plédran. Dynamics of Long-Range Ordering in an Exciton-Polariton Condensate. *Physical Review Letters*, 103(25) :256402, December 2009.
- [NVS⁺13] H. S. Nguyen, D. Vishnevsky, C. Sturm, D. Tanese, D. Solnyshkov, E. Galopin, A. Lemaître, I. Sagnes, A. Amo, G. Malpuech, and J. Bloch. Realization of a Double-Barrier Resonant Tunneling Diode for Cavity Polaritons. *Physical Review Letters*, 110(23) :236601, June 2013.
- [ORM⁺12] L. Orosz, F. Réveret, F. Médard, P. Disseix, J. Leymarie, M. Mihailovic, D. Solnyshkov, G. Malpuech, J. Zuniga-Pérez, F. Semond, M. Leroux, S. Bouchoule, X. Lafosse, M. Mexis, C. Brimont, and T. Guillet. LO-phonon-assisted polariton lasing in a ZnO-based microcavity. *Physical Review B*, 85(12) :121201, March 2012.
-

- [Sav99] Vincenzo Savona. Linear optical properties of semiconductor microcavities with embedded quantum wells. In Henri Benisty, Claude Weisbuch, École Polytechnique, Jean-Michel Gérard, Romuald Houdré, and John Rarity, editors, *Confined Photon Systems*, number 531 in Lecture Notes in Physics, pages 173–242. Springer Berlin Heidelberg, 1999.
- [SBS⁺00] P. G. Savvidis, J. J. Baumberg, R. M. Stevenson, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker, and J. S. Roberts. Angle-Resonant Stimulated Polariton Amplifier. *Physical Review Letters*, 84(7) :1547–1550, February 2000.
- [SCB⁺01] M. Saba, C. Ciuti, J. Bloch, V. Thierry-Mieg, R. André, Le Si Dang, S. Kundermann, A. Mura, G. Bongiovanni, J. L. Staehli, and B. Deveaud. High-temperature ultrafast polariton parametric amplification in semiconductor microcavities. *Nature*, 414(6865) :731–735, December 2001.
- [SGRC⁺08] R. Schmidt-Grund, B. Rheinländer, C. Czekalla, G. Benndorf, H. Hochmuth, M. Lorenz, and M. Grundmann. Exciton-polariton formation at room temperature in a planar ZnO resonator structure. *Applied Physics B*, 93(2-3) :331–337, August 2008.
- [SLN⁺13] Mark Steger, Gangqiang Liu, Bryan Nelsen, Chitra Gautham, David W. Snoke, Ryan Balili, Loren Pfeiffer, and Ken West. Long-range ballistic motion and coherent flow of long-lifetime polaritons. *Physical Review B*, 88(23) :235314, December 2013.
- [SMKTM01] B. Sermage, G. Malpuech, A. V. Kavokin, and V. Thierry-Mieg. Polariton acceleration in a microcavity wedge. *Physical Review B*, 64(8) :081303, August 2001.
- [SRIK⁺13] Christian Schneider, Arash Rahimi-Iman, Na Young Kim, Julian Fischer, Ivan G. Savenko, Matthias Amthor, Matthias Lerner, Adriana Wolf, Lukas Worschech, Vladimir D. Kulakovskii, Ivan A. Shelykh, Martin Kamp, Stephan Reitzenstein, Alfred Forchel, Yoshihisa Yamamoto, and Sven Höfling. An electrically pumped polariton laser. *Nature*, 497(7449) :348–352, May 2013.
- [SSDD73] D. D. Sell, S. E. Stokowski, R. Dingle, and J. V. DiLorenzo. Polariton Reflectance and Photoluminescence in High-Purity GaAs. *Physical Review B*, 7(10) :4568–4586, May 1973.
- [STDM14] D. D. Solnyshkov, H. Terças, K. Dini, and G. Malpuech. Hybrid Boltzmann-Gross-Pitaevskii theory of Bose-Einstein condensation and superfluidity in open driven-dissipative systems. *Physical Review A*, 89(3) :033626, March 2014.
- [STM14] D. D. Solnyshkov, H. Terças, and G. Malpuech. Optical amplifier based on guided polaritons in GaN and ZnO. *Applied Physics Letters*, 105(23) :231102, December 2014.

-
- [STZ⁺04] N. N. Syrbu, I. M. Tiginyanu, V. V. Zalamai, V. V. Ursaki, and E. V. Rusu. Exciton polariton spectra and carrier effective masses in ZnO single crystals. *Physica B : Condensed Matter*, 353(1Ü2) :111–115, November 2004.
- [SXA⁺08] R. Shimada, J. Xie, V. Avrutin, Ü Özgür, and H. Morkoç. Cavity polaritons in ZnO-based hybrid microcavities. *Applied Physics Letters*, 92(1) :011127, January 2008.
- [TDM⁺13] Aurélien Trichet, Emilien Durupt, François Médard, Sanjoy Datta, Anna Minguzzi, and Maxime Richard. Long-range correlations in a 97% excitonic one-dimensional polariton condensate. *Physical Review B*, 88(12) :121407, September 2013.
- [TS12] Vladislav Timofeev and Daniele Sanvitto, editors. *Exciton Polaritons in Microcavities*, volume 172 of *Springer Series in Solid-State Sciences*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2012.
- [VM03] I. Vurgaftman and J. R. Meyer. Band parameters for nitrogen-containing semiconductors. *Journal of Applied Physics*, 94(6) :3675–3696, September 2003.
- [WAS⁺12] E. Wertz, A. Amo, D. D. Solnyshkov, L. Ferrier, T. C. H. Liew, D. Sanvitto, P. Senellart, I. Sagnes, A. Lemaître, A. V. Kavokin, G. Malpuech, and J. Bloch. Propagation and Amplification Dynamics of 1d Polariton Condensates. *Physical Review Letters*, 109(21) :216404, November 2012.
- [WCC08] Michiel Wouters, Iacopo Carusotto, and Cristiano Ciuti. Spatial and spectral shape of inhomogeneous nonequilibrium exciton-polariton condensates. *Physical Review B*, 77(11) :115340, March 2008.
- [WFS⁺09] Esther Wertz, Lydie Ferrier, Dmitry D. Solnyshkov, Pascale Senellart, Daniele Bajoni, Audrey Miard, Aristide Lemaître, Guillaume Malpuech, and Jacqueline Bloch. Spontaneous formation of a polariton condensate in a planar GaAs microcavity. *Applied Physics Letters*, 95(5) :051108, August 2009.
- [WNIA92] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity. *Physical Review Letters*, 69(23) :3314–3317, December 1992.
- [XDZ⁺12] Wei Xie, Hongxing Dong, Saifeng Zhang, Liaoxin Sun, Weihang Zhou, Yanjing Ling, Jian Lu, Xuechu Shen, and Zhanghai Chen. Room-Temperature Polariton Parametric Scattering Driven by a One-Dimensional Polariton Condensate. *Physical Review Letters*, 108(16) :166401, April 2012.
- [XXL⁺14] Dan Xu, Wei Xie, Wenhui Liu, Jian Wang, Long Zhang, Yinglei Wang, Saifeng Zhang, Liaoxin Sun, Xuechu Shen, and Zhanghai Chen. Pola-
-

- riton lasing in a ZnO microwire above 450 K. *Applied Physics Letters*, 104(8) :082101, February 2014.
- [Yeh05] Pochi Yeh. *Optical Waves in Layered Media*. Wiley-Blackwell, Hoboken, NJ, 2nd revised edition edition, February 2005.
- [Zim88] Roland Zimmermann. *Many-particle theory of highly excited semiconductors*. BSB B.G. Teubner, December 1988.
- [ZKG⁺02] Marian Zamfirescu, Alexey Kavokin, Bernard Gil, Guillaume Malpuech, and Mikhail Kaliteevski. ZnO as a material mostly adapted for the realization of room-temperature polariton lasers. *Physical Review B*, 65(16) :161205, April 2002.
- [ZPMH⁺14] J. Zuniga-Perez, E. Mallet, R. Hahe, M. J. Rashid, S. Bouchoule, C. Brimont, P. Disseix, J. Y. Duboz, G. Gommé, T. Guillet, O. Jamadi, X. Lafosse, M. Leroux, J. Leymarie, Feng Li, F. Réveret, and F. Semond. Patterned silicon substrates : A common platform for room temperature GaN and ZnO polariton lasers. *Applied Physics Letters*, 104(24) :241113, June 2014.

Annexe A

Dispositifs expérimentaux

Microphotoluminescence

Le montage de microphotoluminescence est composé de trois blocs distincts qui sont la ligne d'excitation, l'ensemble {échantillon+cryostat} et la ligne de détection.

Ligne de d'excitation Au niveau de la ligne d'excitation, deux sources laser à 266 nm sont utilisées. La première, en excitation continue (Crylas FQCW 266-50/100), a une puissance de sortie maximale de 50 mW. Elle permet l'étude de l'échantillon en régime linéaire. La seconde crée un pic impulsionnel de 400 ps à une fréquence de 4 kHz avec une puissance crête maximale de 280 kW (Teem Photonics). Cette source permet d'atteindre le régime non-linéaire et donc de générer les condensats de polaritons. Le passage d'une excitation à une autre se fait par ajout/retrait du miroir plan 3 (voir figure A.1).

Pour contrôler l'intensité lumineuse arrivant à l'échantillon, deux dispositifs sont mis en place. En premier lieu, un contrôleur de puissance constitué d'une lame quart d'onde et d'un polariseur dit cube de Glan. La rotation de la lame quart d'onde est automatisée en LabVIEW. En second lieu, des densités optiques (allant de 0.1 à 3) posées sur un support peuvent être ajoutées manuellement. Afin d'éclairer entièrement l'entrée de l'objectif du microscope, un élargisseur de faisceau est placé en sortie du système de contrôle de puissance. Il est constitué d'une lentille de courte focale ($f=50$ mm) suivie d'une lentille de focale plus longue ($f=150$ mm). Le rayon arrive ensuite sur une lame dichroïque puis sur un miroir de renvoi avant d'entrer dans l'objectif du microscope.

Echantillon et cryostat Le faisceau est alors focalisé sur l'échantillon. Celui-ci est placé dans un cryostat Microstat-HiRes Mark 2 d'Oxford. Sous flux d'hélium (ou d'azote) liquide, la température de l'échantillon peut descendre jusqu'à 4 K (respectivement 80 K) et peut varier jusqu'à température ambiante en réglant manuellement le contrôleur de température ITC503 inclus dans le cryostat. Le signal de photoluminescence émis est ensuite collecté par l'objectif du microscope et renvoyé vers la ligne de détection en passant au travers du miroir dichroïque vu précédemment.

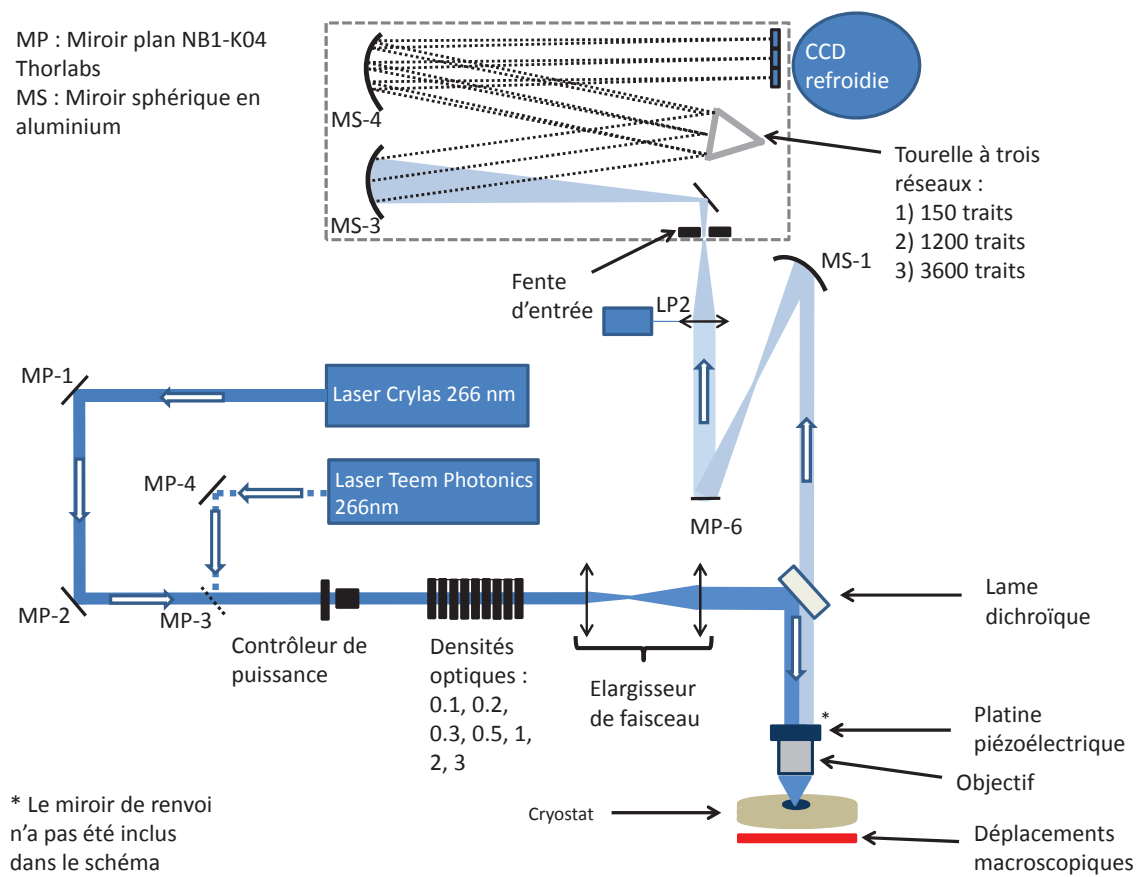


FIGURE A.1 – Schéma du montage de micro-photoluminescence, deux sources laser sont utilisées afin de travailler en régime linéaire (laser CRYLAS CW), puis au dessus du seuil (laser Teem Photonics). Le contrôleur de puissance est constitué d'une lame quart d'onde à 266nm et d'un polariseur cube de Glan. L'élargisseur de faisceau comporte une lentille de focale courte (50 mm) suivie d'une deuxième lentille de focale plus longue (150 mm).

Ligne de détection Le signal émis est envoyé sur un miroir sphérique puis traverse la lentille nommée LP2 qui le refocalise sur la fente d'entrée du spectromètre (Jobin Yvon iHR 550). Celle-ci filtre le signal venu d'une tranche de l'émission, qui est alors dispersée spectralement par un réseau (au choix : 150, 1200 ou 3600 traits) puis imagée par une caméra CCD refroidie à l'azote liquide. La translation motorisée contrôlant la position horizontale de LP2 est pilotée sous LabVIEW. Le spectromètre est lui aussi piloté sous LabVIEW.

Photoluminescence et réflectivité résolues en angle

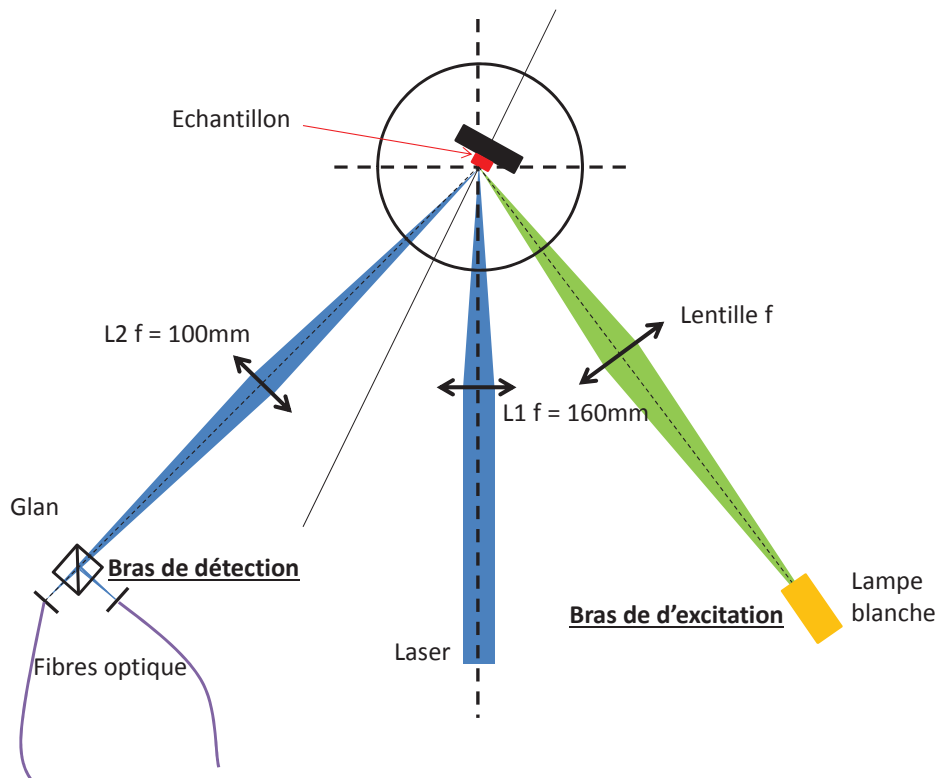


FIGURE A.2 – Schéma du montage de réflectivité/photoluminescence résolue en angle.

Ce montage nécessite la mise en place d'un goniomètre possédant deux bras motorisés (rotations Standa-8MR190) centrés le même axe et pilotés via LabVIEW. L'alignement des bras est assez délicat et nécessite plusieurs étapes qui sont décrites dans l'annexe de thèse de Stéphane Faure [Fau09]. Le bras d'excitation comporte une lentille de longue focale (160 mm) permettant de réduire au maximum le diamètre de la source excitatrice afin de d'obtenir une puissance par unité de surface suffisante pour atteindre le seuil de condensation. Le reste des éléments constituant l'excitation (sources, densité, lentilles) est le même que celui décrit dans la section précédente sauf pour le réflectivité résolue en

angle qui nécessite l'utilisation d'une lampe blanche. L'axe central du porte échantillon (qui est fixé sur une rotation manuelle) a le même axe que les rotations décrites ci-dessus. Les angles d'excitation et de détection sont définies en fonction de la normale de l'échantillon.

Le bras de détection est constitué d'un cube de Glan qui sépare les composantes TE et TM du signal reçu et les envoie sur deux lignes reliées à des fibres optiques (coeurs de $200\ \mu m$). Les émissions sont focalisées au niveau de l'entrée des fibres par une lentille de 100 mm de focale et sont imagées et résolues spectralement en arrivant sur la seconde entrée du spectromètre, qui est le même que nous utilisons en microphotoluminescence. Nous normalisons les spectres de réflectivité par celui de la lampe blanche. Toutes les mesures ont été faites à température ambiante.

Annexe B

Résolution numérique par la méthode de Runge Kutta d'ordre 4

Considérons une équation différentielle d'ordre p définie sur un intervalle $[r_0, r_0 + R]$ de la forme suivante :

$$y^{(p)}(r) = \frac{dy^{(p-1)}(r)}{dr} = \Phi(r, y(r), y^{(1)}(r), \dots, y^{(p-1)}(r)), \forall r \in [r_0, r_0 + R] \quad (\text{B.1})$$

Posons alors de nouvelles fonctions $x_i(r)$ avec $i \in [1, 2, \dots, q]$ définies telles que :

$$x_1(r) \equiv y(r), x_2(r) \equiv y^{(1)}(r), \dots, x_q(r) \equiv y^{(p-1)}(r) \quad (\text{B.2})$$

Grâce à ces définitions, l'équation B.1 d'ordre p s'écrit comme un système de p équations d'ordre 1 :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dx_1(r)}{dr} = x_2(r) \\ \vdots \\ \frac{dx_{q-1}(r)}{dr} = x_q(r) \\ \frac{dx_q(r)}{dr} = \Phi(r, x_1(r), x_2(r), \dots, x_q(r)) \end{array} \right. \quad (\text{B.3})$$

Donc en posant :

$$x(r) = \begin{bmatrix} x_1(r) \\ \vdots \\ x_{q-1}(r) \\ x_q(r) \end{bmatrix} \quad \text{et} \quad f(r, x(r)) = \begin{bmatrix} x_2(r) \\ \vdots \\ x_q(r) \\ \Phi(r, x_1, \dots, x_q) \end{bmatrix} \quad (\text{B.4})$$

L'équation B.3 s'écrira alors :

$$\frac{dx(r)}{dr} = f(r, x(r)), \forall r \in [r_0, r_0 + R] \quad (\text{B.5})$$

Dans notre cas, $p = 2$ et on pose :

$$\varphi = \begin{pmatrix} \varphi'(r) \\ \varphi(r) \end{pmatrix}$$

Donc en réécrivant le système sous forme matricielle :

$$\frac{d\varphi}{dr} = \begin{pmatrix} -\frac{1}{r} & \frac{2M}{\hbar^2} \left\{ -E_{cond} + i\frac{\hbar}{2} [R[n_R(r)] - \gamma_c] + \hbar g_R n_R(r) + \frac{\hbar^2 m^2}{2Mr^2} \right\} \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \varphi$$

On utilise alors la méthode de Runge Kutta d'ordre 4 pour résoudre numériquement le problème. On commence par subdiviser l'intervalle $[r_0, \dots, r_N]$ en N sous intervalles de même longueur h et appelons r_n les points de subdivision. Nous avons donc :

$$h = \frac{R}{N} \text{ et } r_n = r_0 + nh \text{ pour } n = 0, \dots, N$$

On effectue ensuite quatre évaluations de la dérivée en chaque point de l'intervalle. La première estimation est celle de la méthode d'Euler (qui utilise le développement de Taylor à l'ordre 1) :

$$k_1 = h.f(r_i, \varphi_i)$$

On revient ensuite au point d'origine puis l'on effectue une deuxième évaluation de la dérivée (toujours par la méthode d'Euler) à un demi-pas d'intervalle et en prenant comme nouvelle valeur de la dérivée au point i , la valeur k_1 précédemment calculée :

$$k_2 = h.f(r_i + h/2, \varphi_i + k_1/2)$$

On réitère l'opération

$$k_3 = h.f(r_i + h/2, \varphi_i + k_2/2)$$

puis on le refait avec un pas complet

$$k_4 = h.f(r_i + h, \varphi_i + k_3)$$

Finalement, la valeur de φ_{i+1} est la somme de φ_i et de la moyenne pondérée de ces quatre estimations en affectant un poids double aux deux estimations intermédiaires :

$$\varphi_{i+1} = \varphi_i + \frac{k_1}{6} + \frac{k_2}{3} + \frac{k_3}{3} + \frac{k_4}{6} \quad (\text{B.6})$$

Avant d'utiliser cette méthode de résolution, nous la testons sur une équation différentielle d'ordre deux plus simple, celle de l'oscillateur amorti.

L'équation différentielle correspondante à un oscillateur amorti est rappelée ci-dessous :

$$y''(r) + \frac{2}{\tau} y'(r) + \omega_0^2 y(r) = 0 \quad (\text{B.7})$$

En réécrivant cette équation sous forme matricielle en posant $Y = \begin{pmatrix} y'(r) \\ y(r) \end{pmatrix}$

nous obtenons :

$$\frac{dY}{dr} = \begin{pmatrix} -\frac{2}{\tau} & -\omega_0^2 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} Y$$

Avec les conditions initiales $Y_0 = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}$ la solution analytique correspondante est :

$$y(r) = \frac{1 - y_p}{y_m - y_p} \exp y_m * r + \frac{y_m - 1}{y_m - y_p} \exp y_p * r \quad (\text{B.8})$$

avec $y_p = \frac{-1}{\tau} + \sqrt{\frac{1}{\tau^2} - \omega_0^2}$ et $y_m = \frac{-1}{\tau} - \sqrt{\frac{1}{\tau^2} - \omega_0^2}$. ω_0 est la pulsation propre du système et $\frac{1}{\tau}$ l'amortissement.

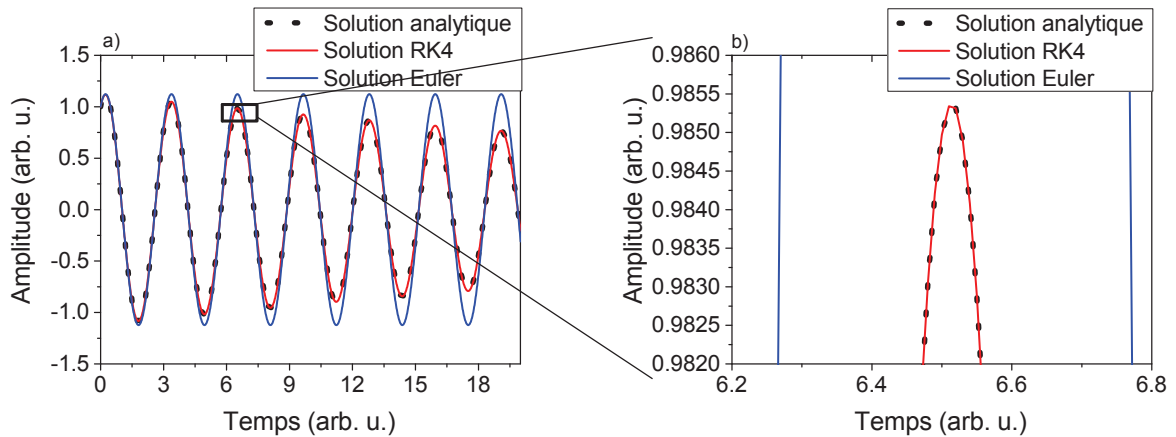


FIGURE B.1 – (a) Comparaison des solutions par la méthode d'Euler et celle de Runge-Kutta d'ordre 4 pour une équation d'oscillateur amortie. (b) Zoom du graphe afin de vérifier le degré de précision des solutions.

Sur la figure B.1.a, nous avons également tracé la résolution par la méthode d'Euler afin de la comparer à celle de Runge-Kutta d'ordre 4. Les résultats indiquent clairement la supériorité de cette dernière qui ne diverge pas sur l'intervalle de calcul choisi (de 0 à 20 avec 3000 point de calculs). Un zoom sur une partie de ce graphe (figure B.1) indique que le degré de précision atteint par RK4 est relativement important et suffisant pour nos simulations de l'équation de Gross-Pitaevskii.

Résumé

Dans les microcavités semiconductrices, les polaritons excitoniques sont obtenus à partir du couplage fort entre l'exciton et le photon. Le régime de laser à polaritons à température ambiante, première étape vers le condensat de Bose-Einstein (BEC), a été atteint dans des microcavités ZnO et nous avons dans cette thèse étudié les propriétés des condensats de polaritons. Nous avons réalisé la spectroscopie linéaire et déterminé les propriétés spatiales de nouvelles microcavités ZnO sur substrat Si structuré en mesa, de haut facteur de qualité Q . Plusieurs géométries de génération de condensats de polariton ont été mises en œuvre et comparées. Nous avons également mesuré, au travers d'expériences d'imagerie 2D en champ proche et en champ lointain, et modélisé, en résolvant l'équation de Gross-Pitaevskii, la propagation des condensats. Nous avons ainsi pu décrire les phénomènes mis en jeu dans la propagation des condensats à 80 et 300 K pour une excitation fortement focalisée par rapport à une excitation étendue à 2D. Ces travaux posent les bases de dispositifs polaritoniques à 300 K dans lesquels les condensats seront façonnés et contrôlés.

Abstract

In semiconductors microcavities, exciton-polaritons arise from the strong coupling between exciton and photon. Polariton laser at room temperature, which is the first step to Bose-Einstein condensation (BEC), has been achieved in ZnO microcavities and the study of polariton condensates is this thesis main issue. We studied the linear spectroscopy and measured the spatial properties of new high- Q ZnO microcavities grown on a patterned Si-substrate. Many generation geometries have been set up and compared to control the shape of polariton condensates. We also measured and simulated polariton condensates propagation, using respectively 2D imaging experiments in close and long field and by resolving the Gross-Pitaevskii equation. Then we were able to describe the variety of phenomena involved in the condensates propagation at 80 and 300 K for a tightly focused excitation compared to a wide 2D excitation. Those experiments are the cornerstone for polariton devices operating at 300 K in which polariton condensates can be patterned and controlled.