



**HAL**  
open science

# Cohérence quantique et superfluidité d'un gaz d'excitons piégés

Romain Anankine

► **To cite this version:**

Romain Anankine. Cohérence quantique et superfluidité d'un gaz d'excitons piégés. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2017. Français. NNT : 2017PA066144 . tel-01636077

**HAL Id: tel-01636077**

**<https://theses.hal.science/tel-01636077>**

Submitted on 16 Nov 2017

**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.

**THÈSE DE DOCTORAT  
DE L'UNIVERSITÉ PIERRE-ET-MARIE-CURIE**

**Spécialité : Physique**

**École doctorale : « Physique en Île-de-France »**

**réalisée**

**à l'Institut des NanoSciences de Paris**

**présentée par**

**Romain ANANKINE**

**pour obtenir le grade de :**

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE-ET-MARIE-CURIE**

**Sujet de la thèse :**

**Cohérence quantique et superfluidité d'un gaz  
d'excitons piégés**

**soutenue le 16 juin 2017**

**devant le jury composé de :**

|                       |                             |                           |
|-----------------------|-----------------------------|---------------------------|
| <b>M<sup>me</sup></b> | <b>Emmanuelle DELEPORTE</b> | <b>Rapporteure</b>        |
| <b>M<sup>me</sup></b> | <b>Masha VLADIMIROVA</b>    | <b>Rapporteure</b>        |
| <b>M.</b>             | <b>Markus HOLZMANN</b>      | <b>Examineur</b>          |
| <b>M<sup>me</sup></b> | <b>Alice SINATRA</b>        | <b>Examinatrice</b>       |
| <b>M.</b>             | <b>François DUBIN</b>       | <b>Directeur de thèse</b> |



*À ma famille*



---

**Sujet : Cohérence quantique et superfluidité d'un gaz d'excitons piégés**

---

**Résumé :** Les excitons semiconducteurs sont des quasi-particules bosoniques composées d'un électron et d'un trou appariés par attraction coulombienne. Ils peuvent subir une condensation de Bose-Einstein dont l'originalité réside dans le fait que les excitons participant au condensat se distribuent de façon cohérente entre quatre états de « spin » : les deux états de plus basse énergie qui sont « noirs » puisqu'ils ne sont pas couplés à la lumière, et les deux états « brillants », à plus haute énergie, permettant de voir les signatures quantiques via une émission cohérente de photons. La condensation des excitons doit donc conduire à une occupation macroscopique des états noirs quand la température est inférieure à 1 K, et a été expérimentalement démontrée en 2015 dans la thèse de M. Beian. Cette thèse montre, cette fois-ci, la participation des excitons brillants à la condensation de Bose-Einstein. En étudiant un gaz bi-dimensionnel d'excitons confinés dans un piège électrostatique, nous montrons, dans le régime dilué, qu'émerge un ordre à longue portée d'origine quantique, avec un accroissement de la cohérence temporelle de la photoluminescence émise par les excitons brillants, en dessous d'une température critique commune d'environ 1 K. La présence de vortex quantiques, signalés par des défauts de densité et par l'apparition de singularités de phase dans les figures d'interférences spatiales, apporte la preuve que 85% des excitons participent à la formation d'un superfluide à quatre composantes, avec une population macroscopique d'excitons noirs couplée de façon cohérente à une fraction d'excitons brillants condensés.

**Mots-clés :** excitons, photoluminescence, condensation, cohérence, vortex, superfluide

---

**Subject: Quantum coherence and superfluidity of a trapped excitons gas**

---

**Abstract:** Semiconductor excitons are bosonic quasi-particles compound of an electron and a hole bound by Coulomb attraction. They can undergo Bose-Einstein condensation in a very original fashion: excitons are distributed among four "spin" states. The lowest energy states are "dark" because optically inactive while at a higher energy, two "bright" states are coupled to the photon field. Below sub-kelvin temperatures, condensation of excitons leads to a macroscopic population of the dark states, as demonstrated in M. Beian's thesis in 2015. This dark condensate is coherently coupled with a small fraction of bright excitons whose their weak photoluminescence emitted allows to probe signatures for quantum coherence. In this thesis, we show the contribution of bright excitons to the Bose-Einstein condensation. We study a 2D dilute gas of excitons confined in a electrostatic trap where we reveal, below a critical temperature of about 1 K, a quantum long-range order with an increased temporal coherence of the photoluminescence emitted by bright excitons. The appearance of quantised vortices, signalled by density defects and phase singularities in spatial interferences patterns, gives us the demonstration that 85% of the trapped excitons participate in the formation of a four-component superfluid where a macroscopic population of dark excitons is coherently coupled with a fraction of condensed bright excitons.

**Keywords:** excitons, photoluminescence, condensation, coherence, vortex, superfluid



# Remerciements

En tout premier lieu, je tiens à remercier mon directeur de thèse, François Dubin, de m'avoir proposé ce sujet de thèse. Il n'a pas hésité à me recruter alors que je venais d'un autre domaine de la physique. Son engagement, son implication et son enthousiasme dans le travail d'équipe que nous avons réalisé ont rendu ces trois années scientifiquement passionnantes. Il possède en outre une qualité assez rare qui fait de lui un bon encadrant : le souci du bon déroulement du projet doctoral de ses doctorants. Mon arrivée dans son équipe a été quelque peu rocambolesque et je tiens à adresser chaleureusement toute ma gratitude à Monique et Roland Combescot pour avoir œuvré à me faire venir dans l'équipe.

J'ai travaillé à l'Institut des NanoSciences de Paris où Christophe Testelin est le directeur, au sein de l'équipe Nanostructures et Systèmes Quantiques, dirigée par Catherine Gourdon. Je les remercie ainsi que toute l'équipe pour leur accueil chaleureux et notamment Silbe Majrab, Mathieu Bernard, Florent Margaillan et Cindy Gobing pour l'aide ponctuelle qu'ils ont pu m'apporter.

Je suis arrivé en 2014 dans une équipe composée de François, Mathieu Alloing et Mussie Beian. Grâce à eux, j'ai eu le temps de comprendre la physique du système et aussi d'apprendre à utiliser le dispositif expérimental. Leurs conseils et leurs explications m'ont été d'une grande aide et je les en remercie. En 2015, une nouvelle doctorante, Suzanne Dang, est venue intégrer notre équipe. Ensemble, en 2016, nous avons pris les mesures qui sont présentées dans cette thèse. Je lui suis reconnaissant de m'avoir supporté et je suis très heureux d'avoir pu partager ces moments de découverte scientifique avec elle. Je lui souhaite le meilleur dans la poursuite de son doctorat et au-delà dans sa poursuite de carrière.

L'échantillon sur lequel j'ai travaillé a été conçu au LPN par Mussie et aussi Aristide Lemaître, Carmé Gomez Carbonell, Edmond Cambрил et Kamel Merghem. Je remercie ces derniers pour leur disponibilité et leur gentillesse lors de mes venues à Marcoussis.

Je tiens aussi à saluer mes co-bureaux : en plus de Suzanne, j'ai partagé la petite pièce qui nous servait de bureau avec Bruno, Sylvain, Piotr, Meriam et Pokky. Ils ne m'ont pas forcément beaucoup vu à mon bureau, étant constamment fourré au rez-de-chaussée, dans le noir, à prendre des mesures.

Ces trois années d'enseignement et de recherche n'auraient pas eu la même saveur sans la présence de tous les doctorants, compagnons de galère, avec qui j'ai noué des liens d'amitié que j'espère voir perdurer après la fin de nos doctorats respectifs. Je songe notamment à Sébastien, Guillaume, Nathalie, Céline, Alberto, Mattia, Cyril, Camille, Clément, Danilo, Lounès, Bertille, Gerbold, Maya, Pierre-Yves et Lise. Les sorties au bar, au bowling, au cinéma, au musée, au restaurant ou plus simplement les déjeuners au CROUS ont été autant de moments joyeux et conviviaux, idéaux pour décompresser et partager nos petits soucis au labo. J'espère que cette ambiance chaleureuse et solidaire entre doctorants se transmettra aux nouveaux arrivants.

Je souhaite aussi dire un mot sur mes camarades de l'ENS Cachan qui étaient en doctorat en même temps que moi, avec qui nous avons su garder un contact fort et qui comptent beaucoup pour moi, alors que nous nous connaissons depuis sept ans déjà : Cécile, Aurélien, Matthieu, Carmelo, Laurie, Christopher. Je remercie tout particulièrement Clément, qui m'a enrôlé dans ses aventures associatives, que ce soit Doc'Up, l'association des doctorants de Sorbonne Universités, ou de la Confédération des Jeunes Chercheurs. Avec la première j'ai eu le plaisir d'être secrétaire général tandis qu'avec la seconde j'ai eu l'honneur d'en être le trésorier. Ces deux expériences m'ont ouvert les yeux sur les problématiques propres au doctorat, sa valorisation et sa promotion mais aussi sur la défense d'une certaine idée de ce que devrait être la formation doctorale : une expérience professionnelle de recherche.

Enfin, je tiens à remercier mes parents et ma sœur de m'avoir supporté, pas uniquement au cours de ces trois dernières années, mais plus globalement durant mes dix années d'études supérieures qui s'achèvent (ou pas, qui sait ?). Je sais qu'ils n'ont pas toujours bien saisi ce que je faisais mais ils m'ont toujours donné leur confiance et leur amour. Pour cela je leur suis reconnaissant et ce travail leur est naturellement dédié.

# Table des matières

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Remerciements</b>  | <b>v</b>  |
| <b>Introduction</b>   | <b>1</b>  |
| <b>1 Condensation de Bose-Einstein des excitons</b>                           | <b>5</b>  |
| 1.1 Excitons semi-conducteurs . . . . .                                       | 5         |
| 1.1.1 Excitons en volume . . . . .  | 5         |
| 1.1.2 Structure de bande des excitons à 3D et 2D . . . . .                    | 8         |
| 1.1.3 Excitons spatialement indirects . . . . .                               | 9         |
| 1.2 Condensation de Bose-Einstein . . . . .                                   | 15        |
| 1.2.1 Condensation de Bose-Einstein à basse dimension . . . . .               | 15        |
| 1.2.2 De la condensation noire à la condensation grise des excitons . . . . . | 18        |
| 1.2.3 Publications antérieures . . . . .                                      | 21        |
| <b>2 Échantillon et dispositif expérimental</b>                               | <b>25</b> |
| 2.1 Échantillon . . . . .   | 25        |
| 2.2 Dispositif expérimental . . . . .   | 27        |
| 2.2.1 Cryostat . . . . .  | 27        |
| 2.2.2 Mise en forme de l'excitation laser et détection . . . . .              | 28        |
| 2.2.3 Interféromètre de Mach-Zehnder . . . . .                                | 31        |
| 2.3 Paramètres expérimentaux . . . . .  | 33        |
| 2.4 Régime de mesures . . . . .   | 37        |
| 2.4.1 Paramètres électriques . . . . .  | 37        |
| 2.4.2 Régime spectral . . . . .   | 39        |
| 2.4.3 Dynamique de la photoluminescence . . . . .                             | 39        |
| <b>3 Cohérence temporelle d'un gaz d'excitons piégés</b>                      | <b>43</b> |
| 3.1 État de l'art . . . . .   | 43        |
| 3.2 Mesures . . . . .   | 45        |
| 3.3 Spectroscopie par transformée de Fourier . . . . .                        | 48        |
| 3.4 Évolution de la cohérence temporelle avec la densité . . . . .            | 51        |
| 3.5 Évolution de la cohérence temporelle avec la température . . . . .        | 54        |
| 3.6 Conclusion . . . . .  | 56        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| <b>4</b> | <b>Cohérence spatiale d'un gaz d'excitons piégés</b>             | <b>59</b>  |
| 4.1      | État de l'art . . . . .  | 59         |
| 4.2      | Mesures . . . . .  | 60         |
| 4.3      | Évolution de la cohérence spatiale avec la densité . . . . .     | 61         |
| 4.4      | Évolution de la cohérence spatiale avec la température . . . . . | 62         |
| 4.4.1    | Seuil de cohérence spatiale . . . . .                            | 63         |
| 4.4.2    | Température critique . . . . .                                   | 64         |
| 4.5      | Conclusion . . . . .   | 65         |
| <b>5</b> | <b>Superfluidité d'un gaz d'excitons piégés</b>                  | <b>67</b>  |
| 5.1      | Éléments pratiques sur la superfluidité . . . . .                | 67         |
| 5.1.1    | L'état superfluide . . . . .                                     | 67         |
| 5.1.2    | Lien avec la condensation de Bose-Einstein . . . . .             | 68         |
| 5.1.3    | Les défauts topologiques . . . . .                               | 69         |
| 5.1.4    | Nucléation spontanée de tourbillons quantiques . . . . .         | 70         |
| 5.1.5    | Longueur de cicatrisation . . . . .                              | 71         |
| 5.1.6    | Observations expérimentales . . . . .                            | 72         |
| 5.2      | Défauts de densité à $T_b = 330$ mK . . . . .                    | 74         |
| 5.3      | Position et nombre des défauts de densité . . . . .              | 77         |
| 5.3.1    | Localisation des défauts . . . . .                               | 77         |
| 5.3.2    | Nombre de défauts . . . . .                                      | 79         |
| 5.4      | Singularités de phase des vortex quantiques . . . . .            | 81         |
| 5.4.1    | Simulation numérique . . . . .                                   | 81         |
| 5.4.2    | Signature expérimentale de vortex quantiques . . . . .           | 84         |
| 5.5      | Conclusion . . . . .   | 89         |
|          | <b>Conclusion</b>  | <b>91</b>  |
|          | <b>Publications</b>  | <b>93</b>  |
|          | <b>Bibliographie</b>   | <b>111</b> |

# Introduction

La condensation de Bose-Einstein est une transition de phase de la matière qui a pour origine la distribution en énergie de particules indépendantes et indiscernables. En 1924, S. N. Bose retrouve la loi de Planck du rayonnement en le considérant comme un gaz de particules identiques et sans masse : les photons [1]. La même année, A. Einstein prolonge son travail en l'appliquant à un gaz parfait de particules massives [2]. La répartition en énergie des particules qui en découle, connue sous le nom de distribution de Bose-Einstein, se distingue de la distribution de Maxwell-Boltzmann car elle révèle un comportement remarquable lorsque la température du système diminue, à volume et densité constantes. En dessous d'une température critique  $T_c$ , les particules ne se répartissent plus dans les différents niveaux d'énergie qui leur sont thermiquement accessibles mais au contraire s'accumulent dans le niveau de plus basse énergie. Les particules qui suivent cette distribution particulière sont qualifiées de bosons.

Pour un ensemble de bosons indépendants à trois dimensions, la température critique de condensation est inversement proportionnelle à leur masse, c'est pourquoi cette condensation a longtemps été considérée comme une curiosité car pour l'observer il est nécessaire d'atteindre des températures extrêmement basses, de l'ordre de la centaine de nanokelvins pour les atomes alcalins. Grâce au développement des techniques de refroidissement et de piégeage laser pour des vapeurs atomiques, un condensat d'atomes de rubidium puis de sodium ont pu être créés en laboratoire en 1995, soit 70 ans après la prédiction théorique de A. Einstein [3, 4]. La Figure 1 montre le changement de la distribution en impulsion d'atomes, qui passe d'une répartition thermique des niveaux d'énergie au-dessus de la température critique à une occupation macroscopique de l'état fondamental en dessous de  $T_c$ , i.e. dans un état condensé.

Pourtant, depuis les premières prédictions théoriques formulées dans les années 1960, les excitons semi-conducteurs sont considérés comme des plus prometteurs pour montrer la condensation de Bose-Einstein [6, 7]. Les excitons sont des quasi-particules composées d'un électron et d'un trou appariés par interaction coulombienne. Leur masse ne représentant qu'une fraction de la masse de l'électron, la température critique de condensation ne vaut alors que quelques kelvins, ce qui est facilement accessible dans un environnement cryogénique. Confinés dans un puits quantique au sein d'une matrice d'arséniure de gallium (GaAs), les excitons ont toutefois une durée de vie très courte ( $\sim 100$  ps), ce qui constitue une limitation forte par rapport au temps de thermalisation avec le réseau, de l'ordre de quelques nanosecondes. C'est pourquoi dans les années 1970, Lozovik

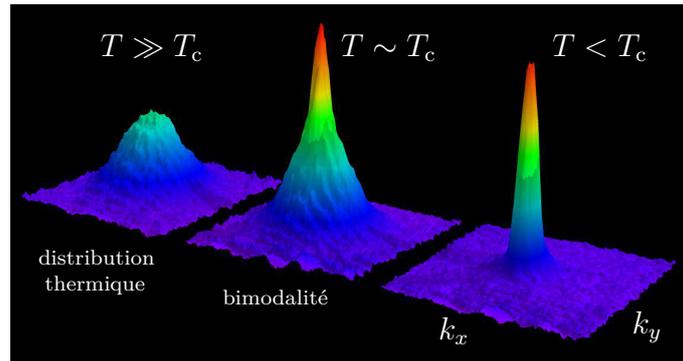


FIGURE 1 – Imagerie par absorption d’un gaz de  $7 \cdot 10^5$  atomes de sodium s’étalant sur une distance de 1 mm lors d’une expérience de temps de vol d’une durée de 6 ms, avec une température critique  $T_c \approx 2 \mu\text{K}$ . La répartition spatiale donne la distribution en impulsion des particules. Alors que la distribution est thermique quand  $T > T_c$ , un pic centré autour de l’impulsion nulle apparaît pour des températures sous-critiques et révèle une distribution fortement non classique, avec l’occupation macroscopique de l’état de plus basse énergie. Image extraite de [5].

et Yudson ont proposé de séparer l’électron et le trou de l’exciton en les plaçant dans deux puits quantiques différents, au sein d’une hétérostructure polarisée [8]. Les deux particules sont suffisamment proches pour constituer un état lié qualifié d’excitons spatialement indirects mais leur probabilité de recombinaison est réduite, conduisant à des temps de vie de l’ordre de la centaine de nanosecondes. Les excitons indirects acquièrent alors un moment dipolaire de plusieurs centaines de Debye, de sorte qu’ils se repoussent du fait de l’interaction dipôle-dipôle. La densité des excitons est aussi contrôlable via un piégeage électrostatique qui impose un confinement transverse au double puits quantique. Les progrès réalisés jusqu’à aujourd’hui dans la conception des échantillons par épitaxie offrent une opportunité inédite d’étudier les états quantiques collectifs réalisés par les excitons indirects en créant au sein d’un semi-conducteur un gaz ultra-froid de particules bosoniques à l’équilibre thermodynamique.

Malgré leurs propriétés physiques uniques, les preuves expérimentales de la condensation d’excitons indirects n’ont pas été au rendez-vous même si de nombreuses publications, finalement peu convaincantes, ont prétendu observer cette condensation [9, 10]. Les excitons étant dans un milieu matériel, leur interaction avec l’environnement (impuretés, porteurs de charges intrinsèques) provoquent un élargissement homogène et inhomogène qui limite fortement le temps de cohérence des excitons. A cela s’ajoute une subtilité fondamentale dans la structure fine des excitons dans l’arséniure de gallium, étudié tout au long de ce manuscrit, qui ne peut être ignorée dans la recherche des signatures de la condensation de Bose-Einstein des excitons. Combescot *et al.* [11, 12] ont fait remarquer que le niveau fondamental des excitons est composé d’états noirs, de spin  $\pm 2$ , non couplés à la lumière, donc la condensation doit conduire à la formation d’une population macroscopique d’excitons noirs. A cause du processus répulsif coulombien interbande, les états brillants, de spin  $\pm 1$ , où les excitons peuvent se recombiner radiativement, sont légèrement plus hauts en énergie. Si la densité est assez grande pour que les excitons interagissent

entre eux via un processus d'échange de fermions, il apparait un couplage cohérent entre les états noirs et brillants, qui conduit à la formation d'un condensat « *gris* » émettant une faible photoluminescence permettant de sonder les propriétés de cohérence quantique du gaz et de mettre en évidence les degrés de liberté du spin de ce condensat à quatre composantes. La signature de la condensation ne se trouve donc pas dans l'observation d'une soudaine augmentation de la photoluminescence issue de la recombinaison radiative des excitons, mais au contraire dans l'extinction anormale de l'émission en dessous de la température critique.

En 2015, la thèse de M. Beian [13, 14] rapportait ce noircissement anormal de la photoluminescence émise par un gaz d'excitons indirects piégés, quand la température tombait sous 1 K. Cette mesure, réalisée avec un degré de contrôle sans précédent, démontrait l'occupation macroscopique des états noirs, en contradiction avec une occupation thermique des états accessibles aux excitons mais en accord avec les prédictions de Combescot *et al.*

Dans ce manuscrit, nous poursuivons ce travail et exposons les preuves interférométriques de l'émergence d'une cohérence quantique au sein du gaz d'excitons. Nous mesurons, pour une densité de particules voisine de  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , un seuil en température des cohérences temporelle et spatiale avec une température critique commune de  $\approx 1 \text{ K}$ . L'observation de singularités de phase et de fortes déplétions de densité apportent aussi les signatures de la nature superfluide du gaz d'excitons ainsi formé quand la température vaut 330 mK.

Par conséquent, la thèse de M. Beian ainsi que celle-ci apportent les preuves décisives de la condensation « *grise* » des excitons dont la spécificité repose sur le fait que les particules condensées se répartissent à la fois dans les états noirs mais aussi dans les états excités, brillants, composant un superfluide à quatre composantes de spin, la partie noire étant dans tous les cas dominante.

- ▶ Le Chapitre 1 présente des généralités sur les excitons spatialement indirects, ainsi que leur formation et les processus de relaxation. Les bases théoriques de la condensation de Bose-Einstein sont le prélude à l'exposition de l'originalité de la condensation grise des excitons. Les publications antérieures sur le sujet sont brièvement décrites, notamment les résultats importants de la thèse de M. Beian.
- ▶ Le Chapitre 2 détaille en premier la structure de l'échantillon, composé d'un double puits quantique de GaAs au sein d'une hétérostructure polarisée, puis le dispositif expérimental d'excitation et d'analyse de la photoluminescence émise par les excitons brillants. L'interféromètre de Mach-Zehnder a été l'outil utilisé pour sonder la cohérence spatiale et temporelle de l'émission.
- ▶ Le Chapitre 3 montre que, dans une gamme restreinte de densité, les spectres de photoluminescence sont élargis de façon homogène. Dans ce régime, le temps de cohérence augmente brutalement quand la température descend sous 1 K. Ce seuil en température de la cohérence temporelle est interprété comme l'émergence

d'un condensat gris et la valeur du temps de cohérence s'explique dans le régime condensé par les interactions entre les excitons et les charges libres présentes dans le double puits quantique. Dans le régime thermique, les interactions exciton-exciton s'ajoutent et élargissent davantage les spectres de photoluminescence.

- ▶ Le Chapitre 4 apporte la preuve décisive de l'émergence d'une fonction d'onde macroscopique, limitée par la taille du système. Dans l'intervalle de densité repéré au Chapitre 3, le gaz excitonique présente une cohérence spatiale macroscopique qui n'est présente que si la température est inférieure à 1 K.
- ▶ Le Chapitre 5 expose les signatures de la présence de vortex quantiques dans un condensat gris d'excitons. Les déplétions de densité observées sur les images réelles du gaz piégé et les singularités de phase caractéristiques apportent la preuve de la formation d'un superfluide d'excitons.

L'échantillon étudié dans cette thèse est identique à celui étudié dans la thèse de M. Beian. Ainsi, cette thèse constitue une continuité et les résultats présentés ici doivent être compris comme un ensemble cohérent avec ceux de M. Beian.

Au cours de ce doctorat, un article concernant la cohérence spatiale et la superfluidité des excitons a été publié dans *Physical Review Letters* **118** (2017) [15] et un autre concernant la cohérence temporelle a été posté sur arXiv [16]. Ces deux publications sont portées en annexe de ce manuscrit.

# Chapitre 1

## Condensation de Bose-Einstein des excitons

Dans ce chapitre nous introduisons les propriétés et caractéristiques générales des excitons semi-conducteurs. La physique des excitons a été largement décrite dans de nombreux articles et livres [17, 18, 19, 20, 21]. A partir des excitons à trois dimensions, le confinement des excitons dans un puits quantique puis dans un double puits quantique nous amènera à décrire les excitons spatialement indirects qui sont l'objet d'étude de cette thèse. La condensation de Bose-Einstein des excitons est décrite dans une seconde partie. L'originalité de cette transition de phase quantique pour les excitons réside dans le caractère multicomposantes du condensat résultant, distribué sur quatre états excitoniques respectivement noirs et brillants. Dans ce contexte, nous présentons enfin les récentes avancées dans la démonstration de cette condensation « grise » des excitons.

### 1.1 Excitons semi-conducteurs

#### 1.1.1 Excitons en volume

A température nulle et en première approximation, un semi-conducteur est composé de deux bandes d'énergie : la bande de valence est complètement peuplée d'électrons tandis que la bande de conduction, d'énergie supérieure, est vide d'électrons. Les deux bandes sont séparées par une bande d'énergie interdite, le gap. On parle de semi-conducteur à gap direct si le minimum d'énergie de la bande de conduction et le maximum d'énergie de la bande de valence correspondent à la même valeur de vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ . Le matériau principalement utilisé dans cette thèse étant l'arséniure de gallium GaAs, nous nous placerons toujours dans le cadre des structures de bande à gap direct et nous noterons  $E_g$  le gap d'énergie entre les deux bandes. A 0 K, dans le GaAs,  $E_g = 1.52$  eV [22]. Quand un électron de valence absorbe un photon incident d'énergie  $\hbar\omega > E_g$ , celui-ci est promu dans la bande de conduction. La bande de valence possède alors un état vacant qui se comporte comme une particule de charge positive, appelée *trou* (voir Fig. 1.1).

L'électron et le trou sont caractérisés par des charges élémentaires opposées  $\mp q_e$  et par des masses effectives  $m_e$  et  $m_h$  toutes deux positives. Les masses effectives rendent

compte du fait que l'électron et le trou évoluent dans un potentiel périodique créé par les atomes de la maille cristalline du matériau. On étudie la structure des bandes, supposées isotropes, au voisinage de la mer de Fermi à l'aide de l'approximation parabolique. Les relations de dispersion de l'électron de conduction et du trou dans la bande de valence autour de l'état  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  s'écrivent donc :

$$\epsilon_c(\mathbf{k}) = E_g + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_e} \quad (1.1)$$

$$\epsilon_v(\mathbf{k}) = -\frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_h}. \quad (1.2)$$

Dans le GaAs massif, les masses effectives du trou ( $m_h$ ) et de l'électron ( $m_e$ ) sont plus faibles que celle de l'électron dans le vide ( $m_0$ ) :  $m_h \approx 0.45m_0$  et  $m_e \approx 0.067m_0$  [23]. Ces masses effectives différentes se répercutent dans la courbure des bandes de conduction et de valence. Comme leurs masses effectives sont positives mais que leurs charges sont opposées, le trou interagit avec l'électron de conduction par interaction coulombienne attractive, ce qui peut créer un état lié électron-trou qu'on appelle *exciton*. Si la taille typique de l'exciton est beaucoup plus grande que le paramètre de la maille cristalline, ce qui est le cas tout le long de ce manuscrit, on parle d'exciton de Wannier [20].

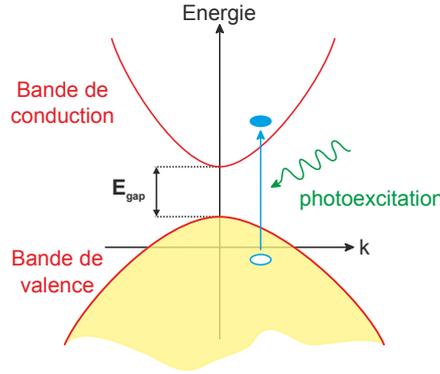


FIGURE 1.1 – Création d'une paire électron-trou par absorption d'un photon promouvant un électron de valence dans la bande conduction. Un trou est alors créé dans la bande de valence.

L'hamiltonien du système électron-trou s'écrit comme la somme des énergies cinétiques de l'électron de conduction et du trou et du potentiel coulombien attractif. L'équation aux valeurs propres pour la fonction d'onde totale  $\psi$  s'écrit donc :

$$\left[ \frac{\mathbf{p}_e^2}{2m_e} + \frac{\mathbf{p}_h^2}{2m_h} - \frac{e^2}{\kappa |\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} \right] \psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = (\epsilon - E_g) \psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) \quad (1.3)$$

où  $\mathbf{p}_e$  et  $\mathbf{r}_e$  (respectivement  $\mathbf{p}_h$  et  $\mathbf{r}_h$ ) sont les impulsions et positions de l'électron (resp. du trou).  $e$  est relié à la charge élémentaire  $q_e$  et à la permittivité du vide  $\epsilon_0$  par  $e^2 = \frac{q_e^2}{4\pi\epsilon_0}$ .  $\kappa$  est la constante diélectrique du milieu. Le terme coulombien n'affecte que les positions relatives de l'électron et du trou, ce qui nous amène à poser :

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h \text{ et } \mathbf{R} = \frac{m_e}{m_e + m_h} \mathbf{r}_e + \frac{m_h}{m_e + m_h} \mathbf{r}_h \quad (1.4)$$

avec  $\mathbf{R}$  le vecteur-position du centre de masse de la paire électron-trou. On peut alors réécrire l'équation (1.3) en introduisant la masse totale  $M_x = m_e + m_h$  et la masse réduite  $\mu^{-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$  pour obtenir :

$$\left[ \frac{\mathbf{P}_R^2}{2M_x} + \frac{\mathbf{p}_r^2}{2\mu} - \frac{e^2}{\kappa r} \right] \psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = (\epsilon - E_g) \psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}). \quad (1.5)$$

La fonction d'onde se factorise alors en une onde plane de vecteur d'onde  $\mathbf{K}$ , qui correspond au mouvement libre du centre de masse d'une paire électron-trou, c'est-à-dire d'un exciton, et de la fonction d'onde d'un atome hydrogénoïde  $\varphi(\mathbf{r})$  :

$$\psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = \frac{1}{L^{3/2}} \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{R}) \varphi(\mathbf{r}) \quad (1.6)$$

où  $L^3$  est le volume du cristal. La fonction d'onde de l'état fondamental 1s d'un hydrogénoïde a pour expression :

$$\varphi(\mathbf{r}) = \frac{1}{(\pi a_0^3)^{1/2}} \exp(-r/a_0) \quad (1.7)$$

où on a défini le rayon de Bohr de l'exciton :

$$a_0 = \frac{\hbar^2 \kappa}{\mu e^2}. \quad (1.8)$$

Finalement, l'énergie totale d'un exciton vaut :

$$E_x = E_g + \frac{\hbar^2 \mathbf{K}^2}{2M_x} - \frac{Ry}{n^2} \text{ avec } n \in \mathbb{N}^* \quad (1.9)$$

avec l'énergie d'ionisation (ou de liaison) de l'exciton, appelé énergie de Rydberg :

$$Ry = \frac{\hbar^2}{2\mu a_0^2}. \quad (1.10)$$

Ainsi, l'électron et le trou de l'exciton sont analogues à l'électron et au proton d'un atome d'hydrogène. Dans le GaAs, comme  $\kappa \approx 14$  et  $\mu \approx 0.06m_0$ , on obtient un rayon de Bohr de l'exciton  $a_0 \approx 13$  nm et une énergie de Rydberg  $Ry \approx 4$  meV. Cette énergie de Rydberg est notablement plus faible que l'énergie thermique à température ambiante  $k_B T_{\text{amb}} \approx 25$  meV : les excitons ne peuvent pas exister à température ambiante et un système de cryogénie est nécessaire pour refroidir le matériau jusqu'à quelques kelvins. L'attraction coulombienne entre l'électron et le trou de l'exciton réduit son énergie de  $Ry/n^2$  par rapport à une paire électron-trou donc son état se situe dans le gap et l'exciton peut être optiquement créé par l'absorption d'un photon d'énergie  $\hbar\omega \lesssim E_g$ .

### 1.1.2 Structure de bande des excitons à 3D et 2D

Le GaAs possède une structure cristalline de type zinc-blende ce qui fait que la transition de plus basse énergie entre la bande de valence et la bande de conduction a lieu au point  $\Gamma$  ( $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ ) de la première zone de Brillouin. La bande de valence possède une symétrie  $p$  tandis que la bande de conduction possède une symétrie  $s$ . En incluant le spin, cela donne deux bandes de conduction  $|S_{1/2}\rangle$  de moment cinétique total  $J = 1/2$  et six bandes de valence dégénérées au point  $\Gamma$  :  $|P_{1/2}\rangle$  avec  $J = 1/2$  et  $|P_{3/2}\rangle$  avec  $J = 3/2$ . En prenant en compte le couplage spin-orbite, deux bandes de valence *split-off* sont abaissées en énergie par rapport aux bandes de trous lourds et légers (voir Fig. 1.2). Les différentes bandes de valence n'ont pas les mêmes courbures comme le signalent les masses effectives des électrons, des trous lourds, légers et split-off :  $m_e = 0.066m_0$ ,  $m_{hh} = 0.5m_0$ ,  $m_{lh} = 0.082m_0$  et  $m_{hso} = 0.17m_0$  [22].

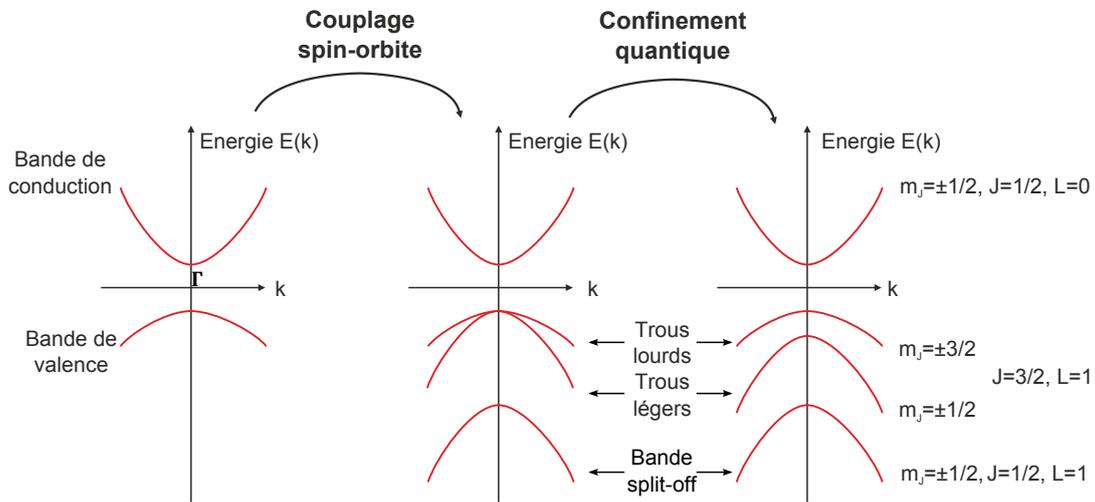


FIGURE 1.2 – Bandes d'énergie dans la GaAs : le couplage-spin-orbite et le confinement quantique lèvent la dégénérescence des différentes bandes de valence.

De plus, lorsqu'on crée un puits quantique en entourant une couche de GaAs d'une dizaine de nanomètres d'épaisseur par un matériau avec une énergie de gap plus grande (AlAs par exemple), on crée un confinement à deux dimensions. Dans une telle hétérostructure, le mouvement des excitons selon la direction du confinement est quantifiée. Les masses effectives des trous lourds et légers sont modifiées et génèrent une anisotropie entre le plan du puits quantique et la direction du confinement. L'hamiltonien de Luttinger permet de décrire les relations de dispersion et de calculer les masses effectives au voisinage du point  $\Gamma$  dans cette configuration. Si les masses effectives des trous dans la direction du confinement restent peu modifiées par rapport à la situation à trois dimensions, ce n'est pas le cas des masses effectives dans le plan du puits quantique :  $m_{hh} = 0.11m_0$  et  $m_{lh} = 0.2m_0$ .

Le mouvement des excitons dans un puits quantique est quantifié dans la direction du confinement. L'énergie de confinement  $E_{QW}$  dans un puits quantique de largeur  $L$  et aux barrières infinies s'écrit comme :

$$E_{\text{qw}} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2mL^2} n^2 \text{ avec } n \in \mathbb{N}^*. \quad (1.11)$$

On remarque que  $E_{\text{qw}}$  dépend de la masse effective dans la direction de confinement. La dégénérescence entre les bandes d'énergie des trous lourds et légers est alors levée (voir Fig. 1.2).

Enfin, lorsqu'un exciton est confiné dans un puits quantique, son énergie de Rydberg et son rayon de Bohr sont modifiés. Pour un puits quantique à deux dimensions, de largeur  $L \rightarrow 0$  et aux barrières infinies, le dernier terme de l'équation (1.9) doit être remplacé par  $-\frac{Ry}{(n-1/2)^2}$ . La nouvelle énergie de Rydberg dans l'état fondamental  $n = 1$  est donc 4 fois plus grande et le rayon de Bohr est 2 fois plus faible que ceux calculés à trois dimensions. Une énergie de liaison plus forte limite l'ionisation de l'exciton du fait de l'énergie thermique, ce qui constitue un avantage expérimental, mais le rapprochement des fonctions d'onde de l'électron et du trou augmente la probabilité de recombinaison radiative, ce qui a pour effet de réduire la durée de vie de l'exciton [24].

### 1.1.3 Excitons spatialement indirects

#### Intérêt

Les excitons suscitent l'intérêt des physiciens depuis les années 1960. En effet, les excitons sont des candidats privilégiés pour observer des transitions de phase quantiques comme la condensation de Bose-Einstein [6, 7, 25]. Au cours de cette thèse, nous avons cherché à étudier un gaz froid composé uniquement d'excitons thermalisés à longue durée de vie et présentant un élargissement spectral homogène. La mise en place d'un tel système nécessite de contourner les limitations que possèdent les excitons à trois dimensions et qui empêchent une analyse des phases quantiques collectives.

- Le temps de vie radiatif des excitons, de l'ordre de 100 ps, est plus petit que le temps caractéristique de thermalisation avec les phonons dans un puits quantique bidimensionnel ( $\sim 1$  ns), bien que ce dernier soit déjà plus court qu'à trois dimensions [26]. Le faible temps de vie des excitons empêche également d'atteindre des densités élevées.
- Au-dessus d'une densité  $\sim 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ , les fortes corrélations entre excitons provoquent leur ionisation et la formation d'un plasma d'électrons et de trous : on parle de dissociation de Mott [27, 28].
- les interactions entre excitons de spin opposés ne sont pas répulsives [20, 29]. Les excitons se regroupent en molécules excitoniques pour former des biexcitons.

Pour surmonter ces difficultés, l'idée consiste à appliquer un champ électrique perpendiculairement au plan du puits quantique, en plaçant l'hétérostructure dans un dispositif à effet de champ [8]. L'électron et le trou étant de charges opposées, ils se séparent, réduisant alors le chevauchement de leurs fonctions d'onde respectives. La probabilité de

recombinaison diminue donc et la durée de vie des excitons augmente. De plus, chaque exciton acquiert un moment dipolaire permanent, orienté selon la direction du champ électrique, ils exercent alors des interactions dipolaires répulsives entre eux qui empêchent la constitution de biexcitons et stabilisent le gaz d'excitons contre la formation d'un plasma d'électrons-trous.

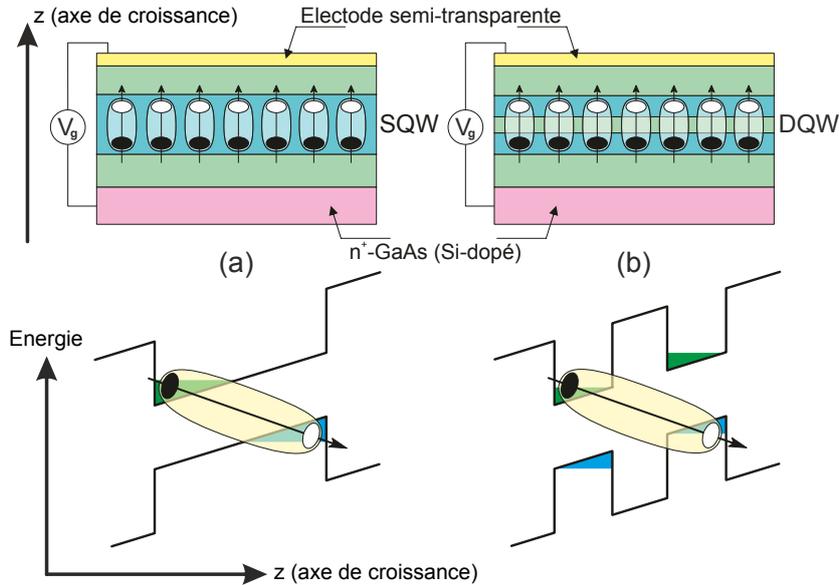


FIGURE 1.3 – Formation d'excitons indirects dans une hétérostructure polarisée par un dispositif à effet de champ. Les bandes sont inclinées par le champ électrique perpendiculaire au plan des puits quantiques. (a) Dans un simple puits quantique large, un exciton dipolaire est créé. (b) Dans un double puits quantique, l'électron et le trou minimisent leur énergie en se plaçant dans des puits quantiques différents, créant des excitons spatialement indirects.

Deux dispositifs permettent de former des excitons dipolaires. Dans un puits quantique large ( $\sim 25$  nm), le champ électrique repousse l'électron et le trou aux deux interfaces opposées du puits quantique. On parle alors d'excitons dipolaires. Cette technique permet d'obtenir des temps de vie radiatifs de  $\sim 10$  ns. L'autre méthode consiste à utiliser deux puits quantiques couplés et séparés par une barrière. Les minima d'énergie de l'électron et du trou étant situés dans des puits quantiques différents, l'électron et le trou sont physiquement séparés par la barrière entre les deux puits. Ici, on parle d'excitons spatialement indirects. La superposition des fonctions d'onde de l'électron et du trou décroît exponentiellement avec la largeur de la barrière, ce qui permet d'atteindre des durées de vie de 100 ns à 1  $\mu$ s. Dans la suite, nous n'évoquerons plus que les doubles puits quantiques.

### Interaction dipolaire entre excitons indirects

Du fait de la polarisation de l'hétérostructure perpendiculairement aux plans des puits quantiques, les excitons indirects ont leur électron et leur trou dans deux puits quantiques différents. Les excitons possèdent alors un moment dipolaire électrique permanent  $\mathbf{d}$ , aligné par rapport au champ électrique appliqué  $\mathbf{F}$  et donc normal aux plans des puits

quantiques. Ainsi, les moments dipolaires interagissent avec le champ électrique extérieur et acquièrent une énergie d'interaction dipolaire :

$$U_{\text{dip}} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{F}. \quad (1.12)$$

Si l'épaisseur de la barrière séparant les deux puits quantiques couplés est de l'ordre de quelques nanomètres et celle des puits est de  $\sim 10$  nm, le moment dipolaire obtenu est alors particulièrement élevé :  $d \sim 100$  Debye. Ce fort moment dipolaire et la minimisation de l'énergie d'interaction donnée par l'équation (1.12) expliquent pourquoi les excitons indirects s'alignent avec le champ électrique extérieur.

A l'aide d'un motif d'électrodes déposées à la surface de l'échantillon, on établit un champ électrique non uniforme au sein de l'hétérostructure et on peut confiner les excitons au sein d'un piège électrostatique puisque les excitons indirects minimisent leur énergie dipolaire en se dirigeant là où le champ électrique est le plus intense. Toutefois, un champ non-uniforme au sein de l'hétérostructure conduit à l'apparition d'une composante du champ électrique dans le plan des puits quantiques. Ce champ planaire, maximal aux interfaces entre deux électrodes, est indésirable car il provoque l'ionisation des excitons. Pour minimiser l'effet de ce champ dans le plan, le double puits quantique est positionné quelques centaines de nanomètres au-dessus de l'électrode de masse plutôt qu'à proximité de la surface de l'hétérostructure, là où se trouvent les électrodes (voir Fig. 2.1).

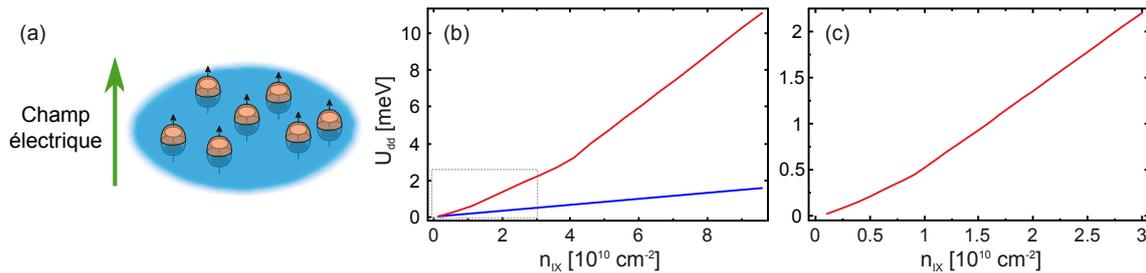


FIGURE 1.4 – (a) Les excitons indirects sont des dipôles qui s'alignent avec le champ électrique. Ils interagissent entre eux par interaction répulsive dipôle-dipôle. (b) Blueshift en fonction de la densité, avec le modèle simpliste du condensateur plan (en bleu) et avec le modèle présenté dans la référence [30] (en rouge). (c) Gros plan sur les faibles densités.

Les excitons n'interagissent pas seulement avec le champ électrique extérieur mais aussi entre eux via des interactions de type dipôle-dipôle. Cette interaction répulsive, d'autant plus forte que la densité d'excitons est élevée, conduit à une augmentation de leur énergie par rapport à l'énergie donnée par la seule interaction entre les dipôles et le champ électrique extérieur. On parle alors de *blueshift* de l'énergie des excitons. Considérons deux excitons indirects séparés d'une distance  $r$ . L'électron et le trou de chacun des excitons sont distants de  $a$ . En sommant les interactions électrostatiques entre les deux électrons et les deux trous, on obtient une énergie d'interaction :

$$u_{\text{pair}} = \frac{2e^2}{\kappa} \left( \frac{1}{r} - \frac{1}{\sqrt{a^2 + r^2}} \right). \quad (1.13)$$

Dans l'approximation de champ moyen, l'énergie d'interaction dipôle-dipôle est alors linéaire avec la densité d'excitons indirects  $n_x$  (équation du condensateur plan) [31, 28] :

$$U_{dd} = \int n_x u_{\text{pair}}(\mathbf{r}) d^2\mathbf{r} = \frac{4\pi e^2 a}{\kappa} n_x. \quad (1.14)$$

Cette formule illustre l'écrantage du champ électrique par les deux plans chargés. Elle ne prend cependant pas en compte le fait que les charges sont appariées sous forme d'excitons ni la dépendance en température de la densité. Par exemple, les interactions répulsives entre excitons provoquent une zone de déplétion autour de chaque exciton [30, 32, 33, 34]. Dans ce manuscrit, nous avons adopté le modèle développé dans la référence [30] pour évaluer la densité en fonction du blueshift. La Figure 1.4 montre que la formule du condensateur plan sur-estime d'un ordre de grandeur la densité. Typiquement, pour une densité  $n_x \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , le blueshift associé vaut  $\Delta E_x \sim 1 \text{ meV}$ . Le lien entre blueshift et densité reste un champ de recherche encore ouvert et débattu aujourd'hui [30].

### Photo-injection d'excitons indirects et recombinaison radiative

Pour créer des excitons au sein d'une hétérostructure, deux méthodes de photo-injection peuvent être employées.

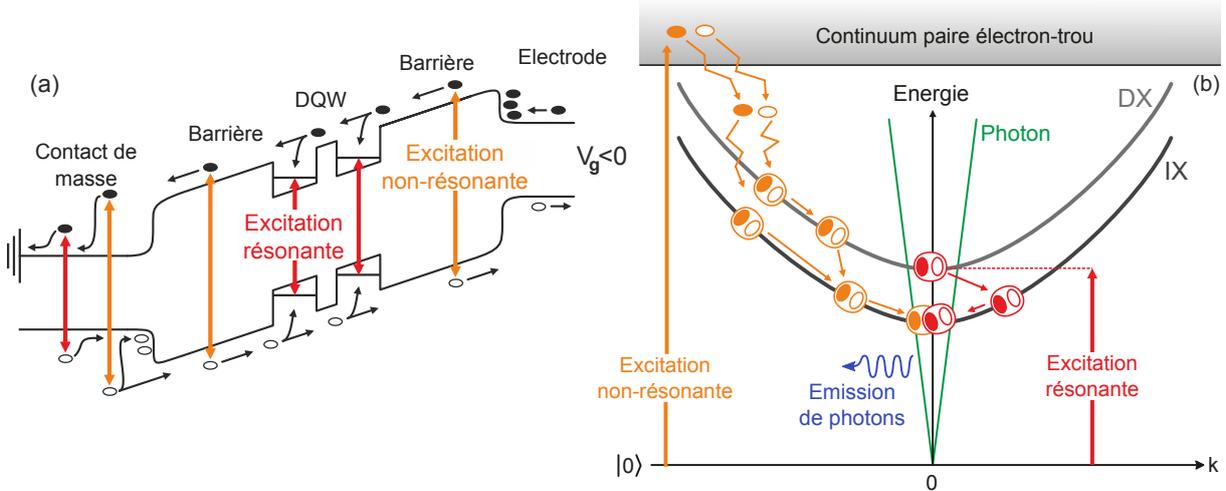


FIGURE 1.5 – (a) Diagramme de bandes dans la direction de croissance de l'hétérostructure polarisée par une tension  $V_g$ . L'injection non-résonante crée des charges au niveau des barrières qui sont alors piégées par les puits quantiques. L'excitation résonante injecte directement des excitons directs dans chacun des deux puits quantiques. (b) Courbes de dispersion des excitons directs (DX), indirects (IX) et des photons. Pour l'excitation non-résonante, les électrons (cercles orange pleins) et les trous (cercles orange vides) relaxent pour former des excitons directs et indirects. L'excitation résonante injecte les excitons directs dans le bas de la bande puis les électrons et trous traversent la barrière séparant les deux puits quantiques par effet tunnel pour former les excitons indirects, le tout en acquérant une impulsion dans le plan. Une fois cette énergie dissipée, les excitons indirects tombent en bas de la bande, dans le cône radiatif, d'où ils peuvent se désexciter en émettant un photon.

La première méthode consiste à exciter par laser, de façon non-résonante, i.e. à une énergie supérieure au gap de la barrière séparant les deux puits quantiques couplés. On injecte alors des paires électron-trou qui vont se placer dans leurs minima d'énergie respectifs correspondant à un puits quantique différent (voir Fig. 1.5). L'interaction coulombienne favorise alors la formation d'excitons avec une haute énergie cinétique qui est ensuite diffusée grâce aux interactions entre excitons, entre excitons et charges libres et entre excitons et phonons. Les excitons atteignent enfin le minimum d'énergie de la bande excitonique et sont alors dans un quasi-équilibre thermodynamique.

L'autre méthode excite de façon résonante la transition des excitons directs dans les deux puits quantiques. Les électrons et les trous rejoignent le niveau de plus basse énergie par effet tunnel à travers la barrière pour former des excitons indirects. Cette technique présente l'avantage de minimiser l'apport de charges libres dans l'hétérostructure. Cependant, les contacts métalliques à la surface et la couche dopée en bas de l'échantillon absorbent aussi des photons et contribuent à la formation de charges libres qui perturbent le potentiel électrostatique et induisent un photo-courant, limitant la précision des mesures expérimentales. C'est cette dernière méthode de formation des excitons indirects qui a été employée durant la thèse.

Les excitons se trouvant dans une structure bidimensionnelle, leur impulsion est diffusée via l'émission de phonons acoustiques longitudinaux (LA-phonons) d'énergie minimale  $E_{X-LA}^{\min} \sim 35 \mu\text{eV}$  (voir Fig. 1.6). Ce processus de thermalisation bidimensionnel est trois fois plus rapide que dans une structure tridimensionnelle [34, 35] et conduit à une température minimale de  $\sim 400$  mK pour le gaz d'excitons. D'autres processus de refroidissement peuvent se produire comme la diffusion à deux phonons (un exciton absorbe un phonon puis en émet un autre plus énergétique) mais l'efficacité de ce type de processus décroît exponentiellement avec la température.

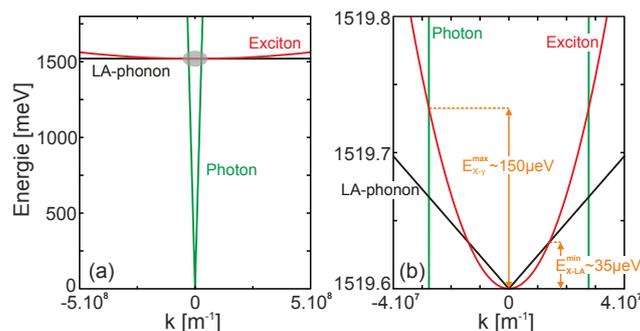


FIGURE 1.6 – Courbes de dispersion des excitons indirects (en rouge), des phonons acoustiques longitudinaux LA (en noir) et des photons (en vert). (a) Vue large où la zone grisée correspond au cône radiatif où les excitons peuvent se recombiner radiativement. (b) Vue resserrée autour de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ . Les excitons ne peuvent relaxer leur impulsion dans le plan en émettant un phonon-LA que si leur énergie est supérieure à  $E_{X-LA}^{\min}$ .  $E_{X-\gamma}^{\max}$  est l'énergie maximale que peut posséder un exciton pour pouvoir se désexciter radiativement.

Les excitons ont une durée de vie limitée notamment par la recombinaison radiative de l'électron avec le trou qui lui est associé. Toutefois, la conservation de l'énergie et de l'impulsion dans le plan limite la fraction d'excitons pouvant se recombiner radiativement.

Le couplage entre excitons et champ de photons ne peut se produire qu'en dessous d'une certaine valeur de l'impulsion dans le plan des excitons (voir Fig. 1.5).

Les excitons ont leur impulsion perpendiculaire au plan nulle et n'ont plus qu'une impulsion dans le plan  $\hbar\mathbf{k}_{\parallel}$ . L'énergie d'un exciton dans un double puits quantique s'écrit :

$$E_x = E_x^0 + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_{\parallel}^2}{2M_x} \quad (1.15)$$

où  $E_x^0$  regroupe l'énergie de gap, de confinement et de liaison de l'exciton. Le photon, quant à lui, possède une impulsion perpendiculaire au plan  $\hbar\mathbf{k}_{\perp}$  et une énergie :

$$E_{\gamma} = \hbar \frac{c}{n} k = \hbar \frac{c}{n} \sqrt{k_{\perp}^2 + k_{\parallel}^2} \quad (1.16)$$

avec  $n$  l'indice du milieu. En égalisant les énergies de l'exciton et du photon, on obtient une expression pour  $k_{\perp}$  :

$$k_{\perp} = \sqrt{\frac{n^2}{\hbar^2 c^2} \left( E_x^0 + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_{\parallel}^2}{2M_x} \right)^2 - \mathbf{k}_{\parallel}^2}. \quad (1.17)$$

Cette expression n'a de racine réelle que si :

$$k_{\parallel} < \frac{n}{\hbar c} \left( E_x^0 + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_{\parallel}^2}{2M_x} \right). \quad (1.18)$$

Les deux solutions réelles pour la norme du vecteur d'onde dans le plan  $k_{\parallel}$  sont donc :

$$k_{\parallel} < k_{\parallel}^{(1)} = \frac{cM_x}{n\hbar} \left( 1 - \sqrt{1 - \frac{2n^2 E_x^0}{c^2 M_x}} \right) \quad (1.19)$$

$$k_{\parallel} > k_{\parallel}^{(2)} = \frac{cM_x}{n\hbar} \left( 1 + \sqrt{1 - \frac{2n^2 E_x^0}{c^2 M_x}} \right). \quad (1.20)$$

La solution (1.20) est exclue car elle se situe en dehors de la première zone de Brillouin. Finalement, seuls les excitons qui sont inclus dans le cône radiatif (voir Fig. 1.6) et qui ont une énergie inférieure à  $E_{x-\gamma}^{\max} = \hbar^2 k_{\parallel}^{(1)2} / 2M_x$  peuvent émettre un photon. Dans le GaAs, si on prend  $E_x^0 \sim E_g = 1.52$  eV et  $n \approx 3.6$ , on obtient  $k_{\parallel}^{(1)} \approx 2.8 \cdot 10^7$  m<sup>-1</sup> et  $E_{x-\gamma}^{\max} \approx 150$   $\mu$ eV. Comme l'énergie thermique à  $T_b = 330$  mK vaut  $k_B T_b \approx 30$   $\mu$ eV, on peut supposer que tous les excitons, une fois thermalisés, se trouvent dans le cône radiatif. A basse température, la recombinaison radiative ne chauffe donc pas le gaz. Au contraire, au-dessus de  $T = E_{x-\gamma}^{\max} / k_B \approx 1.7$  K, ce sont les excitons les plus froids qui se recombinent, provoquant un échauffement global du gaz d'excitons.

## 1.2 Condensation de Bose-Einstein

Dans cette partie, les propriétés fondamentales d'un condensat de Bose-Einstein seront rappelées et l'effet de la dimensionnalité sur la condensation sera abordée. Enfin, l'originalité de la condensation des excitons fera l'objet de la dernière partie.

### 1.2.1 Condensation de Bose-Einstein à basse dimension

Pour un système de taille finie à la température  $T$ , le condensat de Bose-Einstein est une phase quantique où l'occupation des états excités est saturée alors que le niveau fondamental est macroscopiquement occupé par les particules du système [36]. Pour subir cette transition de phase, les particules doivent être des bosons, *i.e.* posséder un spin entier. C'est le cas des atomes alcalins comme le Sodium 23, le Rubidium 85, 87 ou encore de l'Hélium 4. L'accumulation des particules dans l'état de plus basse énergie a pour conséquence d'établir une longueur de cohérence limitée par la taille du système (voir Fig. 1.7).

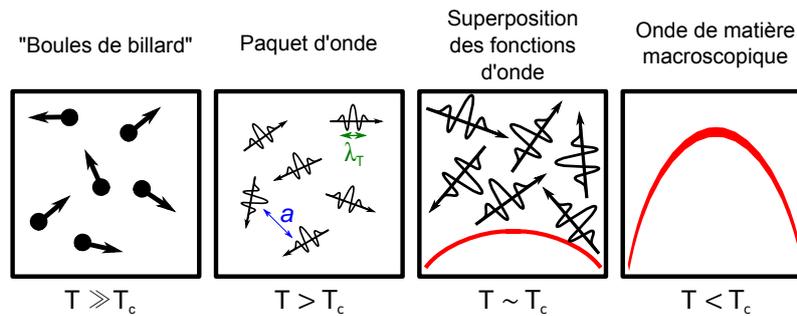


FIGURE 1.7 – Schématisation de la condensation de Bose-Einstein dans une boîte avec un nombre fixe de particules. La baisse de la température du système conduit au chevauchement des fonctions d'onde dont la taille est voisine de la distance inter-particulaire  $a$ . En dessous d'une température critique, on observe une occupation macroscopique de l'état fondamental et une fonction d'onde macroscopique dans tout l'espace [37].

Toute particule possède une densité de probabilité de présence dans l'espace, issue de sa fonction d'onde. Cette fonction d'onde constitue un paquet d'onde centré autour de la position moyenne de la particule et s'étale spatialement sur une longueur typique donnée par la longueur d'onde thermique de de Broglie :

$$\lambda_T = \frac{h}{\sqrt{2\pi M k_B T}}. \quad (1.21)$$

Ainsi, pour un système sans interaction avec un nombre de particules fixé, les fonctions d'onde de chacune des particules tendent à se superposer à mesure que la température diminue, jusqu'à une température critique  $T_c$  où il se forme une unique onde de matière macroscopique pour le système (voir Fig. 1.7). Le système présente alors une cohérence spatiale macroscopique, un ordre en phase à longue portée dans tout l'espace délimité par la taille du système.

Dans l'approximation la plus simple, le seuil critique en température a lieu lorsque la longueur d'onde thermique est du même ordre de grandeur que la distance entre les particules. Dans un espace de dimension  $d$  contenant une densité de particules  $\rho^{(d)}$ , cela conduit au critère de condensation suivant :

$$\lambda_T^d \rho^{(d)} \sim 1. \quad (1.22)$$

Ainsi, pour atteindre le régime quantique dégénéré, les bosons doivent être légers, il convient aussi de travailler à basse température et d'avoir une densité de particules suffisamment élevée.

Les particules bosoniques obéissent à la statistique de Bose-Einstein, qui régit le nombre d'occupation moyen d'un état individuel  $\alpha$  d'énergie  $\epsilon_\alpha$  [38] :

$$N_\alpha = \frac{1}{e^{-\frac{\epsilon_\alpha - \mu}{k_B T}} - 1} \quad (1.23)$$

où  $\mu$  est le potentiel chimique.

Le nombre de particules dans tous les états excités  $\alpha$  est donc la somme de tous les états excepté l'état fondamental  $\alpha = 0$  :

$$N_{\text{exc}}(T) = \sum_{\{\alpha \neq 0\}} \frac{1}{e^{-\frac{\epsilon_\alpha - \mu}{k_B T}} - 1}. \quad (1.24)$$

En passant à la limite thermodynamique, on peut remplacer la somme discrète par une intégrale pour obtenir la densité de particules dans les états excités :

$$\rho_{\text{exc}} = \frac{N_{\text{exc}}}{L^d} = \frac{1}{L^d} \int \frac{1}{e^{-\frac{\epsilon - \mu}{k_B T}} - 1} \mathcal{D}^{(d)}(\epsilon) d\epsilon \quad (1.25)$$

où  $\mathcal{D}^{(d)}(\epsilon)$  est la densité d'états en dimension  $d$  et varie comme  $\mathcal{D}^{(d)}(\epsilon) \propto \epsilon^{\frac{d}{2}-1}$ .

A trois dimensions, la variation en  $\sqrt{\epsilon}$  de la densité d'états correspond à une raréfaction des états au voisinage de  $\epsilon = 0$  (voir Fig. 1.8). La densité d'occupation des états excités tend vers une valeur finie et les états excités peuvent donc être saturés. Au-delà, toute nouvelle particule ajoutée au système occupera l'état fondamental.

A une dimension, la variation en  $1/\sqrt{\epsilon}$  de la densité d'états conduit à l'accumulation d'états individuels au voisinage de l'état fondamental  $\epsilon = 0$ . Les particules peuvent se répartir sans singularité macroscopique sur les niveaux les plus bas, comme illustré par la Figure 1.8. La densité  $\rho_{\text{exc}}$  diverge, il n'y a pas de borne supérieure à la densité des états excités et aucune condensation n'est envisageable.

A deux dimensions, aucune condensation n'est possible puisque la densité d'états est constante. Les fluctuations thermiques empêchent et détruisent l'établissement d'un ordre à longue portée. Dans un piège harmonique, par contre, la densité d'états à deux dimensions est linéaire avec l'énergie et conduit, comme à trois dimensions, à une saturation de la densité de particules dans les états excités : la condensation redevient possible.

Les premières preuves expérimentales de la condensation de Bose-Einstein ont été publiées dans les années 1990, notamment par E. Cornell, W. Ketterle et C. Wieman [3, 4]. Dans ces expériences, des atomes alcalins sont confinés dans un piège optique harmonique

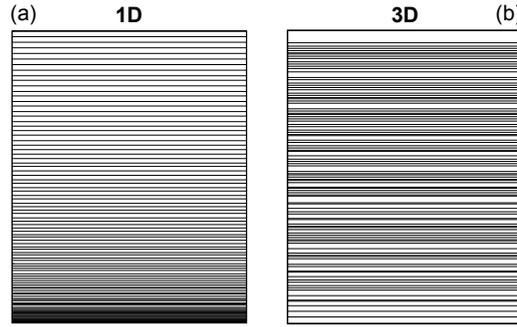


FIGURE 1.8 – Énergie des 100 premiers états individuels d'une particule dans une boîte à une dimension (a) et à trois dimensions (b) (les unités en énergie sont arbitraires) [36].

tridimensionnel, refroidis par laser et par évaporation optiquement assistée. Le Tableau 1.1 regroupe les expressions des températures critiques à deux et trois dimensions, en fonction du type de confinement.

| Piège           | 2D  | 3D   |
|-----------------|---|--|
| aucun           | –   | $T_c^{3D} = \frac{2\pi\hbar^2}{k_B M} \left( \frac{N}{L^3} \frac{1}{\zeta(3/2)} \right)^{2/3}$ |
| harmonique      | $T_c = \left( \frac{N}{\zeta(2)} \right)^{1/2} \frac{\hbar\omega}{k_B}$ | $T_c = \left( \frac{N}{\zeta(3)} \right)^{1/3} \frac{\hbar\omega}{k_B}$                        |
| puits quantique | $T_c = \frac{4\pi\hbar^2 n}{2M k_B} \frac{1}{\ln(nS)}$                  | $T_c = T_c^{3D} / 4$   |

TABLEAU 1.1 – Expressions des températures critiques de condensation en fonction du confinement et de la dimension du système [38, 39, 40].  $N$ ,  $n$  et  $M$  sont le nombre, la densité et la masse des particules,  $\omega$  la fréquence du piège,  $S$  la surface du puits quantique et  $\zeta(x) = \sum_{n=1}^{\infty} 1/n^x$  est la fonction zêta de Riemann. Aucune dégénérescence de l'état fondamental n'est prise en compte. Quand  $S \rightarrow \infty$ , la température critique dans un puits quantique 2D tend bien vers 0, montrant une nouvelle fois l'impossibilité d'une condensation à deux dimensions sans confinement.

Dans les gaz d'atomes froids confinés dans un piège harmonique tridimensionnel, le nombre d'atomes condensés est de  $\sim 10^5$  et les températures de condensation sont de  $\sim 2 \mu\text{K}$  [4]. Notons que le rapport entre l'énergie thermique à  $T = T_c$  et l'écart énergétique entre le niveau fondamental et le premier niveau excité du piège est  $k_B T_c / \hbar\omega \sim 100$ . Ainsi, la condensation de Bose-Einstein est bien une transition de phase quantique d'origine statistique et non thermique.

Enfin, nous avons jusqu'ici considéré des particules sans interaction. Pourtant, Nozières [41] a fait remarquer que les interactions sont nécessaires à la formation d'un condensat pour qu'il ne se fragmente pas en une multitude de parties incohérentes. En effet, la différence d'énergie entre une population de  $(N, N)$  particules dans les deux premiers états excités de même énergie  $(\mathbf{k}, -\mathbf{k})$ , avec  $|\mathbf{k}| = 2\pi/L$  et  $\epsilon_{\pm\mathbf{k}} = \hbar^2 k^2 / 2M$ , et  $2N$  particules toutes dans le niveau fondamental  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  s'écrit :

$$N\epsilon_{\mathbf{k}} + N\epsilon_{-\mathbf{k}} - 2N\epsilon_{\mathbf{0}} = 2N \frac{\hbar^2}{2M} \left( \frac{2\pi}{L} \right)^2 \propto \frac{N}{L^2}. \quad (1.26)$$

Cette différence d'énergie varie moins vite que  $N$  ou  $L^3$  lorsqu'on passe à la limite thermodynamique ( $N, L^3 \rightarrow \infty$  avec  $\rho = N/L^3 = \text{cste}$ ). On dit que ce terme est sous-extensif. Il est alors impossible de comprendre pourquoi les particules peuplèrent uniquement le niveau fondamental alors que les premiers états excités lui sont infiniment proches. L'introduction d'une simple interaction de contact répulsive ajoute un terme dû aux processus d'échanges entre les parties fragmentées du condensat. La différence d'énergie entre un état à  $(N, N)$  bosons dans l'état  $(\mathbf{k}, -\mathbf{k})$  et  $2N$  bosons dans l'état  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  s'écrit alors :

$$E_{N,N}(\mathbf{k}) - E_{2N}(\mathbf{0}) = 2N\epsilon_{\mathbf{k}} + \bar{v}N^2 \quad (1.27)$$

où  $\bar{v} > 0$  est le potentiel de diffusion pour des interactions de contact ; il varie comme l'inverse du volume et est positif pour prévenir tout effondrement du condensat. Ainsi, le terme additionnel est bien extensif et permet la condensation dans l'état  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ , rendant aussi défavorable énergétiquement la fragmentation du condensat.

## 1.2.2 De la condensation noire à la condensation grise des excitons

### L'exciton, ce boson composite

Nous avons jusqu'ici ignoré la nature composite des excitons. Dans le cadre de cette thèse, nous considérons uniquement les excitons formés d'un électron et d'un trou lourd, les trous légers étant plus bas en énergie. L'électron et le trou ont un nombre quantique secondaire du moment cinétique total (nous parlerons plus simplement de spin dans la suite) :  $m_j^{(e)} = \pm 1/2$  et  $m_j^{(h)} = \pm 3/2$  (voir Fig. 1.2). Par composition, l'exciton a alors accès à quatre états de spin :  $\pm 1$  et  $\pm 2$ , tous entiers. L'exciton est donc un boson composite.

Les états de spin  $\pm 1$  sont appelés *états brillants* car les excitons peuvent se recombiner en émettant un photon de polarisation circulaire  $\sigma^\pm$  par conservation du moment cinétique. Au contraire, les états de spin  $\pm 2$  sont qualifiés d'*états noirs* et ne sont pas couplés à la lumière. Ils ne peuvent a priori disparaître que via des processus non-radiatifs. Ainsi, seuls les excitons brillants peuvent être créés par excitation laser. L'apparition d'excitons noirs dans le système peut résulter du retournement de spin d'une des deux charges avant qu'elles ne forment un exciton. Un autre processus de conversion d'excitons brillants en excitons noirs est aussi envisageable lorsque des interactions d'échanges de fermions se produisent entre excitons brillants. La Figure 1.9 montre que deux excitons brillants de spins opposés peuvent échanger leur électron et ainsi se transformer en deux excitons noirs de spins opposés. Le processus inverse se produit également.

### Dégénérescence entre les états noirs et brillants

L'état fondamental de l'exciton est a priori composé des états noirs et/ou brillants. Néanmoins, Combescot *et al.* ont récemment montré [11] que les états brillants sont l'objet d'un processus coulombien interbande répulsif au cours duquel un échange électron-trou a lieu. Plus précisément, comme décrit dans la Figure 1.10, un électron de conduction retourne dans la bande de valence se recombiner avec le trou correspondant à l'exciton. Un photon virtuel est alors émis, puis réabsorbé par un électron de valence pour recréer

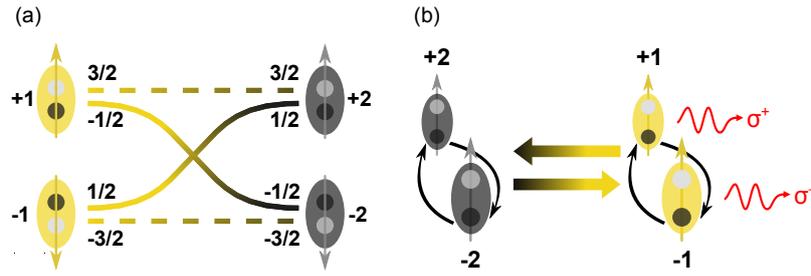


FIGURE 1.9 – (a) Diagramme d'échange entre excitons noirs et excitons brillants. Par exemple, deux excitons brillants échangent leur électron et l'exciton brillant de spin  $+1$  devient noir avec un spin  $+2$  tandis que l'exciton brillant de spin  $-1$  devient noir avec un spin  $-2$ . (b) Le processus d'échange s'applique aussi pour les excitons noirs échangeant leurs fermions pour se transformer en excitons brillants, ces mêmes excitons peuvent alors se recombiner radiativement en émettant un photon polarisé circulairement  $\sigma^\pm$ .

un exciton. Comme seuls les excitons brillants peuvent se désexciter radiativement et que les processus diffusifs coulombiens sont répulsifs, les excitons brillants ont une énergie légèrement plus haute que celle des excitons noirs. L'énergie  $\delta\epsilon$  séparant les états noirs et brillants dépend fortement du type d'hétérostructure. Alors que pour des puits quantiques de  $\sim 2$ - $3$  nm de largeur on a  $\delta\epsilon \sim 150 \mu\text{eV}$ , pour des doubles puits quantiques couplés, on peut avoir une énergie de séparation de seulement quelques  $\mu\text{eV}$  [42, 43]. Dans le cas de l'échantillon étudié lors de cette thèse, on peut évaluer l'énergie de séparation à  $\delta\epsilon \sim 5$ - $20 \mu\text{eV}$  [44, 45], ce qui est plus faible que l'énergie thermique à  $T_b = 330$  mK :  $k_B T_b \sim 30 \mu\text{eV}$ .

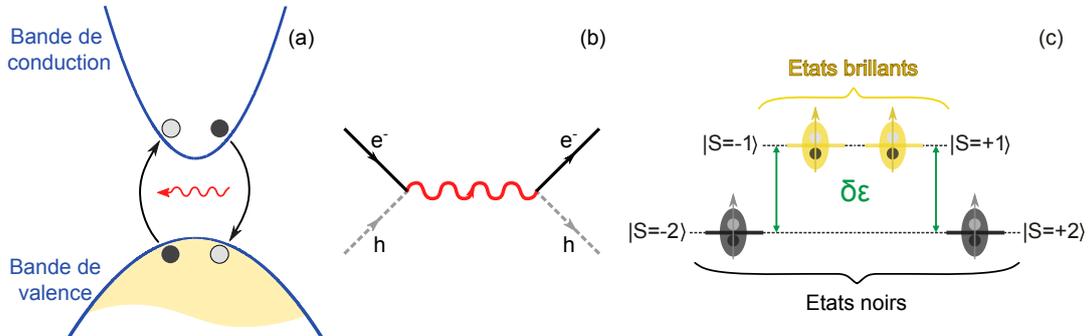


FIGURE 1.10 – (a) Dans un échange électron-trou, un électron de conduction retourne dans la bande de valence tandis qu'un électron de valence est promu dans la bande de conduction. (b) Diagramme de Feynman du processus coulombien interbande. (c) Séparation des états noirs et brillants due au processus coulombien interbande. Avec le type d'échantillon utilisé dans cette thèse, on estime que  $\delta\epsilon \sim 5$ - $20 \mu\text{eV}$ .

Puisque le niveau d'exciton noir occupe l'énergie la plus basse, les excitons doivent subir une condensation de Bose-Einstein conduisant à une majorité d'excitons noirs n'émettant pas de photons. L'obtention d'un condensat noir ne peut se réaliser qu'à des densités suffisamment faibles pour que les interactions d'échange de fermions soient négligeables [46, 47]. Les conditions expérimentales d'une telle condensation rendraient difficile l'ana-

lyse de la photoluminescence, qui est à la base des mesures spectroscopiques faites au laboratoire. Fort heureusement, Combescot *et al.* ont montré qu'au-delà d'une densité limite, l'échange de fermions entre excitons introduit une fraction d'excitons brillants dans le condensat noir. Cette fraction brillante est couplée de façon cohérente avec les excitons noirs condensés : il se forme un condensat « gris » à quatre composantes, réparti sur les niveaux  $(\pm 1)$  et  $(\pm 2)$ , dont la faible photoluminescence émise peut être analysée pour relever les signatures quantiques de la condensation de Bose-Einstein [12]. Finalement, remarquons qu'il a été récemment démontré que la condensation des excitons peut s'observer optiquement à travers une partie brillante uniquement si les excitons possèdent un grand moment dipolaire, ce qui est fort heureusement le cas des excitons indirects [48].

### Signatures de la condensation grise

Les excitons indirects semblent être le seul candidat à la réalisation d'un condensat. Ils possèdent un moment dipolaire énorme qui permet de les piéger dans un champ électrique non-uniforme au sein d'une hétérostructure bidimensionnelle. La densité peut donc être contrôlée. L'interaction répulsive entre les excitons empêche aussi la formation de bi-excitons et leur temps de vie, de l'ordre de 100 ns, est largement supérieur au temps typique de thermalisation à la température du réseau avec les phonons acoustiques longitudinaux. La structure interne joue un rôle primordial dans le caractère bosonique de l'exciton qui ne doit pas être dénaturé lors des mesures. La densité à laquelle un gaz d'exciton est un gaz de bosons doit être estimée afin que les expériences soient menées dans un régime assez dilué pour que les excitons ne se dissocient pas en un plasma d'électrons-trous [28, 29]. Pour une hétérostructure composée de GaAs, on ne peut pas espérer une condensation de Bose-Einstein à une densité supérieure à  $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Les corrélations entre excitons seraient complexes et éloigneraient le système du régime modèle de particules en faible interaction. À l'inverse, en régime très dilué ( $n_x < 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ), les excitons sont très éloignés les uns des autres et le condensat est essentiellement composé d'excitons noirs. Ce régime de très basse densité peut difficilement être exploré expérimentalement car nous détectons la photoluminescence émise par les excitons brillants participant au condensat. Le signal très faible imposerait un trop long temps d'acquisition au cours duquel les conditions expérimentales peuvent varier. Par conséquent, nous nous attachons à travailler dans un régime où  $n_x \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , c'est-à-dire au-dessus du seuil théorique pour la formation d'un condensat gris.

Enfin, concernant la température critique  $T_c$  attendue pour une densité  $n \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , la relation  $n_x \lambda_T^2 \sim 1$  nous donne  $T_c \sim 1 \text{ K}$  qui est élevée et facilement accessible par des méthodes cryogéniques classiques. Cet avantage, comparé aux températures extrêmes qu'il faut atteindre avec les systèmes atomiques, est dû à la masse légère des excitons ( $M_x \approx 0.2m_0$ ).

La possibilité d'une condensation de Bose-Einstein des excitons a été mise en évidence dès les années 1960 [6, 7, 25] mais les signatures quantiques attendues démontrant expérimentalement l'existence d'un condensat « gris » d'excitons piégés à deux dimensions n'ont été rapportées que récemment [21]. Pour les expériences d'excitons indirects

confinés dans un piège électrostatique, la condensation de Bose-Einstein doit entraîner :

1. une extinction de la photoluminescence émise par les excitons piégés quand la température descend en dessous de  $T_c$ . Cela signale une occupation macroscopique des états noirs.
2. l'observation d'un seuil de température en dessous duquel une cohérence spatiale d'origine quantique apparaît. Comme la photoluminescence transporte avec elle l'information sur la phase du gaz d'excitons, l'étude de sa cohérence spatiale macroscopique serait une signature de la présence d'un condensat « gris ».
3. un seuil au niveau de la cohérence temporelle de la photoluminescence. Dans un régime où les raies spectrales sont élargies de façon homogène, on s'attend à une température critique identique pour le seuil de cohérence temporelle et spatiale.

Toutes ces preuves de la condensation grise d'excitons dans un piège sont fournies dans ce manuscrit.

### 1.2.3 Publications antérieures

#### Anneaux excitoniques fragmentés

En 2014, Alloing *et al.* [47, 49] ont mis en évidence un noircissement anormal de la photoluminescence, simultané avec une cohérence quantique dans des anneaux excitoniques fragmentés. Un faisceau pompe non-résonant introduit des charges dans un puits quantique simple. Les trous s'accumulent au niveau de la zone d'impact du laser et les électrons sont expulsés à la périphérie (voir Figure 1.11). L'interface entre le domaine riche en trous et celui riche en électrons forme un anneau, là où se rencontrent les électrons et les trous pour s'apparier et former des excitons dipolaires. Dans cet anneau, la densité de charges libres est réduite et l'écrantage du champ électrique extérieur est minimal. Un piège électrostatique apparaît donc, les excitons se localisant dans les fluctuations du potentiel électrostatique.

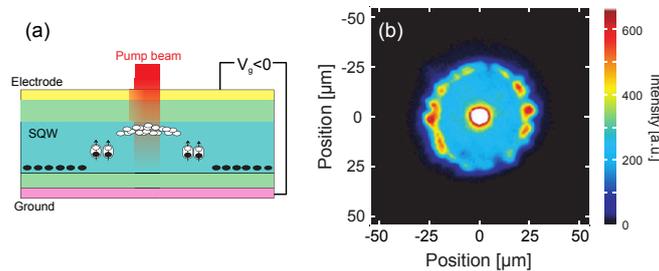


FIGURE 1.11 – (a) Schéma montrant la distribution de charges dans le puits quantique (largeur : 25 nm). (b) Image de la photoluminescence émise par un anneau fragmenté, 10 ns après l'extinction du pulse laser non-résonant long de 1  $\mu$ s. Images extraites de [47].

Quelques microns à l'extérieur de l'anneau lumineux, les auteurs ont observé que la densité est la même qu'au niveau de la partie brillante de l'anneau (l'émission est à la

même énergie) mais l'intensité est vingt fois plus faible et la cohérence spatiale est nettement plus marquée. Ces observations expérimentales suggèrent fortement la présence d'un condensat gris composé d'un gaz d'excitons majoritairement noirs, couplés de façon cohérente avec les excitons brillants, ces derniers présentant une cohérence spatiale macroscopique qui chute rapidement quand la température augmente au-delà de quelques kelvins.

Expérimentalement, ces mesures encourageantes souffrent d'un manque de contrôle de la densité d'excitons, de l'effet de la température sur l'aspect de l'anneau et du potentiel de confinement non maîtrisé. Une solution à ce dernier point consiste à graver des motifs d'électrodes particuliers au sommet de l'hétérostructure afin d'imposer un champ électrique non-uniforme contrôlable dans les puits quantiques.

Signalons que High *et al.* ont aussi rapporté en 2011 une cohérence quantique d'un gaz d'excitons refroidis en dessous de 2 K [10]. La cohérence étendue ne se produit que dans les régions où l'intensité de photoluminescence est plus faible, signe d'une population macroscopique d'excitons noirs. Ce dernier point n'a pourtant pas été relevé par les auteurs.

### Noircissement dans un fluide d'excitons dipolaires

En 2013, Shilo *et al.* ont rapporté une signature de la condensation des excitons dans les états noirs [50]. Un piège de 50  $\mu\text{m}$  de diamètre est chargé d'excitons indirects par un laser pulsé. La densité d'excitons injectés est donc contrôlée et le gaz est étudié après l'extinction du laser. En dessous de  $T_c \sim 2$  K, la proportion d'excitons brillants dans le cône radiatif est anormalement faible comparée à la prédiction théorique. Ils observent un léger noircissement du gaz excitonique qu'ils interprètent comme la possibilité d'une transition vers une occupation macroscopique des états noirs.

Néanmoins, les mesures spectroscopiques sont prises dans un régime où les raies spectrales présentent des largeurs de plusieurs meV [51], ce qui est un ordre de grandeur plus large que les valeurs attendues pour un gaz d'excitons à quelques kelvins [52]. Dans ces mesures, on ne peut pas exclure la présence de charges libres qui interagissent avec les excitons et provoquent le noircissement du signal de photoluminescence. Les mesures quantitatives du nombre d'excitons brillants à partir de l'intensité intégrée des spectres sont alors difficiles à interpréter.

### Signatures spectroscopiques d'un condensat noir d'excitons piégés

Beian *et al.* ont tout récemment montré qu'à  $T_b \lesssim 1$  K, l'émission provenant d'un gaz d'excitons indirects confiné dans un piège circulaire de 10  $\mu\text{m}$  de diamètre, est anormalement faible [13, 14]. Elle est divisée par 3 entre 3.5 K et 330 mK. Dans un régime où la densité est contrôlée et où la photoluminescence est élargie de façon quasi-homogène, cette baisse d'émission ne peut pas s'expliquer par des arguments classiques. Seul un régime dégénéré dans lequel les excitons occupent majoritairement les états noirs est à même d'interpréter les observations rapportées.

Le piège dipolaire de 10  $\mu\text{m}$  de diamètre est polarisé à un potentiel  $V_c = -4.8$  V pour le centre et  $V_g = -3.5$  V pour la garde (voir Fig. 2.2). Il est illuminé avec un pulse laser

de 100 ns et d'intensité  $P_{\text{ex}} = 1 \mu\text{W}$ . L'énergie d'émission, l'intensité intégrée, les largeurs spectrale et spatiale sont étudiées en fonction du temps après l'extinction du pulse laser et en fonction de la température.

**Refroidissement du gaz d'excitons** Dans la Figure 1.12, le temps de vie optique  $\tau_{\text{opt}}$  de l'intensité intégrée de la photoluminescence diminue quand la température est abaissée, jusqu'à une saturation à  $\tau_{\text{opt}} \approx 70$  ns. Cette variation suit le modèle théorique d'un gaz d'excitons dans un puits quantique en quasi-équilibre thermodynamique avec la distribution de Bose-Einstein [34, 35]. Comme les excitons ne peuvent se désexciter radiativement que si leur énergie est inférieure à  $E_{X-\gamma}^{\text{max}} \approx 150 \mu\text{eV}$ , les excitons s'accumulent davantage dans le cône radiatif quand  $T_b \lesssim 1$  K et leur temps de vie radiatif diminue avant de saturer. Cette saturation à basse température du temps de vie radiatif signale la présence d'un gaz statistiquement dégénéré, puisque dans le cas d'un gaz classique, le temps de vie optique varie linéairement avec  $T_b$ . Cela montre aussi que le gaz d'excitons est bien thermalisé à des températures plus basses à mesure que la température du cryostat diminue. Enfin, la limite de  $\tau_{\text{opt}}$  quand la température est nulle est reliée au temps de vie intrinsèque des excitons dans un double puits quantique :  $\tau_R = \lim_{T \rightarrow 0} \tau_{\text{opt}}/2 \approx 35$  ns.

Notons que l'énergie de la photoluminescence est identique à toutes les températures, on a donc la même densité dans le piège à un délai fixé.

On remarque également que le nuage se contracte quand la température passe de 3.5 K à 330 mK. A 330 mK, le nuage présente un profil plat au centre du piège et des bords abrupts, sa largeur à mi-hauteur diminuant même de 30% par rapport à 3.5 K. Cette contraction du nuage implique donc que les excitons s'accumulent dans le bas du piège à basse température, preuve du refroidissement du gaz excitonique.

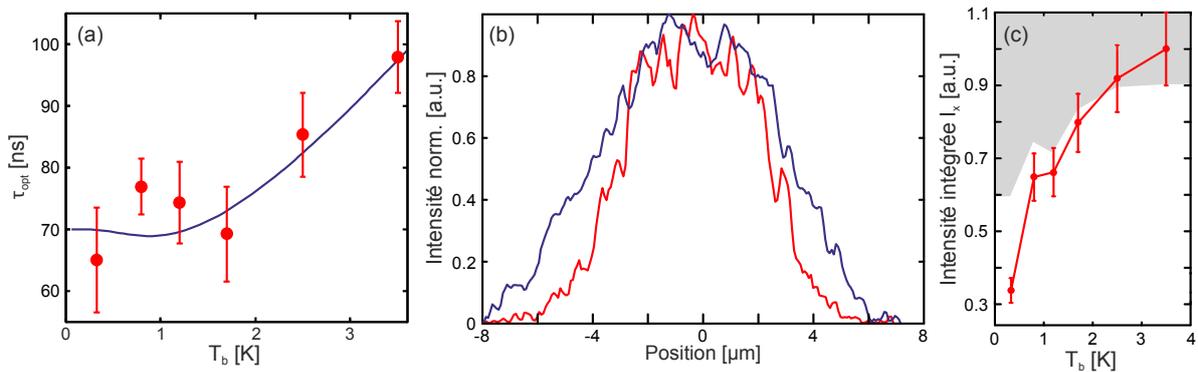


FIGURE 1.12 – (a) Temps de vie optique de l'intensité intégrée de la photoluminescence en fonction de  $T_b$ . La courbe bleue correspond au modèle théorique d'un gaz d'excitons dégénéré dans un puits quantique [35]. (b) Profil spatial du nuage d'excitons indirects confiné dans un piège de  $10 \mu\text{m}$  de diamètre, à  $T_b = 330$  mK (rouge) et 3.5 K (bleu). (c) Intensité intégrée en fonction de  $T_b$ , à  $\tau = 190$  ns, *i.e.* quand il y a une densité  $n_X \sim 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . La zone grisée correspond à l'intensité intégrée cumulée à partir de  $\tau = 80$  ns, représentant la baisse du nombre total de photons émis par le gaz à cause de la variation de température.

**Noircissement de la photoluminescence et condensation noire** La Figure 1.12 représente aussi l'intensité intégrée, c'est-à-dire l'aire sous le profil spectral de l'émission, qui est reliée à la densité d'excitons brillants  $n_{\text{BX}}$  : quand la raie est élargie de façon homogène, l'intensité intégrée varie comme  $I_x \sim n_{\text{BX}}/\tau_{\text{opt}}$ . En faisant varier la température à un délai fixe  $\tau = 190$  ns après la fin du pulse laser (donc à densité constante), l'intensité intégrée chute et est divisée par trois entre 3.5 K et 330 mK. Cette baisse marque un noircissement du gaz d'excitons. Le refroidissement mène aussi à une diminution de  $\sim 30\%$  du nombre total de photons émis, représenté par l'aire grisée sur la Figure 1.12c. D'autres processus non-radiatifs conduisent à la disparition des excitons brillants en fonction de  $T_b$  mais ne suffisent pas à expliquer la baisse de  $\sim 75\%$  de l'intensité intégrée. Une distribution classique des excitons dans les états noirs et brillants ne peut pas non plus expliquer cette variation. En effet, comme l'énergie thermique à  $T_b = 330$  mK est plus grande que l'énergie séparant les états noirs des états brillants ( $k_B T_b \approx 30 \mu\text{eV} > \delta\epsilon \sim 5 \mu\text{eV}$ ), les populations des états noirs et brillants devraient rester constantes et égales à toutes les températures. Or, nous avons montré que le temps de vie optique diminue de  $30\%$  entre 3.5 K et 330 mK. Donc l'intensité intégrée  $I_x$  devrait augmenter quand on baisse la température. Mais c'est bien le comportement inverse que nous observons. Seul un état dégénéré dans lequel les excitons se mettent à occuper macroscopiquement les états noirs quand  $T_b \lesssim 1$  K, au détriment de la population des états brillants, peut expliquer la chute de l'intensité intégrée ainsi observée. En considérant que les états noirs et brillants sont également peuplés à 3.5 K, on estime alors qu'à  $T_b = 330$  mK,  $75\%$  des excitons piégés se trouvent dans les états noirs.

Ces mesures, prises en 2015, constituent le point de départ de cette thèse.

# Chapitre 2

## Échantillon et dispositif expérimental

Dans ce chapitre sont exposés la structure de l'échantillon et le motif des électrodes gravées au sommet de l'hétérostructure. L'échantillon est identique à celui étudié lors de la thèse de M. Beian [13]. Ensuite, le dispositif expérimental, composé du cryostat, du laser de pompe et des analyseurs spectroscopiques et interférométriques sont présentés. Une partie est plus spécifiquement dédiée à la présentation de l'interféromètre de Mach-Zehnder qui permet de sonder la cohérence spatiale et temporelle de la photoluminescence des excitons brillants. Nous détaillons en outre les limites expérimentales auxquelles nous sommes soumis par l'ensemble du dispositif expérimental : diffusion spectrale, photocourant, etc., pour choisir les valeurs des paramètres expérimentaux (tensions de grille, puissance d'excitation, temps d'acquisition) qui minimisent l'élargissement inhomogène des spectres de photoluminescence. Enfin, la dernière partie expose les premiers résultats spectroscopiques obtenus avec cet échantillon [13].

### 2.1 Échantillon

L'échantillon a été construit au Laboratoire de Photonique et Nanostructures (Marcoussis) par Aristide Lemaître, Carmé Gomez Carbonell pour la partie épitaxie et par Edmond Cambril et Kamel Merghem pour le dispositif à effet de champ. M. Beian a conçu le design des électrodes [13].

Dans l'hétérostructure, les excitons indirects sont formés dans un double puits quantique de GaAs, chaque puits étant large de 8 nm. Ils sont séparés par une barrière de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  de 4 nm ( $x = 0.33$ ). Comme le montre la Figure 2.1, la croissance de la structure s'effectue sur une couche de GaAs dopée négativement afin d'assurer un bon contact thermique avec le circuit imprimé sur lequel est collé l'échantillon. Au-dessus, une couche de 800 nm de GaAs permet d'isoler électriquement le double puits quantique du circuit imprimé. Ensuite, un super-réseau est déposé. Il se compose d'une alternance de couches de 2 nm de GaAs et de AlAs sur une hauteur de 38 nm et agit comme une barrière contre les courants de fuite. La couche suivante, 200 nm de GaAs dopé négativement, joue le rôle de masse pour le dispositif à effet de champ. Le double puits quantique est entouré alors de deux couches de 5 nm de GaAs, 150 nm en dessous et 850 nm au-dessus. La couche supérieure de GaAs sert à éviter l'oxydation de l'aluminium sous-jacent. Fina-

lement, l'échantillon présente une surface de  $4 \times 4 \text{ mm}^2$  pour une épaisseur de l'ordre du millimètre au total.

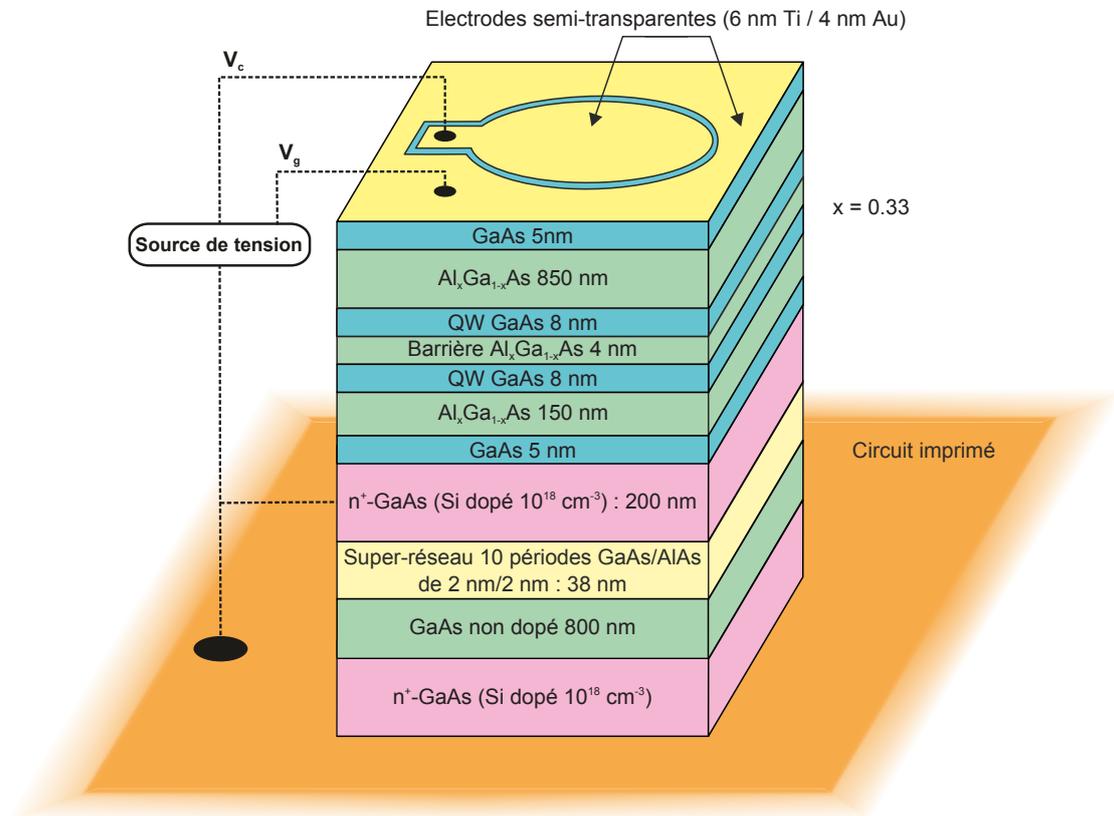


FIGURE 2.1 – Structure de l'échantillon, la croissance étant effectuée par épitaxie par jet moléculaire et le dépôt des électrodes par lithographie à faisceau d'électrons et évaporation métallique.

Le dispositif à effet de champ sert à polariser l'hétérostructure et à confiner les excitons indirects dans une région donnée de l'espace. Il est constitué d'une électrode de masse et d'un motif d'électrodes déposé au sommet de l'hétérostructure (voir Fig. 2.1). On réalise l'électrode de masse en atteignant la couche de GaAs dopée par élimination des couches supérieures le long d'un fin cadre bordant l'échantillon. Un contact diffusif est alors réalisé avec de l'indium qui dope la couche. L'échantillon est ensuite collé à un circuit imprimé (voir Fig. 2.5) avec de la laque d'argent. Les électrodes sont reliées au circuit imprimé par pontage (*wire bonding*). Enfin, le circuit imprimé est fixé avec de la colle au germanium et maintenu à l'aide de pinces au porte-échantillon en cuivre désoxygéné. C'est ce dernier qui est en contact direct avec le doigt froid du cryostat.

Au sommet de l'hétérostructure, le contact électrique est composé de deux électrodes. La première est une électrode circulaire de  $10 \mu\text{m}$  de diamètre, entourée par la seconde électrode : la garde. Les deux électrodes sont séparées par un anneau isolant d'une épaisseur de 200 nm ou 400 nm (voir Fig. 2.2).

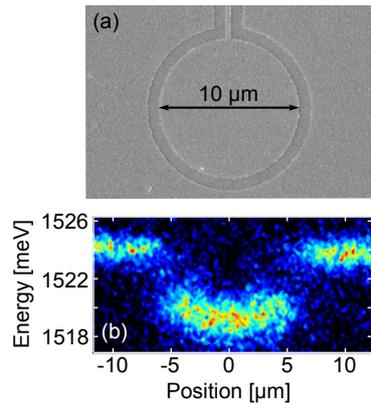


FIGURE 2.2 – (a) Image faite au microscope électronique à balayage de l'électrode circulaire entourée par l'électrode de garde. L'électrode centrale est alimentée par le fil métallique visible en haut. (b) Spectroscopie résolue spatialement des excitons piégés dans le puits de potentiel créé par la polarisation des électrodes ( $V_c = -4.8$  V et  $V_g = -3.5$  V) après une excitation par une ligne laser le long du diamètre de l'électrode circulaire.

## 2.2 Dispositif expérimental

### 2.2.1 Cryostat

L'existence des excitons dans une hétérostructure en GaAs n'est possible qu'en dessous de quelques kelvins : l'énergie thermique doit être plus basse que l'énergie de liaison des excitons. Il convient donc de travailler dans un environnement cryogénique. Pour cela, nous utilisons un cryostat Oxford Instrument (Heliox-ACV) composé d'un insert refroidi par un circuit fermé d'hélium 3, sur lequel est fixé le porte-échantillon en cuivre désoxygéné. Ce circuit fermé d'hélium 3 est lui-même refroidi par un circuit fermé d'hélium 4 qui subit les cycles d'un tube pulsé. La température de base, obtenue avec l'hélium 4, est de 2.5 K, et grâce au circuit d'hélium 3, on peut travailler à 330 mK pendant 12 à 14 heures. Le tube pulsé est fixé au sommet du cryostat et reçoit l'hélium 4 provenant d'un compresseur. Ce système provoque des vibrations de l'échantillon et de l'objectif de microscope. Pour diminuer ces vibrations, le dernier étage est couplé mécaniquement à l'étage supérieur. L'amplitude des vibrations mécaniques est ainsi réduite à  $\sim 1 \mu\text{m}$ . Le couplage mécanique induit aussi un couplage thermique entre les deux étages mais cela n'empêche pas de refroidir l'échantillon jusqu'à 330 mK. Sans ce couplage, la température minimale atteignable aurait été de 230 mK. Au dernier étage du cryostat, un objectif de microscope de grossissement  $\times 20$  et de distance focale 8.55 mm est positionné juste en face de l'échantillon (voir Fig. 2.5). Il permet de focaliser le laser d'excitation sur le piège et de collecter la photoluminescence émise par les excitons. L'objectif de microscope peut être déplacé dans les trois directions de l'espace à l'aide de transducteurs piézoélectriques. Notons aussi que l'ouverture numérique de l'objectif de microscope limite la proportion de photons émis qu'on collecte effectivement.

L'alimentation en tension de l'échantillon est effectuée par une source de tension à deux voies (Keithley 2614b) : une pour l'électrode centrale, l'autre pour l'électrode de

garde. L'appareil mesure également le courant avec une résolution de 10 pA. La source de tension est finalement reliée au circuit imprimé par des lignes coaxiales d'impédance  $40 \Omega$ .

## 2.2.2 Mise en forme de l'excitation laser et détection

L'injection d'excitons dans l'échantillon se fait de manière optique. Comme le montrent les Figures 2.3 et 2.5, le piège est chargé avec un laser pulsé dont la longueur d'onde  $\lambda \approx 794 \text{ nm}$  est résonante avec la transition des excitons directs dans les deux puits quantiques de l'hétérostructure.

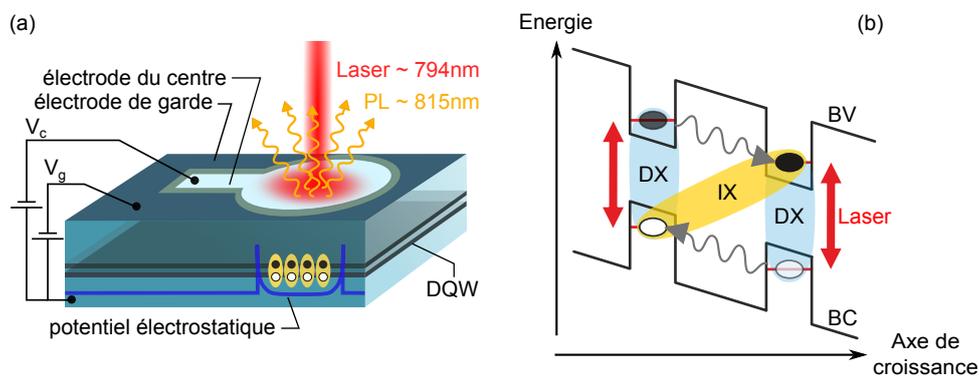


FIGURE 2.3 – (a) Schéma de l'échantillon excité par un laser  $\lambda_{\text{exc}} = 794 \text{ nm}$  qui crée des excitons piégés dans un potentiel électrostatique où la rectification de potentiel entre les électrodes du centre et de la garde impose des barrières alors même que  $V_c = V_g$ . La photoluminescence est émise à la longueur d'onde des excitons indirects  $\lambda_{\text{IX}} \approx 815 \text{ nm}$ . (b) Diagramme de bandes du double puits quantique électriquement polarisé. Le laser excite la transition des excitons directs dans les deux puits quantiques. Les charges rejoignent le minimum d'énergie en changeant de puits par effet tunnel (flèches ondulées).

Toutes les mesures s'effectuent en régime impulsionnel : le laser de pompe est une diode laser continue (Toptica DL-100) dont le signal doit être haché pour créer des impulsions longues de 100 ns et à une fréquence  $f = 1.5 \text{ MHz}$ . C'est pourquoi on utilise un modulateur électro-optique (EOM Jenoptik) suivi d'un modulateur acousto-optique (AOM Crystal Technologies Inc.). L'EOM possède un régime transitoire d'allumage et d'extinction très court  $\sim 1 \text{ ns}$  mais son extinction n'est pas totale et le signal présente des rebonds parasites en dehors du pulse. L'AOM, au contraire, possède un régime transitoire plus long mais son extinction est quasi-totale. La mise en série de ces deux modulateurs permet d'allier les avantages des deux modulateurs et d'avoir une impulsion laser de 100 ns de bonne qualité.

Nous possédons aussi une diode laser à  $\lambda_{\text{stab}} = 640 \text{ nm}$  qui sert à stabiliser la différence de marche de l'interféromètre de Mach-Zehnder.

Une fois le laser pulsé, la forme de la tache laser peut être adaptée selon les besoins : une tache large, une ligne (on monte un télescope composé de deux lentilles cylindriques) ou, ce qui est le cas de la plupart des situations, une tache laser qui couvre uniquement

l'électrode centrale sans toucher l'électrode de garde. Le laser parvient enfin à l'objectif de microscope placé dans le cryostat et focalise la tache d'excitation sur la partie de l'échantillon à irradier.

La recombinaison des excitons conduit à l'émission de photons qui sont en partie collectés par le même objectif de microscope. Quand le laser de pompe est éteint, la photoluminescence émise peut être analysée par le spectromètre (Princeton Instruments Acton SP2500). Il possède deux réseaux et un miroir plan montés sur une tourelle rotative : un réseau de 600 lignes par mm, l'autre de 1800 lignes par mm et le miroir pour réaliser des images réelles de la photoluminescence issue du piège.

En dehors du pulse laser, le signal extrait du piège est très faible et a besoin d'être amplifié : c'est la fonction du photomultiplicateur placé devant la caméra CCD (LaVision PicoStar-UF). L'ouverture de la caméra est aussi pulsée par le même séquenceur qui gère les pulses de l'EOM et de l'AOM. La fenêtre de détection doit être suffisamment courte pour que la photoluminescence récoltée corresponde à un blueshift et donc à une densité constante. En général, elle dure de 5 à 10 ns et peut être translatée sur toute la durée de la séquence représentée dans la Figure 2.4. Comme à chaque séquence l'intensité mesurée est extrêmement faible, celle-ci est répétée à une fréquence  $f = 1.5$  MHz afin d'accumuler suffisamment de signal, typiquement pendant 10-30 secondes.

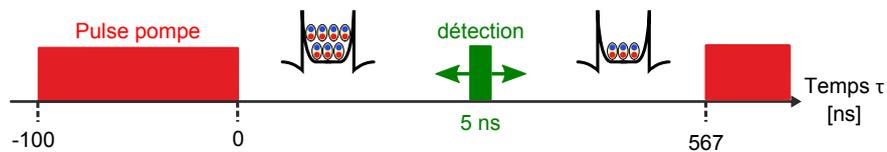


FIGURE 2.4 – Séquence des pulses laser et de l'ouverture de la caméra, répétée à une fréquence de 1.5 MHz. A mesure qu'on s'éloigne de la fin du pulse de pompe, le nombre d'excitons dans le piège décroît, du fait de leur recombinaison radiative.

La seconde méthode d'analyse de la photoluminescence est l'interférométrie spatiale et temporelle. Ces deux points sont traités à la section suivante.

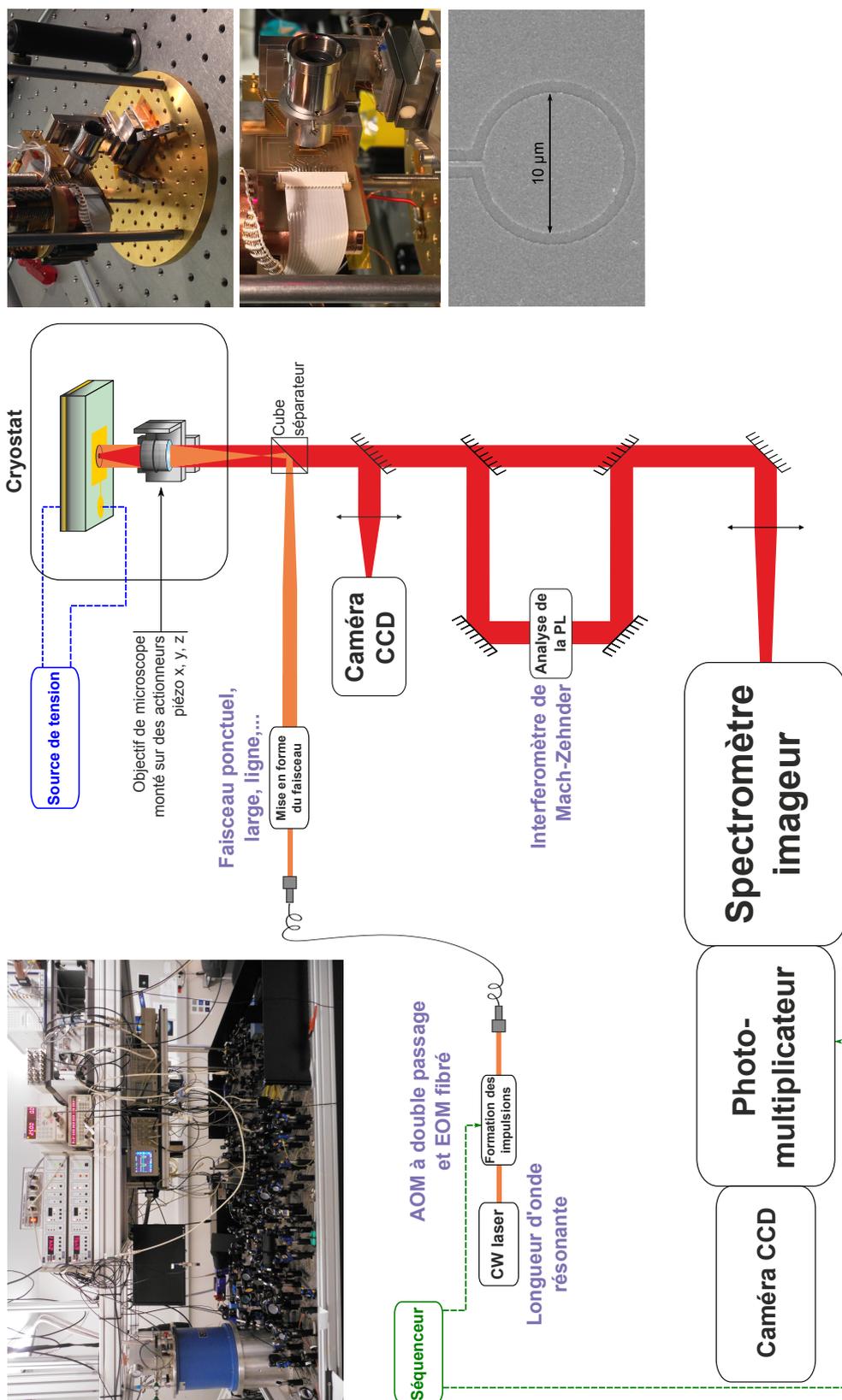


FIGURE 2.5 – Dispositif expérimental : le cryostat, posé sur la table optique, héberge l'échantillon et un objectif de microscope mobile qui focalise l'excitation laser pulsée sur le piège et collecte la photoluminescence émise par les excitons. Cette émission est ensuite analysée par un spectromètre ou par un interféromètre. Les séquences de pulses du laser et de la caméra sont contrôlées par le séquenceur.

### 2.2.3 Interféromètre de Mach-Zehnder

L'interféromètre de Mach-Zehnder est un interféromètre à division d'amplitude qui permet de sonder les propriétés de cohérence spatiale et temporelle de la source ainsi analysée [53]. Dans nos expériences, les photons qui sortent du piège transportent avec eux l'information sur la fonction d'onde du gaz d'excitons, dont la phase. Ainsi, en analysant les propriétés de cohérence de la photoluminescence on révèle les propriétés de cohérence des excitons. Comme seuls les excitons brillants se désexcitent radiativement, nous n'analysons directement que la partie brillante des excitons piégés. Si le gaz d'excitons est dans l'état condensé, une population macroscopique d'excitons occupe les états noirs et une fraction des excitons brillants est couplée de façon cohérente avec le condensat noir, menant ainsi à la formation d'un condensat gris. Une autre partie des excitons brillants constitue un gaz thermique sans cohérence macroscopique. Par conséquent, avec les mesures interférométriques, nous cherchons à extraire les propriétés de cohérence quantique des seuls excitons brillants condensés.

Quantitativement, l'interférométrie donne accès la fonction de corrélation au 1<sup>er</sup> ordre  $g^{(1)}$  qui, de façon générale, s'écrit [54] :

$$g^{(1)}(\mathbf{r}, \delta\mathbf{r}, t, \delta t) = \frac{\langle \psi_0^*(\mathbf{r}, t) \psi_0(\mathbf{r} + \delta\mathbf{r}, t + \delta t) \rangle_t}{\sqrt{\langle |\psi_0(\mathbf{r}, t)|^2 \rangle_t \langle |\psi_0(\mathbf{r} + \delta\mathbf{r}, t + \delta t)|^2 \rangle_t}} \quad (2.1)$$

où  $\psi_0$  est le champ de photoluminescence, correspondant à la fonction d'onde des excitons brillants, et  $\langle \cdot \rangle_t$  désigne une moyenne statistique dans le temps.

La fonction de corrélation d'ordre 1 quantifie les corrélations qui existent entre deux points différents de la source (cohérence spatiale) ou entre deux instants différents en un même point de la source (cohérence temporelle). Expérimentalement, on détermine  $g^{(1)}$  en mesurant le contraste des franges d'interférences en sortie de l'interféromètre.

La Figure 2.6 décrit le montage de l'interféromètre de Mach-Zehnder [55] où la photoluminescence est divisée entre les deux bras de l'interféromètre. Une figure de franges d'interférences rectilignes horizontales est imposée en inclinant un miroir du bras fixe d'un angle  $\alpha$  par rapport à la verticale. La période des franges, notée  $i$ , est choisie en adaptant  $\alpha$  :  $i = \frac{\lambda}{2 \sin \alpha}$ ,  $\lambda$  étant la longueur d'onde d'émission des excitons brillants. Typiquement,  $\alpha \sim 25^\circ$  donc l'interfrange vaut  $i \sim 1 \mu\text{m}$ .

La cohérence temporelle est étudiée en superposant en sortie de l'interféromètre les deux images, mais en retardant temporellement une image par rapport à une autre. Ce retard temporel est introduit en translatant de  $\delta L$  le chariot sur lequel se trouve deux miroirs du bras mobile. Le retard temporel vaut alors  $\delta t = 2\delta L/c$ .

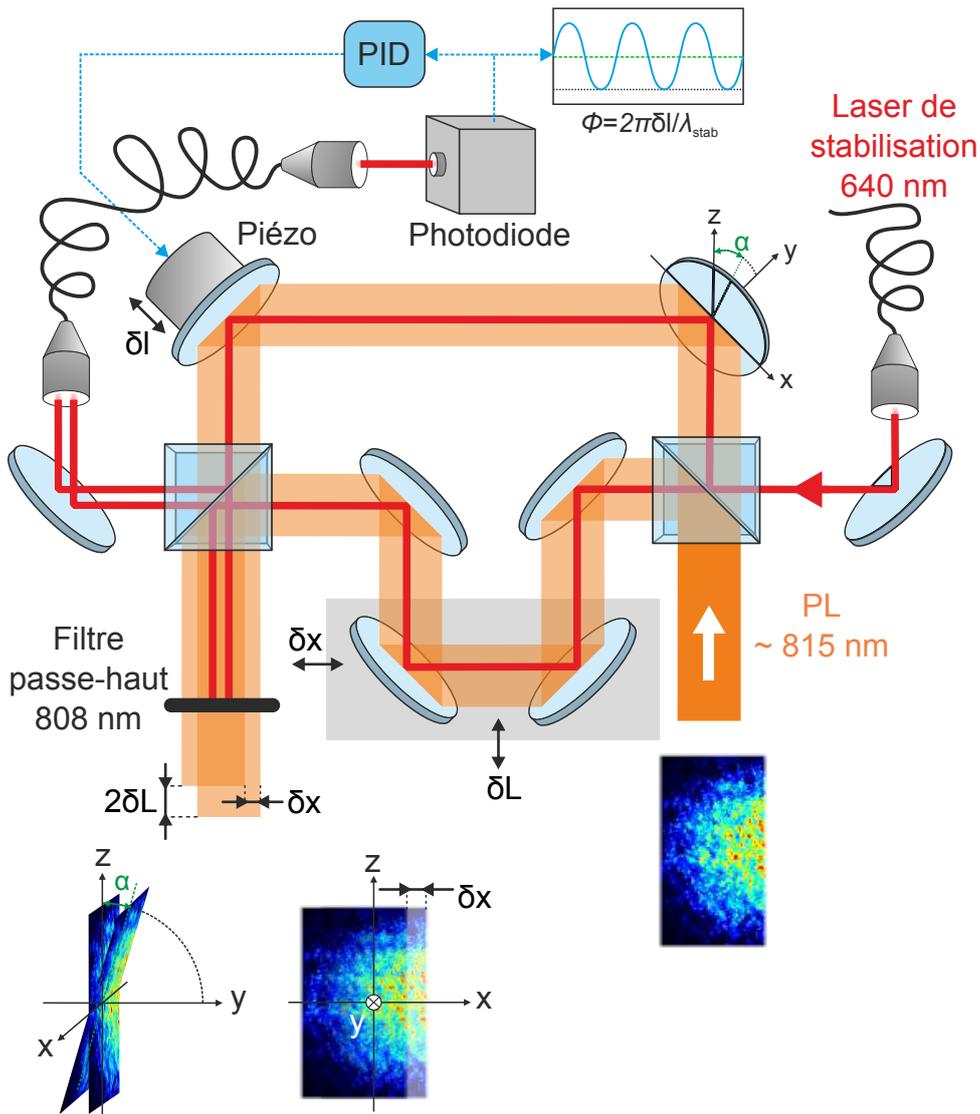


FIGURE 2.6 – Interféromètre de Mach-Zehnder dans une configuration générale. L'intensité de la photoluminescence est divisée entre les deux bras de l'interféromètre. On se place en configuration de coin d'air en inclinant un miroir du bras fixe d'un angle  $\alpha$  par rapport à l'axe  $z$ . A la sortie de l'interféromètre, les deux faisceaux peuvent être superposés avec un décalage latéral  $\delta x$  lorsqu'on souhaite sonder la cohérence spatiale de la source d'entrée. La différence de marche entre les deux bras peut être modifiée en tradant de  $\delta L$  les deux miroirs situés sur le chariot. On sonde alors la cohérence temporelle de la source d'entrée. Un laser de longueur d'onde  $\lambda_{\text{stab}} = 640$  nm verrouille la différence de marche de l'interféromètre à la valeur de consigne (ligne tiretée verte) grâce à une boucle de rétroaction proportionnelle-intégrale-dérivée qui contrôle la position  $\delta l$  du miroir fixé à un transducteur piézoélectrique.

La cohérence spatiale, quant à elle, est sondée en ayant une différence de marche nulle  $\delta L = 0$  et en superposant les deux images décalées latéralement d'une distance  $\delta x$ . On fait ainsi interférer deux points différents de l'image du gaz d'excitons piégés.

Finalement, l'intensité enregistrée en sortie de l'interféromètre, pendant un certain

temps d'acquisition, prend l'expression générale [53] :

$$I_{\text{out}} = \langle |\psi_0(\mathbf{r}, t) + \psi_0(\mathbf{r} + \delta\mathbf{r}, t + \delta t) e^{i(q_\alpha z + \varphi_t + \varphi)}|^2 \rangle_t \quad (2.2)$$

où  $q_\alpha = \frac{4\pi \sin \alpha}{\lambda}$  est la fréquence spatiale selon l'axe  $z$ ,  $\varphi_t = \frac{4\pi \delta L}{\lambda}$  est la phase introduite par le retard temporel entre les deux bras de l'interféromètre et  $\varphi$  est une phase aléatoire.

Connaissant l'intensité individuelle des deux bras  $I_1 = \langle |\psi_0(\mathbf{r}, t)|^2 \rangle_t$  et  $I_2 = \langle |\psi_0(\mathbf{r}, \delta x, t, \delta t)|^2 \rangle_t$ , on peut introduire l'intensité normalisée de la figure d'interférences  $I_{\text{int}} = \frac{I_{\text{out}} - I_1 - I_2}{2\sqrt{I_1 I_2}}$  qui s'exprime comme suit [56] :

$$I_{\text{int}} = |g^{(1)}(\mathbf{r}, \delta x, \delta t)| \cos(q_\alpha z + \varphi_t + \Phi_{\mathbf{r}, \delta x, \delta t} + \varphi) \quad (2.3)$$

où on a posé  $g^{(1)}(\mathbf{r}, \delta x, \delta t) = |g^{(1)}(\mathbf{r}, \delta x, \delta t)| e^{i\Phi_{\mathbf{r}, \delta x, \delta t}}$ .

Finalement, la norme de  $g^{(1)}$  se déduit du contraste des franges d'interférences obtenues en sortie de l'interféromètre et nous donne le degré de cohérence de la photoluminescence tandis que la position des franges peut théoriquement donner accès à  $\Phi_{\mathbf{r}, \delta x, \delta t}$ .

En résumé :

- pour évaluer la cohérence temporelle de la photoluminescence émise par le gaz d'excitons piégés, on mesure  $|g^{(1)}(\delta x = 0, \delta t)|$  : le décalage latéral est nul mais on varie le retard temporel entre les deux bras.
- pour mesurer la cohérence spatiale, on mesure  $|g^{(1)}(\delta x, \delta t = 0)|$  : aucun retard temporel mais un décalage latéral entre les deux images est introduit.

Signalons enfin que l'interféromètre est sujet à de nombreuses perturbations extérieures : vibrations, courants d'air, variations de température, etc. qui font fluctuer la différence de marche entre ses deux bras. Ces fluctuations sont prises en compte dans l'équation (2.3) avec la phase  $\varphi = 2\pi \delta l / \lambda$ . Afin de stabiliser l'appareil, un laser de longueur d'onde  $\lambda_{\text{stab}} = 640$  nm est envoyé dans les deux bras de l'interféromètre, puis passe par une fibre monomode et est envoyé dans une photodiode (voir Fig. 2.6). La variation de la différence de marche fait osciller le signal d'interférence entre une valeur nulle et une valeur maximale, la source laser étant cohérente spatialement et temporellement. Une boucle proportionnelle-intégrale-dérivée (PID) reçoit ce signal en entrée et le compare à une valeur de consigne (ligne tiretée verte). Le régulateur contrôle la position d'un miroir de l'interféromètre grâce à un transducteur piézoélectrique sur lequel il est fixé. La différence de marche est ainsi constamment ajustée pour conserver la même valeur de tension enregistrée par la photodiode de sorte que la figure d'interférences est activement stabilisée. La différence de marche ne fluctue plus que de 20 nm ( $\lambda_{\text{stab}}/30$ ).

## 2.3 Paramètres expérimentaux

Les mesures spectroscopiques nécessitent d'avoir un rapport signal-sur-bruit d'au moins 10. Contrairement au régime d'excitation continue avec lequel la fenêtre d'acquisition peut

être dix fois plus longue, la photoluminescence récoltée en régime pulsé est au contraire très faible. Nous pouvons jouer sur différents paramètres expérimentaux afin d'obtenir des spectres et des images avec un signal suffisamment élevé pour être analysés :

- le taux de répétition de la séquence ;
- la puissance d'excitation  $P_{\text{ex}}$  ;
- le temps de pose ou d'acquisition de la caméra ;
- l'accumulation d'images ;
- les valeurs des tensions de grille  $V_c$  et  $V_g$ .

De plus, il faut chercher à obtenir un régime de travail dans lequel la densité reste autour de  $n_x \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  de sorte que le gaz est dilué ( $na_0^2 < 0.3$  [17]). Les raies d'émission doivent être élargies de manière homogène et les plus étroites possible, c'est-à-dire en dessous de 1 meV de largeur à mi-hauteur. Enfin, le photo-courant traversant l'hétérostructure doit être minimal car les interactions entre excitons et charges provoquent un élargissement des raies et leur dissymétrie [57].

Le taux de répétition de la séquence présentée dans la Figure 2.4 est de 1.5 MHz. On illumine alors le piège pendant 100 ns et on analyse la dynamique du gaz d'excitons au cours des 500 ns qui suivent. Le temps de vie optique des excitons étant de l'ordre de 70 ns, au-delà du délai  $\tau \approx 300$  ns, le gaz est très dilué et il n'y a pratiquement plus de blueshift dû aux interactions entre excitons. L'énergie des excitons restants est réduite alors à celle du fond du piège électrostatique.

Les valeurs des tensions de grille sont déterminantes dans l'établissement d'un régime de raies étroites élargies de façon homogène. La Figure 2.7 montre des spectres résolus spatialement le long du diamètre du piège avec le réseau à 1800 traits/mm. Deux configurations sont présentées : la configuration d'un piège profond ( $V_c = -4.8$  V,  $V_g = -3.5$  V), comme celle utilisée dans la Figure 2.2 [14], et la configuration d'un piège élevé ( $V_c = -3.18$  V,  $V_g = -4.0$  V). Dans ce dernier cas, l'anneau isolant qui sépare les deux électrodes crée une rectification et un saut de potentiel d'au moins 5 meV de sorte que les excitons restent confinés au centre du piège. Les valeurs du courant dans chacune des électrodes sont données dans le Tableau 2.1.

### Élargissement spectral

Lorsqu'on prend successivement plusieurs spectres dans les mêmes conditions expérimentales, l'énergie et la largeur à mi-hauteur des spectres de photoluminescence fluctuent, (voir Tab. 2.1). Pour le piège profond, les raies ont une largeur en moyenne supérieure à 1 meV, avec un écart-type de 0.16 meV tandis que la largeur spectrale est en moyenne inférieure à 1 meV en piège élevé.

Deux types d'élargissement peuvent affecter les spectres de photoluminescence. Tout d'abord, la qualité de l'hétérostructure joue un rôle prépondérant dans l'élargissement inhomogène : rugosité des interfaces, irrégularités dans la largeur des puits et fluctuations de composition en aluminium des barrières de AlGaAs, provoquent une dispersion de la

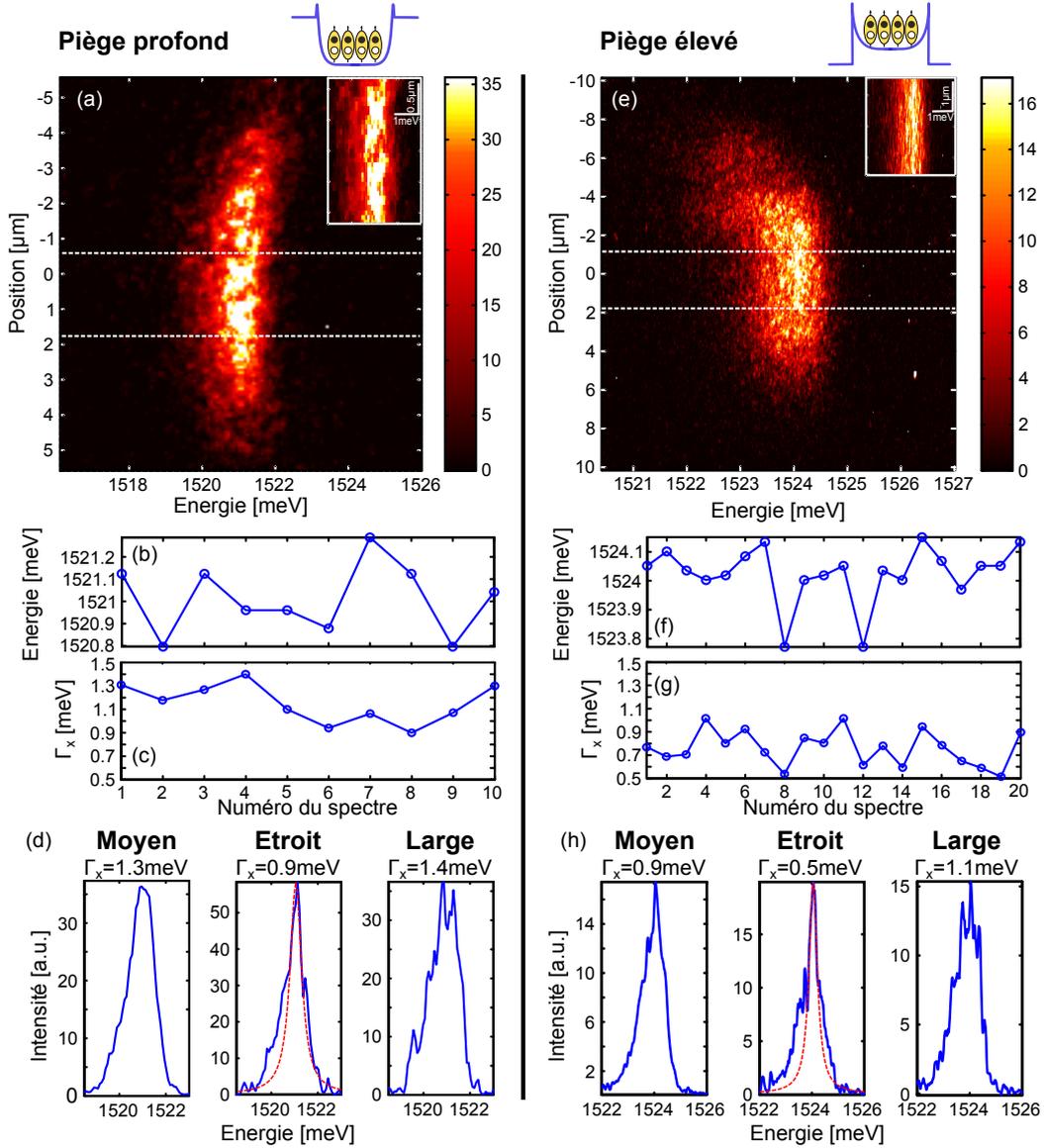


FIGURE 2.7 – (a-d) Spectres résolus spatialement dans un piège électrostatique profond ( $V_c = -4.8$  V,  $V_g = -3.5$  V), pris avec un temps d'exposition de 60 s et une puissance d'excitation  $P_{\text{ex}} = 1 \mu\text{W}$ . (d) On obtient successivement des profils de spectres larges et étroits dont la partie centrale peut être ajustée par une lorentzienne de largeur à mi-hauteur  $\Gamma_x = 0.6$  meV. L'accumulation des spectres donne une moyenne large. (e-h) Spectres résolus spatialement dans un piège élevé ( $V_c = -3.18$  V,  $V_g = -4.0$  V), pris avec un temps d'acquisition de 45 s et une puissance d'excitation  $P_{\text{ex}} = 1.5 \mu\text{W}$ . La diffusion spectrale (f) et la fluctuation de la largeur spectrale (g) sont réduites. Certains spectres sont particulièrement étroits, comme en (h) (pour l'ajustement lorentzien :  $\Gamma_x = 0.38$  meV). Les mesures ont été prises avec le réseau à 1800 traits/mm et à  $T_b = 330$  mK.

valeur de l'énergie d'émission et le spectre est alors élargi de façon inhomogène, avec un profil gaussien. Ici, nous mesurons de temps en temps des spectres qui ne sont pas élargis

de façon inhomogène et le contrôle du processus de croissance de l'échantillon est tel qu'on peut considérer que ces défauts ne sont pas à l'origine de l'élargissement spectral. Notons toutefois que si les défauts de la structure sont plus petits que le rayon de Bohr des excitons ( $a_0 \approx 20$  nm), alors ceux-ci induisent un élargissement homogène. Mais ce sont surtout les collisions entre excitons, entre excitons et charges libres qui provoquent l'élargissement homogène et le profil lorentzien des spectres en dessous de 1 kelvin [58, 59]. L'élargissement homogène représente donc une mesure des interactions entre les excitons et leur environnement.

| Piège            | profond            | élevé              |
|------------------|--------------------|--------------------|
| $V_c$ (V)        | -4.80              | -3.18              |
| $V_g$ (V)        | -3.50              | -4.00              |
| $I_c$ (nA)       | 0.2                | -0.02              |
| $I_g$ (nA)       | -0.04              | -0.17              |
| $E_x$ (meV)      | $1521.00 \pm 0.15$ | $1524.02 \pm 0.10$ |
| $\Gamma_x$ (meV) | $1.16 \pm 0.16$    | $0.76 \pm 0.15$    |

TABLEAU 2.1 – Valeurs des courants dans l'électrode centrale ( $I_c$ ) et de garde ( $I_g$ ), de l'énergie ( $E_x$ ), de la largeur à mi-hauteur ( $\Gamma_x$ ) des spectres de photoluminescence selon qu'on se place en piège profond ou élevé.

Dans nos expériences, les fluctuations du profil spectral proviennent de la diffusion spectrale introduite par les fluctuations de la profondeur du piège électrostatique et de la fluctuation de densité des charges excédentaires présentes dans le double puits quantique. Ces fluctuations induisent des variations de charges libres dans le double puits quantique ainsi qu'au niveau des hétérojonctions. Les électrons libres sont piégés dans un piège profond tandis que les trous restent confinés au sein d'un piège élevé [60]. Nous pouvons noter que la configuration en piège élevé tend à minimiser le courant traversant l'électrode centrale, ce qui réduit la possibilité d'interactions entre les charges libres et les excitons. Ainsi, d'une séquence à une autre, l'environnement électrostatique peut varier et l'énergie d'interaction entre le dipôle électrique des excitons indirects et le champ électrique écranté fluctue au cours du temps. Or, un spectre étant typiquement obtenu après un temps d'acquisition de 60 secondes à un taux de répétition de 1.5 MHz, la superposition de plusieurs dizaines de millions de spectres individuels conduit à l'élargissement inhomogène du spectre résultant. Certains spectres sont peu affectés par la diffusion spectrale : ils présentent un pic central fin, ajustable par une fonction lorentzienne, et un piédestal plus large. Ils sont obtenus lorsque le système se trouve dans des conditions de stabilité électrostatiques optimales. D'autres spectres, en revanche, présentent un élargissement inhomogène (voir Fig. 2.7). Enfin, la moyenne prise en accumulant une dizaine de spectres pris à la suite conduit inévitablement à un spectre large  $\Gamma_x \gtrsim 1$  meV.

Il convient d'insister sur l'importance cruciale que les raies soient élargies de façon homogène pour exploiter le contenu physique de cette largeur spectrale : elle rend compte des interactions entre particules et du temps de cohérence du champ d'émission des excitons brillants. A l'inverse, l'analyse d'une transition de phase dans un régime d'élargissement inhomogène rend toute conclusion hautement discutable.

## Énergie et intensité de la photoluminescence

Finalement, on observe un gaz d'excitons indirects élargi de façon homogène mais la façon dont nous prenons les mesures conduit à un élargissement inhomogène, causé par les fluctuations du confinement électrostatique. De plus, l'énergie de la photoluminescence, qui permet de remonter à la densité d'excitons, nous donne une estimation de la densité d'excitons avec une précision limitée par l'amplitude des fluctuations du potentiel électrostatique, de l'ordre de  $500 \mu\text{eV}$ , correspondant à une précision de  $5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$  pour la mesure de la densité. Notons que la valeur de  $500 \mu\text{eV}$  pour les fluctuations de l'énergie est cohérente avec [61] qui affirme que si l'amplitude du désordre est inférieure à  $800 \mu\text{eV}$ , alors le nuage excitonique se contracte quand la température baisse, effet que nous avons bien observé (voir 1.2.3).

Toutefois, un éventuel élargissement inhomogène ne nous empêche pas d'étudier l'intensité intégrée  $I_X$ , c'est-à-dire le nombre d'excitons brillants (voir 1.2.3). La Figure 2.8 montre que lors de l'acquisition de plusieurs spectres successifs, l'intensité intégrée ne varie que de  $\sim 2\%$  autour de sa valeur moyenne, que ce soit dans le cas d'un piège profond ou d'un piège élevé.

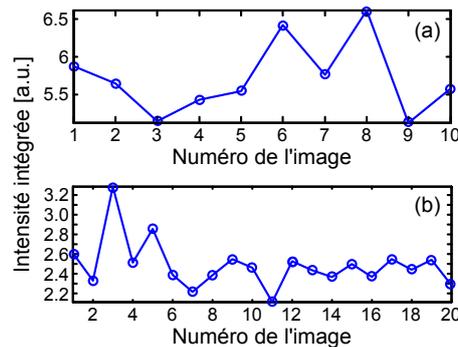


FIGURE 2.8 – Intensité intégrée mesurée dans les mêmes conditions que celles de la Figure 2.7, pour un piège profond (a) et élevé (b). L'écart-type est de 2.1% pour (a) et 2.6% pour (b).

Nous remarquons que l'intensité est plus faible en piège élevé qu'en piège profond (voir Fig. 2.7 et 2.8), ce qui oblige à augmenter le temps d'acquisition dans le cas d'un piège élevé et aggrave l'impact des fluctuations électrostatiques sur l'élargissement des raies. Nous devons donc trouver un compromis entre piège profond et piège élevé.

## 2.4 Régime de mesures

### 2.4.1 Paramètres électriques

La configuration en piège profond a été utilisée dans les résultats présentés dans [14] et dans la thèse de M. Beian [13]. Ici, nous avons choisi un piège plat où  $V_c = V_g \approx -4.7 \text{ V}$ . Empiriquement, nous avons remarqué que le piège plat minimise le champ électrostatique dans le plan, qui ionise les excitons. Le courant est inférieur à  $0.1 \text{ nA}$  et l'intensité des spectres de photoluminescence est suffisamment élevée pour réduire le temps d'acquisition

(entre 15 et 30 s) et donc l'impact des fluctuations sur l'élargissement inhomogène des raies. Nous n'accumulons pas les spectres pris à la suite, dans le même but de réduire la largeur des spectres.

La puissance d'excitation choisie varie entre 0.5 et 1  $\mu\text{W}$ . Elle permet d'obtenir une densité suffisante d'excitons dans le piège et de limiter l'apport de charges dans l'hétérostructure. En effet, la photo-injection des excitons dans l'hétérostructure présente un inconvénient notable : le pulse laser introduit dans le double puits quantique une certaine densité de charges libres qui ne participent pas à la formation d'excitons. Ces charges sont visibles dans la mesure du photo-courant  $I_c = 0.1 \text{ nA}$ , effectuée par l'appareil Keithley qui fait aussi office de source de tension. Comme la fluctuation de la densité de charges est responsable en partie de la largeur des spectres de photoluminescence, il est essentiel d'évaluer leur densité.

Le photo-courant évolue au cours d'une séquence de durée  $1/f = 667 \text{ ns}$ , suivant que le laser est allumé ou non. En première approximation, nous pouvons considérer que l'échantillon et l'ampèremètre répondent à l'excitation laser par une fonction de transfert du premier ordre. Ainsi, quand le laser frappe le piège dipolaire à partir de  $\tau = -100 \text{ ns}$ , le photo-courant augmente jusqu'à tendre asymptotiquement vers une valeur maximale  $I_m$ , de façon exponentielle. Quand le laser s'éteint après  $T_p = 100 \text{ ns}$ , en  $\tau = 0$ , les charges sont évacuées et le photo-courant s'annule progressivement, avec une décroissance exponentielle. Le temps caractéristique de réponse à l'impulsion laser, et donc des régimes transitoires, vaut  $\tau_I \approx 50 \text{ ns}$  [14].

Comme l'ampèremètre possède un temps d'intégration beaucoup plus grand que la période d'une séquence, il se comporte comme un filtre passe-bas et la valeur du courant lue sur l'appareil est issue d'une moyenne.

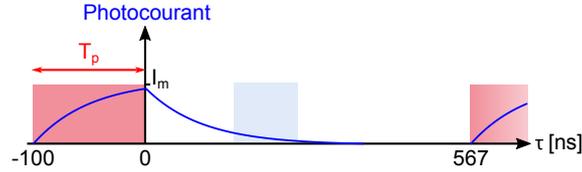


FIGURE 2.9 – Variation du courant lors d'une séquence de 667 ns. Le pulse d'excitation dure  $T_p = 100 \text{ ns}$  tandis que le temps de réponse du photo-courant est estimé à 50 ns. La séquence est répétée à une fréquence  $f = 1.5 \text{ MHz}$ . La région bleutée signale la gamme de délais où les analyses sont faites (voir Fig. 2.12).

Ainsi, le courant  $I_c$  mesuré par l'ampèremètre est égal à  $I_m$  pondéré par la proportion de temps au cours duquel le laser est allumé. On a donc  $I_m = I_c/fT_p$ . A la sortie du pulse laser, en  $\tau = 0$ , l'intensité du photo-courant vaut  $I_0 \approx 0.6 \text{ nA}$ . Le nombre de charges injectées optiquement qui traversent l'hétérostructure par unité de surface a donc l'expression suivante pour  $\tau > 0$  :

$$n_{\text{inj}} = n_{\text{inj}}^0 \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_I}\right) \quad (2.4)$$

avec  $n_{\text{inj}}^0 = \frac{I_0}{q_e f \pi r^2}$  la charge injectée en  $\tau = 0$  dans le piège de rayon  $r = 5 \mu\text{m}$ . L'application numérique donne alors  $n_{\text{inj}}^0 = 3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ . 150 ns après la fin du pulse laser, la densité

de charges injectées ne vaut plus que 5% de la densité initiale, soit  $1 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ . On peut d'ores et déjà remarquer que la densité de charges libres est 10 fois plus faible que la densité d'excitons juste après le pulse laser. Nous reviendrons sur l'effet des charges libres optiquement injectées sur la largeur des spectres dans le Chapitre 3.

### 2.4.2 Régime spectral

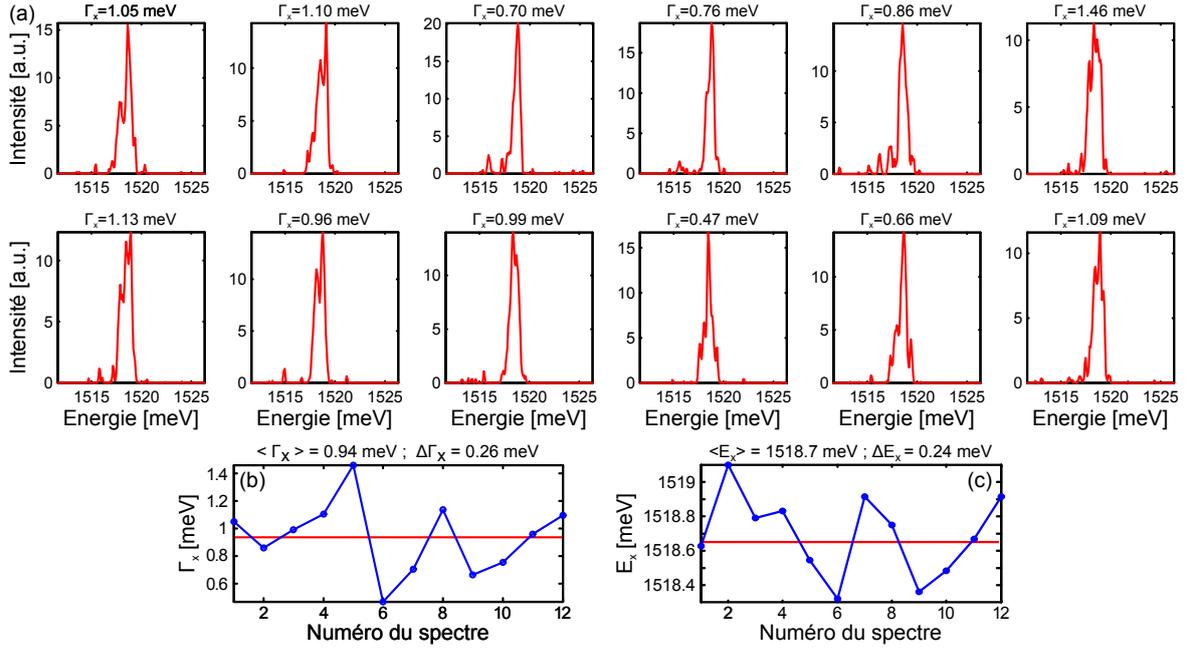


FIGURE 2.10 – (a) Spectres de photoluminescence pris successivement dans un régime de piège plat ( $V_c = V_g = -4.7 \text{ V}$ ), à  $T_b = 330 \text{ mK}$ , 220 ns après la fin du laser d'excitation ( $P_{\text{ex}} = 0.7 \mu\text{W}$ ), avec une fenêtre d'acquisition de 5 ns, 20 s de temps d'exposition et sans accumulation. (b-c) Valeurs des largeurs à mi-hauteur et de l'énergie au pic des spectres affichés en (a).

La Figure 2.10 montre différents spectres obtenus avec un piège plat. Nous conservons une certaine dispersion dans la valeur des largeurs spectrales même si certains spectres sont particulièrement fins et atteignent la limite de résolution du réseau à 600 traits/mm (voir Fig. 2.11). L'utilisation du réseau à 1800 traits/mm nécessite de tripler le temps d'acquisition, rendant les prises de mesures longues et trop sujettes aux fluctuations électrostatiques. La spectroscopie par transformée de Fourier devient indispensable pour aller en dessous de cette résolution spectrale : aucun filtrage n'est effectué et l'intensité lumineuse est beaucoup plus élevée pour un temps d'acquisition de seulement quelques secondes.

### 2.4.3 Dynamique de la photoluminescence

Quelle que soit la température du système, la Figure 2.12 indique que l'énergie de la photoluminescence suit la même dynamique : le nombre total d'excitons injectés par le

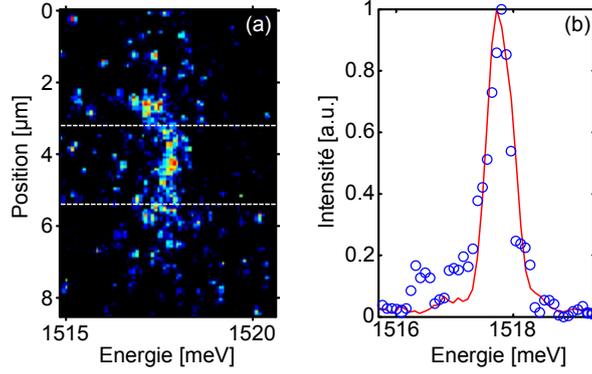


FIGURE 2.11 – (a) Spectre résolu spatialement dans le cas d’un piège plat ( $V_c = V_g = -4.7$  V), à  $T_b = 330$  mK. Les lignes tiretées blanches montrent la coupe utilisée pour la Figure (b). Les ronds bleus marquent le spectre de la photoluminescence des excitons. Le spectre rouge correspond à une raie du mercure prise comme référence de la résolution spectrale du spectromètre ( $\sim 400 \mu\text{eV}$ ).

laser de pompe ne varie sensiblement pas avec la température et la densité, pour un délai fixé, est identique à toutes les températures, toutes choses égales par ailleurs.

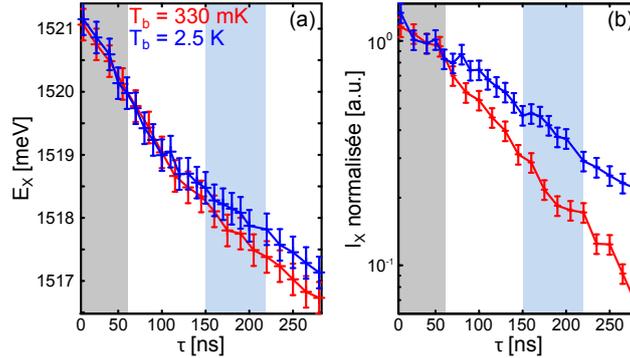


FIGURE 2.12 – (a-b) Evolution de l’énergie  $E_x$  et de l’intensité intégrée  $I_x$  de la photoluminescence au centre du piège, après l’extinction du laser de pompe, à  $T_b = 330$  mK (rouge) et à 2.5 K (bleue). La région grisée correspond à un régime initial qui fait suite au pulse laser dans lequel on soupçonne la présence d’un photo-courant transitoire et où le gaz excitonique n’est sans doute pas totalement thermalisé. La région bleutée signale la gamme de délais choisie pour nos analyses.

De plus, le piège plat permet toujours de mettre en évidence le noircissement anormal de la photoluminescence quand la température descend sous  $T_c \approx 1$  K. La Figure 2.12 montre que l’intensité intégrée décroît 50% plus vite à 330 mK qu’à 2.5 K :  $I_x$  a un temps caractéristique de déclin respectivement de  $\sim 100$  et 160 ns à 330 mK et 2.5 K. Par conséquent, 200 ns après l’extinction du laser de pompe, l’intensité intégrée à 330 mK est deux fois plus faible qu’à 2.5 K, soulignant la forte baisse du nombre d’excitons brillants à froid, comme montré dans la thèse de M. Beian [13].

Nous choisissons de nous concentrer sur l’analyse de la photoluminescence émise par les excitons brillants entre 150 et 220 ns après la fin du pulse laser (zone bleutée de

la Figure 2.12). Le blueshift, défini ici comme  $\Delta E_x = E_x(\tau) - E_x(\tau = 300 \text{ ns})$ , est inférieur à 2 meV de sorte qu'on travaille avec une densité  $n_x \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  et le caractère de boson composite de l'exciton reste valable dans la mesure où l'énergie d'interaction reste inférieure à l'énergie d'ionisation de l'exciton. Cela nous permet aussi d'écranter le désordre électrostatique. La Figure 2.13 schématise le potentiel aléatoire au fond du piège électrostatique qui présente des fluctuations de potentiel. Quand la densité est trop faible, les excitons sont localisés dans des minima locaux du potentiel de piégeage. Pour une densité supérieure, les interactions répulsives entre excitons créent un potentiel effectif qui écrante le désordre : on parle de délocalisation du gaz d'excitons [61, 62].

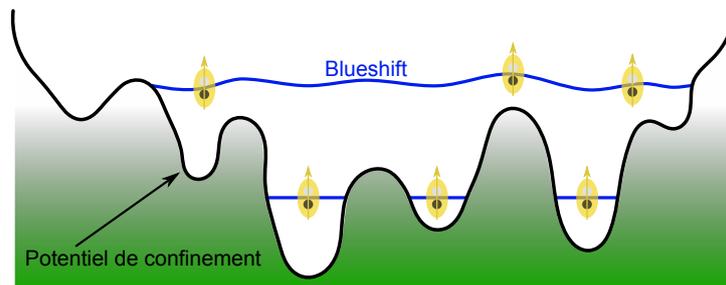


FIGURE 2.13 – Illustration de l'effet de la répulsion dipolaire entre excitons sur l'écrantage du désordre électrostatique.



# Chapitre 3

## Cohérence temporelle d'un gaz d'excitons piégés

Dans ce chapitre, nous analysons la cohérence temporelle de la photoluminescence d'un gaz d'excitons indirects piégés. Nous procédons à une analyse rigoureuse des données afin de nous affranchir des fluctuations du potentiel qui élargissent de façon inhomogène les spectres de photoluminescence et brouillent les figures d'interférences. En « post-sélectionnant » les figures les plus contrastées, nous montrons que la photoluminescence présente un élargissement homogène dans un intervalle restreint de densité où nous mettons en évidence la présence d'un seuil en température de la cohérence temporelle au sein du gaz d'excitons. En dessous d'une température critique de 1 kelvin, le temps de cohérence des excitons brillants augmente brutalement, atteignant 4 ps à 330 mK, soit une largeur spectrale particulièrement étroite :  $\Gamma_x = 300 \mu\text{eV}$ . Nous attribuons cette limite à la densité de charges intrinsèques présentes dans le double puits quantique, ces dernières résultant du niveau de dopage résiduel lors de la croissance de l'hétérostructure.

### 3.1 État de l'art

La forme des spectres de photoluminescence est un critère déterminant pour caractériser un condensat de Bose-Einstein d'excitons. L'élargissement des raies doit nous permettre d'étudier et de quantifier les interactions entre excitons, lorsqu'on traverse le seuil de température et le régime de densité critiques pour la condensation. En général, un élargissement homogène avec un profil spectral lorentzien est attendu pour les spectres de photoluminescence. Théoriquement, Zimmermann a prédit que les largeurs de raies à 5 K et avec une densité de  $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  doit être de  $\Gamma_x \sim 200 \mu\text{eV}$  (voir Fig. 3.1) [52]. La largeur de la raie étant donnée principalement par les processus de diffusion entre excitons, on s'attend à un rétrécissement de la raie lorsqu'on traverse le seuil de condensation.

Toutefois, les nombreux travaux traitant de la condensation d'excitons affichent quasi systématiquement des raies asymétriques dont les largeurs sont un ordre de grandeur plus larges qu'attendu [51, 63, 64]. Nous attribuons ce désaccord entre la théorie et l'expérience à la présence de charges dans les puits quantiques, même si aucun consensus n'a été établi à ce jour. Par exemple, Stern *et al.* [57] observent des raies grossièrement gaussiennes avec

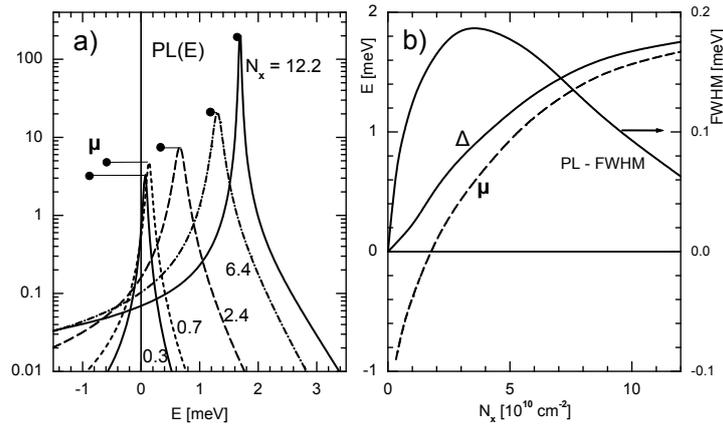


FIGURE 3.1 – (a) Profils spectraux de l'émission des excitons indirects pour différentes puissances d'excitation, d'après les calculs de Zimmermann (échelle logarithmique). Les lignes tiretées représentent le potentiel chimique  $\mu$ . La température est fixée à 5 K et la densité d'excitons  $N_x$  est donnée en  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . (b) La largeur de raie (échelle de droite) suit une variation non-monotone avec la densité.  $\Delta$  est le blueshift. Images extraites de [52].

une traîne vers les basses énergies (voir Fig. 3.2). L'élargissement inhomogène de la raie est vu comme l'effet des fortes corrélations entre excitons qui conduisent à la formation d'une phase liquide d'excitons, tandis que l'auteur interprète la traîne vers les basses énergies comme l'effet des interactions entre un plasma d'électrons-trous et les excitons indirects. La présence de charges libres est aussi signalée par une raie de trions à 1522 meV, c'est-à-dire une paire liée exciton-charge libre.

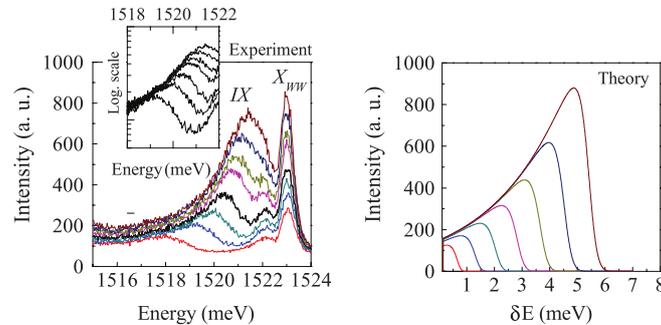


FIGURE 3.2 – Spectres de photoluminescence d'excitons indirects dans une hétérostructure composée de deux puits quantiques couplés asymétriques. La puissance d'excitation varie de 3 à  $10 \mu\text{W}$ . On observe une raie d'excitons directs dans le puits large  $X_{WW}$ , une faible raie de trions à 1522 meV et une raie d'excitons indirects (IX), large avec une traîne vers les basses énergies, signe de la présence de charges libres dans les puits. En insert se trouvent les spectres en échelle logarithmique. Le modèle théorique des spectres est affiché à droite. Images extraites de [57].

Rapaport *et al.* affirment avoir formé un liquide d'excitons noirs en étudiant des spectres de largeurs minimales de 3 meV pour des blueshifts de plus de 5 meV [51]. Leurs expériences sont effectuées dans des conditions éloignées du régime de densité et d'élargissement spectral dans lequel on a un gaz d'excitons faiblement corrélé, qui est le

régime approprié pour la formation d'un condensat d'excitons. De plus, avec de telles largeurs spectrales, il devient difficile de tester la véracité de leurs conclusions.

Enfin, Gorbunov et Timofeev ont récemment observé des spectres à deux composantes : une composante dominante, gaussienne et large, due au fond lumineux issu des états localisés, et une composante plus faible, lorentzienne et étroite, attribuée à un condensat d'excitons dipolaires [65]. Comme le montre la Figure 3.3, les mesures ont été prises par transformée de Fourier à l'aide d'un interféromètre de Michelson ; le contraste des franges décroît en fonction de la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre. Les longueurs de cohérence de chacune des composantes relevées par les auteurs permettent de remonter à la largeur spectrale de la composante gaussienne : 1.6 meV et de la composante lorentzienne : 0.3 meV.

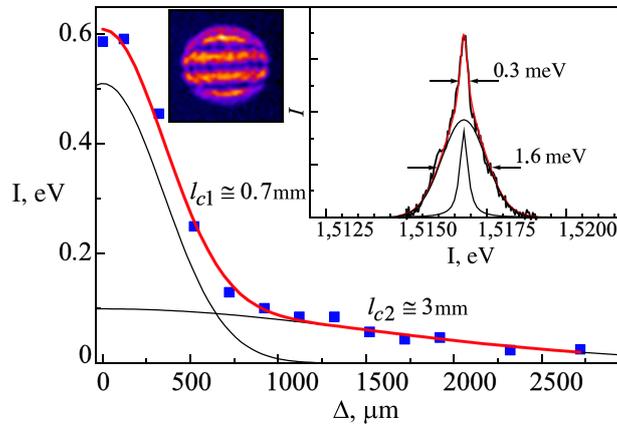


FIGURE 3.3 – Contraste des franges en fonction de la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre. Deux profils pour le contraste et pour le spectre sont mesurés : une gaussienne large et une lorentzienne étroite. Image extraite de [65].

Dans ce chapitre, nous montrons que la photoluminescence émise par les excitons piégés est élargie de façon homogène et présente une largeur spectrale particulièrement faible à  $T_b = 330$  mK. Dans ce régime, nous pouvons comparer les résultats expérimentaux aux résultats théoriques des interactions entre excitons. De façon générale, ce résultat constitue une avancée majeure par rapport à l'état de l'art tel qu'il vient d'être exposé ci-dessus.

## 3.2 Mesures

Nos expériences reposent sur l'utilisation d'un interféromètre de Mach-Zehnder avec lequel nous sondons la cohérence temporelle du gaz d'excitons, par spectroscopie par transformée de Fourier (voir Chapitre 2). Le retard temporel  $\delta t$  n'excède pas quelques picosecondes et aucun décalage latéral n'est introduit entre les deux images superposées en sortie ( $\delta x = 0$ ). Les excitons sont optiquement injectés, la puissance moyenne d'excitation étant de  $P_{exc} = 700$  nW, et on étudie la photoluminescence émise après l'extinction du laser.

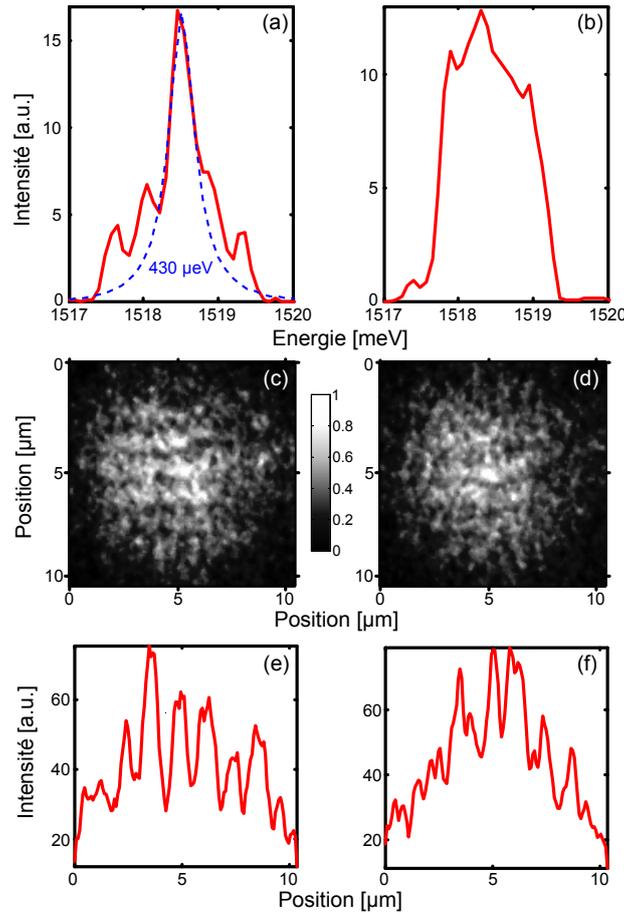


FIGURE 3.4 – Illustration de l’effet des fluctuations du potentiel et de la densité de charges excédentaires à  $T_b = 330$  mK. La densité d’excitons est ici  $n_x \sim 2.5 \cdot 10^{10}$   $\text{cm}^{-2}$ , soit  $N \sim 10^4$  excitons. (a-b) Spectres de la photoluminescence pris successivement avec 20 secondes de temps d’acquisition. Le spectre fin en (a) est ajusté en son centre par une fonction lorentzienne de largeur à mi-hauteur  $\Gamma_x = 430$   $\mu\text{eV}$ . Ici, on atteint la limite de résolution du réseau à 600 traits/mm. (c-d) Figures d’interférences prises dans les mêmes conditions que pour (a-b), avec un temps d’acquisition de 8 secondes, le retard temporel étant fixé à  $\delta t = 1.8$  ps. (e-f) Coupes des figures (c-d) prises au centre du piège.

Comme l’a montré M. Beian dans sa thèse de doctorat [13], le désordre électrostatique au sein du piège est de l’ordre de 500  $\mu\text{eV}$ . Il limite la qualité des spectres mesurés (voir Chapitre 2). La Figure 3.4 montre deux spectres successifs pris avec un temps d’acquisition de 20 secondes. Ces spectres étant le résultat d’une accumulation de plusieurs dizaines de millions de réalisations, la stabilité électrostatique du piège conduit à des spectres tantôt larges ( $\Gamma_x \gtrsim 1$  meV dans la Fig. 3.4b), tantôt composés d’une base large et d’un pic central qu’on peut ajuster par une lorentzienne ( $\Gamma_x = 430$  meV dans la Fig. 3.4a). Les mêmes fluctuations se retrouvent sur les figures d’interférences de la photoluminescence. Très souvent, on mesure des images avec des franges brouillées et peu exploitables, comme dans la Figure 3.4d. Plus rarement, lorsque le désordre électrostatique est minimal, on observe des figures dans lesquelles au moins trois franges sont clairement résolues (voir

Fig. 3.4c). Ainsi, nous devons analyser chaque interférogramme manuellement afin de ne sélectionner que ceux où les fluctuations du potentiel ou de la densité de charges ont été minimales. Pour chaque température et chaque retard temporel, nous calculons le contraste en utilisant la formule :

$$\mathcal{V} = |g^{(1)}| = \frac{\bar{I}_{\max} - \bar{I}_{\min}}{\bar{I}_{\max} + \bar{I}_{\min} - 2I_{\text{bg}}} \quad (3.1)$$

où  $\bar{I}$  représente la moyenne des maxima ou minima des franges centrales et  $I_{\text{bg}}$  est l'intensité du fond lumineux.

Même si le temps d'acquisition peut être réduit à 8 secondes tout en conservant un rapport signal-sur-bruit de 10, il faut procéder à une sélection a posteriori sur une centaine de figures d'interférences enregistrées pour chaque retard après l'impulsion laser. La Figure 3.5 représente la distribution du contraste mesuré sur près de 90 figures d'interférences prises à 330 mK et à un retard temporel fixé à  $\delta t = 1.47$  ps, en effectuant une coupe verticale de largeur  $1 \mu\text{m}$  sur chacune des images. Les contrastes se distribuent de façon asymétrique autour d'une valeur maximale de  $\sim 24\%$ . Un contraste inférieur à  $15\%$  ne peut être clairement distingué des fluctuations d'intensité et il devient difficile d'extraire une valeur de contraste. Le contraste minimum mesurable est défini par le rapport signal-sur-bruit ; comme le signal enregistré a une intensité maximale de  $\sim 90$  coups, nous posons  $\mathcal{V}_{\min} \sim 12\%$ . Les valeurs maximales, quant à elles, sont mesurées lorsque les conditions expérimentales restent relativement stables durant la durée de la mesure et que le potentiel électrostatique est faiblement perturbé. Dans les analyses ultérieures, nous choisissons de ne conserver que les 10% meilleures figures où les franges apparaissent clairement et qui conduisent à un contraste élevé. Nous moyennons alors leurs contrastes pour aboutir aux valeurs indiquées dans la suite de ce chapitre.

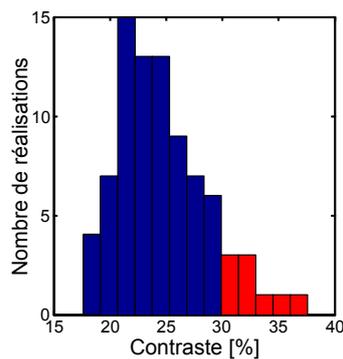


FIGURE 3.5 – Distribution des contrastes mesurés sur  $\sim 90$  interférogrammes enregistrés à  $T_b = 330$  mK, pour un retard temporel  $\delta t = 1.47$  ps, entre 150 et 190 ns après l'extinction du laser, soit des densités voisines de  $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Les barres rouges correspondent aux interférogrammes sélectionnés pour définir le contraste dans nos analyses. Les mesures du contraste, limitées par le rapport signal-sur-bruit, possèdent une borne inférieure  $\mathcal{V}_{\min} \sim 12\%$ .

### 3.3 Spectroscopie par transformée de Fourier

La spectroscopie par transformée de Fourier permet d'accéder aux mêmes informations que la spectroscopie avec un réseau. Ici, nous cherchons à savoir si la photoluminescence émise par les excitons est élargie de façon homogène et quelle est la valeur de la largeur spectrale ou, ce qui est équivalent, du temps de cohérence de la photoluminescence. Les mesures interférométriques nous permettent d'avoir une meilleure résolution spectrale qu'avec le réseau à 600 traits/mm. Le temps d'acquisition est aussi plus faible, ce qui réduit l'impact des fluctuations de charge et de potentiel sur la qualité des mesures. Celles-ci sont prises dans un intervalle de temps compris entre 180 et 210 ns après la fin du pulse laser, ce qui correspond à une densité  $n_x \sim 3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ .

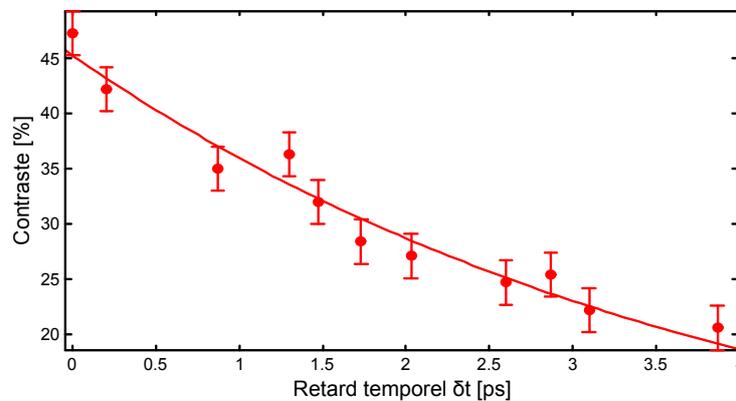


FIGURE 3.6 – Contraste des franges d'interférences, au centre du piège, à  $T_b = 330 \text{ mK}$ , en fonction du retard temporel introduit entre les deux bras de l'interféromètre. La décroissance suit une courbe mono-exponentielle, révélant le profil spectral lorentzien et donc l'élargissement homogène de la photoluminescence. Le temps de cohérence déduit  $\tau_c = 4 \text{ ps}$  équivaut à une largeur spectrale  $\Gamma_x = 300 \text{ } \mu\text{eV}$ .

Lorsque la différence de marche de l'interféromètre est nulle, c'est-à-dire que le retard temporel entre les deux bras de l'interféromètre vaut  $\delta t = 2\delta L/c = 0$ , le contraste des franges au centre du piège atteint une valeur maximale  $\mathcal{V}_{\text{max}} \approx 48\%$ . Cette valeur est limitée par la qualité de nos fronts d'onde due à l'angle  $\alpha \sim 25^\circ$  introduit entre les deux bras de l'interféromètre qui impose un motif de franges rectilignes horizontales. Si on augmente  $\delta t$ , on constate que le contraste diminue de façon régulière.

La Figure 3.6 montre la variation du contraste au centre du piège à  $T_b = 330 \text{ mK}$ . La diminution du contraste avec le retard temporel  $\delta t$  suit une décroissance mono-exponentielle de la forme  $\exp(-|\delta t|/\tau_c)$  où  $\tau_c$  est le temps de cohérence de la photoluminescence. Or, le théorème de Wiener-Kintchine [55] relie la densité spectrale de puissance à la fonction d'auto-corrélation d'ordre 1 de la source via une simple transformée de Fourier. Par conséquent, si  $|g^{(1)}(\delta t)|$  varie de façon mono-exponentielle, alors le spectre présente un profil lorentzien. Ainsi, le spectre de la photoluminescence à 330 mK est composé d'une unique lorentzienne et le gaz étudié est bien élargi de façon homogène, ce qui contraste avec l'intégralité des travaux effectués jusqu'à ce jour [57, 65].

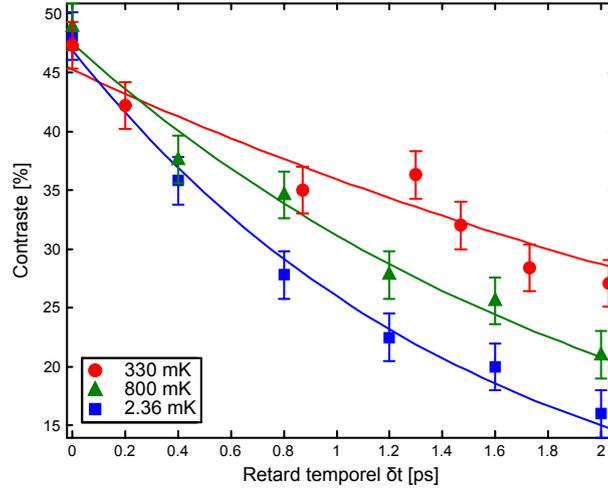


FIGURE 3.7 – Contraste des franges d’interférences en fonction du retard temporel introduit entre les deux bras de l’interféromètre. La décroissance de type mono-exponentiel est d’autant plus rapide que la température est élevée.

Dans le cas d’un profil spectral lorentzien, la relation  $\frac{\Gamma_x}{2}\tau_c = \hbar$  relie simplement la largeur spectrale au temps de cohérence. Ici,  $\tau_c = 4$  ps donc la largeur à mi-hauteur est égale à  $\Gamma_x = 300 \mu\text{eV}$ , ce qui est proche de la valeur calculée théoriquement par Zimmermann [52].

La même démarche est employée à différentes températures. Nous remarquons que le contraste décroît exponentiellement pour toutes les températures  $T_b = 0.33, 0.50, 0.80, 1.1, 1.75$  et  $2.36$  K. La Figure 3.7 montre le résultat de la spectroscopie par transformée de Fourier pour trois températures :  $0.33, 0.80$  et  $2.36$  kelvins. La photoluminescence apparaît élargie de façon homogène quelle que soit la température, lorsque la densité d’excitons dans le piège avoisine  $n_x \sim 3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . En outre, la décroissance du contraste avec  $\delta t$  est d’autant plus rapide que la température est élevée. Pour chaque température, l’ajustement mono-exponentiel des points expérimentaux permet d’extraire le temps de cohérence  $\tau_c$  (voir Fig. 3.11c). On observe alors que le temps de cohérence double entre  $330 \text{ mK}$  ( $\tau_c = 4$  ps) et  $T_b \gtrsim 1 \text{ K}$  ( $\tau_c \approx 2$  ps).

Rappelons que c’est grâce à la procédure de post-sélection des interférogrammes que nous parvenons à faire émerger le profil lorentzien des spectres de photoluminescence. L’élargissement homogène n’est vrai que pour 10% des mesures pour lesquelles le contraste est le plus élevé, pour chaque retard temporel, ce qui correspond aux mesures les moins influencées par les fluctuations électrostatiques et des charges libres dans le piège. Si nous avions pris la moyenne de tous les contrastes à chaque retard temporel, l’élargissement aurait été inhomogène car les fluctuations auraient largement imposé un profil gaussien aux spectres de photoluminescence.

Nous reviendrons sur la variation de la cohérence temporelle avec la température dans la section 3.5. Auparavant, il convient de préciser que le choix de la densité, pour laquelle nous avons effectué la spectroscopie par transformée de Fourier, provient d’une analyse précise de l’effet de la densité sur le temps de cohérence de la photoluminescence.

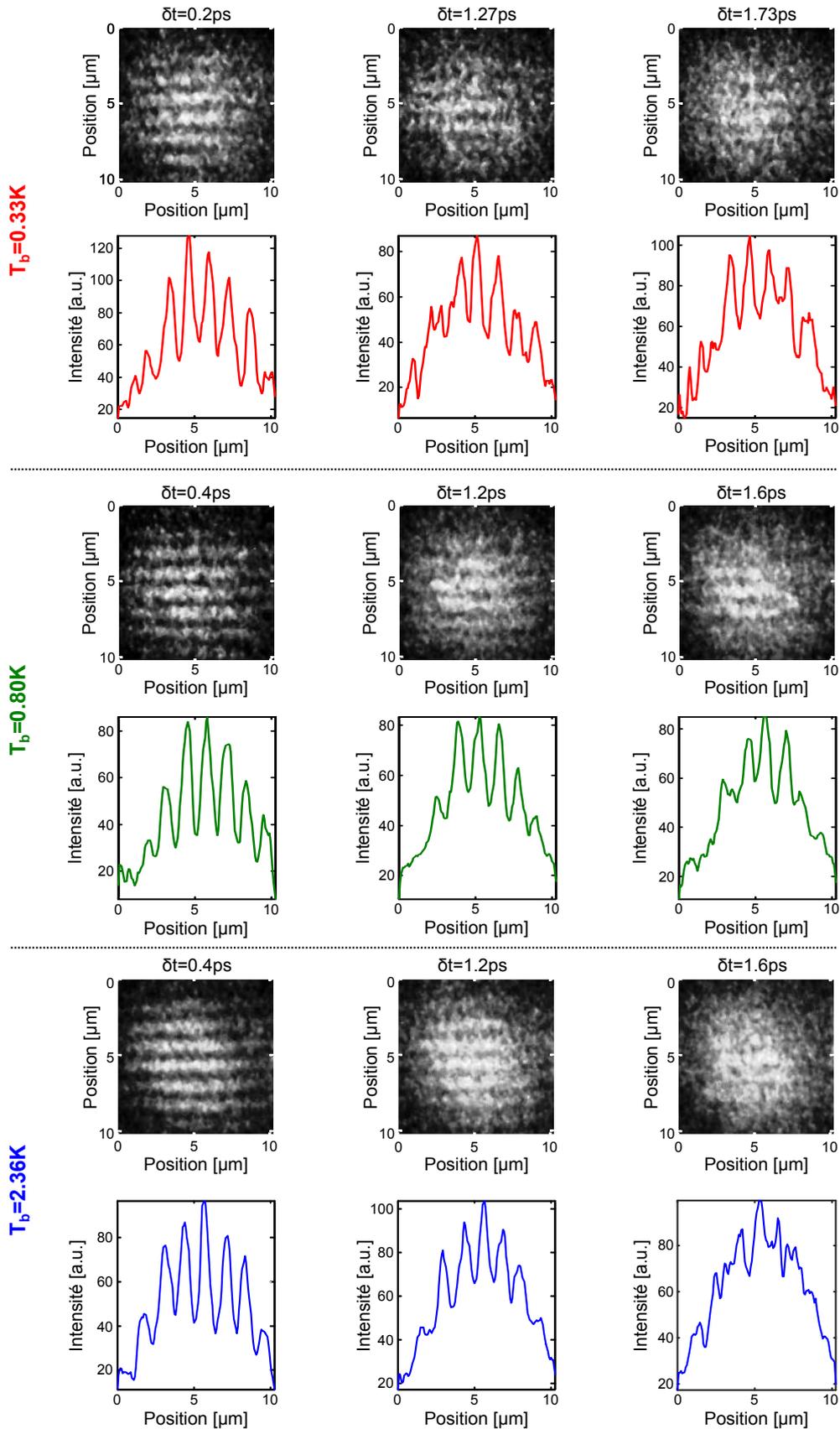


FIGURE 3.8 – Exemples de figures d’interférences enregistrées à  $T_b = 0.33, 0.8$  et  $2.36$  K pour différents retards temporels  $\delta t$ . Ici,  $n_x \sim 3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Les coupes verticales, prises au centre du piège, montrent le brouillage progressif des franges quand  $\delta t$  ou  $T_b$  augmentent.

### 3.4 Évolution de la cohérence temporelle avec la densité

La Figure 3.9 représente la variation du contraste  $|g^{(1)}|$  des franges d'interférences en fonction du blueshift  $\Delta E_x$  des excitons, pour trois températures : 0.33, 1.2 et 2.5 K. Comme la densité  $n_x$  peut s'exprimer en fonction du blueshift (voir Fig. 1.4), de même que le contraste peut être associé au temps de cohérence de la photoluminescence  $\tau_c$  dans l'hypothèse d'un élargissement homogène [55], on peut convertir l'étude du contraste en fonction du blueshift par l'analyse de l'évolution du temps de cohérence avec la densité, comme illustrée dans la Figure 3.9.

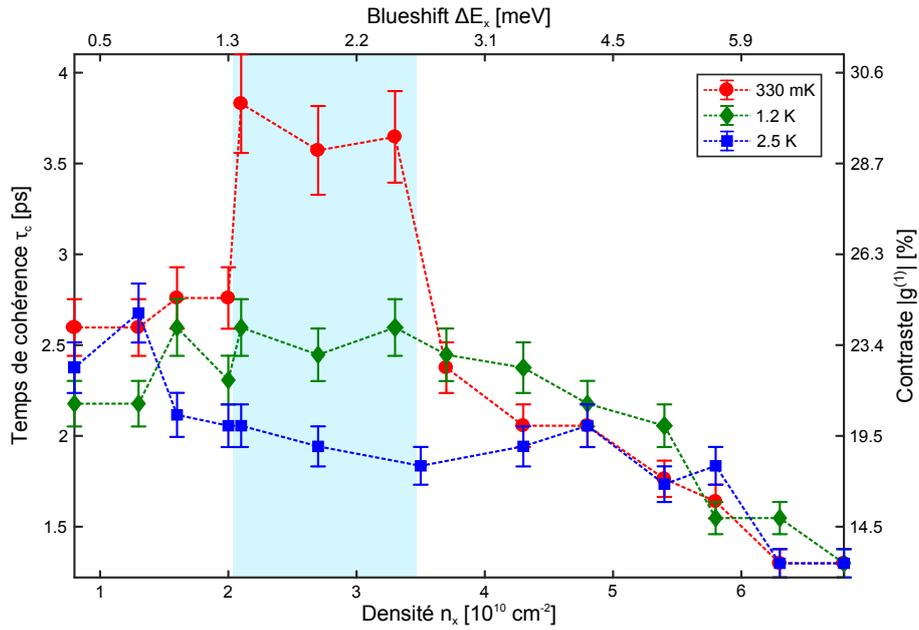


FIGURE 3.9 – Evolution du contraste avec le blueshift, à  $T_b = 330$  mK (ronds rouges), 1.2 K (losanges verts) et 2.5 K (carrés bleus). Le retard temporel introduit dans l'interféromètre est de  $\delta t = 1.8$  ps. La zone bleutée correspond à la gamme de densité pour laquelle une condensation de Bose-Einstein des excitons est attendue.

**Régime ultra dilué  $\Delta E_x \sim 0.5$  meV** Pour des densités  $n_x \lesssim 1.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , le temps de cohérence est constant ( $\tau_c \approx 2.5$  ps) et identique pour toutes les températures. Le gaz est si dilué qu'il se localise partiellement dans les minima du potentiel électrostatique fluctuant. La portée des interactions entre excitons est alors ramenée à la taille des puits de potentiel où se localisent les excitons, composant un gaz spatialement fragmenté. La température n'a pas d'effet notable sur ce régime ultra dilué puisque l'énergie thermique à  $T_b = 2.5$  K reste inférieure à l'amplitude des fluctuations de potentiel :  $k_B T_b \approx 215 \mu\text{eV} < 500 \mu\text{eV}$  : les excitons ne peuvent pas s'affranchir de ces barrières de potentiel par simple activation thermique. De plus, les interactions exciton-exciton et exciton-charge, a priori responsables de l'élargissement homogène de la photoluminescence, sont réduites dans le régime ultra dilué d'où le fait que le temps de cohérence est supérieur à celui mesuré à plus forte densité.

**Régime dilué  $\Delta E_x \sim 1.5 \text{ meV}$**  Dans la région bleutée de la Figure 3.9, pour une gamme restreinte de densité  $2 \cdot 10^{10} \lesssim n_x \lesssim 3.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , l'énergie de champ moyen est supérieure au désordre électrostatique de sorte que le gaz est désormais délocalisé dans tout le piège. Ensuite, la cohérence temporelle varie brutalement avec la température. Alors que  $\tau_c$  ne varie sensiblement pas pour les températures 1.2 et 2.5 K, à 330 mK, par contre, il augmente de près de 40% autour de  $n_x \approx 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  pour retomber d'autant quand  $n_x \approx 3.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Le temps de cohérence  $\tau_c \approx 3.8 \text{ ps}$  correspond alors, dans le cadre d'un élargissement homogène, à une largeur de raie  $\Gamma_x = 2\hbar/\tau_c \approx 300 \text{ } \mu\text{eV}$ .

A 1.2 K, la largeur  $\Gamma_x \approx 500 \text{ } \mu\text{eV}$  est légèrement plus faible que celle à 2.5 K :  $\Gamma_x \approx 600 \text{ } \mu\text{eV}$ ; cette différence peut être attribuée à l'interaction entre les excitons et les phonons acoustiques longitudinaux qui sont plus efficacement émis dès lors que  $T_b \gtrsim 400 \text{ mK}$  (voir Fig. 1.6). Zimmermann a calculé que du fait des interactions dipolaires entre excitons, on s'attend à ce que la largeur de raie augmente avec la densité, de l'ordre de 100  $\mu\text{eV}$  dans l'intervalle de densité étudié ici. Nous n'observons pas cette variation, minime, parce que nos mesures sont ici limitées par la résolution instrumentale.

De plus, les largeurs spectrales mesurées sont systématiquement plus grandes que les largeurs attendues, si on se réfère aux travaux de Zimmermann qui a calculé une largeur de  $\sim 200 \text{ } \mu\text{eV}$  [52]. A 2.5 K,  $\Gamma_x \sim 600 \text{ } \mu\text{eV}$ , à 1.2 K, les spectres font  $\sim 500 \text{ } \mu\text{eV}$  de large et à 330 mK, nous mesurons un élargissement de  $\sim 300 \text{ } \mu\text{eV}$ . Le calcul de Zimmermann prenant en compte les interactions dipolaires entre les excitons, on peut en déduire que les interactions entre excitons ne sont pas la cause principale de l'élargissement des spectres de photoluminescence. Les excitons sont extrêmement sensibles à leur environnement, ce sont les impuretés et porteurs de charge présents dans l'hétérostructure qui pourraient expliquer cet élargissement étonnamment élevé.

Pour justifier cette idée, nous pouvons nous référer à une publication de Honold *et al.* qui, en 1986, ont étudié expérimentalement la variation de la largeur des spectres d'émission d'excitons directs dans un puits quantique de GaAs [58]. L'élargissement, causé par les interactions entre excitons ou entre excitons et charges libres, est linéaire avec la densité des particules diffusantes, comme nous pouvons le voir dans la Figure 3.10. Cependant, cet effet est  $\sim 8$  fois plus fort entre des excitons et des charges libres qu'entre des excitons. L'élargissement anormal mesuré dans nos expériences, de l'ordre de 300  $\mu\text{eV}$  à 1.2 et 2.5 K, peut alors être directement dû aux charges libres qui provoquent une baisse de la cohérence temporelle de la photoluminescence. Dans l'intervalle de densité  $2 \cdot 10^{10} \lesssim n_x \lesssim 3.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , nous nous situons plus de 200 ns après l'extinction du laser d'excitation. La densité de charges photo-injectées est alors extrêmement faible :  $n_{\text{inj}} \approx 6 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$  (voir 2.4.1). En fait, ce sont les porteurs de charges libres présents dans l'hétérostructure qui provoquent l'élargissement spectral mesuré. A l'aide des travaux de Honold *et al.* et de la Figure 3.10, on estime leur densité à  $n_{eh} \sim 3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ , ce qui est au moins 10 fois plus faible que la densité d'excitons piégés. Ainsi, pour  $T_b \geq 1.2 \text{ K}$ , l'effet sur l'élargissement spectral des interactions entre excitons est du même ordre de grandeur que l'effet de l'interaction exciton-charge libre. En convertissant la densité des charges libres en une densité volumique, on obtient  $n_{eh}^{3D} \sim 10^{14}\text{-}10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Cette valeur, très faible, correspond à la limite technologique du niveau de dopage résiduel introduit dans le bâti d'épitaxie lors de la croissance de l'hétérostructure effectuée au LPN. Par conséquent,

au-dessus de 1 K, le temps de cohérence, et donc la largeur spectrale, sont directement contrôlés par deux types d'interactions qui contribuent équitablement à l'élargissement spectral : les interactions entre les excitons et les charges libres intrinsèques présents dans l'hétérostructure, et les interactions entre les excitons. Cette densité étant constante, quelle que soit la densité d'excitons et la température, le temps de cohérence ne varie sensiblement pas en fonction de  $n_x$  à 1.2 et 2.5 K.

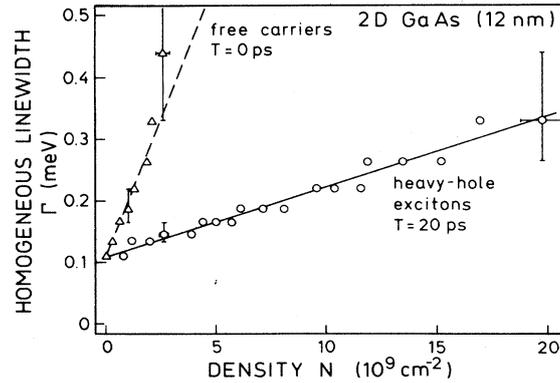


FIGURE 3.10 – Largeurs de raie homogènes en fonction de la densité de particules ajoutées : excitons (cercles) ou charges libres (triangles). La température de travail est de 2 K. Image extraite de [58].

Cette thèse démontrant que le gaz d'excitons est condensé dans le régime dilué, avec 85% des excitons condensés, la soudaine augmentation de la cohérence temporelle à 330 mK s'accorde avec l'hypothèse de la formation d'un condensat qui conserve sa cohérence temporelle sur une plus grande durée. Cette assertion est confortée par le noircissement anormal et l'occupation macroscopique des états noirs qui ont été récemment démontrés dans les mêmes gammes de densité [13, 14] (voir Fig. 1.12 et 2.12). A 330 mK, le temps de cohérence de  $\approx 4 \text{ ps}$  correspond à une largeur de raie  $\Gamma_x \approx 300 \mu\text{eV}$ . Si on considère qu'il se forme un condensat, le temps de cohérence devrait coïncider avec le temps de vie des particules, soit  $\Gamma_x \sim 0.01 \mu\text{eV}$ . Les interactions entre particules condensées (dans le minimum de la bande  $\mathbf{k} \approx \mathbf{0}$ ) contrôlant la répartition des particules entre les états noirs et brillants, le processus de décohérence qui conduit au temps de cohérence mesuré peut venir de l'interaction entre les excitons condensés d'un côté et les excitons thermiques et les charges libres de l'autre côté. Tout d'abord, la fraction non condensée du gaz d'excitons représente une densité très faible  $5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$  donc d'après la Figure 3.10, l'élargissement induit par les collisions entre des excitons condensés et les excitons thermiques représente à peine  $50 \mu\text{eV}$ . Nous pouvons donc exclure cette explication pour justifier le temps de cohérence à 330 mK. En définitive, ce sont les collisions entre les excitons et les charges libres qui augmentent la largeur spectrale de  $\sim 300 \mu\text{eV}$  et imposent le temps de cohérence de la photoluminescence des excitons brillants dans le condensat.

**Régime plus dense  $\Delta E_x \gtrsim 3 \text{ meV}$**  Pour des densités plus élevées  $n_x \geq 4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , le gaz est toujours délocalisé mais le nombre de charges libres augmente. En effet, à plus forte densité, donc à des délais proches de la fin de l'excitation laser, la présence d'un

photo-courant transitoire qui suit le pulse laser, apporte des charges libres dans le piège (voir Fig. 2.12). Dans le Chapitre 2.4.1, nous avons estimé la densité de charges photo-injectées juste après la fin du pulse laser à  $n_{\text{inj}}^0 = 3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ , ce qui est du même ordre de grandeur que la densité de charges intrinsèques. On a donc deux fois plus de charges dans le double puits quantique en sortie du pulse laser. L'augmentation de cette densité de charges excédentaires est clairement signalée par la baisse du temps de cohérence lorsque  $n_x \gtrsim 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . D'après les Figures 3.1 [52] et 3.10 [58], on ne peut pas attribuer cet élargissement spectral aux interactions dipolaires entre les excitons dans cet intervalle de densité parce qu'il est borné à 100-200  $\mu\text{eV}$ . Ce sont les collisions entre les excitons et les charges libres qui provoquent l'élargissement des spectres jusqu'à  $\sim 1 \text{ meV}$ , juste à la fin du pulse laser.

On ne peut pas exclure non plus que les corrélations entre excitons peuvent conduire à ioniser ou au moins à partiellement altérer la nature composite des excitons. Alors, le système étudié ne correspond plus à un gaz de bosons modèle comparable à ceux observés avec les atomes froids où les interactions entre particules restent faibles et sont bien modélisées par un potentiel de contact.

Finalement, nous venons de montrer qu'il existe un intervalle de densité particulier  $2 \cdot 10^{10} \lesssim n_x \lesssim 3.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , où la présence de charges libres est principalement réduite aux seuls porteurs intrinsèques de l'hétérostructure, dans lequel le temps de cohérence subit des variations brutales en fonction de la température. Cette gamme de densité correspond à une population de l'ordre de  $10^4$  excitons dans le piège et à un blueshift de  $\sim 2 \text{ meV}$ , ce qui confirme une nouvelle fois que le blueshift ne doit pas excéder cette valeur si on veut espérer observer la formation d'un condensat d'excitons. En résumé, si  $T_b \geq 1 \text{ K}$ , la largeur spectrale est la conséquence de deux contributions : les interactions exciton-exciton et les interactions exciton-charge. Pour  $T_b < 1 \text{ K}$ , dans le régime condensé, l'élargissement est imposé par les collisions entre les excitons et les charges libres.

A présent, il convient d'étudier plus précisément le seuil de cohérence temporelle en fonction de la température en nous plaçant uniquement dans le régime dilué.

### 3.5 Évolution de la cohérence temporelle avec la température

Afin de relever précisément la présence d'un seuil en température pour la cohérence temporelle, nous avons mesuré le contraste des franges en fonction de la température, pour un retard temporel constant, fixé à  $\delta t = 1.8 \text{ ps}$ , en nous plaçant dans le régime dilué mis en évidence au paragraphe précédent. Les mesures ont été prises en une seule journée, afin d'éviter les biais expérimentaux dus à la dérive progressive du dispositif expérimental.

Les Figures 3.11 et 3.12 mettent une nouvelle fois en évidence un saut brutal du contraste autour d'une température critique  $T_c \approx 1 \text{ K}$  qui distingue alors deux domaines de température. Ce même effet de seuil s'observe lorsqu'on convertit la valeur du contraste en un temps de cohérence. Quand  $T_b < T_c$ , le contraste vaut jusqu'à  $\sim 32\%$  et le temps de cohérence monte alors à  $\tau_c = 4 \text{ ps}$ . Au-delà de  $T_c$ , le contraste reste constant :  $\mathcal{V} \sim 22\%$  et

le temps de cohérence est alors égal à  $\approx 2$  ps. La Figure 3.11c correspond aux valeurs des temps de cohérence extraits des mesures de spectroscopie par transformée de Fourier (voir 3.3). Elle montre là aussi une hausse rapide du temps de cohérence lorsque la température descend en-dessous de 1 K. Les valeurs de temps de cohérence sont identiques alors qu'elles sont extraites de différentes campagnes de mesure, ce qui montre la reproductibilité des mesures et la stabilité du dispositif expérimental durant une quinzaine de jours.

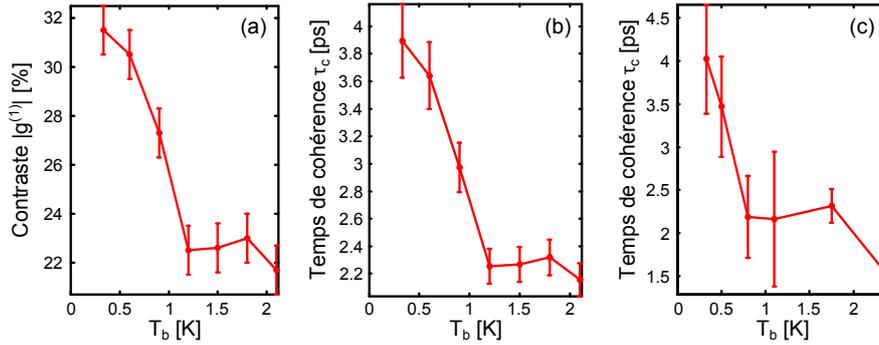


FIGURE 3.11 – (a) Contraste des franges d’interférences  $|g^{(1)}|$  mesuré au centre du piège en fonction de la température. Les mesures sont prises avec un retard temporel fixe  $\delta t = 1.8$  ps. (b) Temps de cohérence de la photoluminescence en fonction de la température. Les valeurs sont extraites de la courbe (a) sachant que  $|g^{(1)}| = V_{\max} \exp(-\delta t/\tau_c)$ . (c) Temps de cohérence extraits des ajustements mono-exponentiels des courbes de déclin du contraste en fonction du retard temporel pour les différentes températures (voir Fig. 3.7).

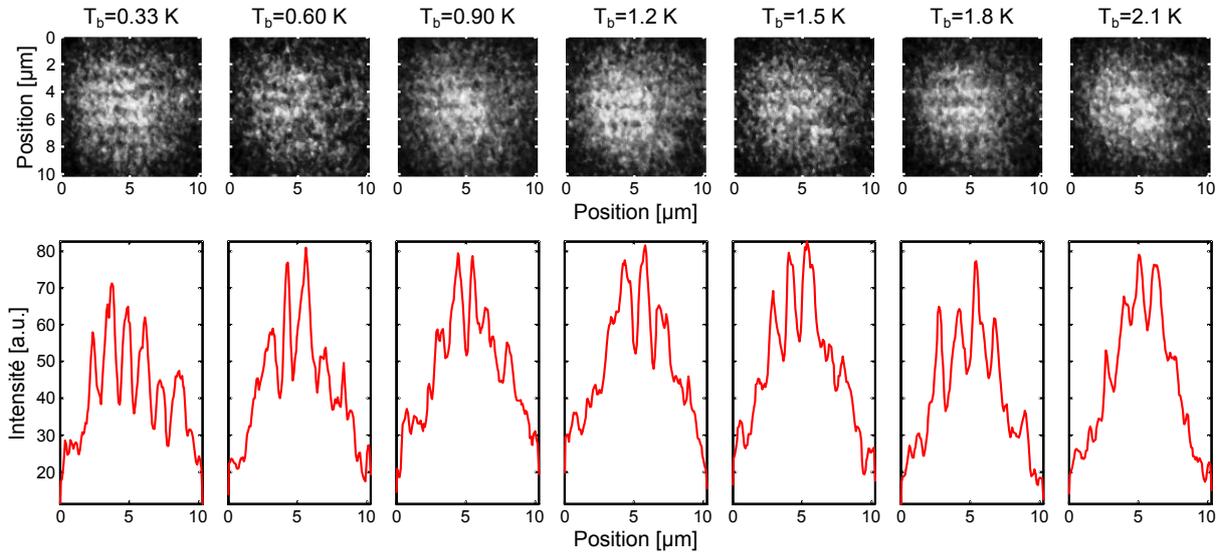


FIGURE 3.12 – Exemples de figures d’interférences enregistrées avec un retard temporel  $\delta t = 1.8$  ps, à différentes températures. Les coupes verticales sont prises au centre du piège et montrent l’affaiblissement du contraste quand la température est supérieure à 1 K.

### 3.6 Conclusion

Nos expériences ont montré que pour une densité  $n_x \sim 3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , lorsque la température est supérieure à une valeur critique  $T_b > T_c \approx 1 \text{ K}$ , le temps de cohérence  $\tau_c \approx 2 \text{ ps}$  rend compte de la force des interactions entre les excitons et les charges libres apportées par les porteurs intrinsèques déposés dans le double puits quantique lors de sa fabrication, mais aussi des interactions entre les excitons eux-mêmes, distribués thermiquement. En revanche, en dessous de  $T_c$ , une population macroscopique d'excitons ( $\sim 75\%$ ) occupe les états noirs, couplée à une fraction d'excitons dans les états brillants. Les interactions entre excitons condensés en  $\mathbf{k} \sim \mathbf{0}$  ne conduisent pas à un élargissement homogène des spectres ; ces interactions contrôlent la répartition des particules entre les états noirs et brillants. La contribution à l'élargissement par les collisions entre excitons condensés et excitons thermiques reste très marginale car la fraction thermique ne représente que  $\sim 15\%$  du nombre total d'excitons et que l'effet est 8 fois plus faible qu'avec des charges libres. Ce sont donc ces dernières qui expliquent le temps de cohérence de 4 ps mesuré à 330 mK.

Comme illustré dans la Figure 3.13, le condensat d'excitons, confiné dans le bas du piège électrostatique, subit les diffusions avec d'autres excitons non condensés et avec des charges libres. D'un côté, les interactions entre les excitons condensés et les charges libres principalement, dépeuplent le condensat en peuplant des états plus hauts en énergie ; ces processus provoquent un déphasage aléatoire de la fonction d'onde macroscopique du condensat. D'un autre côté, du fait de la stimulation bosonique, une fois atteint le régime statistiquement dégénéré, la probabilité qu'un exciton thermique rejoigne le condensat augmente proportionnellement avec la population d'excitons déjà condensés [66]. En effet, à 330 mK, le temps de cohérence signifie que la phase du condensat saute toutes les 4 ps et que la cohérence de phase ne peut s'établir que sur cette courte durée. Hypothétiquement, si tous les excitons du piège étaient condensés et si les charges intrinsèques n'existaient pas, le condensat ne subirait plus de processus de diffusion qui font perdre l'information sur la phase : le condensat serait « protégé » et le temps de cohérence serait égal au temps de vie des excitons. Ce régime semble néanmoins tout à fait irréalisable dans un milieu matériel massif comme le GaAs, où les défauts de structure, comme les porteurs de charges libres, sont inhérents à toute hétérostructure et sont source de décohérence et d'élargissement spectral. Mais au-delà de ces difficultés subsiste le problème de la condensation avec des particules à fort moment dipolaire : les interactions à longue portée sont fortes et causent la destruction de la cohérence du condensat. Par exemple, dans l'hélium 4 liquide, les interactions jouent un rôle beaucoup plus important que dans un gaz dilué, et on sait que la fraction d'atomes condensés ne dépasse pas 10% [67, 68, 69].

Dans ce chapitre, nous avons donc démontré expérimentalement la présence d'un seuil de cohérence temporelle dans un intervalle restreint de densité  $n_x \sim (2.7 \pm 0.8) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  et dans un régime où les spectres de photoluminescence sont élargis de façon homogène. Le temps de cohérence est multiplié par deux en dessous d'une température critique  $T_c \approx 1 \text{ K}$ , ce qui constitue une indication supplémentaire de la présence d'un condensat composé majoritairement d'excitons noirs couplés de façon cohérente à une fraction des excitons brillants. Le seuil de densité est également une signature de l'influence sur la condensation

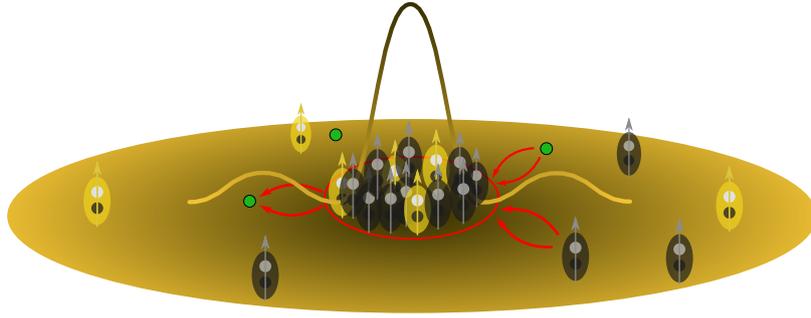


FIGURE 3.13 – Illustration de la perte de cohérence du condensat. Au fond du piège électrostatique, le condensat est composé de  $\sim 75\%$  d’excitons noirs tandis que tout autour se trouvent des excitons thermiques, noirs et brillants. L’interaction entre excitons condensés et excitons thermiques ou charges libres (ronds verts) provoquent la diffusion d’excitons condensés et la destruction de la cohérence de phase. Cette perte de cohérence de phase, qui conduit à la disparition du condensat, a lieu toutes les 4 ps à 330 mK.

des interactions et de la localisation des particules dans le potentiel désordonné du piège. Toutefois, pour démontrer sans ambiguïté la présence d’un condensat, il est nécessaire d’observer la signature d’une cohérence spatiale macroscopique quand  $T_b < T_c$ . Ceci est l’objet du chapitre suivant.



# Chapitre 4

## Cohérence spatiale d'un gaz d'excitons piégés

La démonstration expérimentale de la contribution des excitons brillants à la formation d'un condensat composé majoritairement d'excitons noirs repose sur la détection d'une cohérence spatiale macroscopique de la faible photoluminescence émise par les excitons piégés. Dans ce chapitre, nous exposons les résultats obtenus lors d'une expérience basée sur l'interférométrie spatiale de l'émission des excitons brillants. Nous mesurons un seuil de cohérence spatiale en fonction de la température, dans une gamme de densité limitée, mettant en évidence une température critique de  $\approx 1$  K en dessous de laquelle le gaz présente une cohérence spatiale macroscopique d'une portée dix fois plus grande que la longueur d'onde thermique des excitons. De façon remarquable, ces résultats concordent avec l'intervalle de densité, le seuil de cohérence et la température critique déjà relevés au Chapitre 3, dans le cas de la cohérence temporelle.

### 4.1 État de l'art

En 2012, High *et al.* ont publié des résultats expérimentaux interprétés comme la réalisation d'un condensat d'excitons indirects dans un double puits quantique et confinés par un piège électrostatique en forme de losange (voir Fig. 4.1) [9]. Cette forme particulière crée un profil parabolique et anisotrope du potentiel de piégeage (la fréquence selon  $x$  est plus élevée que selon  $y$ ). L'excitation laser, continue, frappe le bord du piège de sorte que les excitons diffusent jusqu'en son centre, là où le potentiel est minimal. La photoluminescence extraite du piège est alors divisée en deux faisceaux par un interféromètre de Mach-Zehnder puis ils sont superposés après avoir été décalés latéralement d'une longueur  $\delta x$ . Le contraste des franges d'interférences est ensuite mesuré en fonction de la température. Ils reportent l'émergence d'une cohérence spatiale en dessous d'une température critique de  $\sim 2$  K et un rétrécissement de la largeur du nuage excitonique.

Cependant, Semkat *et al.* ont relevé plusieurs points litigieux quant à la conclusion qu'ont donné High *et al.* de leurs mesures [70]. Ils expliquent que la théorie de l'interférométrie spatiale d'une source partiellement cohérente permet d'expliquer l'augmentation du contraste des franges lorsqu'on abaisse la température, sans faire appel à l'éventuelle

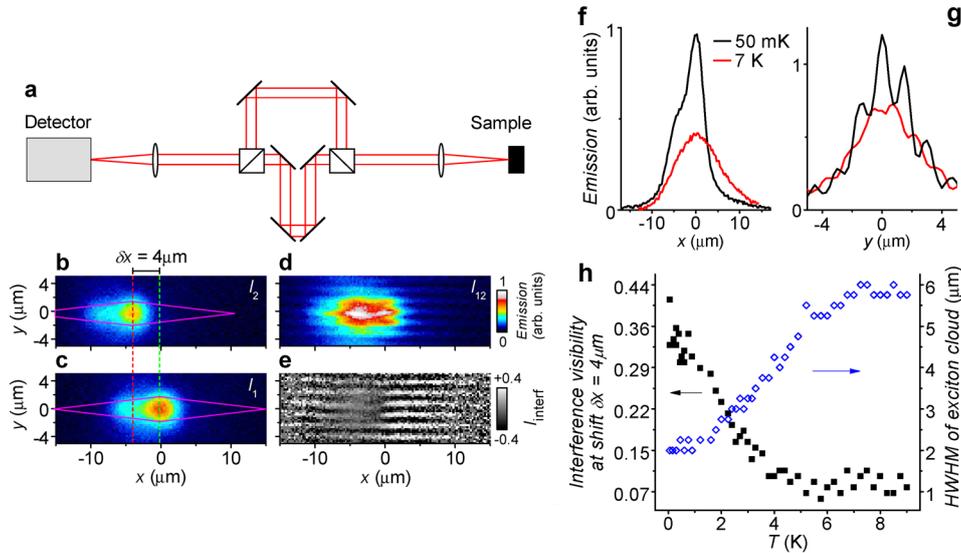


FIGURE 4.1 – (a) Schéma de l'intéféromètre. (b-d) Image réelle de l'émission des excitons indirects quand le bras 1 (b) ou le bras 2 (c) ou les deux bras (d) sont ouverts. (e) Interférogramme issu de (d).  $T_b = 0.1$  K et  $P_{exc} = 1.9 \mu\text{W}$ . (f-g) Profils spatiaux et interférentiels ( $\delta x = 4 \mu\text{m}$ ) à 0.05 et 7 K. (h) Evolution du contraste et de la demi-largeur à mi-hauteur avec la température. Images extraites de [9].

présence d'un condensat. Seule la réduction de la taille du nuage excitonique peut suffire à reproduire les variations observées. De plus, l'estimation du nombre d'excitons dans le piège faite par les auteurs est remise en question. En prenant en compte les interactions entre excitons, Semkat *et al.* affirment que le piège ne peut contenir qu'un nombre limité d'excitons, toujours sous-critique, excepté autour de 50 mK. Enfin, nous notons dans les résultats de High *et al.* la présence de franges en dehors du piège, où il n'y a a priori aucun exciton (voir Fig. 4.1). Cette observation pose de sérieuses questions quant aux conclusions tirées par les auteurs et renforce les critiques faites par Semkat *et al.* concernant le rôle de la résolution optique.

Récemment, Gorbunov et Timofeev ont aussi rapporté des mesures de cohérence spatiale d'excitons dipolaires localisés dans un piège en anneau de  $5 \mu\text{m}$  de diamètre et de largeur inférieure à  $1.5 \mu\text{m}$  [65]. Cette configuration complexe rend difficile la mesure de la fonction  $g^{(1)}$  et induit des effets de diffraction qui masquent les aspects essentiels de la cohérence spatiale. De plus, aucune courbe montrant un seuil de la cohérence spatiale avec la température n'est fournie, si bien qu'on ne peut essentiellement tirer aucune conclusion de ces mesures.

## 4.2 Mesures

Pour mesurer la fonction de corrélation d'ordre 1 dans le cadre de l'interférométrie spatiale, nous analysons la photoluminescence émise par les excitons piégés en l'envoyant

dans l'interféromètre de Mach-Zehnder. Une figure d'interférences composée de franges horizontales est toujours formée en inclinant un miroir par rapport à la verticale. Avant d'être superposées en sortie de l'interféromètre, les deux images sont décalées latéralement de  $\delta x = 2 \mu\text{m}$  et la différence de marche est stabilisée autour du contact optique ( $\delta t = 0$ ). Le choix du décalage s'est porté sur la valeur de 2 microns parce que le gaz s'étend sur une région de taille  $\sim 5 \times 5 \mu\text{m}^2$  au centre du piège et que nous avons une résolution spatiale de  $\sim 1 \mu\text{m}$ , limitée par les vibrations du cryostat. Par conséquent, les deux images se superposent sur une longueur de  $\sim 3 \mu\text{m}$  ce qui permet de mener des analyses quantitatives des franges d'interférences qu'un décalage latéral supérieur à  $2 \mu\text{m}$  ne nous permet pas. Nous sondons alors le degré de cohérence spatiale du gaz d'excitons brillants dont la longueur d'onde thermique vaut au plus  $\lambda_T = 290 \text{ nm}$  à  $T_b = 330 \text{ mK}$ . Ainsi, on a bien  $\delta x \gg \lambda_T$  et un gaz thermique d'excitons devrait conduire à une absence de franges d'interférences. Le contraste est toujours calculé à partir de la formule 3.1 et nous enregistrons une centaine d'images d'interférences pour ne sélectionner que 10% d'entre elles où les franges sont les plus visibles et le contraste le plus élevé. Sachant que nous avons une intensité moyenne de 90 coups dans nos expériences, le rapport signal-sur-bruit, de l'ordre de 10, nous conduit à imposer un contraste minimal  $\mathcal{V}_{\min} \sim 12\%$  à toutes les mesures ne montrant aucune interférence.

### 4.3 Évolution de la cohérence spatiale avec la densité

Tout d'abord, nous étudions dans la Figure 4.2 l'évolution de la cohérence spatiale en fonction de la densité d'excitons présents dans le piège. Pour ce faire, nous enregistrons des interférogrammes à différents délais  $\tau$  après l'extinction du laser d'excitation.

**Régime ultra dilué** Pour de longs délais  $\tau > 200 \text{ ns}$ , la densité est très faible  $n_x \sim 1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  ( $N \approx 5 \cdot 10^3$ ) et nous n'observons aucune interférence. Le gaz est très perturbé puisqu'il présente de fortes inhomogénéités d'intensité et donc de densité. Plusieurs raisons peuvent expliquer ces observations. Tout d'abord, la faible intensité lumineuse à ces longs délais impose un long temps d'acquisition et donc un risque de voir les franges brouillées par les fluctuations électrostatiques. Ensuite, le blueshift est ici du même ordre de grandeur que l'amplitude des fluctuations de potentiel ( $\sim 500 \mu\text{eV}$ ). Le gaz est trop dilué et il se répartit dans les minima locaux du potentiel de confinement. Aucune cohérence à longue portée ne peut s'établir tant que le désordre électrostatique n'est pas écranté par l'énergie de champ moyen issu des interactions répulsives entre les excitons [71]. C'est le cas lorsque le nombre d'excitons est supérieur à  $10^4$ .

**Régime dilué** Pour des densités comprises entre  $2.5 \cdot 10^{10}$  et  $3.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , c'est-à-dire entre  $10^4$  et  $2 \cdot 10^4$  excitons ( $150 < \tau < 200 \text{ ns}$ ), les excitons brillants affichent une cohérence spatiale macroscopique, d'origine quantique, marquée par la présence de franges d'interférences occupant tout le centre du piège. Ici, les interactions entre excitons jouent toujours un rôle important mais dans ce régime dilué, l'interaction entre excitons condensés demeure un phénomène cohérent qui ne s'oppose pas à la formation d'un condensat.

**Régime dense** Pour une densité  $n_x \geq 4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , soit un nombre d'excitons piégés  $N \geq 4 \cdot 10^4$  (i.e.  $\tau \leq 120 \text{ ns}$ ), aucune frange d'interférence n'est observable. Même si nous restons dans un régime de densité suffisamment faible pour qu'il n'y ait pas d'ionisations des excitons, la densité semble cependant assez élevée pour que le gaz d'excitons s'éloigne du gaz idéal de bosons [72]. L'exciton étant un boson composite, sa structure peut être altérée par les interactions entre excitons et son caractère bosonique tend à disparaître. De plus, comme nous nous rapprochons de la fin du pulse laser, le nombre de charges photo-injectées est assez important et cela peut conduire à perturber et détruire le gaz d'excitons piégés. On ne peut pas exclure non plus qu'au-delà de  $2 \cdot 10^4$  excitons dans le piège, les interactions dipolaires fortes entre excitons conduisent à des corrélations qui empêchent l'émergence d'une phase quantique collective.

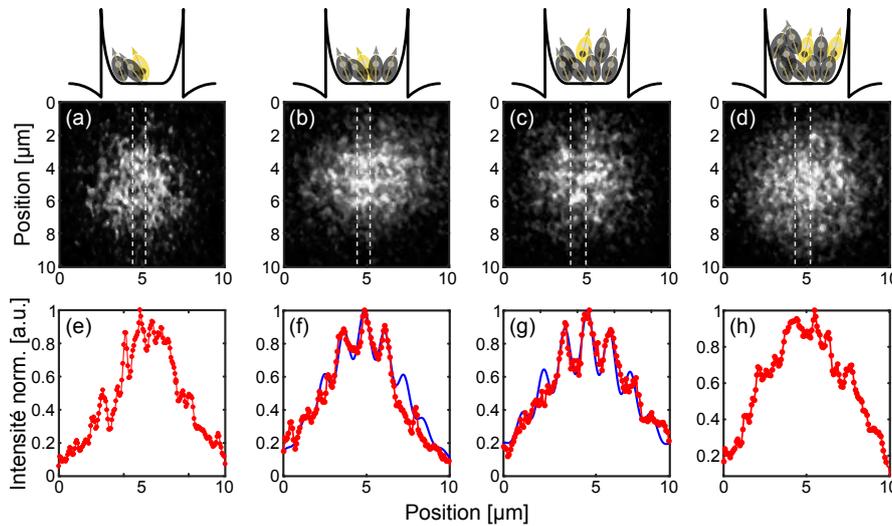


FIGURE 4.2 – Figures d'interférences mesurées pour une densité d'excitons croissante, à  $T_b = 330 \text{ mK}$ , 230 (a), 200 (b), 150 (c) et 120 ns (d) après la fin du pulse laser. A ces délais, le nombre total d'excitons est estimé à  $5 \cdot 10^3$ ,  $10^4$ ,  $2 \cdot 10^4$  et  $4 \cdot 10^4$  respectivement. Les Figures (e-h) représentent les profils d'interférences correspondants, pris au centre du piège, le long des coupes représentées par les lignes tiretées sur (a-d). Alors qu'en (e) et (h) aucune interférence n'est visible, en (f) et (g) le contraste atteint respectivement 18 et 25%. Les points rouges correspondent aux mesures expérimentales et les lignes bleues sont issues d'une simulation obtenue en modulant le profil d'intensité avec le contraste mesuré.

## 4.4 Évolution de la cohérence spatiale avec la température

L'étude du contraste des franges en fonction de la température doit nous permettre de mettre en évidence un régime de température dans lequel nous observons une cohérence spatiale macroscopique.

### 4.4.1 Seuil de cohérence spatiale

La Figure 4.3 montre différentes figures d'interférences à 0.33, 0.80 et 1.8 K quand  $2 \cdot 10^4$  excitons sont piégés. On observe que des franges d'interférences traverse le gaz confiné pour les températures les plus basses tandis qu'aucune frange n'est discernable à 1.8 K. A l'aide des coupes verticales des figures d'interférences, on remarque que le contraste est élevé à 0.33 K puis semble diminuer à mesure que la température augmente, jusqu'à atteindre la valeur imposée par le rapport signal-sur-bruit.

Pour étudier en détail l'évolution du contraste avec la température, nous effectuons un balayage en température pour trois densités d'excitons, comme illustré dans la Figure 4.4.

Quand le piège contient  $10^4$  ou  $2 \cdot 10^4$  excitons, une variation rapide du contraste des franges marque la présence d'un seuil en température et d'une température critique  $T_c$  pour la cohérence spatiale macroscopique. Lorsque  $T < T_c$ , la photoluminescence présente un ordre à longue portée au centre du piège et le contraste s'élève à  $\mathcal{V} \approx 22\%$  à 0.33 K. Au-dessus de  $T_c$ , aucune cohérence macroscopique n'est observée. Comme deux points interférant entre eux sont distants de  $2 \mu\text{m}$  et que la longueur d'onde thermique ne vaut que 290 nm à 330 mK, la cohérence spatiale observée est donc d'origine quantique : la fonction d'onde du condensat se développe sur une distance correspondant à la taille du nuage excitonique au fond du piège ( $\sim 5 \mu\text{m}$ ).

Lorsque le nombre d'excitons est égal à  $4 \cdot 10^4$ , aucune cohérence n'est observée quelle que soit la température et le contraste n'est donné que par le rapport signal-sur-bruit.

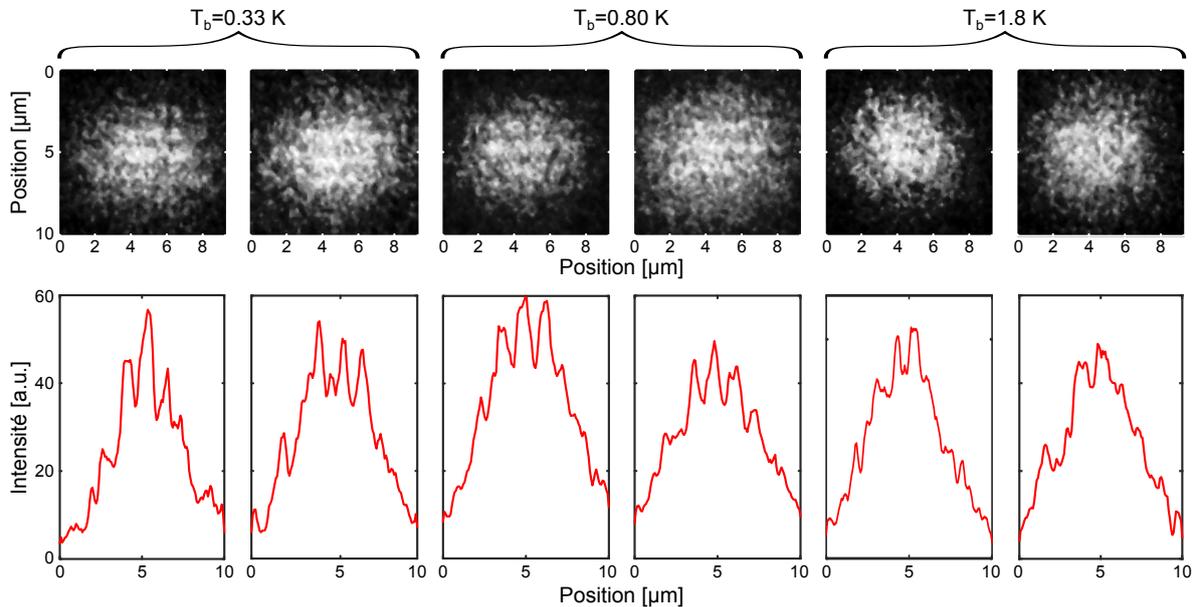


FIGURE 4.3 – Figures d'interférences spatiales d'un gaz contenant  $2 \cdot 10^4$  excitons, à 0.33, 0.80 et 1.8 K. Les profils d'interférences mesurés au centre du piège sont également montrés. Les contrastes mesurés valent respectivement 21, 17 et 12%.

Sur la Figure 4.4, la courbe bleue représente la variation théorique de la fraction de particules condensées en fonction de la température, pour un ensemble de bosons sans

interactions dans un piège harmonique bidimensionnel [73] :  $\frac{N_0}{N} = 1 - \left(\frac{T_b}{T_c}\right)^2$ . On note un très bon accord entre cette variation et les résultats de nos mesures.

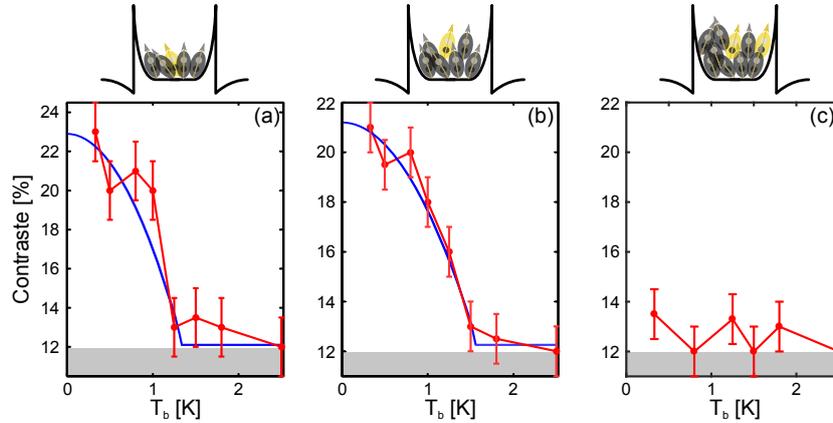


FIGURE 4.4 – Contrastes mesurés au centre du piège en fonction de la température. Chaque point est la moyenne de trois figures d’interférences où les franges sont les plus contrastées. Le nombre d’excitons est estimé à  $10^4$  en (a),  $2 \cdot 10^4$  en (b) et  $4 \cdot 10^4$  en (c). Les lignes bleues représentent la variation théorique de la fraction de particules condensées, qui varie comme  $1 - (T_b/T_c)^2$ , avec  $T_c \approx 1.2$  K en (a) et  $1.5$  K en (b). La région grisée correspond à la sensibilité de la détection, fixée par le rapport signal-sur-bruit.

#### 4.4.2 Température critique

A partir du contraste des franges à 330 mK, sachant que le contraste maximal à l’auto-corrélation est de  $\mathcal{V}_{\max} \approx 50\%$ , on en déduit que la fraction d’excitons brillants participant effectivement au condensat gris est de  $\sim 40\%$ .

Le régime où nous avons  $\sim 10^4$  excitons dans un piège de  $10 \mu\text{m}$  de diamètre correspond à un gaz dilué puisque  $n_x a_0^2 \leq 0.2$ , avec  $a_0 \sim 20$  nm le rayon de Bohr de l’exciton. La distance moyenne entre excitons est donc grande par rapport au rayon de Bohr. En première approximation, en négligeant les interactions entre excitons et les processus d’échange de fermions, le critère de condensation donné par l’équation 1.22 permet d’estimer la température de condensation : l’égalité entre la longueur d’onde thermique et la distance inter-particulaire conduit à l’expression de la température critique :

$$T_c = \frac{2\pi\hbar^2}{gM_x k_B} n_x \quad (4.1)$$

où  $g$  représente la dégénérescence du niveau d’énergie fondamental des excitons. Si on considère une population de  $N = 2 \cdot 10^4$  excitons, c’est-à-dire  $n_x = 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , avec  $g = 4$  et  $M_x = 0.2m_0$ , on obtient une température  $T_c = 1.4$  K.

On peut aussi évaluer la température critique à partir du modèle théorique de bosons sans interaction dans un piège harmonique isotrope bidimensionnel (voir Tab. 1.1 et [73]) :

$$T_c = \frac{\hbar\omega}{\pi k_B} \sqrt{\frac{6N}{g}} \quad (4.2)$$

avec  $\omega$  la pulsation du piège dont le profil énergétique selon la coordonnée spatiale  $x$  s'écrit  $\mathcal{E}_{\text{trap}} = \frac{1}{2}M_x\omega^2x^2$ . On évalue la hauteur des barrières créées par la rectification de potentiel entre l'électrode du centre et celle de la garde à  $\sim 5$  meV donc la pulsation du piège vaut ici  $\omega \sim 10^{10}$  rad·s<sup>-1</sup>. Finalement, l'équation 4.2 conduit à une température critique  $T_c \sim 2$  K, ce qui reste très voisin de ce que nous avons expérimentalement mesuré.

Expérimentalement, nous relevons une température critique de 1.5 K quand  $N = 2 \cdot 10^4$  et 1.2 K quand  $N = 10^4$ , ce qui est proche des valeurs calculées précédemment. La diminution de la température critique avec le nombre de particules condensées est aussi en accord avec les équations 4.1 et 4.2.

On peut également envisager la formation d'un condensat fragmenté où les excitons brillants condensent indépendamment du condensat noir d'excitons. Dans le cadre de cette hypothèse, le noircissement du gaz implique que 3/4 des excitons peuplent les états noirs donc le nombre d'excitons brillants vaut seulement :  $N \approx 3 \cdot 10^3$ . Ainsi, la température critique d'un condensat brillant tombe à  $\sim 400$  mK, proche de la température minimale atteignable dans nos expériences. Or le gaz d'excitons présente une cohérence quantique jusqu'à  $\approx 1$  K, donc nous pouvons exclure l'hypothèse selon laquelle le condensat est fragmenté avec une partie brillante indépendante du condensat d'excitons noirs sous-jacent [71]. En définitive, les propriétés de cohérence quantique macroscopique des excitons brillants trouvent leur origine dans le couplage cohérent entre une fraction d'excitons brillants et le condensat noir via l'échange de fermions : il se forme au sein du piège dipolaire un condensat gris à quatre composantes.

## 4.5 Conclusion

Nous venons de montrer qu'en dessous de la température critique  $T_c \approx 1$  K, pour une densité voisine de  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup>, il se produit un changement qualitatif et quantitatif des propriétés du gaz d'excitons piégés, conséquence d'une transition de phase conduisant à la formation d'un condensat de Bose-Einstein.

Il est remarquable et rassurant de constater que, dans ce chapitre, les conditions d'observation de la condensation (intervalle de densité, seuil de cohérence et température critique) sont identiques à ce que nous avons mesuré dans le cadre de la cohérence temporelle au Chapitre 3.

Les trois signatures expérimentales de la condensation grise des excitons, répertoriées au Chapitre 1, sont désormais rassemblées :

1. nous avons auparavant montré le peuplement macroscopique des états noirs ( $\sim 75\%$  du nombre total d'excitons) [13, 14] ;
2. le processus d'échange de fermions entre excitons de spins opposés conduit à l'existence d'une fraction brillante ( $\sim 40\%$ ) dans le condensat gris. Cette photoluminescence de faible intensité transporte avec elle l'information sur la phase du condensat et la démonstration de la cohérence spatiale macroscopique d'origine quantique montre effectivement qu'une partie des excitons brillants est condensée ;

3. la cohérence temporelle de la photoluminescence est multipliée par deux quand la température est inférieure à la température critique  $T_c \approx 1$  K, commune à toutes ces signatures.

On peut donc affirmer que près de 85% des excitons piégés, noirs et brillants, sont condensés à 330 mK.

Les interactions à longue portée entre les particules étant de type dipôle-dipôle, on peut se poser la question de la nature superfluide du gaz d'excitons. En effet, les figures d'interférences mettent clairement en évidence de fortes inhomogénéités de l'intensité, avec des *trous* de photoluminescence intrigants et la dislocation partielle des franges. Ces perturbations peuvent être la conséquence du potentiel électrostatique désordonné du piège et de la superposition de millions d'images réelles nécessaires pour constituer une image d'interférences. Or l'une des manifestations les plus spectaculaires de la superfluidité est la formation de vortex quantiques au sein du condensat, qui peuvent aussi expliquer l'origine de ces taches noires. C'est pourquoi, dans le Chapitre 5, nous nous penchons sur l'analyse des défauts d'intensité et de l'apparition de singularités de phase, caractéristiques des vortex quantiques.

# Chapitre 5

## Superfluidité d'un gaz d'excitons piégés

A présent que nous avons démontré l'existence d'un condensat gris d'excitons, nous pouvons nous demander s'il n'est pas superfluide. En effet, nous montrons ici que les images réelles de la photoluminescence affichent de nombreuses taches noires signalant des pertes locales de densité. Celles-ci pourraient marquer la présence de tourbillons quantiques, ou vortex, caractéristiques d'un superfluide. A partir de mesures interférométriques, dans ce chapitre nous confirmons cette interprétation en montrant des déformations topologiques des franges d'interférences, en accord quantitatif avec une modélisation théorique développée spécialement pour nos mesures.

### 5.1 Éléments pratiques sur la superfluidité

Cette section s'inspire largement du cours sur la cohérence quantique et la superfluidité dans les gaz atomiques de J. Dalibard, donné au Collège de France (2016) [36, 74, 75].

#### 5.1.1 L'état superfluide

Historiquement, la superfluidité est définie comme la propriété qu'a un fluide à s'écouler sans friction, contrairement à un fluide classique, soumis à des forces de viscosité, dont le mouvement s'amortit rapidement.

Un fluide est qualifié de superfluide s'il satisfait aux deux critères suivants [36] :

1. un fluide quantique ne se met pas en rotation si le récipient qui le contient possède une vitesse de rotation suffisamment faible. C'est l'absence de viscosité qui justifie ce comportement ;
2. si la rotation du récipient est suffisante, le fluide quantique se met en mouvement et persiste dans cet état pendant une durée très longue même si le récipient s'immobilise. L'existence de courants permanents non amortis est une propriété fondamentale de la superfluidité d'un système.

Historiquement, la superfluidité a été découverte en 1937 dans l'hélium 4 liquide par Kapitza, Allen et Misener [76, 77]. En dessous d'une température critique  $T_\lambda \approx 2.2$  K,

l'hélium parvient à s'écouler rapidement dans des capillaires de  $\sim 10 \mu\text{m}$  diamètre sous une différence de pression nulle, ou sous forme de films d'hélium (film de Rollin) d'une dizaine de nanomètres d'épaisseur. Ce comportement est fortement non classique car les forces visqueuses sont très fortes dans ces configurations et empêchent en principe tout écoulement.

L'idée que la superfluidité pouvait être reliée à la condensation de Bose-Einstein a été émise en 1938 par London qui a remarqué que la température  $T_\lambda$  est très proche de la température critique de condensation d'un gaz parfait de bosons de même masse et même densité que l'hélium 4 ( $T_c = 3.2 \text{ K}$ ) [78]. Le rapprochement entre les deux concepts est d'autant plus surprenant que l'hélium liquide est loin d'être modélisable par un gaz parfait.

### 5.1.2 Lien avec la condensation de Bose-Einstein

La condensation de Bose-Einstein conduit à ce que les particules occupent de façon macroscopique l'état quantique fondamental. La fonction d'onde de cet état propre  $\psi_0(\mathbf{r})$  constitue le paramètre d'ordre du système et prend la forme suivante :

$$\psi_0(\mathbf{r}) = \sqrt{n(\mathbf{r})}e^{i\theta(\mathbf{r})} \quad (5.1)$$

où  $\theta(\mathbf{r})$  est la phase et  $n(\mathbf{r}) = |\psi_0(\mathbf{r})|^2$  est la densité de l'état quantique unique occupé par les particules condensées. On associe à ce paramètre d'ordre un courant de probabilité dont la vitesse correspond à l'écoulement du fluide quantique :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{m} \nabla \theta(\mathbf{r}). \quad (5.2)$$

Imaginons que le récipient contenant le superfluide soit mis en rotation à une vitesse angulaire  $\Omega$ . Si  $\Omega$  est suffisamment faible, le fluide reste immobile (critère 1). Cet état permet de conserver le caractère irrotationnel du superfluide puisque d'après l'équation 5.2, on a  $\nabla \times \mathbf{v} = \mathbf{0}$ . Pourtant, au-dessus d'une vitesse de rotation critique du récipient, le condensat bascule dans un état  $\psi_1$  où un courant permanent s'établit : il est plus favorable énergétiquement de mettre en mouvement le condensat que de le laisser immobile dans l'état  $\psi_0$ , d'autant plus que l'équation 5.2 montre qu'on peut conserver un état stationnaire macroscopiquement occupé avec un courant non nul. Si le récipient s'immobilise, le superfluide persiste dans l'état métastable  $\psi_1$ , conformément au critère 2.

Nous pouvons ici noter que le critère 2 n'est pas satisfait dans le cas d'un gaz parfait, qui ne peut donc pas être superfluide. En effet, si les particules sont initialement dans l'état  $\psi_1$ , rien ne s'oppose à ce que le gaz relaxe dans l'état  $\psi_0$  où il est immobile. On aurait alors une population macroscopique pour les deux états  $\psi_0$  et  $\psi_1$ , donc un condensat fragmenté. On retrouve ici l'argument de Nozières qui a montré que les condensats fragmentés sont énergétiquement défavorisés lorsque les particules exercent entre elles des interactions répulsives (voir section 1.26 et [41]). Les interactions répulsives sont donc nécessaires pour comprendre pourquoi le superfluide reste dans un état excité.

### 5.1.3 Les défauts topologiques

Dans l'exemple détaillé précédemment, les courants permanents sont créés par un ensemble de tourbillons, formant, à trois dimensions, des lignes parallèles à l'axe de rotation, chaque tourbillon portant une partie du moment cinétique total imposé par la rotation du récipient. Ces tourbillons sont des défauts topologiques appelés vortex. Au centre d'un vortex, la densité s'annule de sorte que la phase est indéfinie et il porte alors le moment cinétique que la rotation du récipient impose. Par exemple, des vortex dans l'hélium superfluide ont été photographiés dès les années 1970 [79, 80].

Il peut aussi se former des vortex dans un superfluide au repos. A deux dimensions, pour un système infini, les fluctuations de phase de grandes longueurs d'onde, portées par les phonons, tendent à détruire l'ordre ou le quasi-ordre à longue portée qui s'installe dans un superfluide. Seul un ordre local peut être observé et c'est pourquoi l'ordre à longue portée n'est retrouvé que dans le cas d'un système bidimensionnel de taille finie. Les fluctuations de phase sont aussi à l'origine d'une transition du superfluide, dite transition BKT pour Berezinskii, Kosterlitz et Thouless, au cours de laquelle des vortex se forment [81, 82]. Chaque vortex portant un moment cinétique, ils apparaissent par paires de vortex et d'antivortex, chacun portant un moment opposé, afin d'assurer la conservation du moment cinétique. Le passage de vortex libres à des paires vortex-antivortex dans la phase superfluide constitue la transition BKT.

Dans le cas où le vortex est centré en  $r = 0$ , il crée un champ de vitesse orthoradial (porté par  $\mathbf{u}_\varphi$ ) qui varie comme l'inverse de la distance au cœur du vortex :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{m} \frac{1}{r} \mathbf{u}_\varphi. \quad (5.3)$$

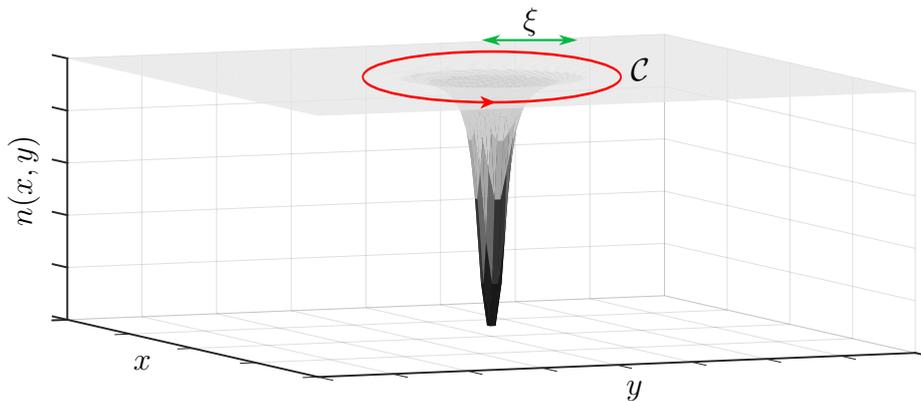


FIGURE 5.1 – Illustration de la présence d'un vortex de taille  $\xi$  dans un système de bosons à deux dimensions. Le cercle orienté rouge représente la circulation autour du vortex calculée dans l'équation 5.4.

De plus, tout contour n'enlaçant pas le vortex conduit à une circulation nulle parce que le superfluide est irrotationnel. Le rotationnel n'étant pas défini au centre du vortex, le théorème de Stokes ne s'applique alors pas pour le contour  $\mathcal{C}$  dessiné dans la Figure 5.1. L'équation 5.2 permet néanmoins de calculer cette circulation :

$$\oint_{\mathcal{C}} \mathbf{v}(\mathbf{r}, t) \cdot d\mathbf{r} = \frac{2\pi\hbar}{m} p \text{ avec } p \in \mathbb{Z}^*. \quad (5.4)$$

La circulation du champ de vitesse le long d'un contour  $\mathcal{C}$  encerclant le vortex est quantifiée, ce qui contraste avec la situation classique où la circulation peut prendre une valeur quelconque. La phase tourne de  $\pm 2\pi$  lorsqu'on effectue un tour le long du contour  $\mathcal{C}$ . La quantification de la circulation a été mesurée pour la première fois dans les années 1960 dans l'hélium liquide [83].

### 5.1.4 Nucléation spontanée de tourbillons quantiques

Désormais, nous nous plaçons à deux dimensions. Des calculs simplifiés permettent de rendre compte de la possibilité de nucléer un vortex au sein d'un fluide quantique dont la densité superfluide  $n_s$  peut différer de la densité totale de particules  $n$ . Dans un système bidimensionnel de taille  $R$ , le coût en terme d'énergie cinétique pour la formation d'un vortex au centre  $r = 0$  du système est donné par :

$$\mathcal{E} = \frac{1}{2}m \int v^2 n_s d^2\mathbf{r} = \frac{1}{2}mn_s \int \left(\frac{\hbar}{mr}\right)^2 2\pi r dr = \frac{\hbar^2\pi}{m} n_s \ln\left(\frac{R}{\xi}\right) \quad (5.5)$$

où  $\xi$  est la taille caractéristique du cœur du vortex, appelée longueur de cicatrisation (*healing length*). On suppose aussi que seule la fraction superfluide est mise en rotation par le champ de vitesse créé par le vortex.

L'entropie associée à un unique vortex se détermine en évaluant le nombre de possibilités de positionner le vortex, de surface  $\pi\xi^2$ , dans l'espace disponible du système  $\pi R^2$  :

$$S = 2k_B \ln\left(\frac{R}{\xi}\right). \quad (5.6)$$

Cette formule est approximative dans la mesure où les effets de bord qui se produisent lorsque le vortex est à la périphérie du système ont été ignorés. Toutefois, elle reste une bonne estimation de l'entropie d'un vortex si  $R \gg \xi$ .

Ainsi, on obtient l'expression de la variation de l'énergie libre  $F = \mathcal{E} - TS$ , suite à la formation d'un vortex :

$$\Delta F = \frac{k_B T}{2} \left(n_s \lambda_T^2 - 4\right) \ln\left(\frac{R}{\xi}\right). \quad (5.7)$$

Cette expression met en évidence deux régimes différents, selon le signe de l'énergie libre. Si  $n_s \lambda_T^2 > 4$ , alors  $\Delta F > 0$  : le superfluide est stable thermodynamiquement et empêche la nucléation spontanée de vortex. Pour  $n_s \lambda_T^2 < 4$ , par contre,  $\Delta F < 0$  et le superfluide est instable : la prolifération de vortex est favorisée. D'ailleurs, la formation d'un vortex réduit la densité  $n_s$  et amplifie la possibilité de nucléer d'autres vortex. Les fluctuations de densité augmentent alors jusqu'à provoquer la disparition de la phase superfluide [74]. De plus, la nucléation d'un vortex par activation thermique  $k_B T$  n'est envisageable que dans le régime  $n_s \lambda_T^2 < 4$ .

La température de transition de la phase superfluide, notée  $T_{\text{BKT}}$ , est donc donnée par :

$$n_s \lambda_T^2 = 4. \quad (5.8)$$

Cette condition de transition est similaire à celle de la condensation de Bose-Einstein. Il est remarquable que  $T_{\text{BKT}}$  ne dépende pas des interactions entre particules alors que l'apparition de l'état superfluide et, de façon générale, d'une transition de phase ne peuvent avoir lieu dans un gaz parfait. On remarque aussi que le superfluide ne peut pas exister pour des densités inférieures à  $n_s < 4/\lambda_T^2$  [84].

En appliquant ces résultats au cas du système d'excitons indirects étudié dans ce manuscrit, la longueur d'onde thermique à  $T_b = 330$  mK vaut  $\lambda_T \approx 300$  nm, ce qui donne une borne inférieure de la densité de superfluide égale à  $n_s > 4 \cdot 10^9$  cm<sup>-2</sup>. Comme 75% des excitons sont dans les états noirs et que près de la moitié des excitons brillants participent au condensat gris, la densité superfluide équivaut au plus à 85% de la densité totale, soit  $n_s \sim 10^{10}$  cm<sup>-2</sup>. Notre système se trouve assez proche de la transition et la nucléation de vortex est envisageable sans pour autant conduire à la destruction complète du condensat.

Dans un superfluide au repos, la conservation du moment cinétique impose que la création d'un vortex possédant un quantum de moment  $\hbar$  soit associée à la formation d'un antivortex de moment  $-\hbar$ . Cette paire de vortex se comporte de façon analogue à un dipôle, avec les deux *charges* séparées initialement d'une distance  $\sim \xi$ , et dont le champ de vitesse à longue distance varie comme  $v \sim 1/r^2$ . La forme de la vitesse fait converger l'énergie nécessaire pour créer une paire quelle que soit la taille du système. L'entropie garde la même forme que l'équation 5.6, ce qui fait que l'énergie libre est négative en toute circonstance : des paires vortex-antivortex sont constamment créées et annihilées par les fluctuations thermiques. Quand  $T \lesssim T_{\text{BKT}}$ , ces fluctuations thermiques augmentent la distance  $d$  entre les vortex composant chaque paire et leur taille peut alors devenir comparable à la distance séparant deux paires. L'énergie qui assure la structure interne de la paire est alors écrantée par les autres paires et elle se brise pour former des vortex libres.

On peut également évoquer l'influence de la présence d'un obstacle dans le superfluide sur la formation et la séparation d'une paire de vortex. Si l'obstacle a une taille  $\ell > \xi$ , il éloigne les deux vortex et facilite leur séparation ; l'énergie thermique que doit absorber une paire de vortex pour se séparer n'est plus  $\sim 2\Delta F$  mais est d'autant plus réduite que l'obstacle a une taille supérieure à la longueur de cicatrisation  $\ell > \xi$  [85].

### 5.1.5 Longueur de cicatrisation

L'évolution de la taille du cœur d'un vortex  $\xi$  avec les les grandeurs physiques pertinentes est aisément démontrable par des lois d'échelle. Supposons qu'un vortex se trouve au centre d'un système de taille  $R$  dont l'énergie totale se compose de l'énergie cinétique due à la présence du vortex, donnée par l'équation 5.5, et de l'énergie d'interaction répulsive de contact, modélisée par la force d'interaction  $g$  (qui varie comme le volume du système) entre chaque paire de particules :

$$\mathcal{E}_{\text{int}} \sim \frac{N(N-1)}{2} \frac{g}{\pi(R^2 - \xi^2)} \underset{R \gg \xi}{\sim} \frac{N^2 g}{2\pi R^2} \left[ 1 + \left( \frac{\xi}{R} \right)^2 \right]. \quad (5.9)$$

La minimisation de l'énergie conduit à l'expression de la longueur de cicatrization  $\xi$  :

$$\xi = \frac{\hbar}{\sqrt{mgn}} \quad (5.10)$$

avec  $n = N/\pi R^2$  la densité. Le vortex est d'autant plus petit que la densité et les interactions sont fortes. A titre d'exemple, dans l'hélium 4 superfluide, le rayon du cœur des vortex est de l'ordre de la taille atomique :  $\xi \approx 0.2$  nm.

## 5.1.6 Observations expérimentales

### Systèmes atomiques

Les premières démonstrations expérimentales de la nucléation de vortex au sein d'un condensat de Bose-Einstein ont été publiées par l'équipe de J. Dalibard du laboratoire Kastler-Brossel dans un gaz atomique de rubidium 87 à trois dimensions (voir Fig. 5.2) [86]. Le condensat est mis en rotation par un laser. Comme attendu, le superfluide ne nucléé un vortex qu'au-dessus d'une vitesse angulaire  $\Omega$  minimale. Des « trous » de densité apparaissent au centre desquels la densité chute de près de 50%. Plus  $\Omega$  est élevée, plus le nombre de vortex générés est important, jusqu'à rendre turbulent le condensat et faire disparaître le superfluide.

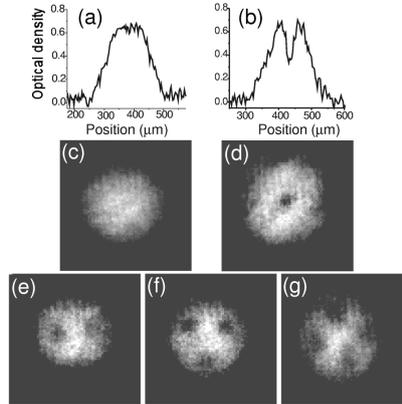


FIGURE 5.2 – Images d'absorption prises lors d'une expérience de temps de vol d'un condensat de  $\sim 10^5$  atomes  $^{87}\text{Rb}$  refroidis à  $\sim 80$  nK et mis en rotation à une fréquence de 145 (c), 152 (d), 169 (e), 163 (f) et 168 Hz (g). (a) et (b) représentent une coupe transversale de l'intensité des images (c) et (d) respectivement. Image extraite de [86].

En 2008, Weiler *et al.* ont rapporté la formation spontanée de vortex durant la condensation d'un gaz de Bose piégé (voir Fig. 5.3) [87]. Ils interprètent leurs observations à l'aide du mécanisme de Kibble-Zurek [88, 89]. En partant d'un gaz thermique et en se rapprochant de la transition conduisant au condensat, des régions indépendantes du fluide

acquièrent une cohérence et une phase relative aléatoire sur une taille typique  $\xi$ . Pour une transition de phase quasi-statique,  $\xi$  diverge au point critique de la condensation et il se forme alors un condensat avec une cohérence de phase dans tout le système. Au moment de passer le point critique, en refroidissant, le condensat s'étend en fusionnant les régions superfluides isolées tandis qu'à leurs intersections, les phases de chacune des parties se raccordent en formant des vortex quantiques autour desquels la phase tourne de  $2\pi$ . Au-delà d'une certaine vitesse de refroidissement du gaz, le système se trouve être hors d'équilibre,  $\xi$  est alors gelé tout le temps de la traversée du point critique. Le mécanisme de Kibble-Zurek affirme que la taille des régions cohérentes dépend de la vitesse de traversée du point critique : plus le système est refroidi rapidement, plus les zones de cohérence sont de petite taille. Ainsi, les vortex sont d'autant plus nombreux à apparaître que le refroidissement est brutal, interprétation vérifiée par Hadzibabic *et al.* en 2015 [90].

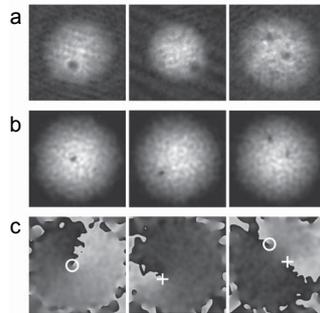


FIGURE 5.3 – (a) Formation de vortex dans un piège harmonique. (b-c) Simulation et carte de la phase où elle tourne de  $\pm 2\pi$  autour des vortex quantiques marqués par les cercles et des croix blancs. Image extraite de [87].

De plus, des défauts topologiques ont été récemment observés au sein d'un gaz de Bose bidimensionnel (voir Fig. 5.4) [91]. Les fluctuations thermiques sont à l'origine de l'apparition de ces défauts dont le nombre s'accroît lorsque le point de transition est traversé rapidement, ce qui suggère que l'apparition des vortex est là aussi régie par le mécanisme de Kibble-Zurek. Une loi d'échelle relie le nombre de vortex nucléés et le temps de traversée :  $N_v \propto t_{\text{cross}}^{-\alpha}$  avec  $\alpha \sim 2/3$ . Chomaz *et al.* relèvent que, suite au refroidissement, le nombre de vortex diminue au cours du temps puisqu'un vortex disparaît lorsqu'il atteint le bord du piège ou qu'il rencontre un autre vortex de charge opposée.

## Polaritons

Enfin, notons que dans le domaine des exciton-polaritons, des signatures de vorticit  quantique ont  t  signal es. Les polaritons sont des quasi-particules compos es d'un exciton et d'un photon en cavit , fortement coupl es. Lagoudakis *et al.* montrent la formation d'un vortex ancr  dans le d sordre au sein d'un quasi-condensat de polaritons hors d' quilibre. L'analyse de la coh rence spatiale des polaritons montre une dislocation en forme de fourche d'une frange, signature de la pr sence d'un vortex quantique [92].

Une paire vortex-antivortex a aussi  t  observ e dans un gaz de polaritons par Rumpos *et al.* [93]. Toutefois, le caract re multimode du laser de pompe est   l'origine de la

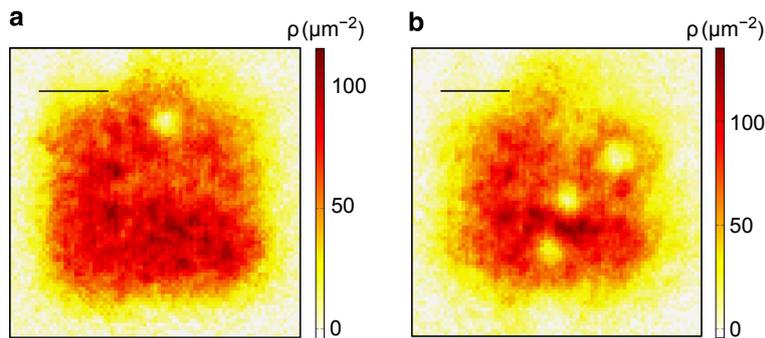


FIGURE 5.4 – Distribution de l'intensité après le temps de vol d'un gaz initialement confiné dans un quasi-plan carré. La barre indique l'échelle de  $10 \mu\text{m}$ . Image extraite de [91].

modulation de la densité et de la phase et donc le laser imprime le vortex et l'antivortex dans le système. Aucune paire n'est générée avec un laser de pompe monomode et aucun effet d'activation thermique ne peut créer spontanément une paire de vortex-antivortex dans leur système. De façon générale, dans les systèmes de polaritons, les vortex sont toujours créés par l'excitation laser ou la topologie de l'échantillon ; ils ne se forment pas spontanément et ne sont pas la conséquence d'une transition de phase quantique lorsque la température du système est abaissée [94].

## 5.2 Défauts de densité à $T_b = 330 \text{ mK}$

La Figure 5.5 montre différentes images de la photoluminescence, prises successivement, pour une population de  $\sim 2 \cdot 10^4$  excitons piégés et refroidis à  $T_b = 330 \text{ mK}$ . L'inhomogénéité de la photoluminescence apparaît clairement dans ces images. On observe des taches noires (Fig. 5.5e-h) dont les coupes horizontales et verticales montrent une chute de l'intensité de près de 50% au centre de ces défauts d'intensité, ce qui revient à diviser par deux la population locale d'excitons brillants. Ces taches sont très bien identifiables au centre du nuage mais des taches noires peuvent se voir à la périphérie malgré une intensité réduite. Les images où un seul défaut de densité est clairement visible sont rares au regard des nombreuses images dans lesquelles les défauts sont multiples ; des lignes noires traversant le nuage d'excitons peuvent même être observées (Fig. 5.5a-d). Notons enfin que pour la Figure 5.5e, la chute locale de l'intensité équivaut à une déviation égale à  $\sim 5$  fois les fluctuations d'intensité, qui ne peuvent donc pas expliquer de telles déplétions d'intensité.

Le désordre électrostatique peut être invoqué comme la première cause de ces fortes inhomogénéités d'intensité lumineuse. Les fluctuations du fond du piège étant de l'ordre de  $500 \mu\text{eV}$ , le désordre peut localement expulser les excitons lorsque leur énergie de champ moyen ne peut suffire à écranter ces barrières de potentiel, donnant naissance à une tache noire sur l'image (voir Fig. 5.6).

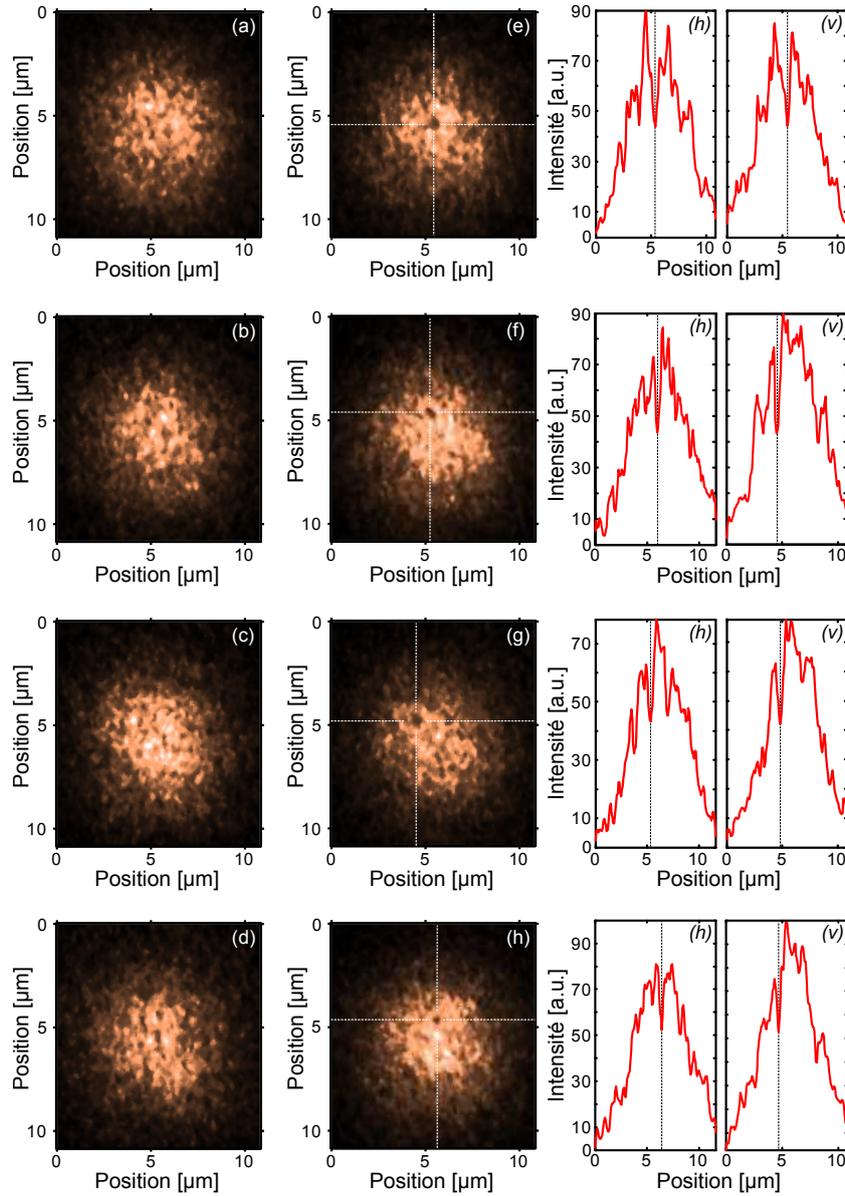


FIGURE 5.5 – Images réelles de la photoluminescence du piège à 330 mK, où  $\sim 2 \cdot 10^4$  excitons sont confinés. On remarque la présence de traces et de trous noirs dans le nuage d’excitons. Les images (e-h) présentent des défauts de densité remarquables dont les coupes horizontales ( $h$ ) et verticales ( $v$ ) le long des lignes tiretées montrent une baisse de la densité pouvant atteindre  $\sim 50\%$ . Ces images ont toutes été enregistrées à la suite les unes des autres avec un temps d’acquisition de 10 secondes.

Cependant, ces défauts d’intensité se retrouvent aussi alors que la densité est suffisamment élevée pour que le désordre ne puisse pas créer ces taches noires. Ainsi, dans la Figure 5.5, la densité au centre du piège  $n_x \sim 3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  conduit à une énergie de champ moyen  $\Delta E_x \approx 1.5 \text{ meV}$ , supérieure au bruit électrostatique de  $\sim 500 \mu\text{eV}$ . Puisque nous savons désormais que le gaz d’excitons est condensé, il est naturel d’envisager que le gaz est alors superfluide et que ces taches noires signalent la présence de vortex quan-

tiques. Les tourbillons quantiques annulent localement la densité du superfluide, dans une région dont la taille est donnée par la longueur de cicatrisation  $\xi$ . Comme évoqué dans la section 5.1.4, les inhomogénéités de potentiel favorisent la nucléation de paires de vortex-antivortex qui se séparent par la suite. Les imperfections du potentiel facilitent aussi la fixation des vortex qui stationnent alors en un point du piège, ce qui permet leur repérage (voir Fig. 5.6). Si le paysage électrostatique reste invariant durant le temps d'acquisition de l'image, typiquement quelques secondes, la nucléation et l'ancrage de vortex aux mêmes points du piège impriment nettement les inhomogénéités locales de densité sur l'image finale, qui résulte d'une superposition de millions d'images individuelles.

Au contraire, si le potentiel électrostatique varie lentement au cours de l'acquisition, les vortex apparaissent et se fixent à différentes positions, marquant leur présence par plusieurs taches noires peu contrastées et le nombre de vortex semble artificiellement plus élevé. Nous pouvons aussi observer des traces qui traversent le nuage, comme si le vortex se déplaçait dans une tranchée dessinée par le potentiel électrostatique. Ces lignes se dirigent souvent vers l'extérieur du piège, là où la densité d'excitons chute, conduisant à la disparition du vortex.

Nous pouvons estimer la taille du cœur d'un vortex au sein du système d'excitons présenté ici à l'aide du modèle numérique de Lozovik *et al.* [95]. La longueur de cicatrisation s'exprime de la façon suivante :

$$\xi = \frac{1}{\sqrt{2n_x\zeta'}} \quad (5.11)$$

où  $\zeta' \approx 6$  est un paramètre sans dimension qui contribue au potentiel chimique lié aux interactions entre les excitons. Nous obtenons donc une taille du cœur du vortex valant  $\xi \approx 200$  nm, ce qui est comparable à la distance inter-particulaire quand  $\sim 2 \cdot 10^4$  excitons sont confinés dans le piège. Dans nos expériences, la taille des vortex est limitée par la résolution optique ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ), ce qui ne contredit pas l'estimation précédente. En plus, le paysage électrostatique dessiné par les fluctuations de potentiel peut piéger un vortex dans une zone assez large, le laissant ainsi se mouvoir. Sur les images, il apparaît alors une grosse tache qui ne peut par conséquent pas s'interpréter comme la taille réelle du vortex.

La détection de telles taches noires au sein d'un condensat d'excitons nécessite de faire un compromis entre la durée d'acquisition et le rapport signal-sur-bruit, valant  $\sim 10$  quand le temps d'acquisition est de 10 s. On ne pourrait pas augmenter davantage le temps d'acquisition sans dégrader la qualité des images et la visibilité des taches. En effet, même en l'espace de 10 secondes, les défauts peuvent apparaître à de nombreux endroits dans l'image de la photoluminescence et l'effet de moyennage efface les inhomogénéités de densité.

Notons que Butov *et al.* ont rapporté l'existence de filaments de courant qui apparaissent quand un flux de charges traverse transversalement les plans du double puits quantique. Ils provoquent l'ionisation des excitons à son voisinage et donnent naissance à ce que les auteurs appellent des *localized bright spots* (LBS) [96]. Les électrons apportés par ce filament de courant se recombinent au sein d'une région riche en trous, créant un anneau lumineux délimitant une tache noire, vide d'excitons. Toutefois, ce phénomène ne

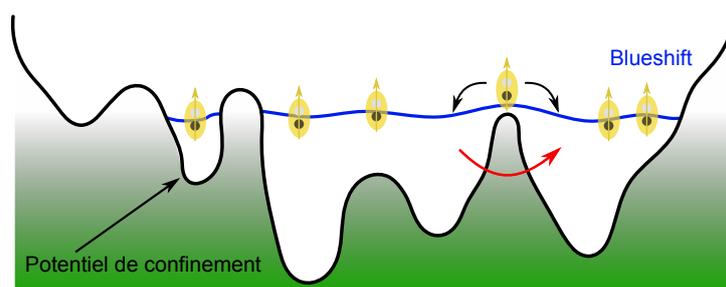


FIGURE 5.6 – Illustration de l’effet du désordre électrostatique sur la présence de défauts de densité dans la photoluminescence. Les excitons peuvent être expulsés d’une zone où le désordre est supérieur au blueshift ou alors une paire vortex-antivortex peut nucléer plus facilement là où un obstacle abaisse la barrière énergétique. Une fois séparé, un vortex libre peut être ancré au niveau d’un défaut de potentiel.

peut pas expliquer l’origine des taches noires de la Figure 5.5 : la taille des LBS induits par ces filaments de courant est de  $\sim 5 \mu\text{m}$  minimum, ce qui ne correspond pas à ce que nous observons.

### 5.3 Position et nombre des défauts de densité

Afin de connaître la localisation des taches noires et leur nombre en fonction de la densité et de la température, nous avons analysé visuellement une vingtaine d’images réelles enregistrées à chaque délai et ce pour trois températures : 0.33, 1.2 et 3.5 K. Pour chaque image, les taches noires sont pointées, leurs positions relevées. Ainsi, à tous les délais et donc à toutes les densités, le nombre de taches noires est le résultat d’une moyenne sur une vingtaine d’images. Les taches ne constituent pas systématiquement un vortex : certaines peuvent être la conséquence d’un fort désordre électrostatique qui expulse localement le gaz d’excitons. De plus, il peut arriver que plusieurs taches soient le fruit d’un unique vortex qui a occupé plusieurs positions au cours de la mesure. C’est la raison pour laquelle le nombre de taches noires ne s’identifie pas au nombre de vortex dans le condensat mais sa variation relative est un indice précieux de l’évolution de la nucléation de vortex en fonction de la température.

#### 5.3.1 Localisation des défauts

La Figure 5.7 représente le pointage des positions des taches noires pour trois densités (colonnes) :  $N \approx 5\,000$ ,  $10\,000$  et  $40\,000$  excitons et trois températures (lignes) : 0.33, 1.2 et 3.5 K. Sur chaque sous-figure, les croix représentent les positions des taches relevées sur une vingtaine d’images enregistrées successivement à chaque densité.

Deux comportements se dégagent : soit les défauts occupent l’ensemble du nuage excitonique, soit ils sont rejetés à sa périphérie. Certaines zones présentent une accumulation anormale de points, ce qu’on peut attribuer à la présence d’un défaut de potentiel persistant.

Au centre du nuage, dans le régime ultra dilué, l'énergie de champ moyen vaut approximativement  $\Delta E_x \sim 0.7$  meV et est du même ordre de grandeur que l'amplitude du désordre électrostatique ( $\sim 500$   $\mu$ eV). Le gaz peut donc se localiser dans les défauts de potentiel, ce qui peut conduire à des inhomogénéités d'intensité au milieu du piège. Au contraire, dans les régimes dilué et dense, le blueshift écrante le désordre électrostatique car  $\Delta E_x \gtrsim 1$  meV ; les taches noires que nous observons sont issues d'un effet autre que les fluctuations du potentiel de confinement.

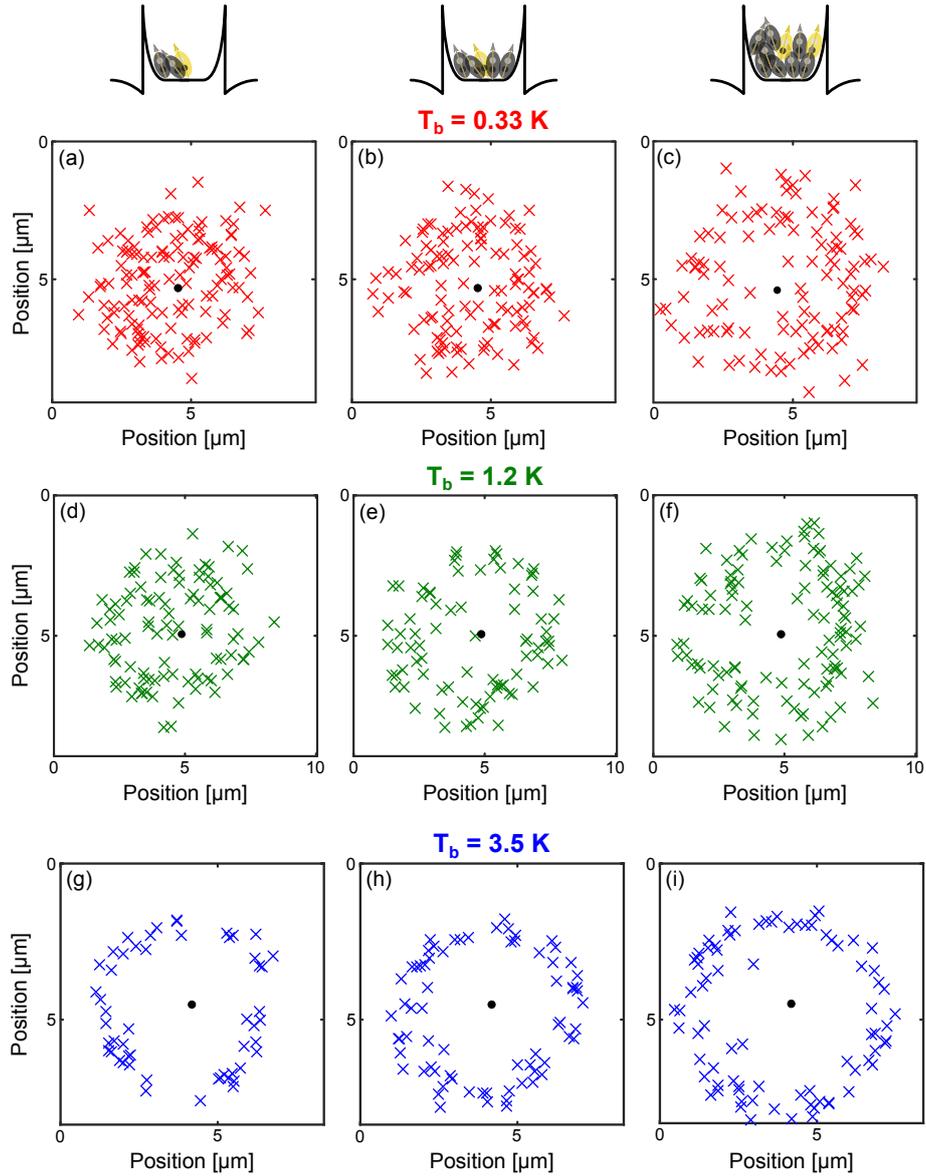


FIGURE 5.7 – Relevé des positions des taches noires dans le nuage d'excitons, lorsque la température vaut 0.33, 1.2 et 3.5 K, pour trois densités différentes :  $N \approx 5\,000$  (colonne de gauche), 10 000 (colonne du centre) et 40 000 excitons (colonne de droite) excitons. Chaque sous-figure résulte de l'analyse de 20 images. Le point noir sur les images représente le centre du piège.

A la périphérie du nuage, par contre, la densité et donc le blueshift sont toujours moins élevés qu'au centre, ce qui favorise la localisation des excitons dans les défauts de potentiel. Toutefois on ne peut sans doute pas systématiquement interpréter les taches au bord comme étant le fait des fluctuations électrostatiques : à 330 mK, on s'attend à ce que des vortex nucléent ou migrent vers l'extérieur du piège.

### A « haute » température

A 3.5 K, le gaz d'excitons n'est pas condensé et les taches noires se trouvent exclusivement à la périphérie du nuage plutôt qu'en son centre, quelle que soit la densité dans le piège. L'absence de défauts de densité au centre se justifie d'abord par le fait qu'il est impossible d'observer des vortex, le gaz n'étant pas condensé. De plus, l'énergie thermique des excitons  $k_B T_b \approx 300 \mu\text{eV}$  s'ajoute au blueshift pour écranter le désordre au centre, même à très faible densité.

### A « basse » température

Quand la température descend à 330 mK, les défauts sont encore très présents à la périphérie du nuage excitonique mais cette fois-ci, de nombreuses taches se trouvent au centre ; elles sont d'autant plus nombreuses que la densité est faible. A forte densité, le régime de condensation est dépassé au centre tandis qu'au bord, la densité étant réduite, le gaz est sans doute superfluide et les vortex apparaissent en premier à la périphérie. L'énergie thermique, de l'ordre de  $30 \mu\text{eV}$ , est négligeable devant le blueshift, ce qui autorise aussi la localisation des excitons dans des puits de potentiel électrostatique présents au bord. Dans la gamme de densité où le gaz est condensé ( $N \approx 10\,000$ ) et où il présente une cohérence quantique, les vortex se forment au centre et créent les défauts de densité. Dans le régime ultra dilué ( $N \approx 5\,000$ ), la densité  $n_x \approx 8 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$  se rapproche de la densité minimale de stabilité de la phase superfluide. Les vortex prolifèrent, ce qui fait disparaître la phase superfluide et la cohérence spatiale est alors brouillée par la multiplication des vortex (voir section 4.3).

### A la température critique

Quand la température du système est de 1.2 K, l'analyse des positions des taches montre un régime intermédiaire entre 330 mK et 3.5 K. Les taches sont toujours largement situées au bord du nuage même si un petit nombre de défauts sont repérés dans la partie centrale. L'énergie thermique, de l'ordre de  $100 \mu\text{eV}$ , reste trop faible pour écranter le désordre au bord du piège. La disparition du superfluide à cette température et le blueshift peuvent donc expliquer le faible nombre de taches au centre.

## 5.3.2 Nombre de défauts

La Figure 5.8 compare, pour trois températures, le nombre de défauts d'intensités entre la partie centrale du gaz d'excitons, incluse dans un cercle de diamètre  $\sim 5 \mu\text{m}$ , et le bord du piège. Il convient de noter que le nombre moyen de défaut, dans tout le piège,

par image, quelle que soit la densité, diminue quand la température augmente : 6.5 à 330 mK, 4.8 à 1.2 K et 3.5 à 3.5 K.

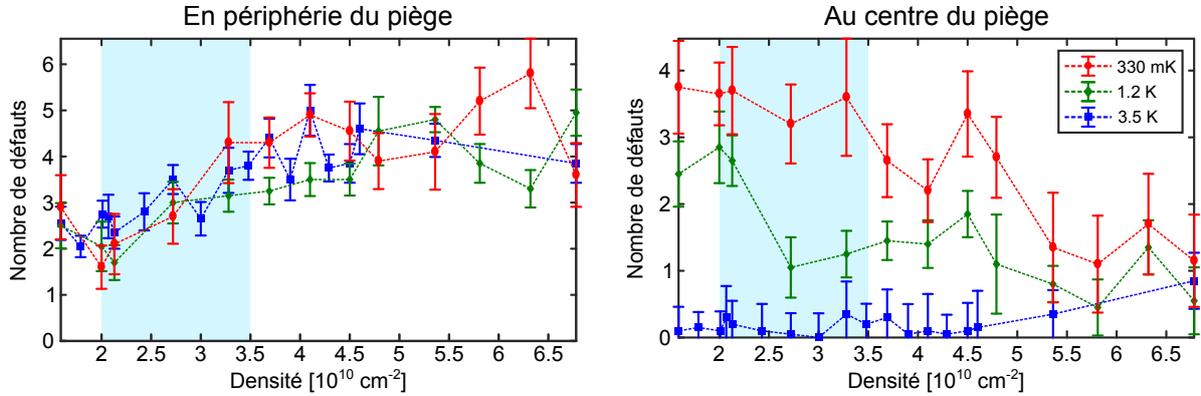


FIGURE 5.8 – Evolution du nombre de taches relevées en fonction de la densité d'excitons, pour une température de 0.33, 1.2 et 3.5 K. Le comptage est découpé en deux zones dans le piège : le centre du gaz (zone de 5  $\mu\text{m}$  de diamètre) et la périphérie. La zone bleutée marque la gamme de densité où le condensat apparaît (voir Fig. 3.9).

L'évolution du nombre de défauts d'intensité, et donc très probablement du nombre de vortex, doit suivre une variation précise avec la température et la densité, dans l'hypothèse où le gaz condensé d'excitons est superfluide, comme cela a été exposé dans la section 5.1.4. Le nombre de vortex augmente à mesure que la température se rapproche de la température de transition par valeurs supérieures. Il faut ajouter que la nucléation de vortex doit augmenter quand la densité diminue : il est plus favorable thermodynamiquement de nucléer des vortex si la densité est faible. Si elle est trop faible, la phase superfluide n'est plus stable et est détruite par une prolifération de vortex quantiques.

### En périphérie du piège

Au bord du piège, l'énergie de champ moyen est plus faible car la densité diminue dès qu'on s'éloigne du centre du piège, ce qui ne permet pas aux excitons de s'affranchir du désordre électrostatique malgré leur énergie thermique. Ceci force la localisation du gaz et favorise la présence de défauts de densité. La Figure 5.8 signale le fait remarquable que, pour une densité donnée, on mesure toujours le même nombre de taches en périphérie quelle que soit la température. On peut donc conclure qu'aucun caractère quantique signalant un changement qualitatif et quantitatif du gaz, typique d'une transition de phase, n'est mis en jeu dans la présence ou la variation du nombre de défauts d'intensité au bord.

Enfin, la contraction du nuage excitonique à mesure que la densité diminue entraîne la baisse du nombre de taches puisque la probabilité de relever des taches noires dans une région distante du centre de plus de 2.5  $\mu\text{m}$  diminue à faible densité.

### Au centre du piège

Concernant le centre du piège, le comportement des défauts d'intensité est radicalement différent puisque leur nombre diminue quand la densité ou la température aug-

mentent.

- ▷ A 3.5 K, on retrouve le fait qu'il n'y pratiquement aucun défaut détectable au centre, quelle que soit la densité. Le désordre électrostatique est écranté par le blueshift et l'énergie thermique. Le gaz n'étant pas superfluide, aucun vortex quantique n'est attendu.
- ▷ A 330 mK, les défauts sont plus nombreux à basse densité : le blueshift et l'énergie thermique ne dépassent pas l'énergie du potentiel désordonné, les excitons se localisant alors dans les défauts de potentiel électrostatique. Dans la gamme de densité où le condensat se forme, les taches noires repérées ne peuvent pas coïncider avec des défauts de potentiel car le blueshift  $\Delta E_x \gtrsim 1$  meV est ici bien supérieur au désordre. On observe en moyenne 3.5 défauts de densité par image au centre du nuage. Ils sont associés à la nucléation de vortex et à l'émergence d'un superfluide. A plus forte densité, le nombre de défauts baisse progressivement avec la densité jusqu'à  $\sim 1$  quand  $n_x > 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . La probabilité de nucléer spontanément des vortex est plus faible, soit parce que le superfluide est davantage stable thermodynamiquement, soit parce que le gaz sort de l'intervalle de densité où la condensation se produit.
- ▷ La courbe de température intermédiaire à 1.2 K s'intercale idéalement entre les deux situations extrêmes de la dynamique des défauts d'intensité au sein du gaz d'excitons.

Nous venons de voir que la position et le nombre des défauts d'intensité au centre suit le comportement attendu pour la nucléation de vortex dans un superfluide. Lorsque le régime de densité est suffisamment dilué, le nombre de taches au centre du gaz augmente à très basse température alors qu'il reste invariablement nul quand la température est sur-critique. On est très naturellement amené à les attribuer à la présence de défauts topologiques signalant l'émergence d'un superfluide au sein du condensat gris d'excitons.

Pour apporter la preuve définitive de la nucléation de tourbillons quantiques, il faut exploiter le fait qu'un vortex induit une singularité de phase en son centre, qui se manifeste par des figures d'interférences en cohérence spatiale très caractéristiques.

## 5.4 Observation des singularités de phase des vortex quantiques

### 5.4.1 Simulation numérique

Les vortex quantiques sont des défauts topologiques autour desquels le superfluide subit un ajout de phase multiple de  $2\pi$  lorsqu'on effectue une boucle autour du cœur du vortex. Cette propriété doit nous permettre de mettre clairement en évidence la formation de tourbillons quantiques au sein du condensat gris d'excitons, et donc de prouver définitivement la nature superfluide de ce gaz.

## Un vortex

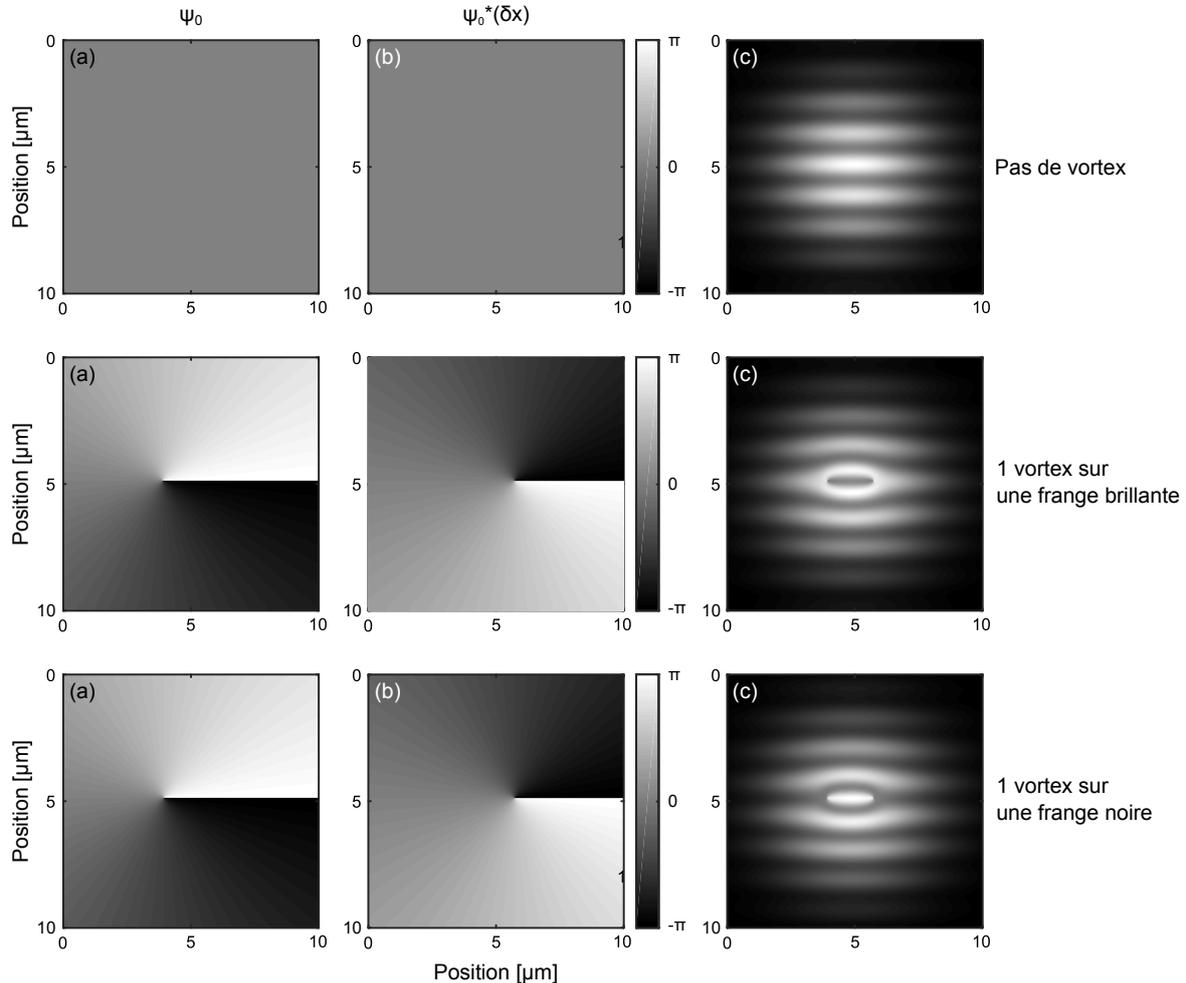


FIGURE 5.9 – (a-b) Carte de la phase d'un champ de photoluminescence d'un condensat avec un ordre à longue portée. (c) est la figure d'interférence résultante dans le cadre de la cohérence spatiale. (d-f) Effet d'un vortex positionné sur une frange brillante sur la phase et la figure d'interférences du condensat. (g-i) Même chose pour un vortex situé sur une frange sombre.

Cette singularité de phase se manifeste spectaculairement dans une image d'interférences obtenue en cohérence spatiale, comme nous l'avons décrite au Chapitre 4. Une fois récupérée la photoluminescence provenant des excitons brillants confinés dans le piège, la lumière est envoyée dans l'interféromètre de Mach-Zehnder. Il est réglé avec une différence de marche longitudinale nulle ( $\delta L = 0$ ) mais les deux images sont superposées avec un décalage latéral de  $\delta x = 2 \mu\text{m}$ . Une figure d'interférences composée de franges rectilignes est imposée en inclinant une image par rapport à l'autre. Ainsi, deux points différents du gaz interfèrent entre eux, ce qui permet de sonder la cohérence spatiale des excitons, qui jouent le rôle d'une source étendue. Le Chapitre 4 a montré qu'il existe une cohérence quantique à 330 mK, justifiée par la présence de franges non brouillées dont le contraste s'élève à  $\sim 22\%$ .

Dans la Figure 5.9, les images (a) et (b) représentent des simulations numériques de la carte de la phase d'un superfluide où toutes les particules sont condensées. Les images (a) et (b) affichent respectivement la phase de  $\psi_0$  et  $\psi_0^*(\delta x)$ , ces deux termes intervenant dans l'expression de la fonction de corrélation du 1<sup>er</sup> ordre  $g^{(1)}$  (voir l'équation 2.1). La phase est alors uniforme dans tout l'espace occupé par le superfluide. Par conséquent, la figure d'interférence résultante est composée de franges rectilignes parfaitement contrastées. L'image (c) représente le cas plus réaliste d'un gaz confiné dans un piège de  $10 \mu\text{m}$  de large dont la proportion superfluide correspond à la fraction condensée des excitons brillants, soit un contraste de l'ordre de 20%.

A présent, introduisons une singularité de phase au centre du piège, à l'emplacement d'une frange brillante. Les images (d) et (e) indiquent la valeur de la phase dans l'espace. Elle tourne dans le sens anti-trigonométrique autour du centre de la singularité pour  $\psi_0$  et dans le sens trigonométrique pour  $\psi_0^*(\delta x)$  dont le centre est décalé de  $\delta x$  par rapport à  $\psi_0$ . Dans cette configuration, la figure d'interférence est alors profondément modifiée par rapport au cas (c). Elle se compose de deux points singuliers distants de  $\delta x$  autour desquels la phase tourne dans des sens opposés. Les franges rectilignes sont toujours présentes mais le vortex provoque l'ouverture de la frange brillante sur laquelle il est placé, ce qui fait apparaître une petite frange noire dans la frange brillante.

Dans l'image (i), cette fois le vortex se situe sur une frange noire. De façon complémentaire, une bulle au contour sombre enferme une frange brillante. Dans les deux cas précédents, la taille de la frange induite par la présence du vortex est de l'ordre du décalage  $\delta x$  entre les deux images qui interfèrent entre elles.

## Deux vortex

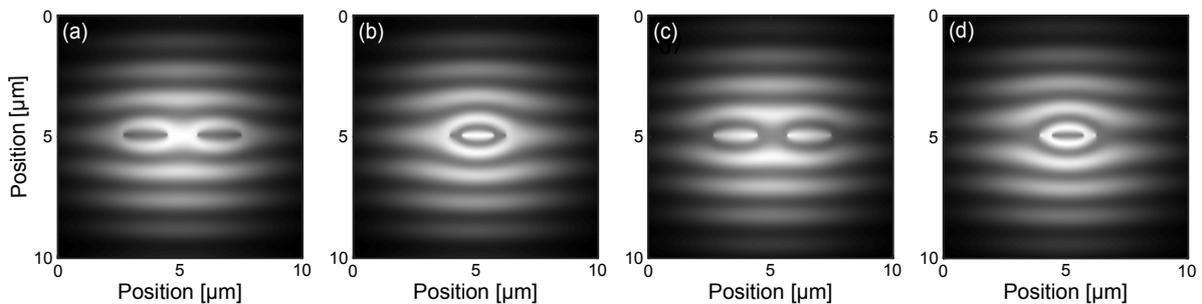


FIGURE 5.10 – Simulations de l'effet de deux vortex situés sur une frange brillante (a-b) ou sur une frange noire (c-d), mais distants de  $3 \mu\text{m}$  (a et c) et  $500 \text{ nm}$  (b et d).

La Figure 5.10 illustre l'effet de deux vortex sur les franges d'une figure d'interférences. Si les deux vortex sont alignés sur une frange et que la distance qui les sépare est supérieure à  $\delta x$ , leurs effets s'ajoutent pour former deux franges noires s'ils sont alignés sur une frange brillante (Fig. 5.10a) ou deux franges brillantes s'ils se trouvent sur une frange noire (Fig. 5.10c).

Lorsque la distance qui les sépare est réduite à moins que  $\delta x$ , l'ouverture d'une frange brillante s'accompagne de l'apparition d'une frange brillante à l'intérieur de la bulle (Fig.

5.10b). De même, la bulle aux contours lumineux qui ouvre une frange sombre voit son centre occupé par une frange noire (Fig. 5.10d).

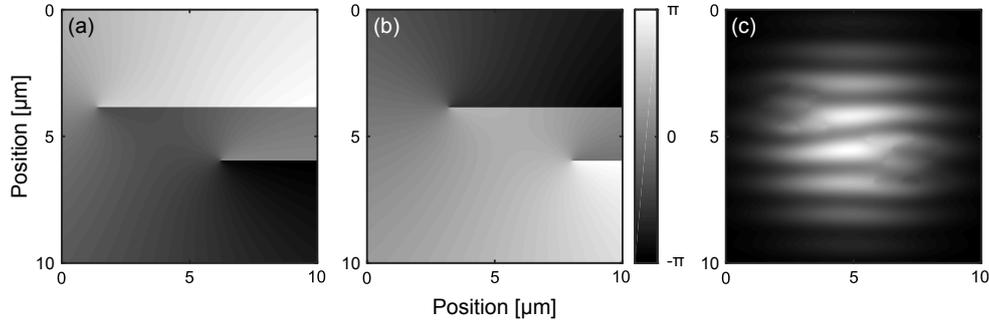


FIGURE 5.11 – (a) et (b) représentent la carte de la phase pour  $\psi_0$  et  $\psi_0^*(\delta x)$  lorsque deux singularités se trouvent à la périphérie du gaz d’excitons. (c) La figure d’interférence résultante est l’accumulation de plusieurs réalisations où la position des vortex fluctue autour d’une position moyenne.

La présence d’une demi-douzaine de vortex à 330 mK est responsable de l’apparence très perturbée voire brouillée des franges d’interférences que nous avons analysées dans ce manuscrit. A titre d’illustration, la Figure 5.11 montre comment deux vortex situés au bord du nuage peuvent réduire le champ où les interférences sont régulières, c’est-à-dire rectilignes, contrastées et avec une interfrange constante. Le déplacement des vortex au cours de l’acquisition renforce cet effet de brouillage. En plus du désordre électrostatique, la prolifération de vortex est un facteur très limitant puisqu’ils détruisent la phase superfluide et dégradent la qualité des images d’interférences que nous enregistrons et que nous analysons.

### 5.4.2 Signature expérimentale de vortex quantiques

Il s’agit désormais de trouver des figures d’interférences qui présentent le genre de topologies d’interférogrammes discutées précédemment.

Un rapide aperçu de toutes les images d’interférences enregistrées nous font remarquer que de nombreux interférogrammes sont très perturbés, comme le montre la Figure 5.12. Dans un gaz d’excitons condensés, des franges d’interférences attestent de la cohérence macroscopique étudiée au Chapitre 4. Mais des trous de densité viennent brouiller les franges qu’on ne discerne plus que sur une zone restreinte du piège (voir les coupes de la Fig. 5.12). Des taches sombres au contour brillant délimitent des taches noires qui font immédiatement songer à des vortex. Cependant, si le nombre de vortex au centre est trop important, la forme des franges est trop déstructurée pour analyser quantitativement ces dépletions de densité en effectuant des coupes verticales au niveau de la bulle et sur ses côtés afin de faire ressortir l’ouverture de la frange. Les images où les franges apparaissent clairement ont été exploitées dans le Chapitre 4 pour étudier la cohérence spatiale de la photoluminescence émise par les excitons brillants. L’analyse d’autres images, similaires à celles de la Figure 5.12, nous a permis d’identifier des figures d’interférences qui corres-

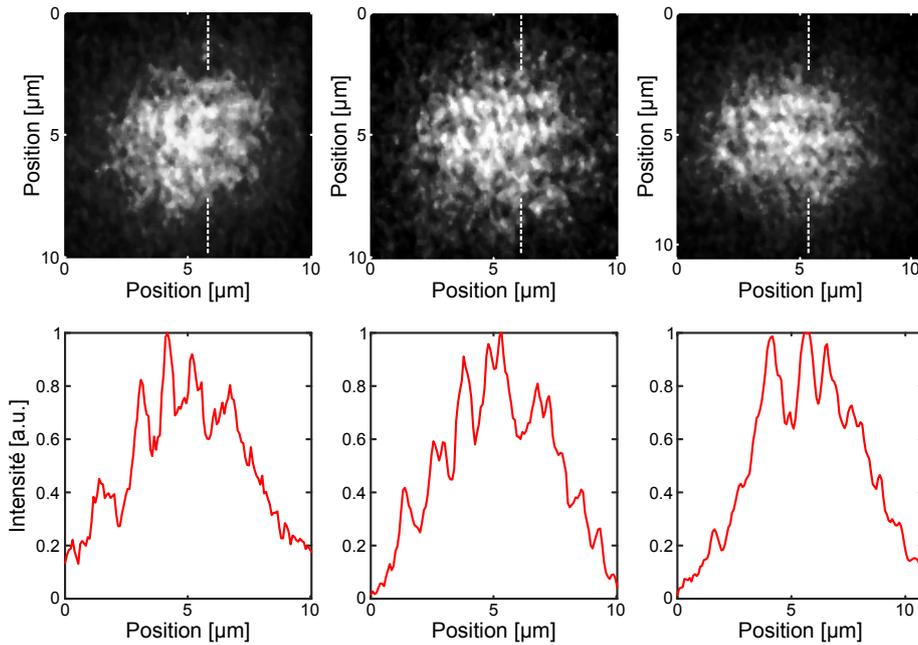


FIGURE 5.12 – Exemples de figures d’interférences spatiales particulièrement perturbées par des défauts de densité multiples. Ces figures sont prises à 330 mK, dans le domaine de densité où a lieu la condensation.

pondent bien aux simulations numériques présentées auparavant, et donc d’attester de la présence de vortex quantiques au sein du gaz condensé d’excitons.

Rappelons que toutes les figures présentées dans cette partie ont été prises en même temps que les mesures qui montrent la cohérence spatiale macroscopique du gaz d’excitons (voir Chapitre 4). La température est de 330 mK, la densité ( $n_x \approx 2.3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ) équivaut à une population de  $N \approx 10\,000$  excitons et le temps d’acquisition est de 20 secondes.

### Un vortex

De toutes les images d’interférences enregistrées, la Figure 5.13c présente un motif caractéristique de la présence d’un vortex quantique. Une bulle brillante transperce la frange centrale tandis que les franges restent peu perturbées sur les côtés de l’image. Elle correspond remarquablement à la simulation d’un unique vortex positionné sur une frange brillante (voir Fig. 5.13b). Des coupes verticales prises à gauche (d), au centre (e) et à droite (f) de la bulle mettent en évidence l’ouverture de la frange brillante centrale et l’apparition d’une oscillation supplémentaire de l’intensité (voir Fig. 5.13d-f). Les points rouges correspondent à la coupe expérimentale issue de la Fig. 5.13a tandis que les lignes bleues sont associées au modèle numérique simulant la figure d’interférences (Fig. 5.13b).

La Figure 5.14 montre une autre image indiquant la présence d’une singularité de phase sur une frange brillante : les coupes signalent à nouveau l’ouverture de la frange par l’apparition d’une nouvelle frange (voir 5.14c).

Ce genre d’image est relativement difficile à obtenir car il est nécessaire que les conditions électrostatiques soient optimales : les défauts de potentiel doivent être statiques

et pas trop nombreux pendant la durée d'acquisition pour éviter la prolifération et le déplacement des vortex qui conduiraient à la suppression de la phase superfluide et la dégradation du contraste des franges. La présence opportune d'un défaut de potentiel au centre de l'image, sur une frange brillante, a permis d'ancrer un vortex et de l'enregistrer.

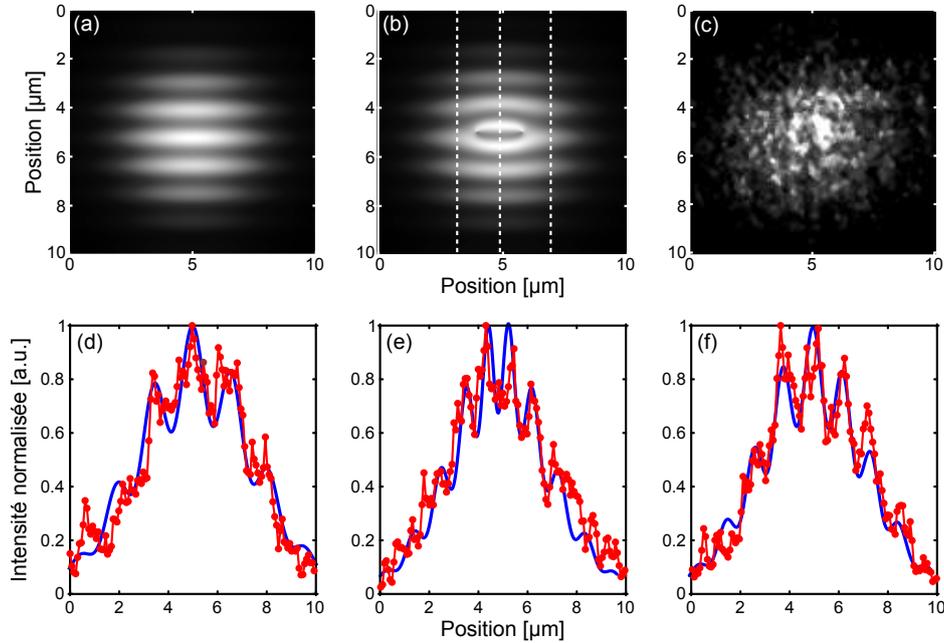


FIGURE 5.13 – Simulation de la figure d'interférences d'un condensat non excité avec un ordre à longue portée (a) et avec un vortex au centre du piège, sur une frange brillante (b). Deux singularités de phase sont présentes, de chaque côté de l'anneau lumineux. (c) Figure d'interférence mesurée à 330 mK avec  $\sim 2 \cdot 10^4$  excitons dans le piège. Les conditions expérimentales sont identiques à celles de la Figure 5.5. (d-f) Les points et lignes rouges sont des coupes des interférences prises à gauche (d), au centre (e) et à droite (f) de la bulle lumineuse. Les lignes bleues sont des modèles numériques simulant l'interférogramme lorsque le contraste des franges est de 23%.

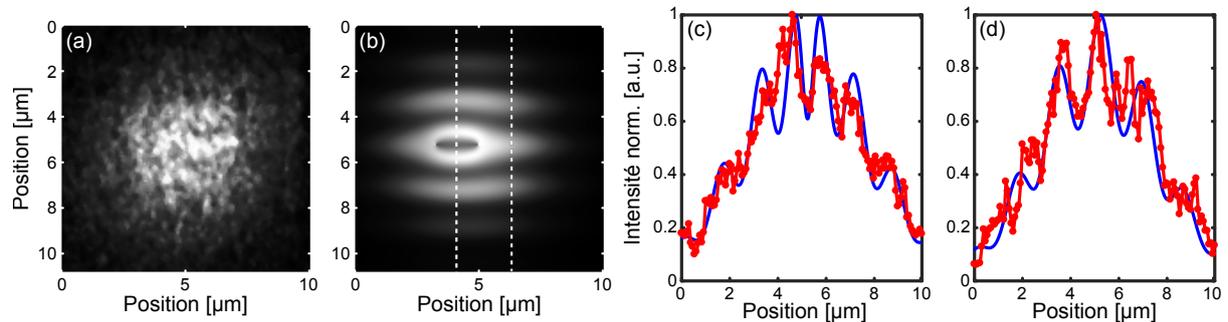


FIGURE 5.14 – Vortex quantique sur une frange brillante : (a) image expérimentale et (b) simulation. (c-d) Les coupes sont prises au centre et à droite de la bulle qui ouvre la frange.

L'observation d'un vortex sur une frange sombre se révèle beaucoup plus difficile à

observer. Pour le repérer, il faudrait qu'une frange brillante de taille  $\sim 2 \mu\text{m}$  apparaisse dans une frange sombre. Compte tenu du désordre électrostatique et de la résolution optique, de l'ordre du micron, nous pouvons difficilement distinguer un tel motif d'un artefact.

## Deux vortex

La Figure 5.15 illustre un cas particulier où les franges dessinent un motif qui peut s'interpréter par la présence de deux vortex, alignés sur la frange noire, et distants de moins d'un micron.

La bulle au contour brillant repousse les franges supérieures et inférieures, comme la simulation le modélise dans la Figure 5.15b. Les coupes verticales à droite et à gauche de la bulle mettent en évidence deux oscillations principales tandis que la coupe passant par le centre de la bulle devrait afficher quatre oscillations. La coupe expérimentale parvient à accrocher la frange supplémentaire située en dessous de la bulle mais pour la frange additionnelle du dessus, la résolution optique ne nous permet pas de distinguer suffisamment bien l'oscillation, de sorte qu'on obtient ici un accord qualitatif seulement.

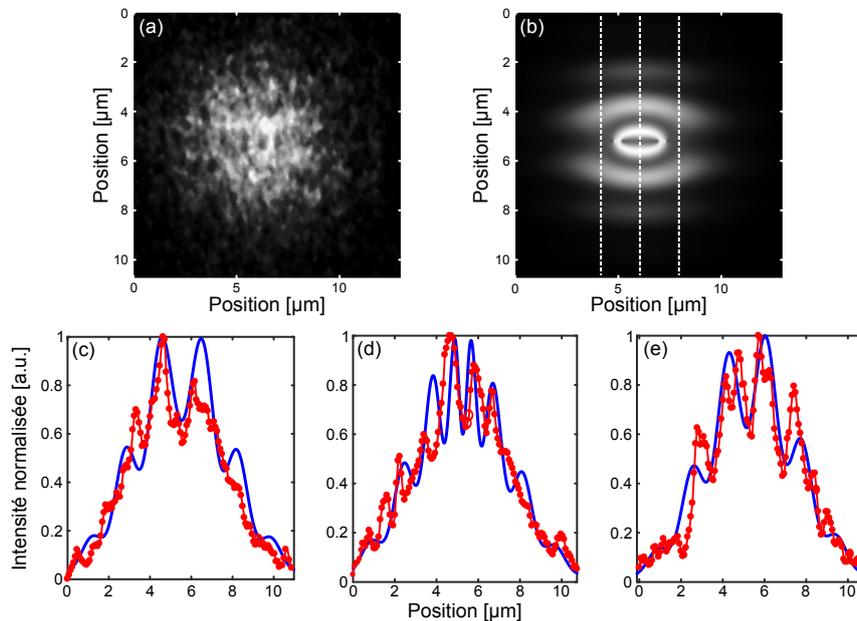


FIGURE 5.15 – (a) Image d'interférence comportant deux vortex distants de  $\sim 1 \mu\text{m}$ , dans une frange noire. (b) Simulation représentant les données expérimentales. Les coupes verticales à gauche (c), au centre (d) et à droite (e) montrent un dédoublement de la frange centrale. La résolution optique étant de  $\sim 1 \mu\text{m}$ , (d) ne parvient à modéliser que partiellement l'ajout de franges. Le dédoublement au-dessus de la bulle ( $y \approx 3 \mu\text{m}$ ) n'est pas bien résolu. En dessous ( $y \approx 7 \mu\text{m}$ ), en revanche, nous parvenons à distinguer l'ajout d'une oscillation supplémentaire.

### Plusieurs vortex : disparition de la cohérence

Certaines images d'interférences peuvent s'interpréter comme un gaz quantique dont la cohérence est en partie détruite par de multiples vortex placés au centre du piège. Les franges sont alors très brouillées. La Figure 5.16 illustre bien ce genre de cas. On distingue difficilement les franges d'interférences et les trous de densités semblent être le fait de vortex. La simulation utilisée pour interpréter cette figure est composée de quatre vortex. Les coupes verticales de la photoluminescence du gaz piégé montrent un bon accord entre la modélisation et l'expérience.

Toutefois, il convient de ne pas extrapoler les données expérimentales bien modélisées dans les cas simples, où un voire deux vortex se trouvent au centre du piège, à ce cas particulier. La modélisation nécessite un trop grand nombre de paramètres à ajuster pour modéliser fidèlement l'image et analyser concrètement le phénomène physique sous-jacent ayant conduit à un tel brouillage de franges d'interférences.

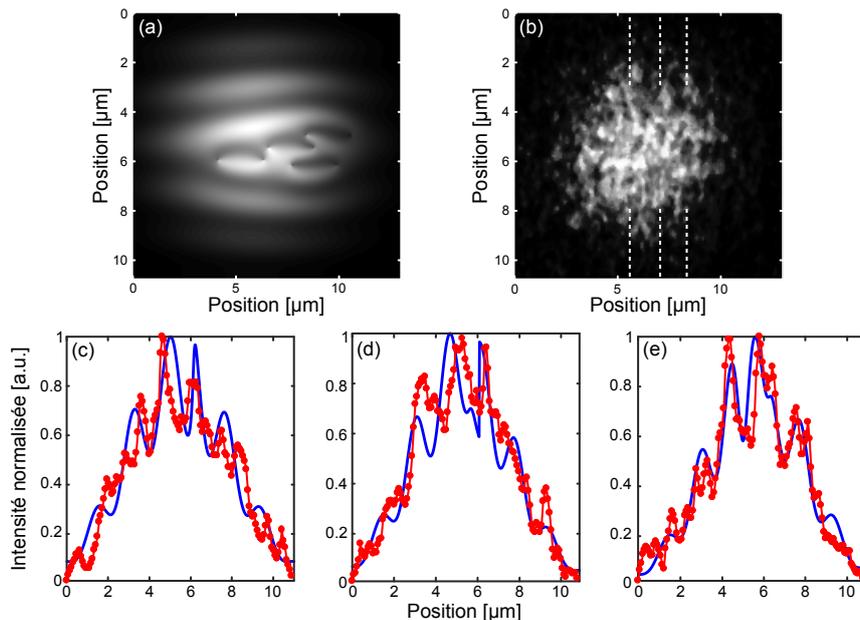


FIGURE 5.16 – (a) Simulation utilisant quatre vortex pour modéliser l'image (b) où le contraste des franges est fortement dégradé par la présence de nombreuses taches noires. Les coupes (c-e) sont prises au niveau des lignes tiretées tracées sur (b).

Enfin, rappelons qu'à plus haute température, c'est-à-dire au-dessus de la température critique  $T_c \sim 1$  K, aucune frange d'interférences et donc aucune cohérence spatiale ne sont observables, comme le montre la Figure 4.3. Les singularités de phase telles que celles détaillées dans cette section, sont donc absentes.

## 5.5 Conclusion

Au Chapitre 4, les mesures de cohérence spatiale avaient mis en évidence l'émergence d'une fonction d'onde macroscopique limitée par la taille du gaz d'excitons, dans un régime dilué particulier ( $N \sim 10^4$ ) et à une température inférieure à la température critique  $T_c \sim 1$  K. Nous venons de montrer que ces mesures, qui apparaissaient très perturbées par des inhomogénéités de densité, montraient la nature superfluide du condensat gris à travers la formation de vortex quantiques. Ces défauts topologiques sont des excitations élémentaires du superfluide où la densité est localement annulée au centre du tourbillon et où la phase du superfluide tourne de  $2\pi$  autour de son centre. Ces propriétés caractéristiques ont été exposées dans ce chapitre avec l'étude des images réelles du gaz excitonique et de l'effet de la singularité de phase sur les figures d'interférences en cohérence spatiale. Un modèle numérique est venu conforter les observations de ces vortex qui apportent une signature claire du caractère superfluide du condensat gris d'excitons.

Le bruit électrostatique provoque une fluctuation de la densité des excitons dans le piège, ceux-ci étant très sensibles au champ électrique via leur fort moment dipolaire. Cet effet a tendance à brouiller les images que nous enregistrons car elles sont constituées de millions d'images individuelles prises pendant une durée de quelques secondes, suffisamment longue pour que le champ électrique varie. Cependant, lorsque l'énergie de champ moyen est suffisamment élevée pour écranter le potentiel désordonné, la destruction partielle du condensat est causée par la nucléation de vortex quantiques. Dans les rares cas où le désordre du potentiel est stable pendant plusieurs dizaines de secondes, on peut observer un vortex bloqué dans le désordre. Alors que le désordre a été vu jusqu'ici comme une limitation forte de la qualité de nos mesures (diffusion spectrale), ici, nous tirons avantage du désordre pour observer les vortex quantiques, ancrés à une position fixe pendant tout le temps d'acquisition de l'image.

Enfin, nous pouvons remarquer que lors d'une séquence telle que celle de la Figure 2.4, la recombinaison radiative fait lentement baisser la densité des excitons pendant que la température est maintenue constante. Pour  $T_b \lesssim 1$  K, on traverse ainsi le seuil de condensation en démarrant par un régime dense sans cohérence macroscopique avant de passer au régime superfluide lorsque la densité vaut  $n_x \sim 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Dans ce régime, nous avons relevé les signatures quantiques issues de la cohérence de la photoluminescence émise par le condensat d'excitons à quatre composantes. Des expériences avec les atomes froids ont employé la démarche complémentaire de l'étude de la transition de phase thermique/superfluide en refroidissant un gaz atomique à des vitesses différentes [87, 91]. Ils ont vérifié le mécanisme de Kibble-Zurek qui prédit que la taille des domaines de superfluide apparaissant au point critique décroît avec la vitesse de refroidissement [88, 89].



# Conclusion

Au cours de cette thèse, nous avons apporté les preuves irréfutables de l'existence de la condensation « grise » des excitons confinés dans un piège électrostatique, ce qui conclut une controverse démarrée il y a plus de cinquante ans. Pour ce faire, les expériences ont été menées dans une hétérostructure composée d'un double puits quantique de GaAs/AlGaAs et polarisée par un dispositif à effet de champ. Dans un intervalle de densité centré autour de  $2.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , soit  $N \sim 10^4$  excitons, lorsque le système est très peu affecté par les fluctuations de charges et de potentiel, la photoluminescence émise par la recombinaison radiative des excitons brillants est élargie de façon homogène. Alors que le gaz d'excitons ne présente aucune cohérence spatiale macroscopique quand la température est supérieure à 1 kelvin, il apparaît au contraire une cohérence spatiale d'origine quantique en dessous de 1 K. La fonction d'onde du condensat devient macroscopique et s'étend sur toute l'extension spatiale du gaz d'excitons. Nous estimons que 40% des excitons brillants participent au condensat. La thèse de M. Beian ayant déjà mesuré que près de 75% des excitons piégés occupent les états noirs, de plus basse énergie, nous concluons que nous sommes en présence d'un condensat « gris » où les particules condensées, représentant 85% du nombre total d'excitons, se répartissent entre les états noirs et brillants via un couplage cohérent d'échange de fermions.

La plage de densité où la condensation se produit apparaît très restreinte et révèle la sensibilité des excitons à leur environnement électrostatique. A très faible densité, le gaz piégé est fortement perturbé par les fluctuations du potentiel de confinement et de la densité de charges libres présentes dans le double puits quantique. Le gaz est alors spatialement fragmenté et localisé dans les minima locaux de piège électrostatique. A forte densité, la cohérence quantique disparaît, peut-être suite à de fortes corrélations entre les excitons mais surtout à cause de la présence plus importante de charges libres photo-injectées par le laser d'excitation. Dans le régime intermédiaire, dilué, où  $N \sim 10^4$  excitons sont piégés, les charges intrinsèques, issues du dopage résiduel, gouvernent principalement les processus de décohérence du gaz d'excitons et du condensat. Ainsi, dans ce même régime dilué, nous observons une forte augmentation du temps de cohérence de la photoluminescence émise par les excitons indirects lorsque la température descend sous 1 K. L'élargissement dû aux interactions entre excitons n'ayant plus qu'une contribution très marginale, seules les charges intrinsèques limitent le temps de cohérence à 4 ps, soit une largeur spectrale particulièrement faible de  $300 \mu\text{eV}$ . Ces résultats sont remarquables car aucune publication antérieure dans la littérature traitant des gaz d'excitons indirects piégés n'ont mentionné des spectres élargis de façon homogène et ayant une largeur spec-

trale aussi étroite.

Enfin, nous avons mis en évidence le caractère superfluide du condensat d'excitons piégés. La superfluidité est caractérisée par la présence de vortex quantiques qui créent de fortes inhomogénéités de densité dans la partie brillante du condensat. Celles-ci sont d'autant plus nombreuses que la température est basse et nous avons montré que ces singularités sont des tourbillons quantiques, qui n'apparaissent que dans la phase superfluide. Cette assertion est confirmée par les mesures interférométriques où nous observons des singularités de phase, piégées dans les irrégularités du potentiel électrostatique, mettant en lumière la quantification de la circulation de la phase autour du cœur du vortex.

En général, les résultats de ce travail de thèse ouvrent la voie à de nouvelles recherches sur le comportement d'un superfluide dans un réseau périodique, comme la transition de l'état superfluide à l'état isolant, appelée transition de Mott [97]. Alors qu'un superfluide est cohérent sur l'ensemble des sites du réseau, il devient isolant quand le gaz se répartit entre les différents sites du réseau pour composer une collection de fractions indépendantes et localisées sur chaque site, brisant la superfluidité du gaz. Cette transition de phase a déjà été mise en évidence avec des atomes froids [98]. Les premiers essais en vue de réaliser un réseau périodique d'électrodes avec nos échantillons ont déjà été effectués (voir Fig. 5.17).

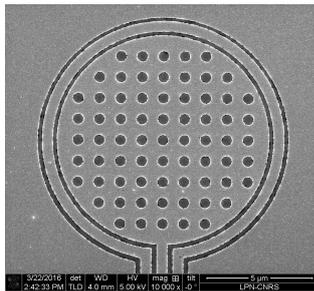


FIGURE 5.17 – Microscopie électronique d'un motif de piège avec une barrière dont l'amplitude est ajustable. Les trous dans l'électrode centrale permettent de créer un potentiel électrostatique périodique.

Enfin, une autre technologie permet d'injecter des porteurs dans des couches sans utiliser de laser d'excitation, ce qui présente l'avantage d'apporter un meilleur contrôle de l'injection de charges dans les puits quantiques. L'équipe de D. Ritchie de l'université de Cambridge avec qui nous avons eu l'opportunité de collaborer, dispose d'échantillons composés de double puits quantiques, où des électrons et des trous sont injectés électriquement et indépendamment dans chaque puits quantique. On forme alors des bi-couches électrons-trous, trous-trous ou électrons-électrons [99]. Pour les deux derniers cas, sous champ magnétique, on peut considérer qu'une couche est composée d'électrons et l'autre de trous lorsque les niveaux de Landau ne sont qu'à moitié remplis. L'état corrélé est alors analogue à un gaz d'excitons. Eisenstein *et al.* ont d'ailleurs rapporté en 2012 des mesures de transport où un courant coulombien « parfait » a été observé, signe d'un comportement superfluide [100].

# Publications

- 1 R. ANANKINE, M. BEIAN, S. DANG, M. ALLOING, E. CAMBRIL, K. MERGHEM, C. GOMEZ CARBONELL, A. LEMAÎTRE & F. DUBIN; « Quantized Vortices and Four-Component Superfluidity of Semiconductor Excitons » ; Physical Review Letters **118**, p. 127–402, (2017).
- 2 R. ANANKINE, S. DANG, M. BEIAN, M. ALLOING, E. CAMBRIL, K. MERGHEM, C. GOMEZ CARBONELL, A. LEMAÎTRE & F. DUBIN; « Temporal Coherence of a Homogeneously Broadened Gas of Spatially Indirect Excitons and "Gray" Bose-Einstein Condensation » ; **arXiv :1610.05055**, (2017).

## Quantized Vortices and Four-Component Superfluidity of Semiconductor Excitons

Romain Anankine,<sup>1</sup> Mussie Beian,<sup>1,2</sup> Suzanne Dang,<sup>1</sup> Mathieu Alloing,<sup>1</sup> Edmond Cambriil,<sup>3</sup> Kamel Merghem,<sup>3</sup>  
Carmen Gomez Carbonell,<sup>3</sup> Aristide Lemaître,<sup>3</sup> and François Dubin<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>*Sorbonne Universités, UPMC Univ. Paris 06, CNRS-UMR 7588, Institut des NanoSciences de Paris,  
4 Place Jussieu, F-75005 Paris, France*

<sup>2</sup>*ICFO-The Institute of Photonic Sciences, Av. Carl Friedrich Gauss, num. 3, 08860 Castelldefels, Spain*

<sup>3</sup>*Laboratoire de Photonique et Nanostructures, LPN/CNRS, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France*

(Received 26 July 2016; published 23 March 2017; publisher error corrected 24 March 2017)

We study spatially indirect excitons of GaAs quantum wells, confined in a  $10\ \mu\text{m}$  electrostatic trap. Below a critical temperature of about 1 K, we detect macroscopic spatial coherence and quantized vortices in the weak photoluminescence emitted from the trap. These quantum signatures are restricted to a narrow range of density, in a dilute regime. They manifest the formation of a four-component superfluid, made by a low population of optically bright excitons coherently coupled to a dominant fraction of optically dark excitons.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.127402

Massive bosonic particles realize a rich variety of collective quantum phenomena where their underlying fermionic structure is nevertheless hardly observed [1,2]. For example, Bose-Einstein condensation of atomic gases is generally understood by neglecting the atoms fermionic nature. Semiconductor excitons, i.e., Coulomb-bound electron-hole pairs, constitute a class of composite bosons which contrasts with this behavior. Indeed, Combescot and co-workers have predicted that the fermionic structure of excitons leads to a multicomponent condensate, with optically active and inactive parts that are coherently coupled through electron and/or hole exchanges between excitons [3–5].

Widely studied GaAs quantum wells provide an interesting playground to demonstrate the predictions made by Combescot and co-workers, and then possibly conclude a fifty-year long quest for Bose-Einstein condensation of excitons [6–9]. Indeed, in GaAs quantum wells lowest energy excitonic states exhibit a total “spin” ( $\pm 1$ ) or ( $\pm 2$ ). These states are then optically active and inactive, respectively, dark states lying at the lowest energy. Neglecting exciton-exciton interactions, Bose-Einstein condensation then leads to a macroscopic occupation of dark states so that the condensate is completely inactive optically [3]. Beyond a critical density, however, exciton-exciton interactions can dress the many-body ground state. Fermion exchanges then become crucial because they can coherently convert opposite spin dark excitons into opposite spin bright ones [10]. Thus, a small bright component is possibly introduced coherently into the dark condensate [4,5]. This results in a four-component many-body phase, which is gray, i.e., poorly active optically but possibly signaled by its weak photoluminescence coherent with the hidden dark part.

The dominantly dark nature of excitonic condensation manifests directly a high-temperature quantum phase transition. Indeed, in wide GaAs quantum wells the energy

splitting between bright and dark states is of the order of  $\mu\text{eV}$  [11], i.e., small compared to the thermal energy ( $\sim 2k_B$ ) at the condensation threshold [12]. As a result, a macroscopic population of dark excitons violates classical expectations. This point of view has long been overlooked by research of a condensate of bright excitons [8,13–15], until recent works have instead pointed out experimentally the role played by dark states below a few Kelvin. These studies were realized with long-lived spatially indirect excitons [16,17], engineered by enforcing a spatial separation between electrons and holes, for instance, by confining them in two adjacent GaAs quantum wells. Thus, a darkening of the photoluminescence has been reported below a few Kelvin [18]. Macroscopic spatial coherence of an anomalously dark gas has also been observed at sub-Kelvin temperatures [19].

Very recently, we have reported an important step towards unambiguous signatures for the dark state condensation of GaAs excitons [20]. Precisely, we have shown that indirect excitons can be confined in a  $10\ \mu\text{m}$  electrostatic trap and studied at controlled densities and temperatures, in a regime of vanishingly small inhomogeneous broadening. This degree of control, never achieved before to the best of our knowledge, is necessary to evaluate the occupation of bright and dark states free from experimental uncertainties. Thus, we have shown unambiguously that the photoluminescence emission quenches below a critical temperature of about 1 K, when  $\sim 10^4$  indirect excitons are trapped [20]. The quenching was interpreted as the manifestation for the dark state condensation; however, the exact nature of the quantum phase remained inaccessible to these experiments relying on photoluminescence spectroscopy.

In this Letter, we report time and spatially resolved interferometry of the photoluminescence emitted by indirect excitons confined in a  $10\ \mu\text{m}$  trap, down to the regime of photoluminescence quenching. Below a critical

temperature of about 1 K, we demonstrate macroscopic spatial coherence and quantized vortices restricted to a small range of excitonic density, precisely in a dilute regime when  $10^4 - 2 \times 10^4$  excitons are confined in the trap. These superfluid signatures emerge for a population of bright excitons about 3 times smaller than the one of dark excitons. Our findings thus evidence quantitatively the theoretically predicted gray condensation of indirect excitons [4]. This shows that bilayer GaAs heterostructures, either studied by photoluminescence [23–28] or transport techniques [29–32], open a versatile platform to develop quantum control in semiconductors.

As illustrated in Fig. 1(a), our experiments rely on a 100 ns long laser pulse that loads indirect excitons in a shallow electrostatic trap. The latter is realized by controlling the electric field in the plane of two 8 nm GaAs quantum wells, where photoinjected electrons and holes are

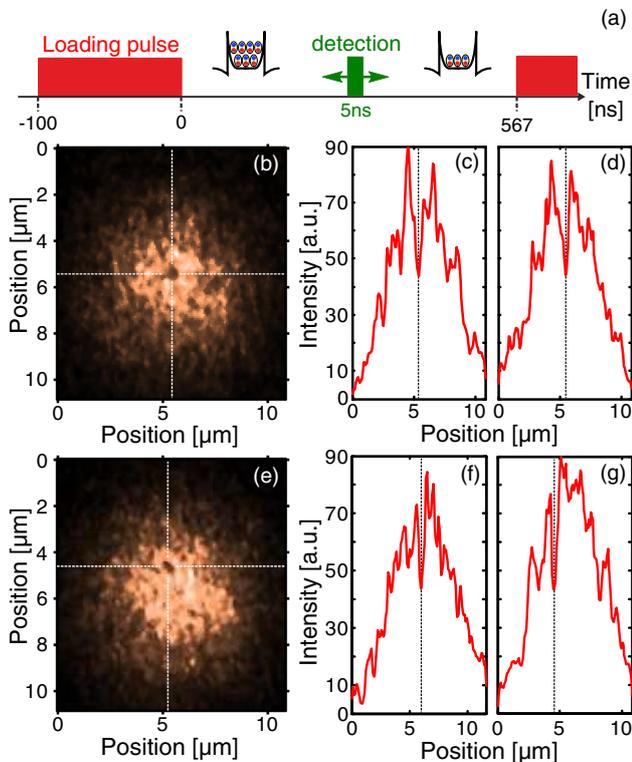


FIG. 1. (a) A 100 ns long loading laser pulse injects indirect excitons in a  $10 \mu\text{m}$  electrostatic trap. The reemitted photoluminescence is analyzed in a 5 ns long detection window, at a variable delay to the end of the loading pulse, the sequence being repeated at 1.5 MHz for 10–20 s typical acquisition times. (b)–(e) Photoluminescence emitted from the trap, at  $T_b = 330 \text{ mK}$ , and for a delay of 150 ns so that the number of trapped excitons is  $\sim 2 \times 10^4$ . Horizontal and vertical dashed lines highlight positions where we observe about 50% intensity loss along both the horizontal and vertical axis. This is shown by the profiles in (c)–(d) and (f)–(g) for the images shown in (b) and (e), respectively. Measurements have all been acquired successively for identical experimental settings, the acquisition time being 10 s.

confined (quantum wells being separated by a 4 nm AlGaAs barrier—see Supplemental Material [12] for more details). In the following, we emphasize the photoluminescence reemitted between 150 and 200 ns after extinction of the loading laser pulse. This delay range corresponds to about twice the indirect excitons optical lifetime [12]. During this time interval, the trapped gas is dilute and we estimate that the total number of excitons decreases from about  $2 \times 10^4$  to  $10^4$  [21,22]. Thus, we detect spectroscopically a highly nonclassical population of optically dark indirect excitons at sub-Kelvin bath temperatures [12,20]. At the same time, the photoluminescence emitted at the center of the trap is homogeneously broadened (see Fig. S1 of the Supplemental Material [12]).

In Fig. 1(b) we show the spatial profile of the photoluminescence emitted when  $\sim 2 \times 10^4$  excitons are trapped at a bath temperature  $T_b = 330 \text{ mK}$ . We strikingly note a very inhomogeneous intensity distribution, a dark spot being identified at the centre of the image, i.e., at the minimum of the trapping potential where the photoluminescence intensity is nevertheless the largest. At the center of the dark spot we observe a 50% loss of intensity [Figs. 1(c)–1(d)] corresponding to a twofold decrease of the population of bright excitons. This variation marks a deviation of  $\sim 5\sigma$  of the photoluminescence signal which is not interpretable in terms of intensity fluctuations.

In our experiments, the unambiguous detection of dark spots, as in Fig. 1(b), requires precise experimental settings. It is mostly achieved around the center of the trap, at sub-Kelvin bath temperatures and for less than about  $4 \times 10^4$  confined excitons, that is later than 120 ns after extinction of the loading pulse. Experimentally, a statistically unambiguous detection of dark spots resumes to a tradeoff between the signal to noise ratio and the number of individual realizations that we average, that is the acquisition time. The latter can not exceed about 10 s, because at  $T_b = 330 \text{ mK}$  dark spots emerge at uncorrelated positions during unchanged experimental settings. This behavior is signaled by comparing the emission profiles shown in Figs. 1(b) and 1(e). Both were recorded successively and in the same conditions, nevertheless they exhibit intensity losses localized at distinct positions in the central region of the trap.

We interpret the dark spots in the photoluminescence as a direct manifestation for the disorder of our electrostatic confinement. In Ref. [20] we have already highlighted that the trapping potential fluctuates during our experiments. The level of electrostatic disorder is such that it leads to stochastic variations of the photoluminescence spectral width, from  $\sim 300 \mu\text{eV}$  to  $\sim 1 \text{ meV}$  and within a time scale of a few seconds at  $T_b = 330 \text{ mK}$ . However, the electrostatic disorder can be turned into an advantage to signal quantum fingerprints for the regime of photoluminescence quenching [20]. Indeed, defects of the confining potential are energetically favorable positions to localize quantized

vortices and thus reveal a superfluid behavior. Vortices could then remain pinned in the trapping potential, the only situation to actually detect them by our experiments which rely on averaging  $\sim 10^7$  single-shot images during 10 s.

To assess whether dark spots detected at the center of the trap can manifest quantized vortices pinned by electrostatic disorder, we analyzed the spatial coherence of the photoluminescence with a Mach-Zehnder interferometer. The interferometer is stabilized with a vanishing path length difference between its two arms, one of which horizontally displaces its output by  $2\ \mu\text{m}$  compared to the other arm [19], i.e., by 10 times the thermal wavelength of excitons at our lowest bath temperature. Because of a vertical tilt angle deliberately introduced between the two arms, a condensate with complete long-range order leads to horizontally aligned interference fringes [Fig. 2(a)]. A vortex pinned around the center of such a condensate then appears through the inclusion of a “ring” in the central bright fringe, as shown in Fig. 2(b). This pattern is understood by noting that on each side of the ring the vortex and its shifted image interfere with  $2\ \mu\text{m}$  distant regions where the phase is well defined. Forklike dislocations are thus created at these two locations since the phase of the wave function winds by  $2\pi$  around the core of a vortex [1,2]. The superposition of the two mirrored and shifted forks leads

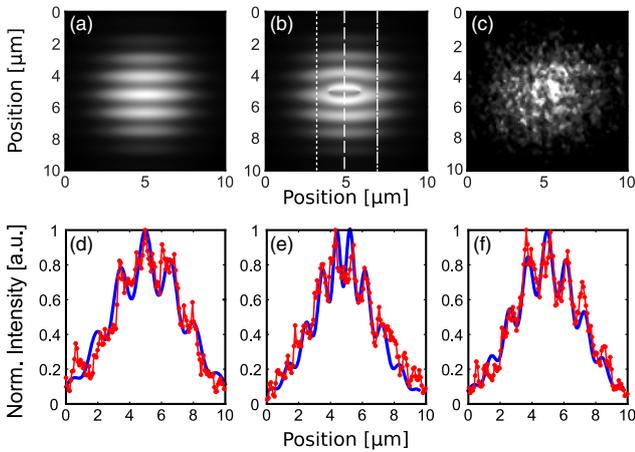


FIG. 2. Simulation of the interference pattern for a condensate with complete long-range order in the trap (a), and for a condensate constraining one quantized vortex at the center of the trap (b). Two phase singularities are observed in the latter case, on each side of a ring-shaped interference fringe. (c) Interference pattern measured when  $\sim 2 \times 10^4$  excitons are confined in the trap at  $T_b = 330$  mK. These experiments were realized in the same conditions as for the measurements shown in Fig. 1(b). (d)–(f) Red points show the interference profiles measured, as highlighted in (b), at the center of the ring (e), on its left (d) and right (f). The solid blue lines display the patterns simulated by modulating the profile of the photoluminescence intensity with an interference visibility equal to 23%, the interference contrast possibly varying from  $\sim 12\%$  to  $45\%$  in our studies.

then to the ring shown in Fig. 2(b), making this interference pattern topologically recognizable.

Figure 2(c) shows an interference pattern measured in the same conditions as for the experiments of Fig. 1(b). Remarkably, this observation agrees quantitatively with the simulation for a condensate having one quantized vortex pinned at the center of the trap. This is shown in Figs. 2(d)–2(f) where the interference profiles taken at the center of the ring (e) and on its left and right, (d) and (f), respectively, are reproduced by modulating the photoluminescence intensity profile with 23% interference visibility. The contrast providing the fraction of bright excitons in the superfluid phase [33], we deduce that about one third of bright excitons evolve in a quantum condensed state for these experiments. Let us then stress that the results shown in Fig. 2(c) are obtained by postselecting a particular realization out of successive acquisitions, measured all under the same conditions. Such a postselection is necessary because our studies suffer from electrostatic fluctuations. In fact, it is only for a particular confinement landscape that an individual vortex is possibly revealed, as in Fig. 2(c). The electrostatic trapping potential has to be sufficiently regular for a superfluid to possibly form, and exhibit a defect capable to localize a single vortex around the center of trap, the position of this defect being stable all along the measurement time.

Without varying experimental conditions we also studied the evolution of quantum coherence while the exciton density varies in the trap. This is directly achieved by changing at the detection the delay to the end of the loading laser pulse [Fig. 1(a)]. To reach conclusions that are not limited by potential fluctuations during our measurements, we successively recorded a set of 20 interference patterns, every 10 ns after the loading pulse. Figure 3(a) shows that for delays shorter than 150 ns, i.e., when the trap confines more than about  $2 \times 10^4$  indirect excitons, interference fringes are not resolved in the photoluminescence. By contrast, from 150 to 200 ns after optical loading, i.e., when the population of excitons in the trap decreases from  $2 \times 10^4$  to  $10^4$ , Figs. 3(b), 3(c) show that bright excitons exhibit macroscopic spatial coherence: interference fringes are clearly resolved in patterns that cover the center of the trap, i.e., an approximately  $5 \times 5\ \mu\text{m}^2$  region. At longer delays ( $\gtrsim 200$  ns), however, interference fringes are not detected clearly in our experiments.

The absence of interference pattern when the trap confines less than about  $10^4$  excitons is not very surprising. Indeed, in this regime repulsive interactions between excitons yield a low mean-field energy, of the order of potential fluctuations ( $\sim 500\ \mu\text{eV}$  [20]). The trapped gas is then probably too dilute to establish long-range coherence by screening electrostatic disorder [34]. On the other hand, it is more surprising that quantum coherence is not observed beyond a maximum of about  $2 \times 10^4$  particles in the trap. Yet, this limit lies well in the dilute regime

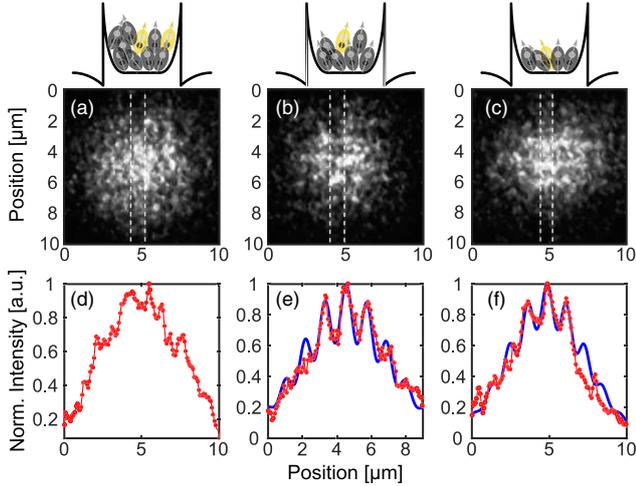


FIG. 3. (a)–(c) Interference patterns measured for a decreasing exciton density in the trap at  $T_b = 330$  mK, 120 (a), 150 (b), and 200 ns (c) after extinction of the loading laser pulse. We estimate that the total number of excitons is about  $4 \times 10^4$ ,  $2 \times 10^4$ , and  $10^4$ , respectively, the drawings on top illustrating the filling of the trap. The panels (d) to (f) show the corresponding interference profiles evaluated at the center of the trap (between the dashed lines). While in (d) our experiments do not reveal any interference, in (e) and (f) the interference visibility is 25% and 18%, respectively. Red points show experimental results and the blue lines the simulation obtained by modulating the intensity profile with the aforementioned visibilities.

which excludes the role of exciton ionization. However, excitons may already suffer from a too large deviation to ideal bosons beyond this range of density [35]. Also, one cannot exclude that beyond  $2 \times 10^4$  particles in the trap the strong dipolar interactions between excitons already lead to correlations which challenge the emergence of a collective quantum phase.

Last, we studied the dependence of the interference contrast as a function of the bath temperature. Let us restrict ourselves to the relevant range of delays to the loading laser pulse (150 to 200 ns). For the shortest delay, i.e., for  $\sim 2 \times 10^4$  indirect excitons in the trap, Fig. 4(a) shows that the photoluminescence exhibits long range order at the center of the trap, up to a critical temperature  $T_c \approx 1.3$  K. The interference visibility, i.e., the fraction of bright excitons contributing to the superfluid, follows well the theoretical scaling proportional to  $1 - (T_b/T_c)^2$  for two-dimensional particles in a trap [36]. Furthermore, Fig. 4(b) shows that  $T_c \sim 1$  K when the density is decreased by around twofold, i.e., at a delay of 200 ns after the loading pulse. This decrease of  $T_c$  is expected [36]; however, quantitative conclusions are difficult to raise since our experiments are limited by the weak photoluminescence intensity. As underlined in Fig. 4, our measurements suffer from a signal-to-noise ratio of less than 10, which leads to a minimum threshold for our interferometric detection of

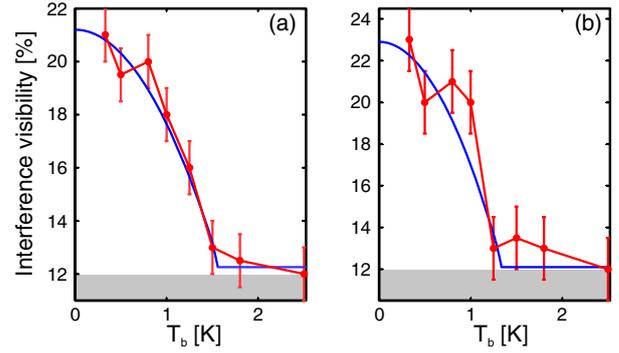


FIG. 4. Interference contrast measured at the center trap as a function of the bath temperature  $T_b$ . In (a) we show the visibilities measured in the regime where  $2 \times 10^4$  excitons occupy the trap, while the number of excitons is reduced to  $10^4$  for the measurements shown in (b). Solid blue lines show the theoretically expected  $1 - (T/T_c)^2$  scaling of the condensate fraction, with  $T_c \sim 1.3$  and 1 K for (a) and (b), respectively. In (a)–(b) the gray region marks the sensibility of our interferometric detection, i.e., the level fixed by the signal-to-noise ratio at the detection.

about 12%. Experiments displaying no evidence of spatial interference are then assigned 12% visibility.

Although quantum signatures are detected in the photoluminescence emitted by bright exciton states, crude estimations show that their occupation is too small to allow for a bright condensate independent from the underlying dominant population of optically dark excitons. Indeed, out of  $\sim 10^4$  excitons confined at  $T_b = 330$  mK, about 3/4 populate dark states [12]. By only considering the remaining fraction of bright excitons, the critical temperature for quantum degeneracy would be less than  $\sim 300$  mK [12]. A fragmented condensate of bright excitons would then contradict our experiments which, as shown in Fig. 4, reveal quantum coherence up to 1.3 K, as expected for a few  $10^4$  excitons in the trap. Considering limiting factors, such as the strength of electrostatic disorder, it is actually excluded that such a low density of bright indirect excitons possibly condenses alone [34]. This leads us to conclude that dark and bright states are coherently coupled in our experiments, leading to the theoretically predicted four-component superfluid of indirect excitons [4].

Finally, let us note that experiments with cold atomic gases have recently explored the superfluid quantum phase transition, by cooling a Bose gas at a variable rate. It was hence verified that the size of superfluid domains formed at the critical point decreases with the quenching rate [37,38], as prescribed by the Kibble-Zurek mechanism [39]. Here, we had to follow the opposite approach, because the bath temperature can be kept constant while the exciton density necessarily decreases slowly, due to radiative recombination. Thus, we observe that an initially dense gas, showing no evidence of long-range coherence, abruptly becomes superfluid below a critical density of a

few  $10^{10}$   $\text{cm}^{-2}$  at sub-Kelvin temperatures. In this regime, quantum signatures are resolved in the coherent photoluminescence radiated by the four-component and mostly dark condensate of excitons. Interestingly, this behavior is restricted for a narrow range of densities only.

The authors are grateful to Monique Combescot and Roland Combescot for their continuous support of this work and for many enlightening discussions. We would also like to thank Tristan Cren for stimulating discussions and Maciej Lewenstein for a critical reading of the manuscript. Our work has been financially supported by the projects INDEX (EU-FP7-ITN), XBEC (EU-FP7-CIG), and by OBELIX from the french Agency for Research (ANR-15-CE30-0020).

R. A. and M. B. contributed equally to this work.

\*Corresponding author.

francois\_dubin@icloud.com

- [1] A. J. Leggett, *Quantum Liquids* (Oxford University Press, New York, 2006).
- [2] *Bose-Einstein Condensation*, edited by L. P. Pitaevskii and S. Stringari (Oxford University Press, New York, 2003).
- [3] M. Combescot, O. Betbeder-Matibet, and R. Combescot, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 176403 (2007).
- [4] R. Combescot and M. Combescot, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 026401 (2012).
- [5] M. Combescot, R. Combescot, M. Alloing, and F. Dubin, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 090401 (2015).
- [6] J. M. Blatt, K. W. Böer, and W. Brandt, *Phys. Rev.* **126**, 1691 (1962).
- [7] L. V. Keldysh and A. N. Kozlov, *Sov. Phys. JETP* **27**, 521 (1968).
- [8] R. Zimmerman, *Bose-Einstein Condensation of Excitons: Promise and Disappointment*, edited by A. L. Ivanov and S. G. Tikhodeev (Oxford University Press, New York, 2008).
- [9] M. Combescot, R. Combescot, and F. Dubin, *Rep. Prog. Phys.* (to be published).
- [10] M. Combescot and S. Y. Shiau, *Excitons and Cooper Pairs: Two Composite Bosons in Many-Body Physics* (Oxford Univ. Press, New York, 2016).
- [11] E. Blackwood, M. J. Snelling, R. T. Harley, S. R. Andrews, and C. T. B. Foxon, *Phys. Rev. B* **50**, 14246 (1994).
- [12] See Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.118.127402> for experimental details and theoretical estimates.
- [13] L. V. Butov, *JETP* **122**, 434 (2016), and references therein.
- [14] D. Snoke, *Physica Status Solidi B* **238**, 389 (2003), and references therein.
- [15] A. V. Gorbunov and V. B. Timofeev, *J. Low Temp. Phys.* **42**, 340 (2016).
- [16] Y. E. Lozovik and V. I. Yudson, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **71**, 738 (1976).
- [17] Y. E. Lozovik and O. L. Berman, *J. Exp. Theor. Phys.* **84**, 1027 (1997).
- [18] Y. Shilo, K. Cohen, B. Laikhtman, K. West, L. Pfeiffer, and R. Rapaport, *Nat. Commun.* **4**, 2335 (2013).
- [19] M. Alloing, M. Beian, M. Lewenstein, D. Fuster, Y. González, L. González, R. Combescot, M. Combescot, and F. Dubin, *Europhys. Lett.* **107**, 10012 (2014).
- [20] M. Beian *et al.*, [arXiv:1506.08020](https://arxiv.org/abs/1506.08020).
- [21] A. L. Ivanov, E. A. Muljarov, L. Mouchliadis, and R. Zimmermann, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 179701 (2010).
- [22] C. Schindler and R. Zimmermann, *Phys. Rev. B* **78**, 045313 (2008).
- [23] A. V. Gorbunov and V. B. Timofeev, *JETP Lett.* **84**, 329 (2006).
- [24] A. A. High, A. K. Thomas, G. Grosso, M. Remeika, A. T. Hammack, A. D. Meyertholen, M. M. Fogler, L. V. Butov, M. Hanson, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 087403 (2009).
- [25] M. Remeika, J. C. Graves, A. T. Hammack, A. D. Meyertholen, M. M. Fogler, L. V. Butov, M. Hanson, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 186803 (2009).
- [26] G. Schinner, J. Repp, E. Schubert, A. K. Rai, D. Reuter, A. D. Wieck, A. O. Govorov, A. W. Holleitner, and J. P. Kotthaus, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 127403 (2013).
- [27] K. Cohen, Y. Shilo, K. West, L. Pfeiffer, and R. Rapaport, *Nano Lett.* **16**, 3726 (2016).
- [28] M. Stern, V. Umansky, and I. Bar-Joseph, *Science* **343**, 55 (2014).
- [29] D. Nandi, A. D. K. Finck, J. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, *Nature (London)* **488**, 481 (2012).
- [30] X. Huang, W. Dietsche, M. Hauser, and K. von Klitzing, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 156802 (2012).
- [31] A. F. Croxall, K. DasGupta, C. A. Nicoll, M. Thangaraj, H. E. Beere, I. Farrer, D. A. Ritchie, and M. Pepper, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 246801 (2008).
- [32] J. A. Seamons, C. P. Morath, J. L. Reno, and M. P. Lilly, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 026804 (2009).
- [33] M. Naraschewski and R. J. Glauber, *Phys. Rev. A* **59**, 4595 (1999).
- [34] O. L. Berman, Y. E. Lozovik, D. W. Snoke, and R. D. Coalson, *Phys. Rev. B* **70**, 235310 (2004).
- [35] M. Combescot and C. Tanguy, *Europhys. Lett.* **55**, 390 (2001).
- [36] I. Bloch, J. Dalibard, and W. Zwerger, *Rev. Mod. Phys.* **80**, 885 (2008).
- [37] C. N. Weiler, T. W. Neely, D. R. Scherer, A. S. Bradley, M. J. Davis, and B. P. Anderson, *Nature (London)* **455**, 948 (2008).
- [38] N. Navon, A. L. Gaunt, R. P. Smith, and Z. Hadzibabic, *Science* **347**, 167 (2015).
- [39] W. H. Zurek, *Phys. Rep.* **276**, 177 (1996).

# Supplementary Materials for "Quantised Vortices and Four-Component Superfluidity of Semiconductor Excitons"

Romain Anankine<sup>1,\*</sup>, Mussie Beian<sup>1,2,\*</sup>, Suzanne Dang<sup>1</sup>, Mathieu Alloing<sup>1</sup>, Edmond Cambri<sup>3</sup>,  
Kamel Merghem<sup>3</sup>, Carmen Gomez Carbonell<sup>3</sup>, Aristide Lemaître<sup>3</sup> and François Dubin<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> UPMC Univ Paris 06, CNRS-UMR 7588, Institut des NanoSciences de Paris, 4 Place Jussieu, F-75005 Paris, France

<sup>2</sup> ICFO-The Institute of Photonic Sciences, Av. Carl Friedrich Gauss, num. 3, 08860 Castelldefels, Spain

<sup>3</sup> Laboratoire de Photonique et Nanostructures, LPN/CNRS, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France and  
\* contributed equally

PACS numbers: 03.75.Lm,03.75.Mn,73.63.Hs,78.47.jd

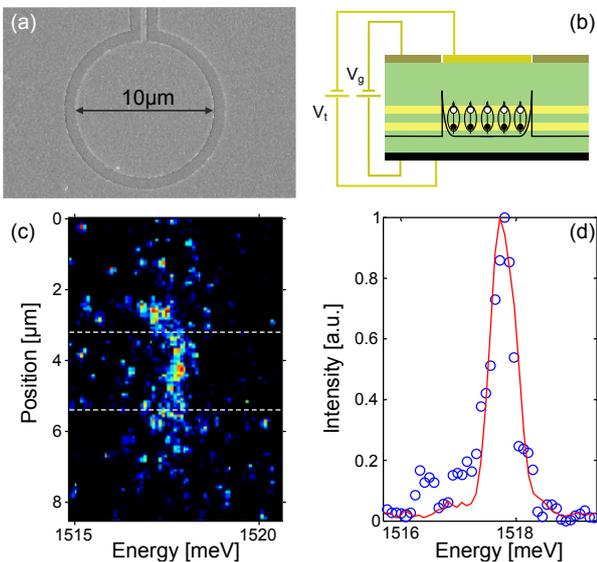
## I. SAMPLE STRUCTURE AND DETAILS OF THE ELECTROSTATIC TRAP

The sample studied here is identical to the one probed in Ref. [1]. It mainly consists of two 8 nm wide GaAs quantum wells which are separated by a 4 nm AlGaAs barrier layer. The two coupled quantum wells (CQWs) are positioned 150 nm above the n-doped GaAs layer that acts as bottom electrode of the field-effect device embedding the CQWs. To realise a 10  $\mu\text{m}$  wide electrostatic trap, we use a set of 2 semi-transparent and metallic electrodes deposited on the surface of the field-effect device, i.e., 900 nm above the CQWs. In this geometry, the components of the electric-field applied by the gate electrodes are minimised in the plane of the CQWs which prevents undesired exciton dissociation.

bind by Coulomb attraction in this way forming spatially indirect excitons characterised by electric dipoles aligned with the externally applied electric field. In (b), we also sketch the profile of the hollow-trap by the thin solid black line. (c) Spatially resolved photoluminescence spectrum recorded at  $T_b=330$  mK for the same experimental conditions as for the measurements shown in Fig. 1. In (d), we show the corresponding spectral-profile, evaluated between the dashed lines shown in (c), together with our spectral resolution measured with a Hg line (red).

The general structure of our electrostatic trap is illustrated in Fig. S1. The trap is engineered by a circular 10  $\mu\text{m}$  wide central electrode separated by a 200 nm gap from its outer guard gate. Far from the edges of the electrodes, e.g., at the centre of the trap or under the guard, we have verified that the electric field amplitude perpendicular to the CQWs is accurately controlled by the static potentials we externally applied to each electrode. By imposing a bias onto the trap gate larger than the one applied onto the guard gate, deep electrostatic traps are formed for indirect excitons (IXs) [2, 3]. Indeed, Fig. S1 shows that IXs are characterised by their intrinsic electric dipole aligned perpendicular to the CQWs. They thus behave as high-field seekers, that is, they are attracted towards the regions of the CQWs where the perpendicular electric field is the largest.

Hard walls to confine indirect excitons in a shallow trapping potential can also be engineered with our device. Indeed, electrostatic barriers form spontaneously under the gap between our surface electrodes. We have verified that the barrier height amounts to at least 10 meV for IXs, even if the trap and the guard gate are polarised at the same potential. Under the trap gate the electrostatic confinement is then shallow and regular, that is why we have decided to apply the same bias to the trap and guard gates. We found a particular value of  $\sim 4.8$  V for which the dark current of the device was vanishingly small while the steady-state photo-current would not exceed 100 pA for our measurements at  $T_b=330$  mK. Fine experimental settings were motivated by the search for the spectrally narrowest photoluminescence. In particular, this implied that we aimed at the most stable conditions with the smallest amount of electrostatic fluctuations during our measurement sequence (15-30 seconds for a single acqui-

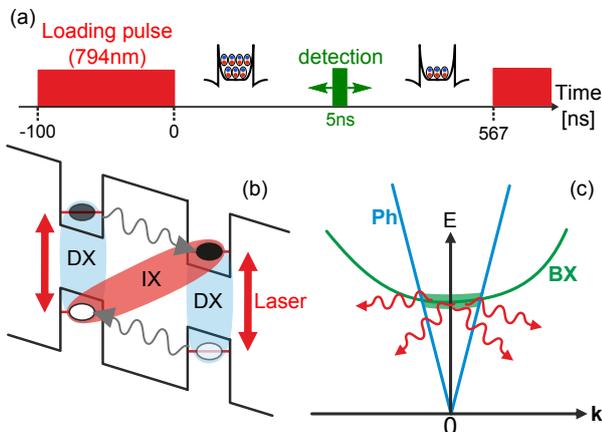


**Fig. S1:** (a) Electron microscope image of the two surface electrodes controlling our electrostatic trap. In our experiments these electrodes are biased at about  $-4.8$  V; so, we realise a hollow-trap, i.e., a shallow trap characterised by the barrier due to the potential rectification at the 200 nm gap between the surface electrodes. (b) Side-cut of our sample structure showing the two coupled quantum wells (in yellow) embedded in the field-effect device. Electrons and holes confined in each layer

sition). This approach brought us to regimes where the photoluminescence spectra are limited by our spectral resolution across the center of the trap when we observe superfluid signatures. This is shown in Fig. S1.c-d that displays a spatially resolved photoluminescence emission recorded under the same conditions as for the measurements shown in Fig. 1.b of the main text.

## II. EXPERIMENTAL PROCEDURE

As in previous works, to optically inject electrons and holes in the CQWs we used a pulsed laser excitation tuned at resonance with the absorption of direct excitons of the two quantum wells. As shown in Fig. S2, each pulse loads the two quantum wells with both electrons and holes. The electric field applied perpendicular to the heterostructure favours carriers tunnel towards their respective minimum energy states which lie in different quantum wells. As a result, spatially indirect excitons are formed by the Coulomb attraction between electrons in one layer and holes in the other layer. Indirect excitons are formed in few tens of ns and constitute the majority carriers already at the end of the laser excitation. In the case of our experiments probing a finite size electrostatic trap, we have shaped the spatial profile of the laser excitation such that it homogeneously covers the bottom of the trap which is about  $5 \mu\text{m}$  wide. At the same time we ensured that the illumination outside the trap was negligible.

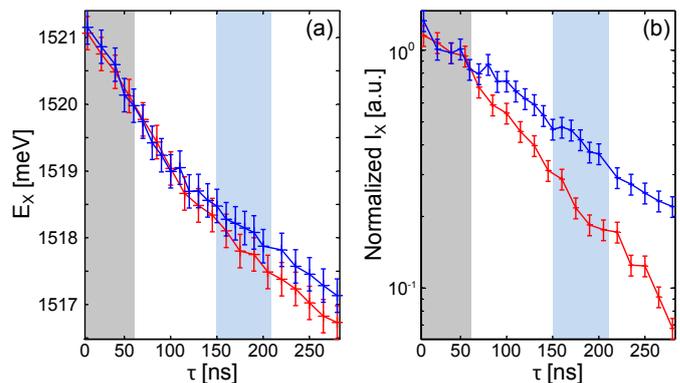


**Fig. S2:** (a) Our experiments rely on a 100 ns long loading pulse while the exciton dynamics is monitored in a 5 ns long time window which follows each laser pulse at a variable delay. (b) Sketch of the optical injection of indirect excitons IXs, through the resonant excitation of the direct exciton (DX) absorption of each quantum well. IXs are created once optically injected electronic carriers have tunnelled towards minimum energy states (wavy grey lines). (c) The reemitted photoluminescence (wavy red arrows) is only due to the radiative recombination of lowest energy ( $k \sim 0$ ) bright excitons (BX), i.e., lying at an energy smaller than the intersection between bright excitonic and photonic bands, BX and Ph respectively,

occurring at  $E \sim 1.5 k_B$ .

## III. QUANTUM DARKENING AND DENSITY OF COLD INDIRECT EXCITONS

Figure S2 shows that our experiments rely on a 100 ns long laser excitation which is repeated at a rate of 1.5 MHz. All measurements have been performed with a mean optical power equal to 700 nW, the incident laser power being actively stabilised in our studies. The photoluminescence emitted from the trap after the optical loading phase was directed towards an imaging spectrometer that allows us to study the spatial profile of the emission either in real or frequency space. As detailed in Ref. [1], in the latter case we monitor both the energy and integrated intensity of the photoluminescence in order to estimate the fraction of bright and dark indirect excitons in the trap. The dynamics of the photoluminescence energy  $E_X$  reflects the variation of the total exciton density  $n_X$ , i.e., including both bright and dark excitons. Indeed, indirect excitons experience repulsive dipolar interactions in the dilute regime such that  $E_X$  scales as  $u_0 n_X$  at first order [4, 5],  $u_0 \sim 1 \text{meV}$  for the density  $n_X$  in  $10^{10} \text{cm}^{-2}$  units at which the trap confines  $\sim 10^4$  excitons. On the other hand, the sole fraction of bright excitons at lowest energy is directly given by the integrated intensity of the photoluminescence  $I_X$ . Indeed, only bright indirect excitons with a kinetic energy lower than about 1.5 K contribute to the photoluminescence. This region of the excitonic band is usually referred to as the light cone and reduced to excitons with a vanishing in-plane momentum  $k$  (see Fig.S2).



**Fig. S3:** (a) Dynamics of the photoluminescence energy  $E_X$ , measured after the loading laser pulse at the centre of the trap at  $T_b = 330 \text{ mK}$  and  $2.5 \text{ K}$ , red and blue respectively. (b) Integrated intensity  $I_X$  for the same experiments. In (a-b) the initial grey region underlines a transient regime where we can not exclude that the trapped gas is not fully thermalised and also subject to a transient photocurrent. The light-blue regions underline the regime where we observe superfluid signatures.

Figure S3 shows the dynamics of both  $I_X$  and  $E_X$  starting from 5 ns after the extinction of the loading laser pulse. In Fig. S3, we compare two limiting cases, namely a thermal gas of excitons realised at a bath temperature  $T_b=2.5$  K, and a quantum gas of excitons realised at  $T_b=330$  mK. These two measurements are performed under the same experimental conditions, that is, the same laser mean excitation-power and the same voltages applied onto the gate electrodes. However, these measurements differ by the anomalous darkening in the dynamics of  $I_X$  which is observed at the lowest temperature. Indeed, Fig. S3.b shows that the integrated intensity decays 50% faster at  $T_b=330$  mK than at 2.5 K. Precisely, after a transient regime lasting about 50 ns after the laser excitation,  $I_X$  has a characteristic decay time of  $\sim 100$  and 160 ns at 330 mK and 2.5 K respectively. Thus, 150-200 ns after the laser pulse  $I_X$  is 2 times weaker at  $T_b=330$  mK revealing a strong depletion of coldest bright indirect excitons. By contrast, Fig. S3.a shows that at  $T_b=330$  mK and 2.5 K the photoluminescence energy  $E_X$  follows close dynamics which signals that the total density in the trap varies weakly between these two measurements. As detailed in Ref [1], these combined observations reveal without ambiguity that a dominant fraction of IXs populates optically dark states at  $T_b=330$  mK. The large imbalance between bright and dark states occupation is highly non-classical (75% in dark states) because the energy splitting between these states reduces to a few  $\mu\text{eV}$  in our heterostructure [6], that is about 10-fold less than the thermal energy at our lowest bath temperature.

#### IV. INTERFEROMETRIC MEASUREMENTS

To quantify the first order spatial coherence of bright indirect excitons we analyzed the photoluminescence emitted from the trap with a Mach-Zehnder interferometer. The photoluminescence was splitted between the arms 1 and 2 of the interferometer, and a vertical tilt angle  $\alpha$  was deliberately introduced between the outputs of the two arms. Hence, interference fringes are aligned horizontally,  $\alpha$  being set such that the interference period is  $\approx 1.5 \mu\text{m}$ . From the spatial auto-correlation, the outputs produced by the two arms are laterally shifted by  $\delta_x = 2 \mu\text{m}$  while the path length difference is stabilized close to zero. This allows us to derive the degree of spatial coherence of bright IXs which thermal de Broglie wavelength is bound to less than 300 nm for  $10^4$  excitons in the trap at  $T_b=330$  mK. Thus, a thermal gas of excitons leads to a vanishing interference contrast, as expected and verified at  $T_b \sim 2\text{K}$  in Fig. 4 of the main text.

The output of our interferometer,  $I_{12}$ , can be modelled as

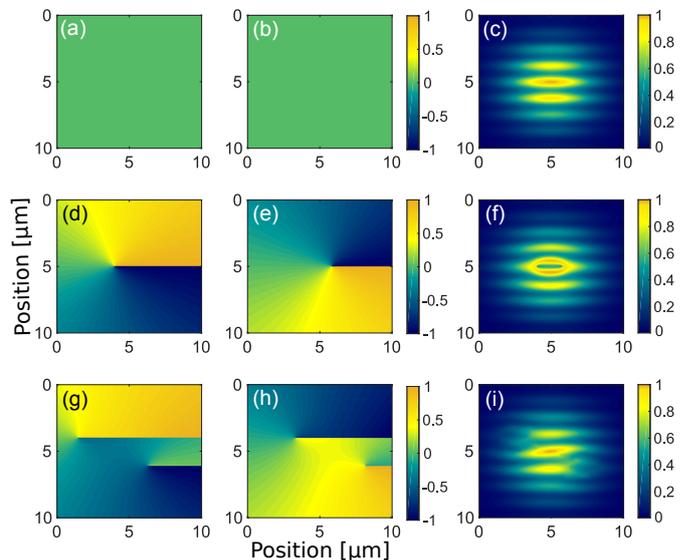
$$I_{12}(\mathbf{r}; \delta_x) = \langle |\psi_0(\mathbf{r}, t) + e^{i(q_\alpha y + \phi)} \psi_0(\mathbf{r} + \delta_x, t)|^2 \rangle_t$$

where  $\psi_0(\mathbf{r})$  is the photoluminescence field which reflects

the bright excitons wave function,  $\langle \dots \rangle_t$  denotes the time averaging,  $\mathbf{r}=(x,y)$  is the coordinate in the plane of the quantum well and  $q_\alpha=2\pi\lambda^{-1}\sin(\alpha)$  with  $\lambda$  being the emission wavelength. If we denote the output of the two arms by  $I_1$  and  $I_2$  respectively, we directly deduce that  $I_{\text{int}}=(I_{12}-I_1-I_2)/2\sqrt{I_1 I_2}$  reveals the first order coherence function of indirect excitons, defined as

$$g^{(1)}(\mathbf{r}; \delta_x) = \frac{\langle \psi_0^*(\mathbf{r}, t) \psi_0(\mathbf{r} + \delta_x, t) \rangle_t}{(\langle |\psi_0(\mathbf{r}, t)|^2 \rangle_t \langle |\psi_0(\mathbf{r} + \delta_x, t)|^2 \rangle_t)^{1/2}}.$$

Indeed,  $I_{\text{int}}(\mathbf{r}; \delta_x) = \cos(q_\alpha y + \phi + \phi_{\mathbf{r}}) |g^{(1)}(\mathbf{r}; \delta_x)|$  where  $\phi_{\mathbf{r}}$  is the phase of  $g^{(1)}$ . Thus, we recover that interference fringes have a visibility controlled by the degree of spatial coherence of bright excitons. On the other hand, the position of the interference fringes reveals the argument of the  $g^{(1)}$ -function, i.e., the phase difference between the interfering wave functions.



**Fig. S4:** (a-b) Phase distribution for the photoluminescence fields entering the  $g^{(1)}$ -function, computed for a condensate with complete long-range order. The panel (c) shows the resulting interference profile. (d-e) Phase profiles of interfering fields for a condensate constraining one vortex. The panel (f) shows the resulting interference pattern. (g-h) Phase profiles for an average of 2 vortices which explore a few microns extended regions. The position of each vortex is given by the locations of phase singularities in (g-h). In (i) we note that the diffusion of vortices blurs and also bends interference fringes.

Interference patterns are directly simulated by modulating the spatial profile of the photoluminescence emission, with the above expression for  $I_{\text{int}}$ . Starting with the simplest case, Figure S4.c considers a condensate of bright excitons with complete long-range spatial coherence. As a result, the phase of  $\psi_0$  is uniform and the output interference pattern consists of horizontally aligned fringes. Figure S4.f shows a second scenario where one quantised vortex is constrained at the center of such a condensate. As mentioned in the main text,

the phase of  $\psi_0$  then winds by  $2\pi$  around the core of the vortex. The interference between such singularity and its shifted mirror image then leads to the "ring" fringe shown in Fig. S4.f. Finally, in Fig. S4.g-i, we study a situation which probably matches best the conditions under which our experiments are performed. Indeed, we consider two vortices that can diffuse over a few microns in the condensate. Fig. S4.i shows, as expected, that moving vortices tend to blur the interference signal, in a fashion which resembles the measurements shown in Fig. 3.b.

#### – Analysis of interference patterns

In the main text we only report bare interference measurements, i.e. without applying any correction to the experimental data. These latter are simulated by fitting the two-dimensional profile of the photoluminescence intensity  $\langle |\psi_0(\mathbf{r})|^2 \rangle_t$  which is then modulated according to the above expression for  $I_{\text{int}}$ . The interference visibility  $|g^{(1)}|$  is then extracted by reproducing the profiles taken along the vertical axis perpendicular to the fringe direction.

Let us finally note that we have set the Mach-Zehnder interferometer for  $\delta_x = 2 \mu\text{m}$ , first because the condensate extends over a region of about  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ . Also, this value lies well above our optical resolution ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ) which is limited by mechanical vibrations in our cryostat. Thus, for  $\delta_x = 2 \mu\text{m}$  interference fringes form accros a region which is sufficiently large to be quantitatively analysed. For larger values of  $\delta_x$ , however, the overlap between interfering regions is reduced further which hardens a quantitative discussion of quantum coherence.

## V. ESTIMATIONS FOR BOSE-EINSTEIN CONDENSATION OF SPATIALLY INDIRECT EXCITONS

In GaAs coupled quantum wells, indirect excitons are characterised by an effective mass  $M_X$  that is of the order of  $0.2m_0$ ,  $m_0$  being the electron mass. In addition, indirect excitons have a Bohr radius  $a_X$  estimated to be  $\sim 20 \text{ nm}$  for our heterostructure and experimental settings. The regime in which we have typically  $10^4$  excitons in a  $10 \mu\text{m}$  wide trap is dilute since  $n_X a_X^2 \lesssim 0.2$ . The inter-exciton mean separation is then large compared to the Bohr radius.

By neglecting exciton-exciton interactions and fermion exchanges, we can get a crude estimate of the temperature  $T_0$  for quantum degeneracy of a homogeneous gas of indirect excitons. For that purpose, we equalise the thermal de Broglie wavelength to the inter-particle distance. This leads to  $k_B T_0 = n_X (2\pi\hbar^2) / (g M_X)$ , where  $g$  denotes the degeneracy of the considered excitonic states. If we first consider  $10^4$  dark excitons, i.e.  $n_X = 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , for which  $g=2$  and thereby  $T_0 \sim 1.3\text{K}$ . By contrast, if we consider the fraction of bright excitons, which is damped to at most  $3 \cdot 10^3$  in our measurements, the critical temperature drops by at least three-fold and then lies in the range of our lowest bath temperature. Our measurements being notably limited by electrostatic fluctuations of the trapping potential, with an amplitude of about  $500 \mu\text{eV}$ , it is excluded [7] that bright excitons can condense independently from the underlying condensate of dark excitons.

- 
- [1] M. Beian et al., arXiv:1506.08020 (2015)  
 [2] A. A. High et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 087403 (2009)  
 [3] G. Schinner et al., Phys. Rev. Lett. **110**, 127403 (2013)  
 [4] A. L. Ivanov, E. A. Muljarov, L. Mouchliadis, and R. Zimmermann, Phys. Rev. Lett. **104**, 179701 (2010)  
 [5] C. Schindler and R. Zimmermann, Phys. Rev. B **78**,

- 045313 (2008)  
 [6] E. Blackwood et al., Phys. Rev. B **50**, 14246 (1994)  
 [7] O.L. Berman, Y.E. Lozovik, D.W. Snoke, and R.D. Coalson, Phys. Rev. B **70**, 235310 (2004)

# Temporal Coherence of a Homogeneously Broadened Gas of Spatially Indirect Excitons and "Gray" Bose-Einstein Condensation

Romain Anankine<sup>1</sup>, Suzanne Dang<sup>1</sup>, Mussie Beian<sup>1,2</sup>, Edmond Cambri<sup>3</sup>, Kamel Merghem<sup>3</sup>, Carmen Gomez Carbonell<sup>3</sup>, Aristide Lemaître<sup>3</sup> and François Dubin<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Sorbonne Université UPMC, CNRS-UMR 7588,

*Institut des NanoSciences de Paris, 4 Place Jussieu, F-75005 Paris, France*

<sup>2</sup> ICFO-The Institute of Photonic Sciences, Av. Carl Friedrich Gauss, num. 3, 08860 Castelldefels, Spain and

<sup>3</sup> Laboratoire de Photonique et Nanostructures, LPN/CNRS, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France

(Dated: April 12, 2017)

We study spatially indirect excitons of a GaAs double quantum well, confined in a 10  $\mu\text{m}$  wide electrostatic trap. We show that the photoluminescence radiated from the trap is homogeneously broadened in the dilute regime. Above a critical temperature of 1 Kelvin, its spectral width is about 500  $\mu\text{eV}$  and weakly varies with the exciton density. By contrast, the spectral width reduces by two-fold when excitons undergo a gray Bose-Einstein condensation, i.e. at sub-Kelvin temperatures. In this regime, we find evidence showing that the temporal coherence of the gray condensate is limited by its interaction with a low-concentration of residual excess charges.

In semiconductor physics, Bose-Einstein condensation of excitons, i.e. Coulomb bound electron-hole pairs, has received a large attention since original theoretical predictions were formulated in the 1960's [1–3]. At first, excitons were actually considered very promising, notably due to their low effective mass yielding a critical temperature for the quantum phase transition cryogenically accessible. However, the role of the excitons electronic structure was long overlooked [4], thus ruling out unambiguous experimental evidence for the quantum phase transition [5], until very recent works [6].

Widely studied GaAs heterostructures offer a model environment to study exciton condensation [5, 7]. Indeed, excitons have four accessible "spin" states in GaAs, two optically dark and two optically bright states, and strikingly the condensate is dominated by the occupation of dark ones [4, 8] which lie at the lowest energy [9, 10]. In fact, quantum signatures can only be observed directly, through a photoluminescence signal, above a threshold density when bright and dark states are coupled coherently by fermion exchanges between excitons. Thus, a small bright component is introduced into the condensate [11] which becomes gray and possibly detected through its weak photoluminescence [6, 12].

Among the fingerprints for the gray Bose-Einstein condensation, it is expected that a homogeneously broadened photoluminescence undergoes a sudden spectral narrowing at the condensation threshold [5]. This behaviour, which has never been observed to the best of our knowledge, is understood by noting that in the condensed phase optically bright excitons merely occupy lowest energy  $\mathbf{k}\sim 0$  states, directly coupled to photons. At sub-Kelvin temperatures when exciton-phonon interactions are negligible [13], the condensate coherence time becomes then limited by the rate of collisions scattering excitons to higher energy states that do not belong to the condensate wave-function. Interactions between condensed and thermal parts of a cold gas provide a first mechanism for that, as well as interactions between excitons and excess carriers which are strong in GaAs het-

erostructures [14].

In this Letter, we report time and spatially resolved interferometry to probe the temporal coherence of long-lived dipolar excitons confined in a 10  $\mu\text{m}$  trap. Fourier transform spectroscopy allows us to demonstrate that the trapped gas is homogeneously broadened. This provides a direct access, at the microscopic level, to the type of interactions experienced by excitons. Thus, we show that in the regime where excitons undergo a gray Bose-Einstein condensation [6, 8], e.g. below a critical temperature  $T_c \sim 1\text{K}$ , exciton-exciton interactions do not control the temporal coherence of the condensate, which, instead, is limited by interactions with a low concentration of residual charges. On the other hand, in the classical regime above  $T_c$ , the exciton temporal coherence is governed by both exciton-exciton and exciton-carrier interactions, with comparable contributions. More generally, our experiments verify that the gray condensation is signalled by a threshold increase of the photoluminescence temporal coherence, with an amplitude limited by the concentration of excess charges.

In the quest for excitons collective quantum phenomena, bilayer heterostructures were introduced at the end of the 1970's to separate electrons and holes and then engineer spatially indirect excitons [16]. These fulfill all the requirements to study Bose-Einstein condensation: They exhibit a long lifetime ( $\sim 100$  ns) and reach thermal equilibrium down to sub-Kelvin bath temperatures [8, 17], i.e. the regime where quantum statistics is dominant. Indirect excitons also experience repulsive interactions preventing the formation of excitonic complexes unfavourable to quantum condensation. Indeed, they are characterised by a large permanent electric dipole, which allows to confine them by applying a spatially inhomogeneous electric field in the plane of a bilayer heterostructure [18–20].

Despite their unique physical properties, indirect excitons have mostly led to controversial explorations of collective phenomena [5]. The gaussian or asymmetric photoluminescence spectrum reported by most experi-

ments [21–26], with a few meV linewidth, constitutes a serious issue. Indeed, a homogeneously broadened photoluminescence is expected theoretically,  $\approx 200 \mu\text{eV}$  wide spectrally at a few Kelvin [15]. This ten-fold disagreement signals that experimental limitations currently prevent a quantitative understanding of cold gases at the microscopic level. Let us then note that this situation contrasts with earlier reports in GaAs quantum wells [14, 27], where a homogeneously broadened photoluminescence, 200-500  $\mu\text{eV}$  wide spectrally, was reported below a few Kelvin and in the dilute regime ( $\sim 10^{10}$  excitons per  $\text{cm}^2$ ).

As in previous works [6, 8], we study indirect excitons (IXs) made of electrons and holes confined in two 8 nm GaAs quantum wells separated by a 4 nm AlGaAs barrier. In our heterostructure IXs exhibit a long lifetime ( $\sim 100$  ns) and reach thermal equilibrium in a clean environment about 100 ns after optical injection, when a transient photocurrent ( $\lesssim 100$  pA D.C.) is mostly evacuated [8, 28]. In the following experiments, IXs are optically injected and confined in a 10  $\mu\text{m}$  electrostatic trap [28]. The latter is engineered by using two metallic electrodes deposited at the surface of the field-effect device embedding the double quantum well. We apply the same potential on both electrodes (-4.7 V), so that the 200 nm gap between them creates a rectification of potential leading to an electrostatic barrier, i.e. a hollow-trap [6].

To study the temporal coherence of bright IXs confined in the trap, we magnified the real image of the photoluminescence (PL) and sent it to a Mach-Zehnder interferometer. The PL is divided equally between a fixed and a mobile arm, and the two beams are superposed at the output of the interferometer, i.e. without any spatial displacement. Horizontal interference fringes are induced by a vertical tilt angle between the two outputs, of about  $25^\circ$ . We evaluate the temporal coherence of the PL by varying the longitudinal path length difference, i.e. by translating one arm by  $\delta L$ . The two outputs are then shifted temporally by  $\delta t = 2\delta L/c$ , where  $c$  is the speed of light in air, the path length difference being actively stabilised with  $\sim 20$  nm precision.

At the interferometer output, the contrast of the interference pattern measures directly the coherence time  $\tau_c$  of optically bright excitons. Indeed, the interference visibility is given by the modulus of the first-order correlation function  $|g^{(1)}(\delta t)| \propto |\langle \psi_0^*(\mathbf{r}, t) \psi_0(\mathbf{r}, t + \delta t) \rangle_t|$ . Here,  $\psi_0(\mathbf{r}, t)$  is the photoluminescence field which reflects the wave function of bright excitons with an in-plane momentum  $\mathbf{k} \sim 0$ , while  $\langle \dots \rangle_t$  denotes the time averaging and  $\mathbf{r} = (x, y)$  reads the coordinate in the plane of the electrostatic trap. For a homogeneously broadened gas, the  $g^{(1)}$ -function is exponentially decaying with  $\delta t$ , at a rate  $1/\tau_c$ . In a thermal regime above a few Kelvin,  $\tau_c$  is controlled by exciton-phonon interactions [13]; however, below a few-Kelvin, we expect a dramatic change because these interactions become inefficient.

Unlike studies realised with atomic gases [29], our experiments rely on accumulations over several millions

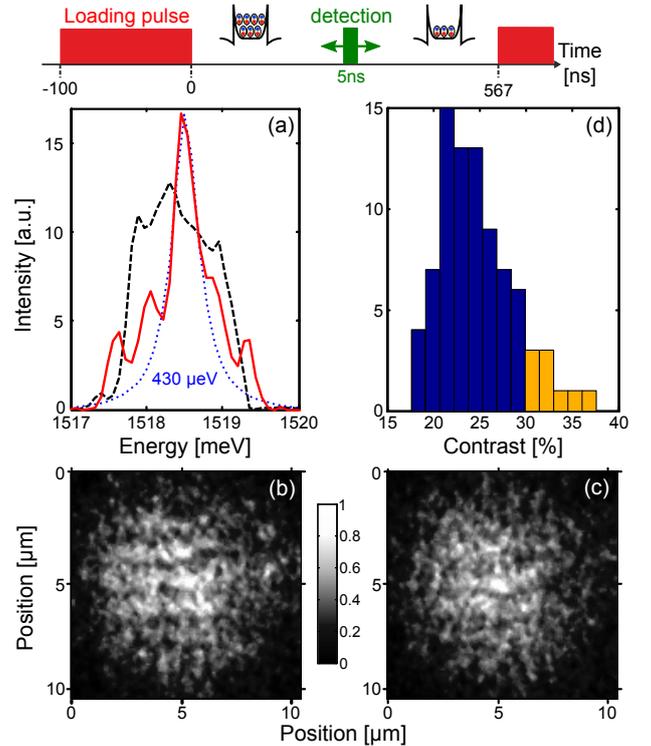


FIG. 1: Our experimental sequence starts with a 100 ns laser excitation loading indirect excitons in the trap. The reemitted photoluminescence is then analysed in a 5 ns long time interval, at a given delay to the end of the loading laser pulse so that the density in the trap is varied. The sequence is repeated at 1.5 MHz. (a) Spectrally resolved PL emitted across the center of the trap at  $T_b = 330$  mK. Measurements are realised during a 20-second long acquisition and for an exciton density  $n_X \sim 2.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . The sharp line is fitted with a Lorentzian shown by the dotted line (FWHM =  $430 \mu\text{eV}$ ), whereas the dashed line is anomalously broad ( $\sim 1$  meV). High contrast (b) and lower contrast (c) interference patterns measured for the same experimental conditions as in (a), but during a 12-second long acquisition, the interferometer path length difference being set to  $\delta t = 1.8$  ps. (d) Distribution of interference contrasts for a sample of 100 acquisitions measured in the same experimental conditions as in (b-c). The best 10% of these realisations is highlighted in yellow while the minimum contrast ( $\sim 15\%$ ) is set by the signal to noise ratio at the detection.

of single-shot realisations, during around 10 to 20 seconds, each realisation starting by a loading laser pulse after which the PL is interferometrically analysed (Fig.1). This approach is inevitable due to the weak photoluminescence signal radiated from the trap, but it constitutes a severe limitation. Indeed, we observe large spectral fluctuations, with a characteristic timescale of about 10 sec. Figure 1 illustrates these fluctuations at a bath temperature  $T_b = 330$  mK, by first displaying a spectrum consisting mostly of a central Lorentzian line (Fig.1a), its width being limited by the spectrometer resolution. By contrast, the spectrum obtained for a successive acquisition, taken under unchanged conditions, may be meV

broad with no recognisable shape (dashed line in Fig.1.a). In fact, this spectral diffusion is not very surprising since indirect excitons are characterised by their large electric dipole moment ( $\sim 500$  Debye). Accordingly, they are very sensitive to electrostatic noise, such as fluctuating electric fields or a fluctuating concentration of free carriers with which they interact strongly [5].

Spectral fluctuations are naturally also observed clearly in the interference of the PL, with actually better resolution since the acquisition time is reduced to  $\sim 10$  seconds once the PL is not filtered spectrally. For unchanged experimental settings, Fig.1.b shows that either high-contrast interference fringes are observed all across the center of the trap, or lower contrast ones (Fig.1.c). This behaviour is quantified in Fig. 1.d where we note that the interference visibility has a stochastic distribution for a statistical ensemble of 100 experiments, all performed under fixed conditions. To limit the influence of spectral fluctuations over the interpretation of our findings, in the following we only analyze realisations with highest visibility. Precisely, we average the contrasts measured for the best 10% of experimental realisations, post-selected for each experimental settings. Best realisations correspond to experiments where indirect excitons are confined in the most regular trapping potential, combined to a minimum amount of excess charges interacting with them. Post-selecting these optimum conditions is necessary to study the excitons gray condensation [6].

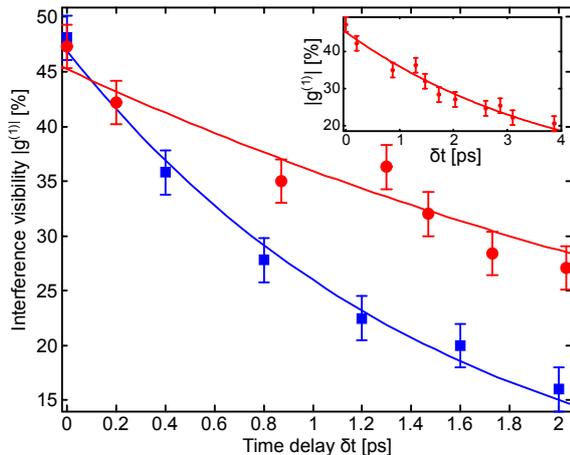


FIG. 2: Interference visibility measured along the center of the trap as a function of the time delay introduced in the interferometer. Measurements taken between  $T_b = 330$  mK (red circles) and 2.36 K (blue squares) all follow single exponential decays (solid lines). The insert displays the data at  $T_b = 330$  mK with an extended abscissa, fitted by a single exponential with a time decay of 4 ps.

In the dilute regime, i.e. for an exciton concentration  $n_X$  of about  $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  [28], Figure 2 quantifies the variation of the interference contrast along the center of the trap, as a function of the time delay  $\delta t$  introduced between the two arms of the interferometer. We note that the interference visibility follows a mono-

exponential decay  $e^{-|\delta t|/\tau_c}$ , at every bath temperature  $T_b$  below 2.36 K. According to the Wiener-Kintchine theorem [30], the photoluminescence spectrum then consists of a single Lorentzian. This shows that we study a homogeneously broadened gas which constitutes a major improvement compared to previous works [24, 26]. To the best of our knowledge, such a single Lorentzian PL profile had never been observed for a gas of indirect excitons. For the measurements shown in Figure 2, the photoluminescence spectral width  $\Gamma = 2\hbar/\tau_c$  reaches then  $550 \mu\text{eV}$  at  $T_b = 2.4$  K. This value is  $\sim 300 \mu\text{eV}$  greater than the theoretically expected linewidth due to exciton-exciton interactions [15], indicating that these latter are not the only mechanism governing the homogeneous broadening.

In the following, we study the photoluminescence coherence time as a function of the exciton density and bath temperature. For that purpose, we measured the interference contrast for  $\delta t = 1.8$  ps, thus retrieving  $\tau_c$  from the calibration of our interferometer (Fig.2). For our experiments, the exciton concentration is simply varied by changing the delay to the termination of the loading laser pulse [28], since the total density of excitons, including both bright and dark states, is constant at every bath temperature  $T_b \lesssim 3\text{K}$  for a given delay [8]. Figure 3 then shows that three regimes emerge: (i) In the most dilute regime, i.e. for longest delays to the end of the loading laser pulse, the interference contrast does not vary with  $T_b$ . This behaviour is consistent with a localisation of the gas, expected since in this range of densities the blueshift of the photoluminescence, i.e. the excitons mean interaction energy, is of the order of the electrostatic disorder in the trap ( $\sim 500 \mu\text{eV}$ ). At higher densities (regime (ii)) the excitons mean-field energy exceeds the strength of potential disorder so that dipolar repulsions between excitons delocalise the gas. Then, the interference contrast varies strongly with  $T_b$ : while the visibility keeps a value similar to regime (i) for  $T_b \geq 1.2$  K, it increases steeply at  $T_b = 330$  mK, from about 24 to 30 % when  $n_X \gtrsim 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Increasing further the density,  $n_X \gtrsim 4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  in regime (iii), leads to a breakdown of this behaviour and the interference contrast depends again weakly on the bath temperature.

From the visibility measured for  $\delta t = 1.8$  ps, we deduce the width of the photoluminescence spectrum  $\Gamma = 2\hbar/\tau_c$ . The latter is in principle governed by collisional broadening, i.e. by the collisions between  $\mathbf{k} \sim 0$  bright excitons and other excitons and/or excess carriers [14]. At  $T_b = 1.2$  K, Fig.3 reveals that  $\Gamma \sim 500 \mu\text{eV}$  and varies weakly with the exciton density  $n_X$  in regime (ii). At  $T_b = 2.4$  K,  $\Gamma$  is slightly larger ( $\sim 600 \mu\text{eV}$ ), possibly due to the increased role of acoustic phonons, while it also varies weakly with  $n_X$ . Overall, these variations with the density are theoretically expected [15, 32], since interactions between indirect excitons vary  $\Gamma$  by less than  $100 \mu\text{eV}$  in the density range explored here, i.e. by about our instrumental precision. However, the magnitude of  $\Gamma$  lies again about  $300 \mu\text{eV}$  above its theoretical expectation. This discrepancy manifests the interaction between indirect excitons

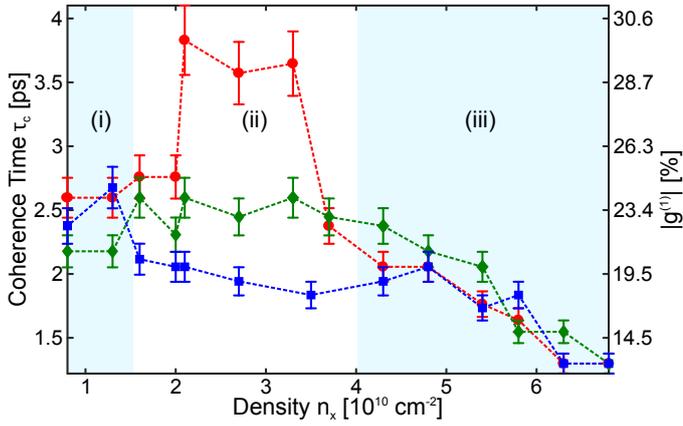


FIG. 3: (a) Interference contrast  $|g^{(1)}|$  measured at the centre trap as a function of the exciton density,  $n_X$ , extracted from the variation of the photoluminescence energy [28]. Measurements at  $T_b=330$  mK, 1.2 and 2.4 K, are displayed in red, green and blue, respectively. The coherence time of the photoluminescence  $\tau_c$  is deduced from the calibration of our interferometer, set at  $\delta t = 1.8$  ps for these measurements. Regions (i) to (iii) are discussed in the main text.

and residual excess charges, which concentration is nevertheless minimised at long delays to the laser excitation [8, 28], i.e. in regime (i)-(ii). Note that excess carriers lead to stringent limitations when studying cold indirect excitons [5, 31]. Their important role is directly shown by the rapid and temperature independent increase of  $\Gamma$  in regime (iii). Indeed, the latter regime corresponds to delays ranging from 120 to 20 ns after extinction of the loading laser pulse. While the exciton density is increased by analyzing shorter delays, the concentration of excess carriers is also increased since the transient photocurrent is not fully suppressed in regime (iii) [8, 28]. The interaction between excitons and excess carriers being 8 times stronger than the one between excitons in GaAs quantum wells [14], we observe a rapid increase of collisional broadening which can not be attributed to repulsive dipolar interactions between excitons [15, 32], and which does not depend on the bath temperature.

The most striking feature of Fig.3 is certainly the threshold increase of  $\tau_c$  at  $T_b=330$  mK and  $n_X \sim 2 \cdot 10^{10}$  cm $^{-2}$ , so that  $\Gamma \sim 300$   $\mu$ eV and remains rather constant until  $n_X \sim 3.5 \cdot 10^{10}$  cm $^{-2}$ . Remarkably, this density range coincides with the one where we have demonstrated a gray Bose-Einstein condensate for identical experimental conditions [6]. It is then natural to attribute the observed threshold as the result of the exciton condensation. Furthermore,  $\Gamma \sim 300$   $\mu$ eV matches the contribution of interactions between excitons and excess carriers to the homogeneous broadening, deduced when no threshold is observed for  $\tau_c$ , i.e. at  $T_b \gtrsim 1.2$  K. This leads us to conclude that interactions between excitons and excess carriers govern the temporal coherence measured for the condensate. Finding this limitation is not very surprising since longer coherence times are expected from

exciton-exciton interactions alone [5]. On the other hand, charge-dipole interactions are stronger than dipole-dipole interactions between excitons [14]. As a result, carriers that do not contribute to the collective phase provide a direct and efficient channel for decoherence, which then challenges the emergence of a gray condensate. Assuming, as reasonable [14, 15, 28], that interactions between excitons and excess carriers have a comparable strength in double and single quantum wells, we estimate that the density of excess charges is around a few  $10^9$  cm $^{-2}$  in regime (ii) [28]. Finally, at  $T_b=330$  mK Fig.3 shows that  $\tau_c$  abruptly decreases to its value at 1.2 K at the onset of regime (iii). This suggests that the gray condensation is accessible in a density range limited by the increased concentration of excess carriers at lower delays to the loading laser pulse. However, we can not exclude that the exciton deviation to ideal bosons becomes significant already at  $n_X \sim 3.5 \cdot 10^{10}$  cm $^{-2}$ , exciton ionisation being nevertheless excluded.

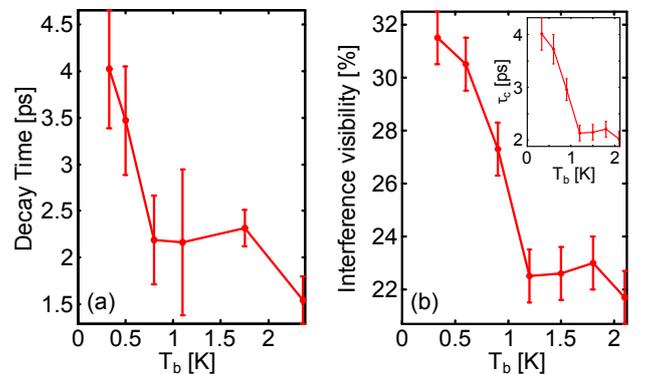


FIG. 4: (a) Coherence time of the photoluminescence  $\tau_c$  as a function of  $T_b$ , deduced by fitting the exponential decay of  $|g^{(1)}|$  at every bath temperature. (b) Interference visibility measured at the center of the trap for  $\delta t = 1.8$  ps. The inset displays the value of  $\tau_c$  deduced from these measurements. All experiments have been carried out for an exciton density  $n_X \sim 2.5 \cdot 10^{10}$  cm $^{-2}$ .

To further relate the threshold increase of  $\tau_c$  at  $T_b=330$  mK to the gray condensation, we measured  $|g^{(1)}|(\delta t)$  as a function of  $T_b$  and for  $n_X \sim 2.5 \cdot 10^{10}$  cm $^{-2}$ , i.e. at the center of regime (ii). For each bath temperature  $\tau_c$  was first extracted from the exponential decay of the interference visibility with  $\delta t$ . As shown in Figure 4.a, a rapid increase is revealed below a bath temperature of about 800 mK,  $\tau_c$  passing from about 2 ps at 1K to 4 ps at 330 mK. To measure more precisely the increase of  $\tau_c$ , we performed an additional experiment where the interference contrast was evaluated for  $\delta t = 1.8$  ps only. Thus, the stability of our measurements was largely increased since the experiments could be performed during a single day, compared to 3 days for the data displayed in Fig.4.a. As shown in Fig. 4.b we then recovered that two regimes emerge: For  $T_b \geq 1.2$  K,  $|g^{(1)}|$  varies weakly, it is about 22% corresponding to  $\tau_c \sim 2$  ps. By contrast, below  $T_c \sim 1.2$  K, the interference contrast increases abruptly

to 32% at  $T_b = 330$  mK, manifesting that  $\tau_c$  is doubled at sub-Kelvin bath temperatures. Let us then stress that this value of  $T_c$  reproduces the critical temperature measured for the appearance of quantum spatial coherence for the same exciton density in the trap [6].

To conclude, we have shown that the gray condensation of indirect excitons leads to a threshold increase of the photoluminescence temporal coherence. Our experiments reveal that the condensate has a coherence time limited to around 4 ps, due to interactions between indirect excitons and excess carriers. Their concentration is very low, about  $10^9$  cm $^{-2}$ , of the order of the level of unintentional doping during the epitaxial growth of our heterostructure. Reducing this level to a minimum value of a few  $10^8$  cm $^{-2}$  would lead to a maximum time coherence of a few tens of ps for gray condensates, while quantum condensation is excluded for densities of free

carriers exceeding  $\sim 5 \cdot 10^9$  cm $^{-2}$  [33]. Our observations therefore motivate studies with bilayer heterostructures where electrons and holes are independently injected electrically [34, 35], such that charge imbalance can possibly be compensated very precisely. We also note that the coherence time of a gray condensate remains one to two orders of magnitude smaller than for quantum fluids of polaritons [36]. This difference manifests that exciton condensates are very sensitive to their electrostatic environment.

**Acknowledgements:** The authors are grateful to Monique Combescot, Roland Combescot and Maciej Lewenstein for their long lasting support. Our experiments have been financially supported by the projects XBEC (EU-FP7-CIG) and by OBELIX from the french Agency for Research (ANR-15-CE30-0020). Correspondance shall be sent to F.D. (francois-dubin@icloud.com).

- 
- [1] J. M. Blatt et al., Phys. Rev. **126**, 1691 (1962)
  - [2] S.A. Moskalenko, Fiz. Tverd. Tela (Leningrad) **4**, 276 (1962)
  - [3] L.V. Keldysh and A.N. Kozlov, Sov. Phys. JETP **27**, 521 (1968)
  - [4] M. Combescot, O. Betbeder-Matibet, R. Combescot, Phys. Rev. Lett. **99**, 176403 (2007)
  - [5] M. Combescot, R. Combescot, F. Dubin, Rep. Prog. Phys. **80**, 066501 (2017)
  - [6] R. Anankine et al., Phys. Rev. Lett. **118**, 127402 (2017)
  - [7] J.P. Eisenstein, Annu. Rev. of Condens. Matter Phys. **5**, 159 (2014)
  - [8] M. Beian et al., arXiv:1506.08020
  - [9] E. Blackwood, M.J. Snelling, R.T. Harley, S.R. Andrews and C.T.B. Foxon, Phys. Rev. B **94**, 14246 (1994)
  - [10] I. V. Mashkov et al. Phys. Rev. B **55**, 13761 (1997)
  - [11] R. Combescot and M. Combescot, Phys. Rev. Lett. **109**, 026401 (2012)
  - [12] M. Alloing et al., EuroPhys. Lett. **107**, 10012 (2014)
  - [13] I. K. Oh and Jai Singh, Jour. of Lum. **85**, 233 (2000)
  - [14] A. Honold et al., Phys. Rev. B **40**, 6442 (1989)
  - [15] R. Zimmermann, "Bose-Einstein condensation of excitons: Promise and disappointment" in *Problems of Condensed Matter Physics* (Oxford University Press, 2008, p. 285)
  - [16] Y.E. Lozovik, V.I. Yudson, Solid State Com. **19**, 391 (1976)
  - [17] A. Ivanov, J. Phys.: Condens. Matter **16**, S3629 (2004)
  - [18] G. Chen, et al., Phys. Rev. B **74**, 045309 (2006)
  - [19] A.T. Hammack, et al., J. Appl. Phys. **99**, 066104 (2006)
  - [20] A.V. Gorbunov, V.B. Timofeev, JETP Lett. **80**, 185 (2004)
  - [21] A. A. High et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 087403 (2009)
  - [22] G. Schinner et al., Phys. Rev. Lett. **110**, 127403 (2013)
  - [23] K. Cohen et al., Nano Lett., **16**, 3726 (2016)
  - [24] J. Repp et al., App. Phys. Lett. **105**, 241101 (2014)
  - [25] M. Stern, V. Umansky and I. Bar-Joseph, Science **343**, 55 (2014)
  - [26] A. V. Gorbunov and V. B. Timofeev, Low Temp. Phys. **42**, 340 (2016)
  - [27] L. Schulteiss et al., Phys. Rev. B **34**, 9027 (1986)
  - [28] Supplemental Materials
  - [29] I. Bloch, J. Dalibard, and W. Zwerger, Rev. Mod. Phys. **80**, 885 (2008)
  - [30] M. Born and E. Wolf, *Principles of optics: electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*, (CUP Archive, 2000)
  - [31] S. Dietl et al., Phys. Rev. B **95**, 085312 (2017)
  - [32] C. Schindler and R. Zimmermann, Phys. Rev. B **78**, 045313 (2008)
  - [33] O. Berman et al., Solid. Stat. Comm. **150**, 832 (2010)
  - [34] A. F. Croxall et al., Phys. Rev. Lett. **101**, 246801 (2008)
  - [35] J. A. Seamons, C. P. Morath, J. L. Reno, and M. P. Lilly Phys. Rev. Lett. **102**, 026804 (2009)
  - [36] A. P. D. Love et al., Phys. Rev. Lett. **101**, 067404 (2008)

# Supplemental Material for "Temporal Coherence of a Homogeneously Broadened Gas of Spatially Indirect Excitons and "Gray" Bose-Einstein Condensation"

Romain Anankine<sup>1</sup>, Suzanne Dang<sup>1</sup>, Mussie Beian<sup>1,2</sup>, Edmond Cambri<sup>3</sup>, Kamel Merghem<sup>3</sup>, Carmen Gomez Carbonell<sup>3</sup>, Aristide Lemaître<sup>3</sup> and François Dubin<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Sorbonne Université UPMC, CNRS-UMR 7588,

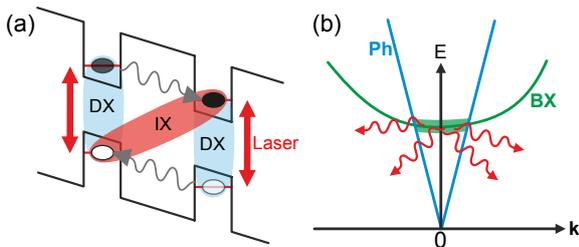
Institut des NanoSciences de Paris, 4 Place Jussieu, F-75005 Paris, France

<sup>2</sup> ICFO-The Institute of Photonic Sciences, Av. Carl Friedrich Gauss, num. 3, 08860 Castelldefels, Spain and

<sup>3</sup> Laboratoire de Photonique et Nanostructures, LPN/CNRS, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France

## I. EXPERIMENTAL PROCEDURE

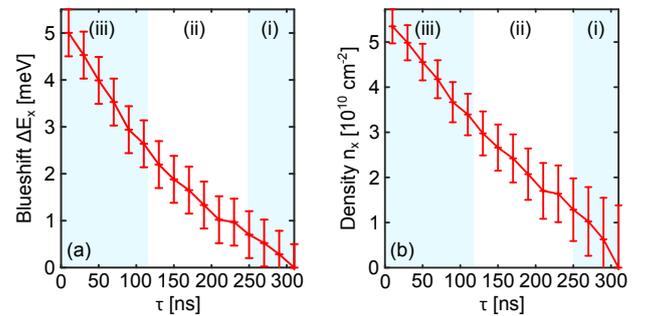
As in previous works [1, 2], we injected electrons and holes in the double quantum well using a pulsed laser excitation, tuned at resonance with the absorption of direct excitons of both quantum wells. As shown in Fig. S1, each pulse loads electrons and holes in the quantum wells, the electric field applied perpendicular to the heterostructure leading the carriers to tunnel towards their respective minimum energy states, lying each in a different layer. As a result, spatially indirect excitons are formed by the Coulomb attraction between electrons in one layer and holes in the other layer. Indirect excitons thus constitute the majority carriers already at the end of the laser excitation. Moreover, in our experiments we have shaped the spatial profile of the laser excitation such that it homogeneously covers the bottom of the trap which is around  $5 \mu\text{m}$  wide. We ensured that the illumination outside the trap was negligible. All measurements have been performed with a mean optical power equals to 700 nW, the incident laser power being actively stabilised in our studies. Let us note that experimental conditions are here identical to the ones in Ref. [2], as well as the sample.



**Fig. S1:** (a) Sketch of the optical injection of indirect excitons IXs, through the resonant excitation of the direct exciton (DX) absorption of each quantum well. IXs are created once optically injected electronic carriers have tunnelled towards minimum energy states (wavy grey lines). (c) The reemitted photoluminescence (wavy red arrows) is only due to the radiative recombination of lowest energy ( $k \sim 0$ ) bright indirect excitons (BX), i.e., lying at an energy smaller than the intersection between bright excitonic and photonic bands, BX and Ph respectively, occurring at  $E \sim 1.5 k_B$ .

## II. EVALUATING THE DENSITY OF INDIRECT EXCITONS

To calibrate the density of indirect excitons in the trap, we performed direct spectroscopic measurements. The photoluminescence emitted from the trap after the optical loading phase was then directed towards an imaging spectrometer, and we studied the spatial profile of the emission in frequency space. As detailed in Ref. [1], the dynamics measured for the photoluminescence energy  $E_X$  reflects directly the variation of the total exciton density  $n_X$ , including both bright and dark excitons. Indeed, indirect excitons experience repulsive dipolar interactions in the dilute regime such that  $E_X$  scales as  $u_0 n_X$  at first order [5]. While the exact magnitude of  $u_0$  is somewhat debated in the scientific community, we used the value of  $u_0$  calculated by Zimmermann, Ivanov and co-workers [3–5] ( $u_0 \sim 1 \text{meV}$  for a density  $n_X$  in  $10^{10} \text{cm}^{-2}$  units at which the trap confines  $\sim 10^4$  excitons).



**Fig. S2:** (a) Dynamics of the photoluminescence energy after extinction of the loading laser pulse.  $\Delta E_X$  computes the difference between the photoluminescence energy at a given delay  $\tau$  to its value at the longest delay, 300 ns after extinction of the loading laser pulse. (b) Dynamics of the exciton density in the trap deduced from  $\Delta E_X$  using the theoretical calibration developed by Ivanov et al. The regimes (i)-(iii) discussed in the main text are also highlighted.

In Fig. S2.a we report  $\Delta E_X$  which measures the difference between  $E_X$  at a given delay to the end of the laser excitation, to its value 300 ns after extinction of the laser pulse. The latter case serves as a reference since it corresponds to the regime where the exciton density is vanishingly small so that repulsive dipolar interactions between

indirect excitons do not yield any blueshift of the photoluminescence energy. Fig. S2.a then shows that  $\Delta E_X$  decays from about 5 meV 10 ns after extinction of the loading laser pulse, to around 1.5 meV in the regime (ii) where we demonstrated a gray condensate [2], and finally to lower values in regime (i) where the gas becomes localized by the electrostatic disorder in the trap. In Fig. S2.b we report the density deduced from  $\Delta E_X$  using the model detailed in Ref. [4]. The calibrations shown in Fig.S2 are used to display the abscissa  $n_X$  in Fig.3.

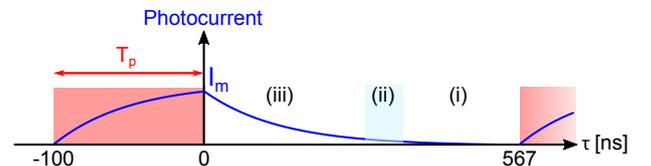
### III. EVALUATING THE DENSITY OF EXCESS CARRIERS

To estimate the density of excess carriers, we first compared the strength of collisional broadening due to exciton-exciton interactions, in single and double quantum wells. In the former case, experiments by Honold et al. [6] have shown that the photoluminescence spectral width is increased by about 100  $\mu\text{eV}$  when the exciton density grows from  $10^{10}$  to  $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . This collisional strength is of the same order as the calculations made by Zimmermann for indirect excitons in double quantum wells [3], neither of which contradict our observations where collisional broadening between indirect excitons is bound to our  $\sim 100 \mu\text{eV}$  resolution (in regime (ii) in Fig.3 at  $T_b \gtrsim 1.2\text{K}$ ). This reasonable agreement suggests that in both geometries exciton-exciton interactions have a comparable strength, which we expected in the dilute regime.

In the same experiments (Ref. [6]), Honold et al. have shown that the interaction between excitons and excess carriers has a strength 8 times larger than the one between excitons. To account for an additional homogeneous width of 300  $\mu\text{eV}$ , we directly deduce that a carrier density of about a few  $10^9 \text{ cm}^{-2}$  is sufficient. This concentration is of the order of the unintentional doping during the growth of heterostructure. Indeed, the concentration of impurities for the molecular beam epitaxy is at most  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$  for our sample, yielding  $\sim 10^9 \text{ cm}^{-2}$  for two 8 nm wide quantum wells. Let us note that this value probably overestimates the actual density of excess charges since interface roughness and alloy fluctuations

also contribute to the homogeneous broadening, when these occur at a length scale smaller than the exciton Bohr radius (about 20 nm in our experiments).

Moreover, we have verified that the concentration of excess carriers deduced above is not limited by the laser excitation. This is achieved by considering the average photo-current,  $\bar{I}=100 \text{ pA}$  measured during a 20 ms time interval with the source-measure device used to polarise the exciton trap. As shown in Fig.1 of the main text,  $\bar{I}$  is induced by the 100 ns long laser excitation, repeated at  $f=1.5 \text{ MHz}$ . Previously, we have observed that the photocurrent has a transient time of the order of 70 ns [1] (see illustration in Fig.S3). In this case we deduce that  $\bar{I}=fI_mT_p$  where  $I_m$  is the maximum current generated at the termination of the laser excitation and  $T_p$  denotes the pulse length. This expression for  $\bar{I}$  directly converts into  $n_m$ , the maximum density of excess carriers induced at the termination of the laser excitation, since  $n_m=I_m/(e\pi fr^2)$ , where  $e$  is the electron charge. For our  $r=5\mu\text{m}$  trap electrode, we conclude that  $n_m=3.5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$  so that the density of photo-induced excess carriers reduces to a few  $10^8 \text{ cm}^{-2}$  in regime (ii) of Fig.3. Then, it is negligible compared to the level of residual charges due to the growth of our heterostructure. Finally, considering  $n_m$  and the level of unintentional doping, together with the strength of interactions between excitons and excess carriers measured by Honold et al. [6], we deduce that the photoluminescence spectral width is of the order of 1 meV at the termination of the laser excitation. This value is in good agreement with our observations [1], thus supporting further our assumptions.



**Fig. S3:** Illustration of the photocurrent dynamics. The loading pulse is depicted by the red rectangle while the photocurrent is shown by the blue line. Regimes (i)-(iii) are those displayed in Fig.3 and discussed in the main text.

- [1] M. Beian et al., arXiv:1506.08020  
[2] R. Anankine et al., Phys. Rev. Lett. **118**, 127402 (2017)  
[3] R. Zimmermann, "Bose-Einstein condensation of excitons: Promise and disappointment" in "Problems of Condensed Matter Physics" (Oxford University Press, 2008, p. 285)  
[4] A. L. Ivanov, E. A. Muljarov, L. Mouchliadis, and R. Zim-

- mermann, Phys. Rev. Lett. **104**, 179701 (2010)  
[5] C. Schindler and R. Zimmermann, Phys. Rev. B **78**, 045313 (2008)  
[6] A. Honold et al., Phys. Rev. B **40**, 6442 (1989)



# Bibliographie

- [1] S. N. BOSE ; «Plancks gesetz und lichtquantenhypothese» ; Z. phys **26**, p. 178 (1924). [1](#)
- [2] A. EINSTEIN ; *Quantentheorie des einatomigen idealen Gases* (Akademie der Wissenschaften, in Kommission bei W. de Gruyter) (1924). [1](#)
- [3] M. ANDERSON, J. ENSHER, M. MATTHEWS, C. WIEMAN & E. CORNELL ; «Observation of Bose-Einstein condensation in a Dilute Atomic Vapor» ; science **269**, p. 14 (1995). [1](#), [16](#)
- [4] K. B. DAVIS, M.-O. MEWES, M. R. ANDREWS, N. VAN DRUTEN, D. DURFEE, D. KURN & W. KETTERLE ; «Bose-Einstein condensation in a gas of sodium atoms» ; Physical review letters **75**, p. 3969 (1995). [1](#), [16](#), [17](#)
- [5] D. S. DURFEE & W. KETTERLE ; «Experimental studies of Bose-Einstein condensation» ; Optics Express **2**, p. 299–313 (1998). [2](#)
- [6] S. MOSKALENKO ; «Inverse optical-hydrodynamic phenomena in a non-ideal excitonic gase» ; Fizika Tverdogo Tela **4**, p. 276 (1962). [1](#), [9](#), [20](#)
- [7] J. M. BLATT, K. BÖER & W. BRANDT ; «Bose-Einstein condensation of excitons» ; Physical Review **126**, p. 1691 (1962). [1](#), [9](#), [20](#)
- [8] Y. E. LOZOVIK & V. YUDSON ; «Feasibility of superfluidity of paired spatially separated electrons and holes ; a new superconductivity mechanism» ; JETP lett **22**, p. 274–276 (1975). [2](#), [9](#)
- [9] A. HIGH, J. LEONARD, M. REMEIKA, L. BUTOV, M. HANSON & A. GOSSARD ; «Condensation of excitons in a trap» ; Nano letters **12**, p. 2605–2609 (2012). [2](#), [59](#), [60](#)
- [10] A. A. HIGH, J. R. LEONARD, A. T. HAMMACK, M. M. FOGLER, L. V. BUTOV, A. V. KAVOKIN, K. L. CAMPAN & A. C. GOSSARD ; «Spontaneous coherence in a cold exciton gas» ; Nature **483**, p. 584–588 (2012). [2](#), [22](#)
- [11] M. COMBESCOT, O. BETBEDER-MATIBET & R. COMBESCOT ; «Bose-Einstein condensation in semiconductors : The key role of dark excitons» ; Physical Review Letters **99**, p. 176 403 (2007). [2](#), [18](#)
- [12] R. COMBESCOT & M. COMBESCOT ; «"Gray" BCS Condensate of Excitons and Internal Josephson Effect» ; Physical review letters **109**, p. 026 401 (2012). [2](#), [20](#)
- [13] M. BEIAN *et al.* ; «Spectral Evidence for a Condensate of Dark Excitons in a Trap» ; (2016). [3](#), [22](#), [25](#), [37](#), [40](#), [46](#), [53](#), [65](#)

- [14] M. BEIAN, M. ALLOING, R. ANANKINE, E. CAMBRIL, K. MERGHEM, C. G. CARBONELL, A. LEMAÎTRE & F. DUBIN ; «Spectroscopic Signatures for Bose-Einstein Condensation of Dark Excitons in a Trap» ; **arXiv :1506.08020** (2015). [3](#), [22](#), [34](#), [37](#), [38](#), [53](#), [65](#)
- [15] R. ANANKINE, M. BEIAN, S. DANG, M. ALLOING, E. CAMBRIL, K. MERGHEM, C. GOMEZ CARBONELL, A. LEMAÎTRE & F. DUBIN ; «Quantized Vortices and Four-Component Superfluidity of Semiconductor Excitons» ; Physical Review Letters **118**, p. 127 402 (2017). [4](#)
- [16] R. ANANKINE, S. DANG, M. BEIAN, M. ALLOING, E. CAMBRIL, K. MERGHEM, C. G. CARBONELL, A. LEMAÎTRE & F. DUBIN ; «Temporal Coherence of a Homogeneously Broadened Gas of Spatially Indirect Excitons and "Gray" Bose-Einstein Condensation» ; **arXiv :1610.05055** (2017). [4](#)
- [17] K. SIVALERTPORN, L. MOUCHLIADIS, A. IVANOV, R. PHILP & E. A. MULJAROV ; «Direct and indirect excitons in semiconductor coupled quantum wells in an applied electric field» ; Physical Review B **85**, p. 045 207 (2012). [5](#), [34](#)
- [18] N. ASHCROFT & N. MERMIN ; *Solid State Physics* ; HRW international editions (Holt, Rinehart and Winston) (1976) ; ISBN 9780030839931. <https://books.google.ca/books?id=1C9HAQAAIAAJ>. [5](#)
- [19] G. BASTARD ; «Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures» ; (1990). [5](#)
- [20] M. COMBESCOT & S.-Y. SHIAU ; *Excitons and Cooper Pairs : Two Composite Bosons in Many-Body Physics* (Oxford University Press) (2015). [5](#), [6](#), [9](#)
- [21] M. COMBESCOT, R. COMBESCOT & F. DUBIN ; «Bose-Einstein condensation and indirect excitons : a review» ; Reports on Progress in Physics **80**, p. 066 501 (2017). [5](#), [20](#)
- [22] C. KITTEL ; *Introduction to solid state* (John Wiley & Sons) (1966). [5](#), [8](#)
- [23] S. ADACHI ; «GaAs, AlAs, and AlxGa1-xAs : Material parameters for use in research and device applications» ; Journal of Applied Physics **58**, p. R1-R29 (1985). [6](#)
- [24] J. FELDMANN, G. PETER, E. GÖBEL, P. DAWSON, K. MOORE, C. FOXON & R. ELLIOTT ; «Linewidth dependence of radiative exciton lifetimes in quantum wells» ; Physical review letters **59**, p. 2337 (1987). [9](#)
- [25] L. KELDYSH & A. KOZLOV ; «Collective properties of excitons in semiconductors» ; Sov. Phys. JETP **27**, p. 521 (1968). [9](#), [20](#)
- [26] I.-K. OH & J. SINGH ; «Excitonic relaxation through phonon interactions in quantum wells» ; Journal of luminescence **85**, p. 233-246 (2000). [9](#)
- [27] L. KAPPEL, J. SZCZYTKO, F. MORIER-GENOUD & B. DEVEAUD ; «Direct observation of the Mott transition in an optically excited semiconductor quantum well» ; Physical review letters **94**, p. 147 403 (2005). [9](#)
- [28] M. STERN, V. GARMIDER, V. UMANSKY & I. BAR-JOSEPH ; «Mott transition of excitons in coupled quantum wells» ; Physical review letters **100**, p. 256 402 (2008). [9](#), [12](#), [20](#)

- [29] M. COMBESCOT, O. BETBEDER-MATIBET & F. DUBIN ; «The many-body physics of composite bosons» ; Physics Reports **463**, p. 215–320 (2008). 9, 20
- [30] A. IVANOV, E. MULJAROV, L. MOUCHLIADIS & R. ZIMMERMANN ; «Comment on “Photoluminescence Ring Formation in Coupled Quantum Wells : Excitonic Versus Ambipolar Diffusion”» ; Physical review letters **104**, p. 179 701 (2010). 11, 12
- [31] S. LOBANOV, N. GIPPIUS & L. BUTOV ; «Theory of condensation of indirect excitons in a trap» ; Physical Review B **94**, p. 245 401 (2016). 12
- [32] B. LAIKHTMAN & R. RAPAPORT ; «Exciton correlations in coupled quantum wells and their luminescence blue shift» ; Physical Review B **80**, p. 195 313 (2009). 12
- [33] A. IVANOV ; «Quantum diffusion of dipole-oriented indirect excitons in coupled quantum wells» ; EPL (Europhysics Letters) **59**, p. 586 (2002). 12
- [34] A. IVANOV ; «Thermalization and photoluminescence dynamics of indirect excitons at low bath temperatures» ; Journal of Physics : Condensed Matter **16**, p. S3629 (2004). 12, 13, 23
- [35] A. IVANOV, P. LITTLEWOOD & H. HAUG ; «Bose–Einstein statistics in photoluminescence of quantum well excitons» ; Journal of luminescence **87**, p. 189–191 (2000). 13, 23
- [36] J. DALIBARD ; «Cohérence quantique et superfluidité dans les gaz atomiques» ; Cours du Collège de France (2016). 15, 17, 67
- [37] W. KETTERLE ; «Bose-Einstein condensation : identity crisis for indistinguishable particles» ; dans «Quantum Mechanics at the Crossroads», p. 159–182 (Springer) (2007). 15
- [38] B. DIU, C. GUTHMANN, D. LEDERER & B. ROULET ; «Physique statistique» ; Hermann, Paris p. 444 (1989). 16, 17
- [39] W. KETTERLE & N. VAN DRUTEN ; «Bose-Einstein condensation of a finite number of particles trapped in one or three dimensions» ; Physical Review A **54**, p. 656 (1996). 17
- [40] L. BUTOV, C. LAI, A. IVANOV, A. GOSSARD & D. CHEMLA ; «Towards Bose–Einstein condensation of excitons in potential traps» ; Nature **417**, p. 47–52 (2002). 17
- [41] A. GRIFFIN, D. W. SNOKE & S. STRINGARI ; *Bose-Einstein Condensation* (Cambridge University Press) (1996). 17, 68
- [42] E. BLACKWOOD, M. SNELLING, R. HARLEY, S. ANDREWS & C. FOXON ; «Exchange interaction of excitons in GaAs heterostructures» ; Physical Review B **50**, p. 14 246 (1994). 19
- [43] A. EFANOV, K. ZHURAVLEV, T. SHAMIRZAEV, W. KELLNER & H. PASCHER ; «Exciton fine structure and spin dynamics in high purity AlGaAs layers» ; Semiconductor science and technology **19**, p. S377 (2004). 19
- [44] P. BARANOV, I. MASHKOV, N. ROMANOV, P. LAVALLARD & R. PLANEL ; «Optically detected magnetic resonance of excitons and carriers in pseudodirect GaAs/AlAs superlattices» ; Solid state communications **87**, p. 649–654 (1993). 19

- [45] C. GOURDON, I. MASHKOV, P. LAVALLARD & R. PLANEL ; «Spectroscopic evidence of the dissymmetry of direct and inverted interfaces in GaAs/AlAs type-II superlattices» ; Physical Review B **57**, p. 3955 (1998). [19](#)
- [46] M. COMBESCOT & M. N. LEUENBERGER ; «General argument supporting Bose–Einstein condensate of dark excitons in single and double quantum wells» ; Solid State Communications **149**, p. 567–571 (2009). [19](#)
- [47] M. ALLOING, M. BEIAN, M. LEWENSTEIN, D. FUSTER, Y. GONZÁLEZ, L. GONZÁLEZ, R. COMBESCOT, M. COMBESCOT & F. DUBIN ; «Evidence for a Bose-Einstein condensate of excitons» ; EPL (Europhysics Letters) **107**, p. 10 012 (2014). [19](#), [21](#)
- [48] S.-Y. SHIAU, M. COMBESCOT, R. COMBESCOT, F. DUBIN & Y.-C. CHANG ; «Scattering amplitudes for dark and bright excitons» ; arXiv preprint arXiv :1612.03787 (2016). [20](#)
- [49] M. COMBESCOT, R. COMBESCOT, M. ALLOING & F. DUBIN ; «Optical signatures of a fully dark exciton condensate» ; EPL (Europhysics Letters) **105**, p. 47 011 (2014). [21](#)
- [50] Y. SHILO, K. COHEN, B. LAIKHTMAN, K. WEST, L. PFEIFFER & R. RAPAPORT ; «Particle correlations and evidence for dark state condensation in a cold dipolar exciton fluid» ; Nature communications **4** (2013). [22](#)
- [51] K. COHEN, Y. SHILO, K. WEST, L. PFEIFFER & R. RAPAPORT ; «Dark High Density Dipolar Liquid of Excitons» ; Nano letters **16**, p. 3726–3731 (2016). [22](#), [43](#), [44](#)
- [52] R. ZIMMERMANN ; «Bose-Einstein condensation of excitons : Promise and disappointment» ; Problems of Condensed Matter Physics : Quantum Coherence Phenomena in Electron-hole and Coupled Matter-light Systems **139**, p. 285 (2008). [22](#), [43](#), [44](#), [49](#), [52](#), [54](#)
- [53] M. ALLOING *et al.* ; «Experimental Evidence for the Quantum Condensation of Ultracold Dipolar Excitons» ; (2014). [31](#), [33](#)
- [54] C. COHEN-TANNOUDJI ; «Condensation de Bose-Einstein des gaz atomiques ultrafroids (propriétés de cohérence), 1999-2000» ; Cours du Collège de France, disponible sur <http://www.phys.ens.fr/cours/college-de-france/index.html> . [31](#)
- [55] M. BORN & E. WOLF ; *Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light* (CUP Archive) (2000). [31](#), [48](#), [51](#)
- [56] A. A. HIGH, J. R. LEONARD, A. T. HAMMACK, M. M. FOGLER, L. V. BUTOV, A. V. KAVOKIN, K. L. CAMPMAN & A. C. GOSSARD ; «Supplementary Information on Spontaneous coherence in a cold exciton gas» ; Nature **483** (2012). [33](#)
- [57] M. STERN, V. UMANSKY & I. BAR-JOSEPH ; «Exciton liquid in coupled quantum wells» ; Science **343**, p. 55–57 (2014). [34](#), [43](#), [44](#), [48](#)
- [58] L. SCHULTHEIS, A. HONOLD, J. KUHL, K. KÖHLER & C. TU ; «Optical dephasing of homogeneously broadened two-dimensional exciton transitions in GaAs quantum wells» ; Physical Review B **34**, p. 9027 (1986). [36](#), [52](#), [53](#), [54](#)

- [59] A. HONOLD, L. SCHULTHEIS, J. KUHL & C. TU; «Collision broadening of two-dimensional excitons in a GaAs single quantum well»; *Physical Review B* **40**, p. 6442 (1989). 36
- [60] K. KOWALIK-SEIDL, X. P. VÖGELE, B. N. RIMPFL, G. J. SCHINNER, D. SCHUH, W. WEGSCHEIDER, A. W. HOLLEITNER & J. P. KOTTHAUS; «Tunable photoemission from an excitonic antitrap»; *Nano letters* **12**, p. 326–330 (2011). 36
- [61] A. HIGH, A. THOMAS, G. GROSSO, M. REMEIKA, A. HAMMACK, A. MEYERTHOLEN, M. FOGLER, L. BUTOV, M. HANSON & A. GOSSARD; «Trapping indirect excitons in a GaAs quantum-well structure with a diamond-shaped electrostatic trap»; *Physical review letters* **103**, p. 087 403 (2009). 37, 41
- [62] M. ALLOING, A. LEMAÎTRE & F. DUBIN; «Quantum signature blurred by disorder in indirect exciton gases»; *EPL (Europhysics Letters)* **93**, p. 17 007 (2011). 41
- [63] Z. VÖRÖS, D. SNOKE, L. PFEIFFER & K. WEST; «Direct measurement of exciton-exciton interaction energy»; *Physical Review Letters* **103**, p. 016 403 (2009). 43
- [64] G. SCHINNER, J. REPP, E. SCHUBERT, A. RAI, D. REUTER, A. WIECK, A. GOVOROV, A. HOLLEITNER & J. KOTTHAUS; «Many-body correlations of electrostatically trapped dipolar excitons»; *Physical Review B* **87**, p. 205 302 (2013). 43
- [65] A. GORBUNOV & V. TIMOFEEV; «Coherence of Bose-Einstein condensates of dipolar excitons in GaAs/AlGaAs heterostructures»; *Low Temperature Physics* **42**, p. 340–346 (2016). 45, 48, 60
- [66] H.-J. MIESNER, D. STAMPER-KURN, M. ANDREWS, D. DURFEE, S. INOUE & W. KETTERLE; «Bosonic stimulation in the formation of a Bose-Einstein condensate»; *Science* **279**, p. 1005–1007 (1998). 56
- [67] O. PENROSE & L. ONSAGER; «Bose-Einstein condensation and liquid helium»; *Physical Review* **104**, p. 576 (1956). 56
- [68] T. SOSNICK, W. SNOW, P. SOKOL & R. SILVER; «Momentum distributions in liquid  $4\text{He}$ »; *EPL (Europhysics Letters)* **9**, p. 707 (1989). 56
- [69] W. SNOW, Y. WANG & P. SOKOL; «Density and temperature dependence of the condensate fraction in liquid  $4\text{He}$ »; *EPL (Europhysics Letters)* **19**, p. 403 (1992). 56
- [70] D. SEMKAT, S. SOBKOWIAK, G. MANZKE & H. STOLZ; «Comment on “Condensation of Excitons in a Trap”»; *Nano letters* **12**, p. 5055–5057 (2012). 59
- [71] O. L. BERMAN, Y. E. LOZOVIK, D. W. SNOKE & R. D. COALSON; «Collective properties of indirect excitons in coupled quantum wells in a random field»; *Physical Review B* **70**, p. 235 310 (2004). 61, 65
- [72] M. COMBESCOT & C. TANGUY; «New criteria for bosonic behavior of excitons»; *EPL (Europhysics Letters)* **55**, p. 390 (2001). 62
- [73] I. BLOCH, J. DALIBARD & W. ZWERGER; «Many-body physics with ultracold gases»; *Reviews of Modern Physics* **80**, p. 885 (2008). 64
- [74] Z. HADZIBABIC & J. DALIBARD; «Two-dimensional Bose fluids : An atomic physics perspective»; *arXiv preprint arXiv :0912.1490* (2009). 67, 70

- [75] C. COHEN-TANNOUJDI, J. DALIBARD & F. LALÖE; «La condensation de Bose-Einstein dans les gaz»; Einstein aujourd'hui, CNRS Editions et EDP Sciences (2005). 67
- [76] P. KAPITZA; «Viscosity of liquid helium below the  $\lambda$ -point»; Nature **141**, p. 74 (1938). 67
- [77] J. ALLEN & A. MISENER; «Flow of liquid helium II»; Nature **141**, p. 75 (1938). 67
- [78] F. LONDON; «On the bose-einstein condensation»; Physical Review **54**, p. 947 (1938). 68
- [79] G. A. WILLIAMS & R. E. PACKARD; «Photographs of quantized vortex lines in rotating He II»; Physical Review Letters **33**, p. 280 (1974). 69
- [80] E. YARMCHUK, M. GORDON & R. PACKARD; «Observation of stationary vortex arrays in rotating superfluid helium»; Physical Review Letters **43**, p. 214 (1979). 69
- [81] V. BEREZINSKII; «Destruction of long-range order in one-dimensional and two-dimensional systems possessing a continuous symmetry group. ii. quantum systems»; Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics **34**, p. 610 (1972). 69
- [82] J. M. KOSTERLITZ & D. J. THOULESS; «Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems»; Journal of Physics C : Solid State Physics **6**, p. 1181 (1973). 69
- [83] W. VINEN; «The detection of single quanta of circulation in liquid helium II»; dans «Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences», , tome 260p. 218–236 (The Royal Society) (1961). 70
- [84] D. R. NELSON & J. KOSTERLITZ; «Universal jump in the superfluid density of two-dimensional superfluids»; Physical Review Letters **39**, p. 1201 (1977). 71
- [85] R. DESBUQUOIS, L. CHOMAZ, T. YEFSAH, J. LÉONARD, J. BEUGNON, C. WELTENBERG & J. DALIBARD; «Superfluid behaviour of a two-dimensional Bose gas»; Nature Physics **8**, p. 645–648 (2012). 71
- [86] K. MADISON, F. CHEVY, W. WOHLLEBEN & J. DALIBARD; «Vortex formation in a stirred Bose-Einstein condensate»; Physical Review Letters **84**, p. 806 (2000). 72
- [87] C. N. WEILER, T. W. NEELY, D. R. SCHERER, A. S. BRADLEY, M. J. DAVIS & B. P. ANDERSON; «Spontaneous vortices in the formation of Bose-Einstein condensates»; Nature **455**, p. 948–951 (2008). 72, 73, 89
- [88] T. W. KIBBLE; «Topology of cosmic domains and strings»; Journal of Physics A : Mathematical and General **9**, p. 1387 (1976). 72, 89
- [89] W. H. ZUREK; «Cosmological experiments in superfluid helium?»; Nature **317**, p. 505–508 (1985). 72, 89
- [90] N. NAVON, A. L. GAUNT, R. P. SMITH & Z. HADZIBABIC; «Critical dynamics of spontaneous symmetry breaking in a homogeneous Bose gas»; Science **347**, p. 167–170 (2015). 73

- [91] L. CHOMAZ, L. CORMAN, T. BIENAIMÉ, R. DESBUQUOIS, C. WEITENBERG, S. NASCIMBÈNE, J. BEUGNON & J. DALIBARD ; «Emergence of coherence via transverse condensation in a uniform quasi-two-dimensional Bose gas» ; *Nature communications* **6** (2015). [73](#), [74](#), [89](#)
- [92] K. G. LAGOUDAKIS, M. WOUTERS, M. RICHARD, A. BAAS, I. CARUSOTTO, R. ANDRÉ, L. S. DANG & B. DEVEAUD-PLÉDRAN ; «Quantized vortices in an exciton-polariton condensate» ; *Nature Physics* **4**, p. 706–710 (2008). [73](#)
- [93] G. ROUMPOS, M. D. FRASER, A. LÖFFLER, S. HÖFLING, A. FORCHEL & Y. YAMAMOTO ; «Single vortex-antivortex pair in an exciton-polariton condensate» ; *Nature Physics* **7**, p. 129–133 (2011). [73](#)
- [94] D. SANVITTO, F. MARCHETTI, M. SZYMAŃSKA, G. TOSI, M. BAUDISCH, F. LAUSSY, D. KRIZHANOVSKII, M. SKOLNICK, L. MARRUCCI, A. LEMAÎTRE *et al.* ; «Persistent currents and quantized vortices in a polariton superfluid» ; *Nature Physics* **6**, p. 527–533 (2010). [74](#)
- [95] Y. E. LOZOVIK, I. KURBAKOV, G. ASTRAKHARCHIK & M. WILLANDER ; «Bose condensation of two-dimensional dipolar excitons : Simulation by the quantum Monte Carlo method» ; *Journal of Experimental and Theoretical Physics* **106**, p. 296–315 (2008). [76](#)
- [96] S. YANG, L. BUTOV, L. LEVITOV, B. SIMONS & A. GOSSARD ; «Exciton front propagation in photoexcited GaAs quantum wells» ; *Physical Review B* **81**, p. 115 320 (2010). [76](#)
- [97] M. P. FISHER, P. B. WEICHMAN, G. GRINSTEIN & D. S. FISHER ; «Boson localization and the superfluid-insulator transition» ; *Physical Review B* **40**, p. 546 (1989). [92](#)
- [98] M. GREINER, O. MANDEL, T. ESSLINGER, T. W. HÄNSCH & I. BLOCH ; «Quantum phase transition from a superfluid to a Mott insulator in a gas of ultracold atoms» ; *nature* **415**, p. 39–44 (2002). [92](#)
- [99] U. SICILIANI DE CUMIS, J. WALDIE, A. F. CROXALL, D. TANEJA, J. LLANDRO, I. FARRER, H. E. BEERE & D. A. RITCHIE ; «A complete laboratory for transport studies of electron-hole interactions in GaAs/AlGaAs ambipolar bilayers» ; *Applied Physics Letters* **110**, p. 072 105 (2017). [92](#)
- [100] D. NANDI, A. FINCK, J. EISENSTEIN, L. PFEIFFER & K. WEST ; «Exciton condensation and perfect Coulomb drag» ; *Nature* **488**, p. 481–484 (2012). [92](#)