



Etude des polaritons excitoniques dans des microcavités planaires à base d'oxyde de zinc

Thibaut Flottat

► To cite this version:

Thibaut Flottat. Etude des polaritons excitoniques dans des microcavités planaires à base d'oxyde de zinc. [Rapport de recherche] Institut Pascal (Université Clermont-Auvergne, SIGMA, CNRS). 2013. hal-03768403

HAL Id: hal-03768403

<https://hal.science/hal-03768403>

Submitted on 3 Sep 2022

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

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



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License



RAPPORT DE STAGE

Etude des polaritons excitoniques dans des microcavités planaires à base d'oxyde de zinc

THIBAUT FLOTTAT

Maître de stage
FRANÇOIS RÉVERET

11 juin 2013

Remerciements

Je tiens à profiter du peu de temps qu'il me reste avant de rendre ce rapport afin de remercier quelques personnes, qui ont contribué au bon déroulement de mon stage. Certes, ceux-ci seront courts, mais sincères !

En premier lieu, je tiens à remercier François, mon maître de stage. Pour m'avoir permis d'effectuer mon premier stage de recherche sous ta direction, pour ta présence et pour le climat agréable que tu as su instaurer dès notre première rencontre... merci à toi. Je remercie aussi Pierre Disseix et Joël Leymarie, qui ont su m'apporter diverses explications et conseils quand j'en avais besoin. Un merci particulier à Laurent, qui m'a épaulé durant de longues séries de mesures sur la capricieuse cavité de Feng. Bon courage pour la rédaction de ta thèse ! Je tiens à adresser mes remerciements à Dmitry Solnyshkov, Guillaume Malpuech ainsi qu'à Hugo Terças pour avoir toujours répondu à mes questions un peu plus pointilleuses.

Enfin j'exprime ici toute ma gratitude envers les autres membres de l'équipe d'Opération Spectroscopies optiques des Solides, François, Martine et Emilien, pour leur disponibilité et leur aide dans quelque domaine que ce soit.

Sachez en tout cas que je regretterai la très bonne ambiance qui règne dans cette équipe, et que les fabuleuses aventures de Pierre me manqueront.

De derniers remerciements plus personnels, dédiés à mes parents, qui ont eu le courage de lire ce rapport et de participer à sa correction, bien qu'ils n'aient reçu aucune formation scientifique.

Table des matières

Introduction	1
1 Aspects théoriques	2
1.1 Propriétés physiques de l'oxyde de zinc	2
1.1.1 Intérêts et applications	2
1.1.2 Structure cristallographique	3
1.1.3 Propriétés électroniques	3
1.1.4 Excitation électronique : l'exciton de Wannier-Mott	5
1.2 Dispositifs de confinement de la lumière	7
1.2.1 Miroir de Bragg	7
1.2.2 Microcavité	8
1.2.3 Relation de dispersion photonique	10
1.3 Le couplage fort lumière-matière	11
1.3.1 Aspects historiques et théoriques	11
1.3.2 Traitement semi-classique	12
1.4 De la condensation de Bose-Einstein vers le laser à polaritons	14
1.4.1 Aspects historiques et théoriques	14
1.4.2 Le polariton : un boson composite	15
1.4.3 Condensation des polaritons et effet laser	16
1.4.4 Intérêts du laser à polaritons	20
2 Etude spectroscopique de microcavités à base de ZnO	21
2.1 Observation du condensat	21
2.2 Microcavité ZFeng	22
2.2.1 Description de l'échantillon	22
2.2.2 Observation du couplage fort et de l'effet laser	23
2.2.3 Commutation entre les modes polaritoniques	24
2.2.4 Propagation du condensat	26
2.3 Microcavité Z1232	27
2.3.1 Description de l'échantillon	27
2.3.2 Observation du couplage fort et de l'effet laser	29
2.3.3 Propagation du condensat	29
Conclusion	31
Annexes	34
A Condensation de Bose-Einstein pour des bosons massifs	35
A.1 Cas tridimensionnel	35
A.2 Cas bidimensionnel	36
B Techniques expérimentales et modélisation	37
B.1 Réflectivité	37
B.1.1 Principe	37
B.1.2 Dispositif expérimental	38
B.2 Modélisation des spectres de réflectivité	39
B.2.1 Formalisme des matrices de transfert	39
B.2.2 Modélisation de la constante diélectrique	41

B.3	Photoluminescence	42
B.3.1	Principe	42
B.3.2	Dispositif expérimental	42
B.3.3	Imagerie dans l'espace de Fourier	42

Introduction

L'interaction entre un système et son environnement est un problème relativement complexe à traiter. Ce mémoire porte sur l'interaction entre la lumière et la matière, où deux régimes peuvent être envisagés. Considérons tout d'abord un système quantique dont les niveaux d'énergies sont discrets (typiquement les états électroniques d'un atome ou d'un solide) mis en interaction avec un autre système (modes d'un champ électromagnétique). Dans le cas où les états du second système forment un continuum, le premier système va se dissiper dans ce continuum en suivant une loi exponentielle, et on se trouve dans un régime d'interaction appelé régime de couplage faible. Par contre, si le couplage a lieu entre deux états discrets, ceux-ci vont se mélanger et former de nouveaux états mixtes lumière-matière, on parlera alors de couplage fort lumière-matière. Ce régime fut observé pour la première fois en 1992 [1], pour un atome unique piégé dans une cavité.

Les progrès récents des techniques de croissance ont permis de contrôler la conception de composants à l'échelle nanométrique, ce qui a abouti à la réalisation d'hétérostructures permettant de confiner les systèmes précédemment cités, ayant pour conséquence d'exalter le régime de couplage fort. Notre étude se basera sur le couplage fort entre les excitons d'un cristal de semi-conducteur et photons piégés dans des microcavités, où les nouveaux modes propres du système sont appelés polaritons excitoniques de cavité [2].

Ces polaritons sont des quasi-particules mixtes, la partie matière étant un exciton, tandis que la partie lumière est un photon. Dans la limite d'une faible densité, les polaritons se comportent comme des bosons composites [3], ce qui va donc leur conférer des propriétés remarquables : ceux-ci peuvent subir une transition de phase vers un condensat de Bose-Einstein. De telles transitions de phase ont déjà été observées pour des atomes froids [4], mais réaliser un condensat avec des polaritons est beaucoup plus avantageux en terme d'applications futures et d'études expérimentales : de part leur nature photonique, la masse effective des polaritons est environ 10^9 fois inférieure à la masse des atomes de Rubidium [5] mis en jeu lors de la première expérience réussie de condensation. Or, une telle transition de phase est possible à une température d'autant plus élevée que la masse de la particule mise en jeu est faible. Cette transition de phase dans les solides a ouvert la voie vers la conception de nouveaux composants opto-électroniques à très bas seuil fonctionnant jusqu'à température ambiante comme le *laser à polaritons* [6]. Aujourd'hui, on atteint des seuils de l'ordre de deux ordres de grandeurs inférieurs aux meilleurs *Vecsels* actuels [7]. Cette diminution du seuil est liée au fait que même si l'effet est le même (effet *LASER*), le mécanisme est différent : dans le cas d'un laser à polaritons, la condition d'inversion de population n'est pas requise.

Des applications pour le grand public sont bien entendu envisageables dans la mesure où ces composants fonctionnent à température ambiante, et comme nous le verrons dans la suite, deux facteurs majeurs sont à prendre en compte pour la conception d'un laser à polaritons : la force d'oscillateur et l'énergie de liaison des excitons. L'oxyde de zinc possède une plus grande énergie de liaison et des forces d'oscillateur quatre à huit fois plus élevées que le nitrure de gallium [8, 9] (dans lequel l'effet laser à polaritons a été démontré théoriquement jusqu'à 300 K [10]) : ZnO est donc un candidat idéal pour atteindre le régime de couplage fort à température ambiante.

Le premier chapitre sera consacré aux concepts fondamentaux sur l'oxyde de zinc ainsi qu'à la physique des excitons puis des polaritons, puis je présenterai dans le second les résultats obtenus suite aux mesures effectuées sur deux microcavités.

1 Aspects théoriques

1.1 Propriétés physiques de l'oxyde de zinc

1.1.1 Intérêts et applications

Depuis le milieu du $XX^{\text{ème}}$ siècle, où les premiers composants électroniques à base de semi-conducteurs ont vu le jour, les progrès scientifiques et les applications industrielles réalisés grâce à ces (nouveaux) matériaux n'ont eu de cesse d'évoluer. On retrouve les semi-conducteurs dans de multiples domaines tels que l'éclairage, le transport de l'information ou encore le stockage de données.

Le souhait d'améliorer ces composants et notamment la capacité de stockage des supports optiques a amené la communauté scientifique à se consacrer à l'étude des semi-conducteurs à grand gap, émettant dans le bleu voire le proche ultra-violet. La figure 1.1 regroupe les différents semi-conducteurs selon leur énergie de bande interdite en fonction du paramètre de maille.

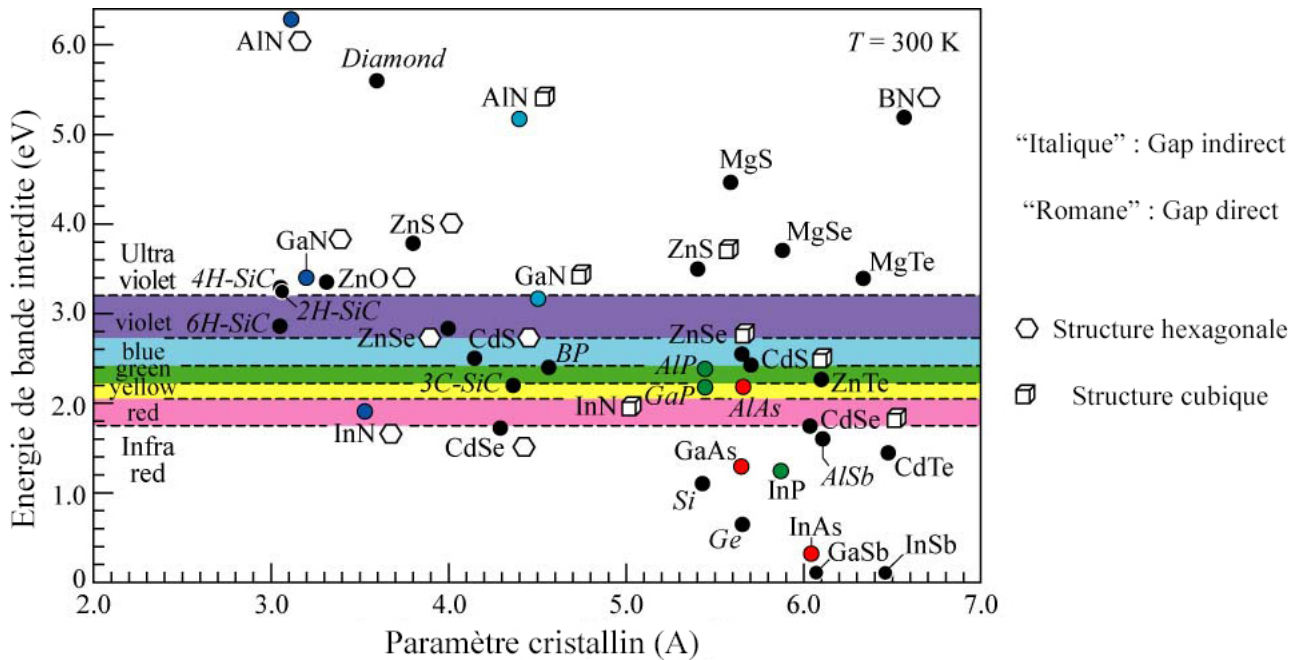


FIGURE 1.1 – Énergie de bande interdite en fonction du paramètre de maille pour différents semi-conducteurs à température ambiante

L'oxyde de zinc est un semi-conducteur de la famille II-VI, caractérisé par un gap d'environ 3,37 eV à température ambiante, donc émettant dans le proche ultra-violet. De plus, le caractère direct du gap en fait un candidat de choix pour la conception de composants opto-électroniques ; l'oxyde de zinc viendrait donc compléter la famille des émetteurs bleu-proche UV qui compte déjà les composants à base de nitrure de gallium. D'autre part, ZnO présente un certain nombre d'avantages par rapport à GaN : meilleure qualité des substrats pour l'homoépitaxie, moindre coût de fabrication, module de Coulomb très élevé (traduisant la résistance aux contraintes mécaniques), ou encore une meilleure résistance aux contraintes thermiques [11]. La principale difficulté aujourd'hui est la maîtrise d'un dopage p reproductible, ce qui entrave la conception de composants pompés électriquement.

1.1.2 Structure cristallographique

Comme la plupart des composés II-VI, l'oxyde de zinc cristallise, dans des conditions normales de température et de pression, dans une structure hexagonale de type wurtzite, avec pour paramètres de maille $a = 3,250 \text{ \AA}$ et $c = 5,207 \text{ \AA}$ [12]. Les atomes d'oxygène sont disposés suivant un réseau de type hexagonal compact, tandis que les atomes de zinc occupent la moitié des sites tétraédriques : chaque atome d'oxygène est entouré de quatre atomes de zinc et vice-versa, comme le montre la figure 1.2. Cette coordination est caractéristique d'une hybridation sp^3 des liaisons, afin d'assurer la cohésion du cristal. Cependant, comme beaucoup de matériaux II-VI, la nature des liaisons dans ZnO a un caractère ionique très prononcé : le nuage électronique est délocalisé vers les atomes d'oxygène. L'oxyde de zinc se trouve de ce fait à la frontière entre un semi-conducteur ionique et covalent [12].

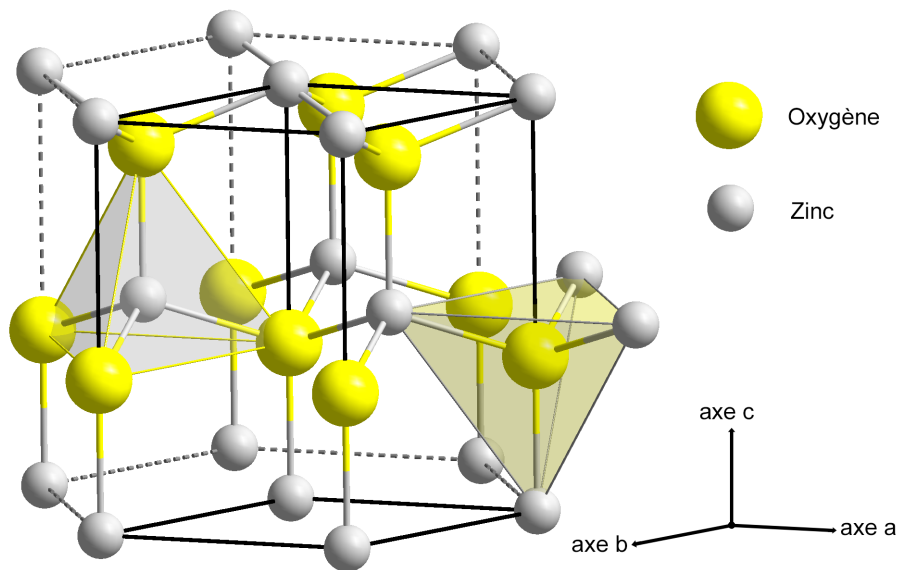


FIGURE 1.2 – Structure Wurtzite

L'oxyde de zinc peut aussi cristalliser dans une structure de type zinc blende, dans le cas où on fait croître le cristal de ZnO directement sur un substrat de symétrie cubique. Enfin, si le cristal est soumis à une forte compression (typiquement supérieure à 10 GPa), la structure est halite [12].

1.1.3 Propriétés électroniques

a Structure de bande

Quand on rapproche deux atomes, les orbitales atomiques possédant des niveaux d'énergie suffisamment proches vont interagir puis s'hybrider. Cette interaction entre les deux atomes va lever la dégénérescence en énergie et former deux niveaux : un niveau liant et un niveau anti-liant, séparés par un écart en énergie relié au recouvrement des orbitales. Dans un cristal, où l'on généralise l'interaction à un nombre infini d'atomes, l'association des différents niveaux forment des bandes autorisées, séparées par des bandes interdites. Si l'élargissement des bandes est supérieur à l'espacement entre les différents niveaux, les bandes se chevauchent et il n'y a pas de bandes interdites. Ce modèle, intitulé modèle des liaisons fortes ou des combinaisons linéaires d'orbitales atomiques, raisonne en termes purement chimiques et permet de décrire la structure de bande d'un matériau, dont elle est caractéristique. Un autre point de vue, appelé modèle de l'électron quasi-libre, se base sur le fait que les ondes de Bloch dont le vecteur d'onde se situe en bord de zone de Brillouin sont diffractées et ne se propagent pas dans le cristal : il se forme une bande interdite.

Il existe de nombreuses méthodes pour calculer la structure de bande des cristaux, la figure 1.3 représente la structure de bande de ZnO calculée par une méthode d'approximation de la densité locale (LDA) [12].

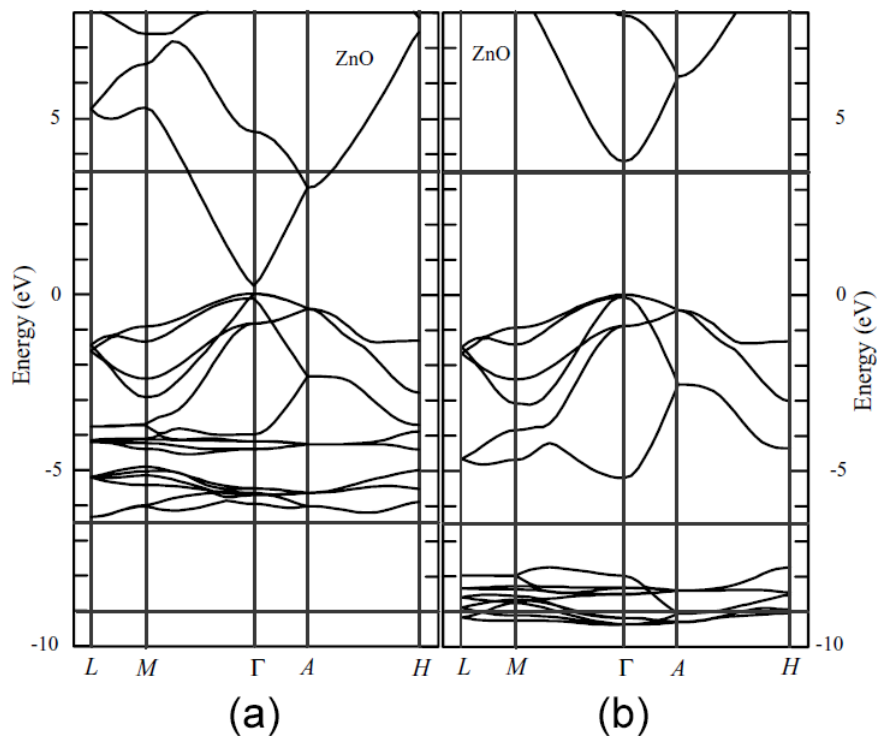
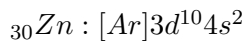


FIGURE 1.3 – Structure de bande de l'oxyde de zinc calculée en utilisant un pseudopotentiel standard (a), puis avec un pseudopotentiel corrigé SIC-PP (b).

On appelle bande de valence la dernière bande complètement remplie à $T = 0\text{ K}$, tandis que la première bande vide ou partiellement remplie est appelée bande de conduction, ces deux bandes étant séparées par un écart en énergie qu'on appelle communément le gap. On en distingue deux types : direct et indirect. On parle de semi-conducteur à gap direct quand le minimum absolu de la bande de conduction et le maximum absolu de la bande de valence se trouvent au même point k de la première zone de Brillouin. Comme on peut le voir sur la figure 1.3, le minimum de la bande de conduction et le maximum de la bande de valence se trouve au point Γ ($k = 0$), l'oxyde de zinc est bien un semi-conducteur à gap direct.

Afin de justifier la provenance de la bande de conduction et de valence de ZnO, rappelons la configuration électronique du zinc et de l'oxygène :



Dans le cas de liaisons ioniques, la bande de conduction trouve principalement son origine dans les orbitales $4s$ vides des cations Zn^{2+} , tandis que les états $2p$ des anions O^{2-} forment la bande de valence. Si les liaisons sont purement covalentes, la bande de conduction (valence) provient de l'état antilient (liant) des orbitales hybrides sp^3 . La bande de valence étant native des orbitales p , celle-ci est trois fois dégénérée (six fois en considérant le spin). La levée de dégénérescence de la bande valence conduit à la formation de trois bandes distinctes appelées A, B et C comme le montre la figure 1.4.

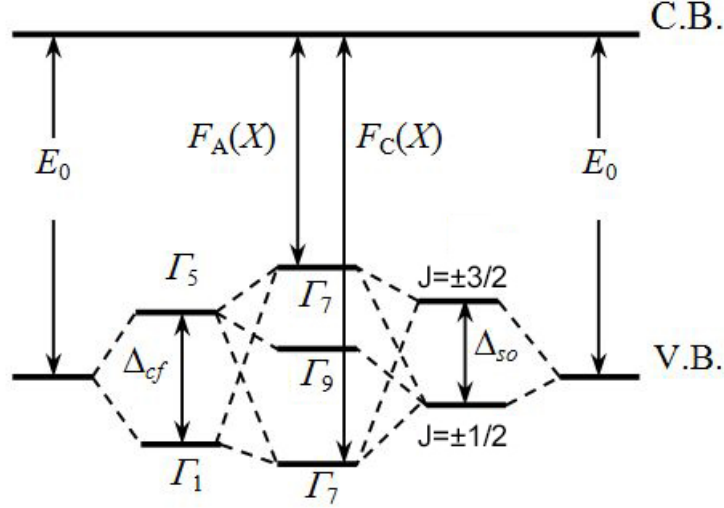


FIGURE 1.4 – Levée de dégénérescence

Le couplage spin-orbite entraîne une levée de dégénérescence de la bande de valence, qui se scinde en deux sous bandes, l'une correspondant à un moment cinétique total $J = \pm 1/2$, basse en énergie et appelée bande de split-off, et l'autre à $J = \pm 3/2$, qui est doublement dégénérée. Du fait de la structure du cristal, un champ cristallin apparaît, ce qui va lever la dégénérescence de cette dernière bande en deux sous bandes de projections de moment cinétique total $J_z = \pm 3/2$ et $J_z = \pm 1/2$, correspondant respectivement à la bande des trous lourds et des trous légers (nous reviendrons sur ce vocabulaire ultérieurement). La symétrie de ces différentes bandes reste encore discutée, mais les résultats admis aujourd'hui présentent une symétrie Γ_7 pour les bandes A et C, et une symétrie Γ_9 pour la bande B [13]. La connaissance des symétries des différentes bandes est essentielle afin de prévoir les différentes transitions optiques autorisées, qui seront différentes selon la polarisation du faisceau incident. En polarisation TE (où le champ $\vec{E}$ est perpendiculaire à l'axe c du cristal), on observera surtout les transitions optiques A et B ; tandis qu'en polarisation TM (où $\vec{E}$ est parallèle à l'axe c), la transition C sera plus marquée.

b Concept de masse effective

Dans un cristal, on peut décrire un électron comme une particule de masse m_e , de charge $-e$ et soumise à un potentiel $V(r)$. Une autre approche consiste à considérer l'électron comme une quasi-particule dotée d'une masse m_e^* , appelée masse effective, et uniquement soumise aux forces extérieures. La masse effective contiendra toute l'information du potentiel cristallin, et son expression est donnée par [14] :

$$m_e^* = \hbar^2 \left[\frac{\partial^2 E}{\partial k_i \partial k_j} \right]^{-1} \quad (1.1)$$

La masse effective d'une particule est donc inversement proportionnelle à la courbure de la relation de dispersion de cette particule, d'où la dénomination de bande des trous lourds pour la bande de valence à faible courbure, et bande des trous légers pour la bande de valence à forte courbure.

1.1.4 Excitation électronique : l'exciton de Wannier-Mott

Quand on excite un semi-conducteur, on peut faire passer un électron de la bande de valence dans la bande de conduction. Le défaut d'électrons dans la bande de valence peut être vu

comme une quasi-particule communément appelée trou. Lors de ces transitions optiques, l'électron et le trou peuvent rester liés par interaction Coulombienne, et la quasi-particule résultante de cette interaction est appelée exciton, correspondant ainsi au premier état excité du cristal. Ce concept a été évoqué pour la première fois par FRENKEL en 1931 [15] puis par WANNIER en 1937 [16]. Notre étude restera ciblée sur les excitons de Wannier-Mott, dont le rayon de Bohr a_B est largement supérieur à la distance interatomique, qu'on retrouve typiquement dans les semi-conducteurs. Les excitons se manifesteront par de fortes variations d'indices en dessous du gap, que l'on pourra observer notamment sur des spectres de réflectivité que nous présenterons dans la deuxième partie.

Un traitement analogue à celui de l'atome d'hydrogène nous permettra d'obtenir le spectre en énergie de l'exciton. La fonction enveloppe de l'exciton, $\Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$, est solution de l'équation de Schrödinger :

$$H_{ex}\Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = E_{ex}\Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) \quad (1.2)$$

Où l'Hamiltonien excitonique s'écrit :

$$H_{ex} = -\frac{\hbar^2}{2m_e^*}\vec{\nabla}_{\vec{r}_e}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h^*}\vec{\nabla}_{\vec{r}_h}^2 + E_g - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r|\vec{r}_e - \vec{r}_h|} \quad (1.3)$$

Ce problème à deux corps peut être facilement résolu en changeant de variable, afin de raisonner sur le déplacement du centre de masse de l'exciton $\vec{R} = (m_e^*\vec{r}_e + m_h^*\vec{r}_h)/(m_e^* + m_h^*)$ ainsi que sur le mouvement relatif de l'exciton $\vec{r} = \vec{r}_e - \vec{r}_h$. L'équation de Schrodinger devient :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\vec{\nabla}_{\vec{r}}^2 - \frac{\hbar^2}{2M}\vec{\nabla}_{\vec{R}}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r r}\right)\Psi(\vec{r}, \vec{R}) = (E_{ex} - E_g)\Psi(\vec{r}, \vec{R}), \quad (1.4)$$

Avec $\mu = m_e^*m_h^*/(m_e^* + m_h^*)$ la masse réduite et $M = m_e^* + m_h^*$ la masse totale de l'exciton. Finalement, la relation de dispersion s'écrit :

$$E_{ex} = E_g + \frac{\hbar K^2}{2M} + E_n^l \quad (1.5)$$

Où $\vec{K} = \vec{k}_e + \vec{k}_h$ est le vecteur d'onde du centre de masse et E_n^l représente l'énergie de liaison de l'exciton qui est donnée par la relation (1.6).

$$E_n^l = -\frac{1}{n^2}\frac{\mu/m_e}{\epsilon_r^2}R_y \text{ avec } R_y = 13.6eV \quad (1.6)$$

L'énergie des excitons est donc discrétisée, et on aura différents niveaux d'énergies sous le gap composés de l'état fondamental ($n = 1$) puis des états excités ($n > 1$) de l'exciton. Le rayon de Bohr de l'exciton sera donné par la relation (1.7), et la fonction d'onde totale par la relation (1.8). Le rayon de Bohr sera d'autant plus faible que la masse réduite est élevée. Celle-ci étant indirectement reliée au gap du matériau, on aura des excitons à faible rayon de Bohr dans les semi-conducteurs à grand gap.

$$a_B = a_B^H \epsilon_r \frac{m_0}{\mu} n^2 \quad (1.7)$$

$$\Psi_{exc}(\vec{r}, \vec{R}) = C \underbrace{\frac{1}{\sqrt{\pi a_{exc}^3}} \exp(-\vec{r}/a_{exc}) \exp(i\vec{K}\vec{R})}_{\text{Fonction enveloppe de l'exciton}} \underbrace{u_c(\vec{r}_e)u_v(\vec{r}_h)}_{\text{Partie périodique de la fonction de Bloch pour la BC et la BV}} \quad (1.8)$$

Une autre caractéristique importante des excitons est leur force d'oscillateur, qui décrit la force de couplage entre les excitons avec le champ électromagnétique est donnée par la relation [17]. Celle-ci est proportionnelle à l'élément de matrice de transition dans l'approximation dipolaire et donc au recouvrement des fonctions d'ondes décrivant l'électron ainsi que le trou :

$$f_{osc} = \frac{2\mu\omega}{\hbar} |\langle u_c | \vec{r} \cdot \vec{\epsilon} | u_v \rangle|^2 \frac{V}{\pi a_b^3} \quad (1.9)$$

Avec $\vec{\epsilon}$ la polarisation de la lumière.

La figure suivante présente un spectre d'absorption d'une couche mince d'oxyde de zinc, où l'on observe les états excitoniques fondamental et excités, ou encore les transitions visibles selon la polarisation du faisceau incident.

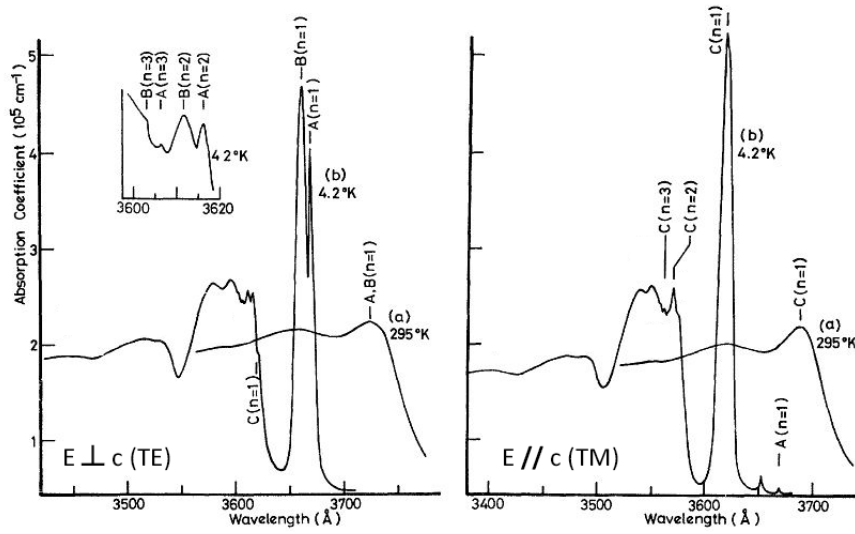


FIGURE 1.5 – Spectre d'absorption de ZnO à 4.2 et 295 K en polarisation TE (à gauche) et TM (à droite). Le nombre quantique principal n est noté entre parenthèses [18].

1.2 Dispositifs de confinement de la lumière

Comme nous l'avons précisé dans l'introduction, le confinement des modes du champ électromagnétique et électroniques permet d'augmenter drastiquement la force de couplage entre ceux-ci. Nous détaillerons dans ce qui suit un des dispositifs utilisé pour confiner des photons, qu'on appelle microcavité. Une microcavité est constituée d'une couche d'un semi-conducteur, entourée par deux miroirs possédant des coefficients de réflexion proches de l'unité. Un faisceau lumineux est ensuite envoyé dans la microcavité, et les photons le constituant vont se retrouver piégés. Ceux-ci vont effectuer des allers-retours entre les deux miroirs d'autant plus longtemps que leurs coefficients de réflexion sont élevés et proches l'un de l'autre, et plus les photons restent confinés longtemps, plus ils vont pouvoir interagir avec la couche active. Le temps de vie des photons peut être obtenu à partir d'une grandeur appelée facteur de qualité Q , caractéristique de la microcavité.

1.2.1 Miroir de Bragg

Un miroir de Bragg (encore appelé DBR pour Distributed Bragg Reflector), est un dispositif constitué d'une succession périodique de couches planes d'indices de réfraction différents. Il permet d'atteindre, grâce à des phénomènes d'interférences constructives, des coefficients de

réflectivité de l'ordre de 99,9 %. Un miroir de Bragg peut être vu comme un filtre pour la lumière. En effet, par analogie avec un cristal, où la périodicité du réseau induit un ensemble d'énergies interdites et autorisées pour l'électron, la périodicité des couches d'indices différents va induire des énergies autorisées et interdites pour le photon.

Ainsi, au niveau de la bande d'arrêt du miroir (équivalente au gap dans un semi-conducteur), c'est-à-dire pour une bande d'énergie ΔE donnée, la réflexion de la lumière sera théoriquement totale. Un traitement de la structure à partir des équations de Maxwell en utilisant le formalisme des matrices de transfert nous donne analytiquement une valeur de la réflectivité [19] :

$$R = \left(\frac{1 - \frac{n_s}{n_0} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N}}{1 + \frac{n_s}{n_0} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N}} \right)^2 \quad (1.10)$$

Où n_s est l'indice du substrat, n_0 est l'indice du milieu d'incidence, n_1 et n_2 les indices des couches utilisées, et N représente le nombre de couches. De même, la largeur de la bande d'arrêt est donnée par la relation (1.11) [20] :

$$\Delta_{SB} = \frac{4E_0}{\pi} \frac{\Delta n}{n_1 + n_2} \quad (1.11)$$

Où $\Delta n = |n_1 - n_2|$ est le contraste d'indice.

En incidence normale, l'épaisseur des couches doit être égale à un multiple de $\lambda/4$ pour une réflectivité optimale. Afin d'augmenter la valeur de la réflectivité, on pourra augmenter le nombre de paires, ou encore le contraste d'indice entre les paires, tandis que la largeur de la bande d'arrêt est gouvernée uniquement par le contraste d'indice, comme le résume la figure 1.6.

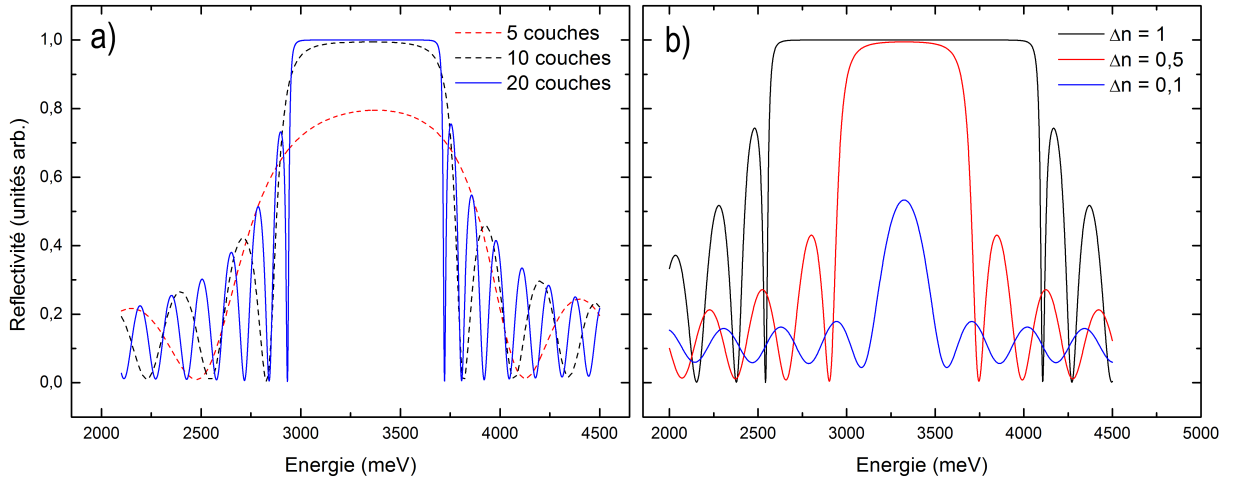


FIGURE 1.6 – a) Influence du nombre de couche sur le coefficient de réflectivité b) Influence du contraste d'indice sur le coefficient de réflectivité.

1.2.2 Microcavité

Quand on brise la périodicité d'un miroir de Bragg, un mode autorisé apparaît dans la bande d'arrêt du miroir, qu'on appelle mode de cavité. La structure est représentée sur la figure 1.7 suivante. Typiquement, la périodicité du miroir est brisée lorsque l'on insère dans le miroir une couche (qu'on appellera par la suite couche active) d'une épaisseur et d'un matériau différents. Afin d'obtenir un confinement du champ électromagnétique aussi fort que possible, on s'attachera à concevoir des microcavités dont l'épaisseur de la couche active soit de $n\lambda_0/4n_c$ avec n entier.

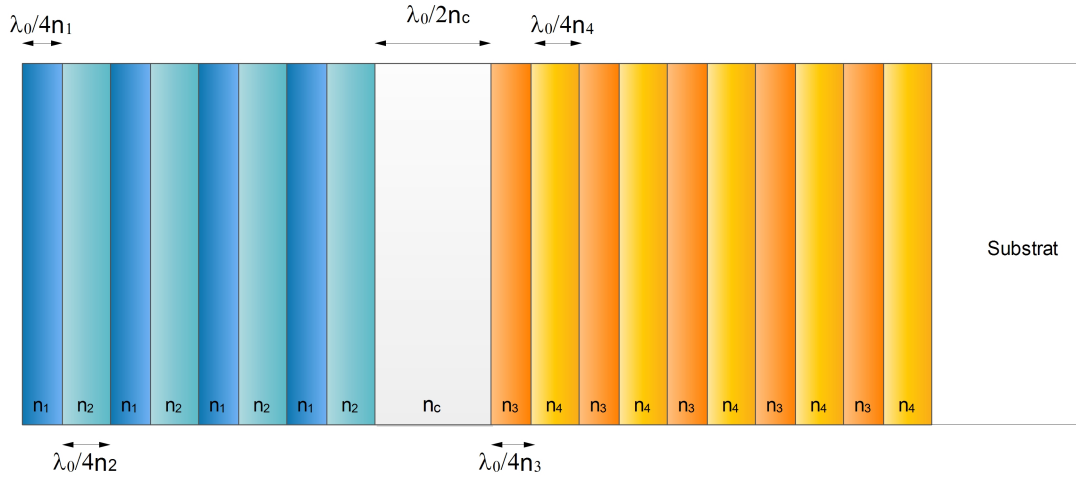


FIGURE 1.7 – Structure classique d’une microcavité.

Le profil d’indice du dispositif ainsi que le module au carré du champ électrique sont présentés sur la figure 1.8. L’intensité lumineuse du champ électrique est maximal au niveau de la couche active.

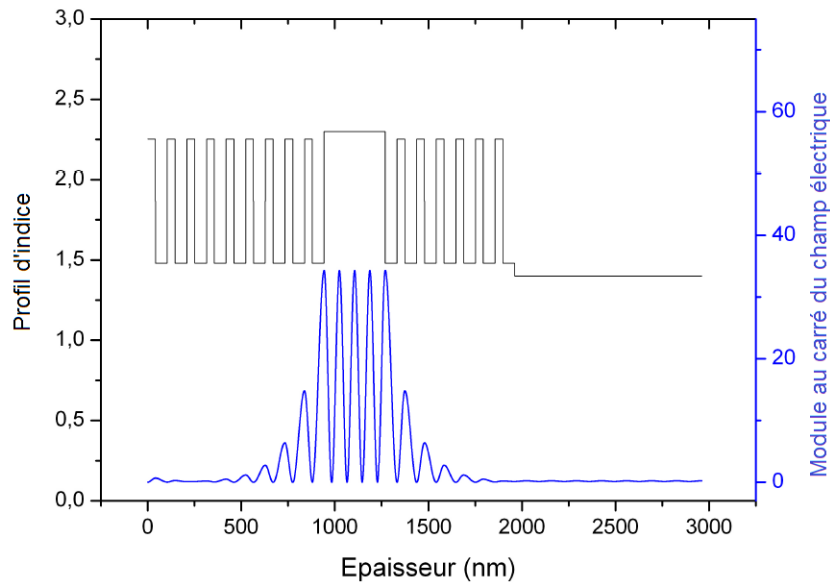


FIGURE 1.8 – Profil d’indice et module au carré du champ électrique pour une microcavité constitué par deux DBRs HfO_2/SiO_2 (neuf et six paires) et par une couche active de ZnO épaisse de $3\lambda/2$.

Cette structure va permettre de piéger des photons au sein de la couche active, qui vont effectuer des allers-retours entre les deux miroirs. Le temps de vie τ_{ph} du photon intra-cavité est donnée par la relation [17] :

$$\tau_{ph} = \frac{(R_1 R_2)^{1/4} \lambda_0}{2c (1 - R_1 R_2)^{1/2}} \quad (1.12)$$

Le temps de vie des photons sera d’autant plus grand que les coefficients de réflexion des miroirs seront proches et voisins de l’unité. On cherche bien entendu à concevoir des structures présentant des temps de vie élevés, afin que les photons puissent interagir avec la couche active aussi longtemps que possible. On peut relier τ_{ph} au facteur de qualité Q de la microcavité,

tel que $Q = 2\pi c\tau_{ph}/\lambda_0$. On atteint aujourd'hui des facteurs de qualité dans les microcavités planaires d'environ 30000 [21], ce qui correspond à des temps de vie des photons de l'ordre de 15 picosecondes.

1.2.3 Relation de dispersion photonique

Du fait du confinement des photons, on peut décomposer leur vecteur d'onde $\vec{k}$ en deux parties $\vec{k}_{\parallel}$ et $\vec{k}_z$ où $\vec{k}_z$ est quantifié et s'écrit $k_z l_c = p\pi$. Le module de $\vec{k}$ s'écrit :

$$\|\vec{k}\| = \sqrt{k_{\parallel}^2 + k_z^2} \quad \text{où } k_z = \frac{p\pi}{l_c} = \frac{2\pi n_c}{\lambda_0} \quad (1.13)$$

On peut donc en déduire la relation de dispersion du photon :

$$E(k) = \frac{\hbar c k}{n_c} = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_{\parallel}^2 + \left(\frac{2\pi n_c}{\lambda_0}\right)^2} = E_0 \left(1 + \frac{\hbar^2 c^2 k_{\parallel}^2}{E_0^2 n_c^2}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.14)$$

Avec $E_0 = \hbar c/\lambda_0$, qui est l'énergie du photon en $k_{\parallel} = 0$.

En projetant $\vec{k}$ dans le plan des couches, on peut exprimer $\|\vec{k}_{\parallel}\|$ en fonction de $\|\vec{k}\|$ tel que $k_{\parallel} = k \sin \theta_c$ avec θ_c l'angle d'incidence interne de la microcavité. D'après la loi de Snell-Descartes, $\sin \theta = n_c \sin \theta_c$, on peut donc réécrire $k_{\parallel}$:

$$k_{\parallel} = \frac{k \sin \theta}{n_c} = \frac{E(k) \sin \theta}{\hbar c} \quad (1.15)$$

On substitue cette nouvelle expression de $k_{\parallel}$ dans (1.14), on obtient finalement la relation de dispersion photonique en fonction de l'angle d'incidence :

$$E(\theta) = \frac{E_0}{\left(1 - \frac{\sin^2 \theta}{n_c^2}\right)^{\frac{1}{2}}} \quad (1.16)$$

Ainsi, deux paramètres déterminent la position de l'énergie de résonance : l'épaisseur de la couche et l'angle du faisceau incident. L'influence de ces deux facteurs est présentée sur la figure 1.9.

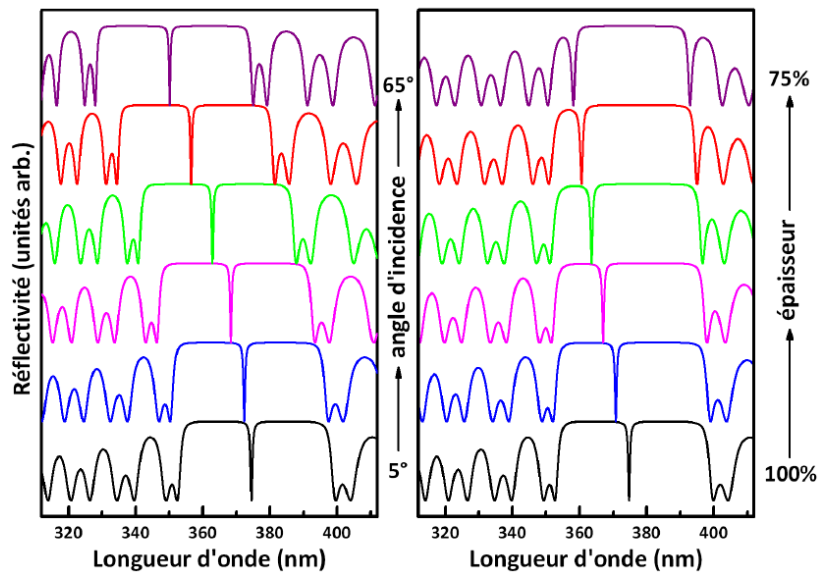


FIGURE 1.9 – Influence de l'angle d'incidence (à gauche) et de l'épaisseur de la couche active (à droite) sur la position du mode de cavité [11].

Lorsque l'épaisseur varie, on observe un décalage du mode de cavité, qui peut sortir de la bande d'arrêt de la microcavité, tandis que lorsque l'angle d'incidence varie, c'est la bande d'arrêt toute entière qui se déplace, et le mode de cavité reste centré dans la bande interdite. Une analyse en angle sera donc tout particulièrement adaptée pour déduire les courbes de dispersion photonique, tandis qu'une analyse en épaisseur permettra d'accorder les modes optiques et excitoniques.

Le confinement du photon a induit une modification importante de sa relation de dispersion, habituellement linéaire en trois dimensions : celle-ci est désormais parabolique. Le confinement a procuré au photon une masse effective, donnée par (1.17), qui est typiquement cinq ordres de grandeur plus faible que la masse de l'électron libre [17].

$$m_\gamma^* = \frac{E_0}{c^2/n_c^2} \quad (1.17)$$

1.3 Le couplage fort lumière-matière

1.3.1 Aspects historiques et théoriques

Le concept de régime de couplage fort dans les solides a été introduit dès 1958 par JOHN JOSEPH HOPFIELD [2], suite à la théorie d'absorption excitonique qu'il trouvait incomplète. Selon lui, les excitons jouent le rôle d'une onde de polarisation électrique, qui va interagir avec le champ électromagnétique : un niveau électronique discret va entrer en résonance avec un niveau photonique, et ces niveaux vont interagir via l'interaction dipolaire. Cette interaction va lever la dégénérescence, et les nouveaux états propres du système sont des états mixtes appelés polaritons excitoniques, séparés en énergie par le dédoublement de Rabi qui vaut deux fois l'interaction.

On peut voir les nouveaux états propres comme une oscillation entre l'état excitonique et photonique à la fréquence de Rabi. En théorie, ces oscillations ne sont pas amorties, et la durée de vie des polaritons excitoniques est infinie. Cependant, ces deux systèmes sont en interaction avec l'environnement, ce qui leur procure un certain élargissement dans le domaine spectral, c'est à dire un temps de cohérence. Ainsi, le couplage fort pourra s'établir seulement si le temps d'amortissement des deux systèmes et le temps d'interaction sont grands devant la période des oscillations.

Les règles de sélection du couplage imposent la conservation du vecteur d'onde, un exciton caractérisé par un vecteur d'onde $\vec{k}$ ne pourra donc être couplé qu'avec un photon de même $\vec{k}$, ce qu'on obtient généralement dans les matériaux massifs. Comme nous l'avons dit dans l'introduction, le couplage entre deux niveaux discrets est une condition suffisante pour l'obtention du couplage fort, mais qui n'est pas nécessaire. En effet, le couplage fort est possible dans le cas d'un couplage entre deux états où un de ces états est noyé dans un continuum, à la condition que ce dernier présente un spectre moins large que l'intensité de couplage V [22]. Dans une microcavité à couche active massive, le photon est confiné suivant l'axe de croissance (z) et son mouvement est libre dans le plan des couches (x, y) ; son vecteur d'onde est donc bidimensionnel et le photon est dit 2D. L'exciton, lui, reste tridimensionnel et son mouvement est libre dans les trois directions de l'espace. Par conséquent, un photon de vecteur d'onde dans le plan des couches $\vec{k}_\parallel$ peut se coupler avec tout exciton de même vecteur d'onde $\vec{k}_\parallel$ dans le plan mais de vecteur d'onde $\vec{k}_z$ quelconque. Le continuum formé par l'exciton massif présente un spectre très fin à cause de sa masse effective très grande devant celle du photon, le couplage fort dans les microcavités à couche massive est donc théoriquement possible [23].

Le couplage fort dans les solides a été observé expérimentalement en 1965 [24], mais il aura fallu attendre 1992 pour la première observation expérimentale du couplage fort en microcavité dans une structure à base d'arséniure de gallium [25]. Cependant, l'énergie de liaison des excitons

dans GaAs est de 4.8 meV [9], ce qui est largement inférieur à l'énergie d'agitation thermique qui vaut 25 meV à température ambiante, l'état de couplage fort disparaît en conséquence. La communauté scientifique s'est donc orienté vers l'utilisation de matériau présentant de meilleures propriétés optiques dans le but de concevoir des dispositifs destiné au grand public ou à l'industrie, comme GaN qui présente de grandes forces d'oscillateurs et une énergie de liaison des excitons de 27 meV [23].

Le couplage fort persistant jusqu'à température ambiante a été démontré théoriquement dans GaN en 1998 [26], puis vérifié expérimentalement en 2005 [27]. Comme nous l'avons dit dans la partie 1.1.1, l'oxyde de zinc présente de nombreux avantages par rapport à GaN, dont nous rappelons ici les deux principaux : une énergie de liaison de 60 meV, et une force d'oscillateur quatre à huit fois plus élevée. Cela en fait donc un candidat de choix pour la réalisation de dispositifs fonctionnant à température ambiante. ZAMFIRESCU ET AL. [28] ont démontré théoriquement la possibilité d'utiliser l'oxyde de zinc pour obtenir le régime de couplage fort, ce qui a renforcé l'intérêt pour ce matériau dont l'étude est depuis ces dix dernières années en pleine expansion.

1.3.2 Traitement semi-classique

Le couplage fort dans les microcavités peut être traité avec un modèle semi-classique, dans lequel le photon et l'exciton sont considérés comme deux oscillateurs harmoniques amortis, couplés par un terme de couplage V [29]. L'hamiltonien du système dans la base des états non perturbés $|C\rangle$ et $|X\rangle$ (correspondants respectivement au photon et à l'exciton) s'écrit sous la forme d'une matrice 2×2 tel que :

$$H = \begin{pmatrix} E_{ph} - j\Gamma_{ph} & V \\ V & E_{exc} - j\Gamma_{exc} \end{pmatrix} \quad (1.18)$$

Les valeurs propres du système, obtenues en résolvant $\det(H - E\mathbb{I}_2) = 0$, s'écrivent :

$$E_{\pm} = E_m - j\Gamma_m \pm \frac{1}{2}\sqrt{4V^2 + (\delta - j\Delta)^2} \quad \text{où} \quad \begin{cases} E_m = (E_{ph} + E_{exc})/2 \\ \Gamma_m = (\Gamma_{ph} + \Gamma_{ex})/2 \\ \delta = E_{ph} - E_{ex} \\ \Delta = \Gamma_{ph} - \Gamma_{ex} \end{cases} \quad (1.19)$$

La partie réelle correspond à l'énergie propre du système, tandis que la partie imaginaire correspond à l'élargissement. Lorsque l'on se place à la résonance, c'est à dire pour un detuning δ nul, on distingue deux cas selon le signe de l'expression sous la racine :

- $4V^2 < \Delta^2$: Le radicande est négatif, les énergies propres présentent des parties réelles identiques, on est en régime de couplage faible.
- $4V^2 > \Delta^2$: Le radicande est positif, on obtient deux branches polaritoniques séparées d'une énergie qu'on appelle dédoublement de Rabi, qui vaut $\hbar\Omega_{rabi} = 2\sqrt{V^2 - \frac{1}{4}\Delta^2}$. Le système va osciller entre l'état photon et exciton, à une fréquence Ω_{rabi} , on se trouve dans le régime de couplage fort.

Cependant, cette dernière condition est trompeuse vu qu'elle fait intervenir seulement la différence des élargissements. Il est plus cohérent de raisonner avec la condition stipulée dans le paragraphe précédent, qui se réécrit mathématiquement :

$$\tau_{Rabi} = \frac{2\pi}{\Omega_{Rabi}} \ll \min(\tau_{ph}, \tau_{exc}) \quad (1.20)$$

La branche basse en énergie, correspondant à un état liant, sera appelée LPB (Lower Polariton Branch), tandis que l'état anti-liant s'appellera UPB (Upper Polariton Branch). A faible $k_{\parallel}$, la LPB suit la dispersion photonique, tandis qu'à grand $k_{\parallel}$, elle suit la dispersion excitonique

(et inversement pour la UPB), comme présenté sur la figure 1.10. Au niveau où le couplage est maximum (c'est-à-dire pour un detuning nul), on peut noter un anti-croisement des deux branches polaritoniques, que l'on cherchera à observer expérimentalement car il constitue une preuve incontestable du couplage fort. La technique de réflectivité résolue en angle, détaillée dans l'annexe B.1, est une des possibilités pour observer l'anti-croisement et démontrer l'état de couplage fort.

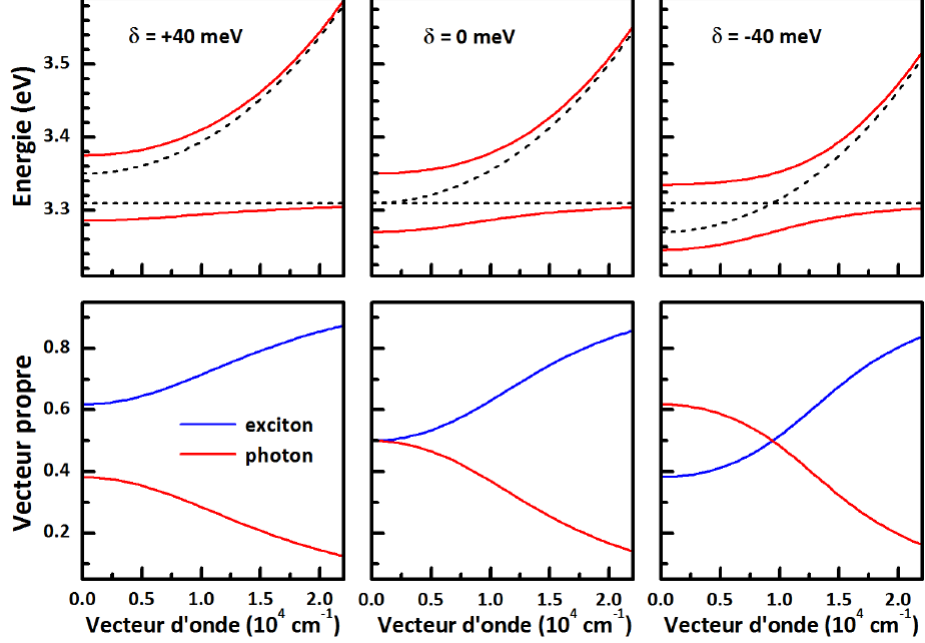


FIGURE 1.10 – Evolution des courbes de dispersion polaritoniques pour différents detuning (en haut) ainsi que les poids photon et exciton de la LPB correspondants (en bas). Les modes nus sont représentés en pointillés [11].

La projection de la fonction d'onde des états couplés dans la base des états non couplés nous donne les composantes photonique (α_i) et excitonique (β_i), qu'on appelle coefficients de Hopfield [29]. Portés au carré, ces coefficients représentent les poids photonique et excitonique du polariton, et sont donnés respectivement par (1.21) et (1.22) pour la LPB.

$$\alpha_{LPB}^2 = \frac{4V^2}{4V^2 + (\delta + \hbar\Omega_{Rabi})^2} \quad (1.21)$$

$$\beta_{LPB}^2 = \frac{(\delta + \hbar\Omega_{Rabi})^2}{4V^2 + (\delta + \hbar\Omega_{Rabi})^2} \quad (1.22)$$

La connaissance de ces grandeurs est primordiale car elle impactera fortement la nature de nos polaritons. On remarque que ces poids dépendent essentiellement du detuning ainsi que de l'énergie de dédoublement de Rabi. La valeur V du couplage entre l'exciton et le photon est proportionnelle à la racine carrée de la force d'oscillateur [30], ainsi, le couplage (et par suite l'énergie de dédoublement de Rabi) sera d'autant plus fort que la force d'oscillateur sera importante. Pour atteindre le couplage fort, on se tournera donc vers des structures ayant de grandes forces d'oscillateurs, des élargissements de photon et d'exciton les plus faibles et les plus proches possibles. Les élargissements photoniques et excitoniques peuvent être respectivement atténués en utilisant des miroirs de plus haute réflectivité, et une couche active de meilleure qualité (exempte de fissures ou de défauts).

On peut maintenant se demander l'intérêt d'utiliser des dispositifs de confinement, étant donné que le couplage fort existe aussi dans des matériaux massifs. En fait, ce confinement

induit de nombreuses modifications dans la nature des polaritons. Le polariton massif a une énergie nulle en $\vec{k} = \vec{0}$, ce qui empêche tout effet quantique collectif dans l'état fondamental. En microcavité, le confinement du photon entraîne une courbure de sa relation de dispersion, et une énergie non nulle en $\vec{k} = \vec{0}$. Le polariton possède donc un niveau énergétique fondamental qui est fini, ce qui va permettre ces effets quantiques collectifs (on rappelle que les polaritons se comportent, sous certaines conditions, comme des bosons), et l'on s'attendra à une transition de phase vers un condensat de Bose-Einstein.

1.4 De la condensation de Bose-Einstein vers le laser à polaritons

Du point de vue de leur comportement statistique, toutes les particules et assemblages de particules peuvent être classés en deux catégories : les bosons et les fermions. Les fermions sont décrits par une fonction d'onde antisymétrique et possèdent un spin demi-entier, ce qui va donner lieu à des interférences quantiques destructives, qu'on appelle principe d'exclusion de Pauli : deux fermions ne peuvent coexister dans le même état quantique. Pour les bosons, la fonction d'onde les décrivant est symétrique, et ceux-ci possèdent un spin entier, on aura des interférences quantiques constructives, ce qui amènera à l'attraction de Bose : les bosons peuvent occuper le même état quantique. Néanmoins, ces interférences sont possibles à la condition que les fonctions d'ondes associées aux différentes particules se recouvrent, et soient cohérentes entre elles, ce qui nécessite (comme nous allons le voir plus loin) de très basses températures. Cette propriété d'attraction bosonique va donner lieu à un phénomène spectaculaire : un système de bosons va pouvoir subir une transition de phase vers l'état de plus basse énergie, où les N_0 bosons condensés seront décrits par une seule fonction d'onde ψ_0 . On a la formation d'un fluide macroscopique aux propriétés quantiques : le condensat de Bose-Einstein.

1.4.1 Aspects historiques et théoriques

Suite aux travaux de BOSE, qui proposa une statistique pour les photons différente de la statistique classique de Maxwell-Boltzmann [31], EINSTEIN généralisa ces résultats à tous les bosons puis prédit théoriquement ce phénomène de condensation particulier en 1925 [32]. En vertu du principe de la dualité onde-corpuscule, la nature quantique d'une particule est caractérisée par sa longueur d'onde de DE BROGLIE, que l'on peut voir comme l'extension spatiale de cette particule. Celle-ci est donnée par la relation suivante :

$$\lambda_{dB} = \frac{h}{2\pi m k_B T} \quad (1.23)$$

Les effets quantiques surviendront quand la distance entre les particules sera du même ordre de grandeur que leur longueur d'onde de de Broglie. Pour cela, on peut soit augmenter le nombre de particules dans notre système, soit en diminuer la température. Un traitement plus approfondi de ce qui suit est présenté dans l'annexe A.

Considérons tout d'abord un système de N bosons sans interactions dans une boîte de volume V à la température T tous deux fixés, et l'on posera $n = N/V$ la densité de bosons. Quand N est suffisamment petit, les bosons suivent une statistique de Maxwell-Boltzmann. Lorsque N augmente au delà d'une valeur seuil N_{max} , les $N - N_{max}$ bosons iront se placer dans l'état fondamental : on dit qu'ils se condensent. On raisonnera toutefois en terme de densité critique n_c qui s'écrit $n_c = N_{max}/V$. On comprend bien l'analogie faite par Einstein, où la phase non condensée ne peut accueillir un boson supplémentaire, et est comparable à un gaz parfait saturé.

On peut raisonner de manière plus intuitive sur un système de volume fini et constitué d'un nombre fini de bosons, dans lequel on fait varier la température. A haute température, λ_{dB} est petit devant la distance entre les particules : on peut les traiter de manière classique via la

statistique de Maxwell-Boltzmann. Ensuite, on commence à réduire la température, et au fur et à mesure de cette diminution, λ_{dB} augmente et va devenir du même ordre de grandeur que la distance entre les particules : les ondes associées aux diverses particules vont se recouvrir partiellement et interférer. En dessous d'une certaine température, appelée température critique T_c , une fraction macroscopique de la population des particules se condense dans l'état fondamental. La présence des bosons dans la phase condensée stimule les bosons de la phase non condensée à passer dans l'état fondamental, si bien que lorsque l'on continue à diminuer la température du système, la fraction condensée continue d'augmenter jusqu'à un maximal, théoriquement atteint pour $T = 0 \text{ K}$.

Pour un système 3D sans interactions, on trouve que la valeur de la température critique est donnée par :

$$T_c = \frac{2\pi\hbar^2}{mk_B} \left(\frac{N}{V\xi(3/2)} \right)^{2/3} \quad (1.24)$$

La valeur de T_c reste inchangée si l'on augmente N et V tout en gardant le rapport N/V constant, on peut donc passer à la limite thermodynamique ($N \rightarrow \infty$, $V \rightarrow \infty$ et $N/V = \text{constante}$). Cependant la température critique attendue pour des atomes est de l'ordre du nanoKelvin, EINSTEIN écrira lui-même à EHRENFEST : *l'idée est belle mais contient-elle une part de vérité ?*

Il faudra attendre 70 ans et le perfectionnement des techniques de cryogénie pour observer pour la première fois ce phénomène : WIEMAN et CORNEL parviennent à condenser 90 % des atomes de Rubidium d'un système refroidi à 170 nK [4], ce qui leur a valu le Prix Nobel de Physique en 2000. A l'instar du laser à photons, on souhaitait utiliser le condensat comme laser à atomes, étant donné que ces derniers occupent un état identique et qu'une cohérence de phase s'est établie. Cependant, atteindre ces températures extrêmes nécessite des prouesses technologiques qui ne sont pas très confortables pour l'expérimentation.

Dès 1962, BLATT et MOSKALENKO avaient eu l'idée d'utiliser des particules plus légères [33, 34] afin de pouvoir expérimenter à des températures plus abordables, et ils se tournèrent vers les excitons dans les semi-conducteurs, dont la masse est d'environ 0,1 fois la masse de l'électron libre, soit 10^{-6} fois plus petite que la masse de l'atome de Rubidium. On espérait donc atteindre des températures de condensation de l'ordre du Kelvin.

1.4.2 Le polariton : un boson composite

Le spin total de l'exciton est entier, celui-ci est donc un boson composite de la même manière qu'un atome appartenant à la famille des alcalins. Cependant, les excitons ont des énergies de liaison beaucoup plus faibles que ces atomes (de l'ordre de la dizaine de meV pour les excitons contre plusieurs dizaines d' eV voire de MeV pour les atomes), ils sont de ce fait beaucoup plus fragiles, et ne se comportent comme des bosons seulement sous certaines conditions.

On rappelle que le commutateur entre l'opérateur annihilation b et création $b^\dagger$ bosonique vaut strictement 1. Le commutateur entre ces deux opérateurs pour l'exciton, écrits dans la base de l'électron et du trou, s'écrit (1.25) [35] :

$$[b, b^\dagger] \sim 1 - O(Na_B^d) \quad \text{où } d \text{ représente la dimension du gaz d'exciton} \quad (1.25)$$

Les excitons sont donc assimilables à des bosons tant que leur densité reste inférieure à l'inverse du rayon de Bohr, soit quand la distance entre deux excitons est supérieure à la distance séparant l'électron et le trou. Néanmoins, N doit être suffisamment grand (en fait supérieur à n_c) afin de permettre la transition de phase vers un condensat. C'est pour cela que l'on travaille avec des semi-conducteurs à grands gaps : le rayon de Bohr est d'autant plus faible que la largeur de bande interdite est grande, comme nous l'avions précisé lors du traitement par le modèle hydrogénoïde en 1.1.4. Au delà d'une densité trop élevée, appelée densité de Mott, on casse les excitons et on obtient un plasma d'électrons et de trous.

En premier lieu, il était question d'utiliser directement les excitons afin de former un condensat de Bose-Einstein, et l'utiliser comme source de lumière cohérente suite à leur recombinaison radiative, mais à cause des défauts du matériau, il s'avéra impossible d'obtenir une cohérence de phase à grande échelle. Le couplage fort en microcavités a relancé l'intérêt général pour obtenir un condensat dans une phase solide : le polariton¹, résultant du couplage entre deux bosons, est donc lui aussi un boson. Mais, de part sa nature photonique, sa masse effective est environ un milliard de fois plus faible que celle des atomes de Rubidium [5], et le polariton verra moins les défauts, une cohérence de phase à plus grande échelle pourra donc s'établir. On peut espérer voir se former des condensats jusqu'à température ambiante, ayant une cohérence de phase suffisamment grande afin de l'utiliser comme émetteur de lumière.

Cependant, un gaz de polaritons s'éloigne fortement du modèle de gaz d'atomes dilués précédemment cité. Premièrement, dans notre étude, nous considérons un gaz en deux dimensions. Dans la limite thermodynamique, la condensation de Bose-Einstein est impossible pour un système 2D (voir annexe A.2) mais toutefois autorisée dans un système fini. Pour palier la perte des polaritons au travers des miroirs, le système ouvert est continuellement alimenté afin de recréer des polaritons, et donc réaliser une condensation hors équilibre. De plus, les polaritons ont un temps de vie fini ce qui ne leur permet pas d'atteindre l'équilibre thermodynamique (cependant, l'importance n'est pas d'atteindre un équilibre thermique avec le milieu environnant, mais plutôt un équilibre thermique interne au gaz [5]). Du fait de ce temps de vie fini, la cinétique des polaritons jouera un rôle fondamental dans les phénomènes de relaxation, qui sont possibles car les polaritons interagissent fortement entre eux via leur partie excitonique, alors que les hypothèses de départ stipulent un gaz de bosons libres sans interactions. Ainsi, pour un gaz de polaritons, on parlera plutôt d'une quasi-condensation de Bose-Einstein [36], qui peut être décrite par la théorie thermodynamique ou être totalement hors équilibre.

Dans la limite thermodynamique, le système peut en revanche subir une transition de phase vers un état superfluide qu'on appelle transition BKT, due à BEREZINSKII, KOSTERLITZ et THOULESS [37, 38]. Cet état est très proche d'un condensat de Bose-Einstein, on retrouve notamment une occupation macroscopique de l'état fondamental, et une longueur de cohérence élevée. Cette transition est liée à l'apparition de vortex dans la phase condensée, qui donnent lieu à d'autres propriétés stupéfiantes comme par exemple la magnétoconductivité [39].

Le déclin radiatif des polaritons amène irrémédiablement à la création d'un photon, l'émission de lumière par le condensat sera alors cohérente, monochromatique et unidirectionnelle, ce qui fait bien entendu penser à une émission laser. La force de ce nouveau type de laser est qu'il ne requiert pas d'inversion de population comme dans les lasers classiques, on parlera ici de laser à polaritons, comme proposé pour la première fois par IMAMOGLU en 1996 [39].

1.4.3 Condensation des polaritons et effet laser

Afin de réaliser un condensat de Bose-Einstein, nous avons vu que deux voies étaient envisageables : augmenter la densité de particules ou abaisser la température de ces dernières. Alors que pour les expériences sur les condensats atomiques, on s'attache à diminuer la température, les expériences sur les condensats polaritoniques visent à augmenter la densité de polaritons, grâce à un pompage optique. La relaxation des polaritons est gouvernée par des processus de diffusions stimulés par l'état final, et le seuil de condensation dépendra de l'efficacité de ces derniers. Nous allons voir que ceux-ci dépendent spécifiquement de la température et du detuning, et comment nous pourrions minimiser le seuil de condensation.

1. Par souci de sobriété, on utilisera la dénomination polariton à la place de polariton excitonique de cavité

a Condensation dans la limite thermodynamique

Considérons tout d'abord que les polaritons ont un temps de vie infini, et qu'ils interagissent avec un réservoir de phonons caractérisé par $T_{réseau}$. Dans ce système idéal, les polaritons vont pouvoir thermaliser vers $T_{réseau}$, et suivent une distribution de Maxwell-Boltzmann. A partir de la densité critique $n_c^0(T_{réseau})$, les polaritons vont subir une transition de phase vers un état superfluide et suivent une distribution de Bose-Einstein. Cette densité critique dépend, comme nous l'avons dit dans la section précédente, de la température ainsi que de la masse des particules considérées. Or la masse effective des polaritons est d'autant plus faible que l'on se trouve à un detuning négatif, car leur part photonique est plus élevée, donc la transition de phase vers un condensat est thermodynamiquement favorisée aux detunings négatifs, et bien entendu aux faibles températures.

La figure 1.11 représente le diagramme de phase de ZnO. Celui-ci permet de résumer les différents régimes de fonctionnement d'une microcavité à base d'oxyde de zinc.

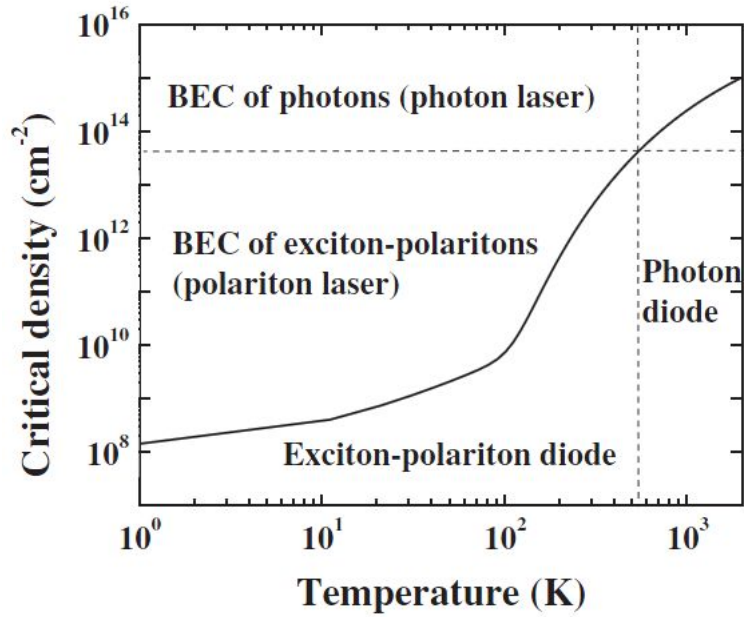


FIGURE 1.11 – Diagramme de phase de ZnO [28].

Le trait vertical représente une limite en température (560 K dans ZnO) au delà de laquelle le couplage fort devient impossible car l'élargissement Γ_{exc} des excitons est trop important. Le trait horizontal représente quant à lui une limite en densité (qui est la densité de Mott) au delà de laquelle les excitons sont détruits et réduits à un plasma d'électrons et de trous. Au dessus de ces deux limites, on est dans un régime de couplage faible que l'on a dans les VECSELs, où la structure se comportera comme une diode électroluminescente ou une diode laser.

Notre intérêt se trouve bien entendu en dessous de ces deux limites, où un régime de condensation est possible à une densité suffisamment faible à température ambiante.

b Cinétique de relaxation

Le diagramme 1.11 est obtenu si l'on considère le temps de vie des polaritons comme infini, ou tout du moins très grand devant le temps de relaxation des polaritons, ce qui est bien entendu inexact dans les systèmes réels. Expérimentalement, on forme tout d'abord des porteurs libres à grand $k_{\parallel}$ grâce à une excitation laser non résonante, afin que la cohérence induite par le laser soit perdue avant que les polaritons aient relaxé vers l'état fondamental. Les porteurs vont s'apparier pour former des excitons, qui vont constituer un réservoir afin d'alimenter la formation de polaritons à grand $k_{\parallel}$ sur la LPB dont la composante excitonique est considérable. Les polaritons vont ensuite relaxer le long de la LPB selon deux mécanismes : interactions polaritons-polaritons

et polaritons-phonons (optiques et acoustiques). Les interactions polaritons-polaritons sont essentiellement des collisions qui mettent en jeu uniquement la nature excitonique du polariton, et sont donc d'autant plus efficaces que celle-ci est élevée. Les phonons optiques ont une relation de dispersion très plate, et interviennent tant que l'énergie des polaritons restante à relaxer est supérieure à leur énergie pour un vecteur d'onde quelconque, tandis que les transitions énergétiques due aux phonons acoustiques, qui eux ont une relation de dispersion linéaire, se feront à de faibles énergies et grands vecteurs d'ondes.

En théorie, ces deux mécanismes sont suffisamment efficaces pour permettre une thermalisation vers $T_{réseau}$ dans la partie encore très excitonique de la dispersion [40], mais tout au long de la relaxation, la composante excitonique des polaritons diminue et ceux-ci deviennent de plus en plus photons. Les interactions deviennent donc moins efficaces au fur et à mesure de la relaxation. Les polaritons peuvent rester et s'accumuler dans une région appelée goulot d'étranglement (bottleneck en anglais), située à l'inversion de courbure de la LPB, et observée expérimentalement.

Cependant, en augmentant la puissance de pompage, on crée plus de polaritons, les interactions polaritons-polaritons augmentent et la relaxation en $k_{\parallel} = 0$ devient possible. La figure 1.12 retrace les différents processus de relaxation.

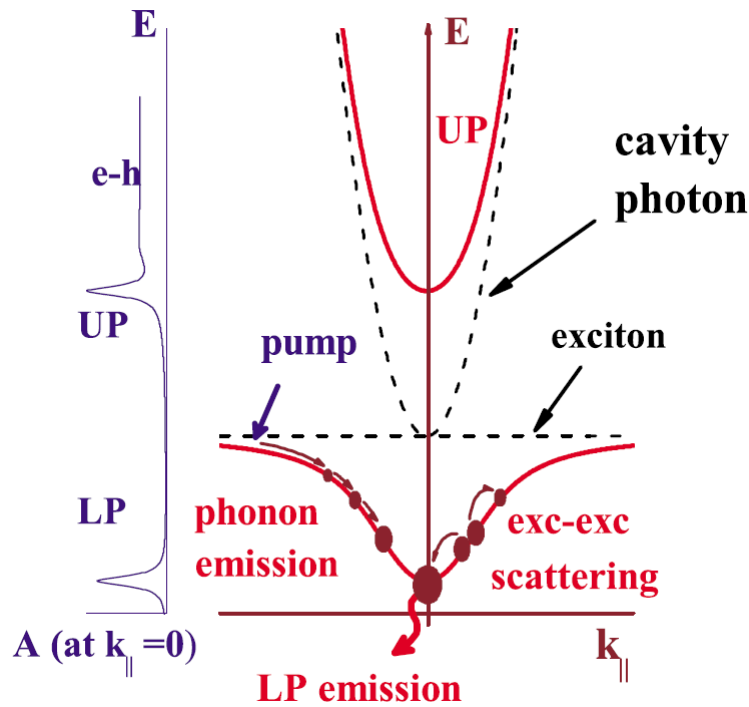


FIGURE 1.12 – Processus de relaxation [17].

Un paramètre important régissant l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein de polaritons est le temps de relaxation τ_{rel} , qui correspond au temps nécessaire pour les polaritons de passer d'une température induite par le pompage à la température $T_{réseau}$ que l'on comparera à la durée de vie des polaritons intra-cavité τ_{pol} [40].

Regardons tout d'abord les deux cas limites. Quand $\tau_{rel} \ll \tau_{pol}$, la cinétique de thermalisation est assez rapide et le gaz relaxera vers un état à $T_{effective}$ (généralement supérieure à $T_{réseau}$, ce n'est cependant pas gênant car le plus important est que le gaz de polaritons soit en équilibre thermique interne [5]), et on devrait obtenir un condensat de Bose-Einstein pour des densités proches de celles prédites par un modèle thermodynamique. D'autre part, quand $\tau_{rel} \gg \tau_{pol}$, la distribution des polaritons n'est pas thermalisée, et le seuil dépendra uniquement de la cinétique de relaxation. On ne pourra pas parler de condensation de Bose-Einstein, mais seulement de laser à polaritons.

Or τ_{rel} est d'autant plus faible que le detuning est élevé, car cela favorise les interactions polaritons-polaritons et polaritons-phonons du fait de la composante excitonique des polaritons plus importante; de même qu'une forte température améliore l'efficacité des interactions polaritons-phonons. D'un point de vue purement cinétique, on préférera se placer à des detunings positifs et à haute température, contrairement à un aspect thermodynamique.

Le seuil de condensation minimal résultera de ces deux tendances divergentes. On se place à un detuning fortement négatif, où la cinétique est un facteur limitant, puis on augmente le detuning : le seuil devrait diminuer, puis atteindre un minimum, où la cinétique et la thermodynamique du système joue un rôle équivalent. On continue d'augmenter le detuning, le seuil augmente de nouveau et la transition de phase est contrôlé par les paramètres thermodynamiques. Le detuning optimum se trouvera à la limite où la cinétique et la thermodynamique du système joue le même rôle, c'est à dire pour $\tau_{rel} = \tau_{pol}$. Le detuning optimum dépendra aussi de la température : celle-ci a deux effets contraires, puisque τ_{rel} diminue et $n_c^0(T_{réseau})$ augmente quand $T_{réseau}$ augmente, toutefois le detuning optimum diminuera quand la température augmentera. L'évolution du seuil de condensation en fonction du detuning est présenté sur la figure 1.13, pour une microcavité sur laquelle nous reviendrons dans le chapitre 2.

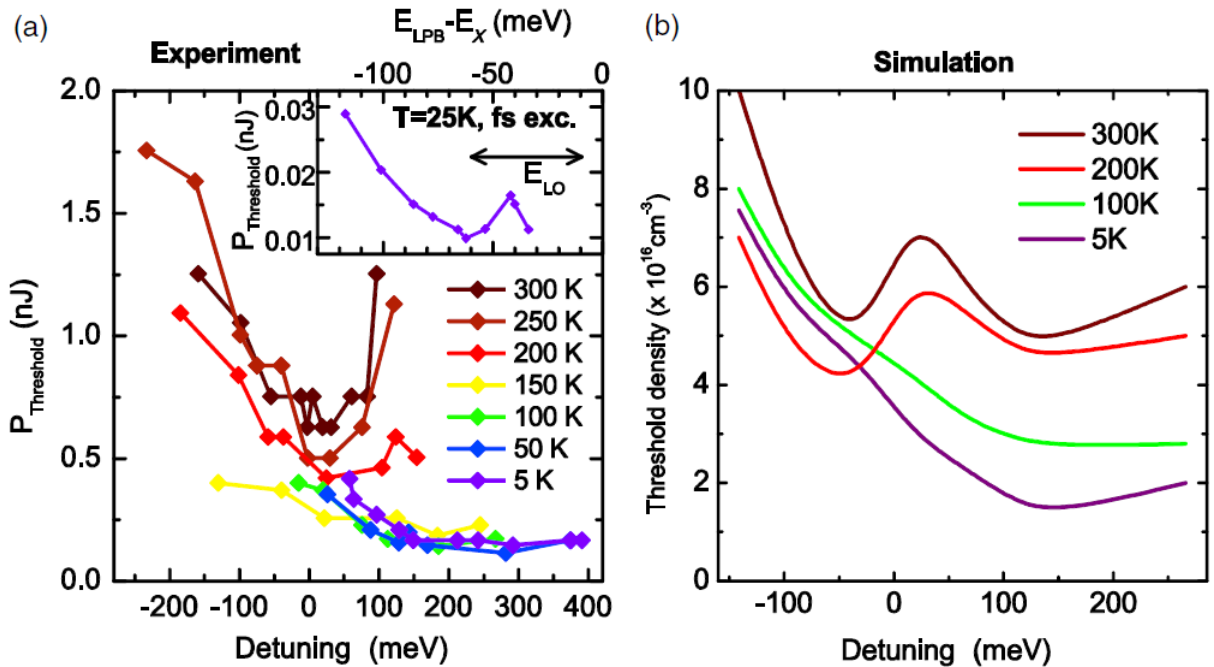


FIGURE 1.13 – (a) Evolution du seuil de condensation en fonction du detuning pour une couche active épaisse d'environ 2.5λ . (b) Evolution du seuil de condensation calculé avec les équations semi-classiques de Boltzmann avec les paramètres de la structure caractérisée dans (a) [21].

A une température donnée, le seuil diminue avec le detuning, passe par un minimum puis augmente. Contrairement à des matériaux tels GaN, qui ont été largement étudiés, le detuning optimum est ici positif. C'est en fait dû au fort dédoublement de Rabi dans ZnO qui implique un puits énergétique plus profond que pour GaN. A basse et à haute température, on remarque un second minimum pour le seuil de condensation. En fait, pour ces detuning particuliers, la relaxation est assistée par les phonons LO dont l'étude est détaillée dans la référence [41].

Bien que l'on ait donné toutes les conditions pour avoir l'accumulation d'une population macroscopique de polaritons en $k_{||} = 0$, ainsi qu'une thermalisation, deux autres facteurs cruciaux sont à vérifier pour démontrer la formation d'un condensat de Bose-Einstein. Cette transition de phase est le passage d'une population incohérente vers une population cohérente, décrite par une seule fonction d'onde macroscopique. On s'attendra donc à l'établissement d'une cohérence spatiale à grande échelle ainsi qu'à l'apparition d'une polarisation linéaire [5].

En résumé, la preuve de l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein polaritonique devra vérifier les points suivants :

- Obtention de l'équilibre thermodynamique (thermalisation)*
- Passage d'une distribution de Maxwell-Boltzmann à une distribution de Bose-Einstein
- Affinement de la largeur de raie (ce qui se traduit par une augmentation de la cohérence temporelle)
- Apparition d'une polarisation spontanée
- Cohérence spatiale à longue distance

On rappelle que la condition marquée d'une étoile reste facultative concernant l'effet laser à polaritons. Elle est cependant requise pour parler d'une condensation de Bose-Einstein. Avoir un condensat de Bose-Einstein implique d'avoir un effet laser à polaritons, mais la réciproque est fausse. En ce sens, l'effet laser à polaritons est moins strict. Concrètement, ces différents points seront vérifiés grâce à des mesures optiques, dont certaines feront l'objet du deuxième chapitre. En effet, les photons sortant de la microcavité sont une fraction des polaritons, l'analyse de la lumière réémise permettra de remonter aux propriétés des polaritons intra-cavité.

1.4.4 Intérêts du laser à polaritons

On peut présenter ici les atouts principaux d'un laser à polaritons vis à vis du VECSEL (Vertical cavity surface-emitting laser), qui est un laser à photon très proche de par sa structure du laser à polaritons, mais qui opère en régime de couplage faible. Comme dans tous les lasers conventionnels, un pompage optique amène la distribution électrons-trous hors de l'équilibre, et l'effet laser est obtenu si et seulement si la condition de Bernard-Durrafourg est remplie, c'est-à-dire quand il y a inversion de population. La lumière émise provient de la recombinaison des électrons et des trous, qui est principalement stimulée.

En ce qui concerne un laser à polariton, on s'affranchit de cette inversion de population. L'émission cohérente débute dès que l'occupation de l'état fondamental excède l'unité, et provient de la fuite des photons au travers de la microcavité. En ce sens, on s'attend à des seuils d'excitation beaucoup plus faibles. Cette hypothèse peut être vérifiée par une étude en puissance, où l'on pourra observer une transition entre le laser à polaritons et le laser à photons [7].

Pour terminer ce premier chapitre, on rappelle ici les principales caractéristiques que devra avoir une structure dans le but d'étudier des condensats de polaritons :

- Facteur de qualité élevé pour assurer un long temps de vie au photon et donc au polariton
- Interactions polaritons-polaritons et polaritons-phonons suffisamment efficaces pour permettre une thermalisation rapide
- Un faible rayon de Bohr ainsi qu'une énergie de liaison élevée pour avoir une forte densité de Mott
- Une force d'oscillateur élevée pour assurer un couplage aussi fort que possible

Dans le second chapitre, nous nous attacherons à prouver uniquement l'augmentation de la cohérence temporelle au delà du seuil grâce à des mesures de photoluminescence dont les principes sont développés dans l'annexe B.3. Les autres points comme la cohérence spatiale ou l'apparition d'une polarisation spontanée n'étant pas démontré, on parlera seulement de condensat pour qualifier la population partiellement cohérente de polaritons, et non pas de condensat de Bose-Einstein.

2 Etude spectroscopique de microcavités à base de ZnO

Après un bref exposé de ce que nous chercherons à observer au travers des différentes mesures optiques, nous présenterons l'étude de deux microcavités à base d'oxyde de zinc : ZFeng et Z1232. L'étude de ces échantillons est le fruit d'une collaboration entre quatre laboratoires : le LABORATOIRE DE PHOTONIQUE ET DE NANOSTRUCTURES (Marcoussis), le CENTRE DE RECHERCHE SUR L'HETERO-EPITAXIE ET SES APPLICATIONS (Valbonne), le LABORATOIRE CHARLES COULOMB (Montpellier) ainsi que l'INSTITUT PASCAL (Clermont-Ferrand). Le LPN a réalisé la conception et la croissance des DBRs, tandis que les couches de ZnO ont été conçues au CHREA. L'IP ainsi que le L2C effectuent tous les deux des mesures optiques sur ces structures. L'obtention du couplage fort et de l'effet laser à polaritons sera vérifié pour ces deux échantillons, puis je me concentrerai sur les principaux résultats et exposerai les phénomènes de commutations polaritoniques et de propagation du condensat de polaritons. Les mesures seront effectuées en intégralité à 77 K grâce à un refroidissement par azote liquide, sous excitation non résonante à partir d'un laser émettant à 266 nm, pulsé à 130 fs et cadencé à 76 MHz.

2.1 Observation du condensat

Ce sont des mesures combinées de photoluminescence dans le plan réel et de Fourier qui vont nous permettre de vérifier la condition d'augmentation de la cohérence temporelle nécessaire à l'obtention d'un condensat. Ces techniques sont présentées dans l'annexe B.3. Le principal avantage d'une imagerie dans le plan de Fourier est que l'on accède directement à la dispersion des polaritons, comme on peut le voir sur la figure 2.1 qui présente les spectres d'émission d'une microcavité CdTe à 5 K pour trois puissances d'excitation [5].

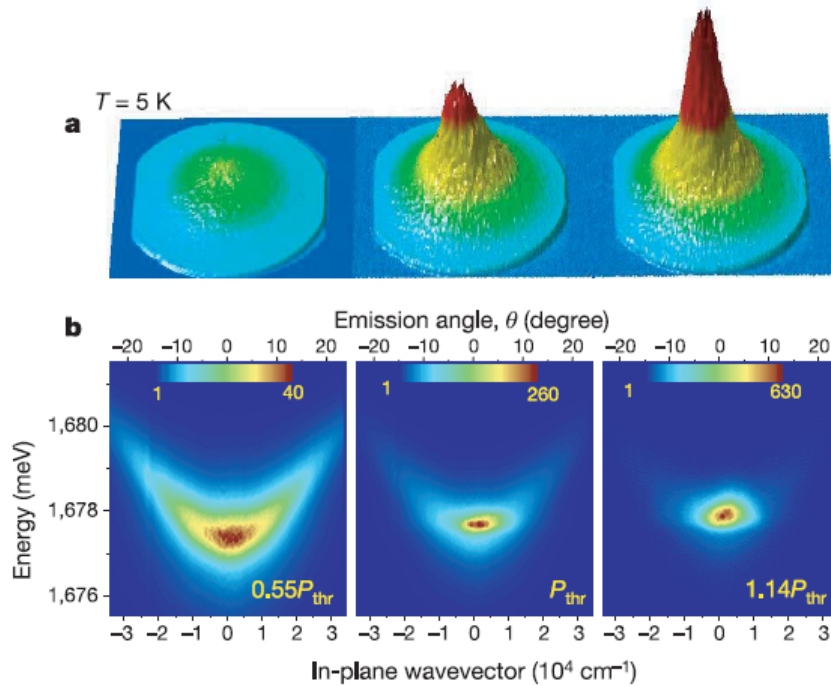


FIGURE 2.1 – Observation de la condensation en $k_{\parallel} = 0$. (a) représente les spectres d'émission en champ lointain. (b) Courbe de dispersion des polaritons obtenues grâce à l'imagerie du plan de Fourier pour les mêmes puissances d'excitation que (a).

Sous le seuil (à gauche), l'émission provient d'une zone large autour de $\theta = 0$. Au niveau du seuil (au centre), l'émission devient beaucoup plus importante et se localise en $\theta = 0$, ce qui se traduit par une augmentation de la cohérence temporelle. Le maximum d'émission provient du bas de la LPB où de plus en plus de polaritons viennent peupler l'état de plus basse énergie, tandis que les autres états sont saturés. Au-dessus du seuil (à droite), le pic d'émission devient encore plus intense. De plus, on remarque un léger décalage vers le bleu de la LPB au fur et à mesure de l'augmentation de la puissance de pompage, généralement attribué aux fortes interactions polaritons-polaritons au sein du condensat [5].

2.2 Microcavité ZFeng

2.2.1 Description de l'échantillon

Contrairement aux échantillons classiques, dans lesquels la couche active de la microcavité est directement épitaxiée sur le DBR inférieur, l'originalité de cette microcavité réside dans l'utilisation d'un substrat massif d'oxyde de zinc d'une épaisseur de 500 μm . La figure 2.2 retrace la conception de l'échantillon.

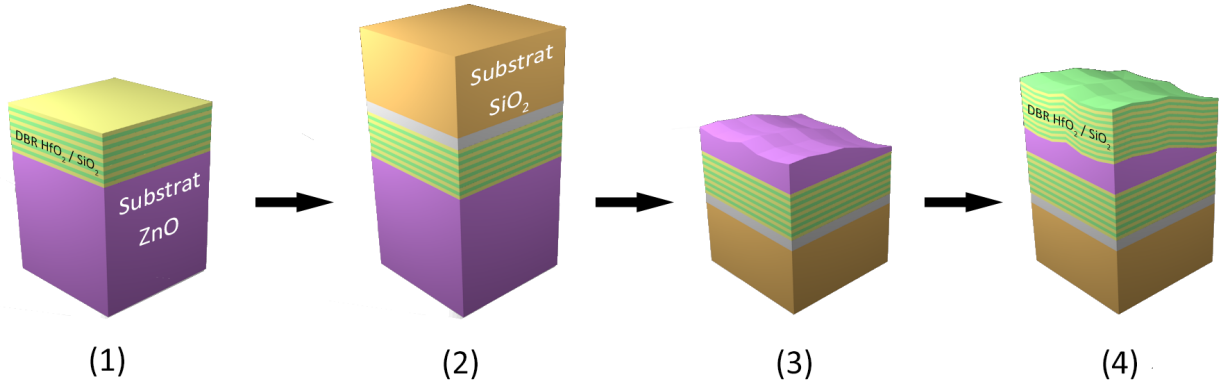


FIGURE 2.2 – Etape 1 : On fait croître six paires de HfO_2/SiO_2 sur la couche active, qui constitueront le DBR inférieur - Etape 2 : Une couche d'aluminium de 100 nm puis un substrat de silice sont déposés sur le DBR - Etape 3 : La structure est retournée, et la couche active est polie (mécaniquement puis chimiquement) jusqu'à une épaisseur de quelques centaines de nanomètres - Etape 4 : On fait de nouveau croître un DBR HfO_2/SiO_2 sur la couche amincie de ZnO, constitué de neuf paires.

L'utilisation de ce nouveau type de microcavité combine deux avantages : la qualité cristalline du substrat est exceptionnelle (il est donc exempt de défauts) et les DBRs diélectriques de grande réflectivité autorisent des facteurs de qualité très élevés, qui avoisinent 4000, ce qui n'avait jamais été atteint auparavant dans ZnO. De telles valeurs permettent d'atteindre des temps de vie pour le photon de l'ordre de la picoseconde. Par ailleurs, cette technique de fabrication entraîne un fort gradient d'épaisseur, et l'échantillon présentera des zones allant d'une épaisseur de 100 nm jusqu'à plus de 800 nm. L'énergie de dédoublement de Rabi dépendant de l'épaisseur de la couche active, celle-ci atteint des valeurs s'échelonant de 180 à 260 meV. Ces propriétés permettent de former des condensats dans une gamme de température allant de 4 à 300 K, et d'une fraction excitonique entre 17 et 96 % [21]. Une situation très singulière se produit dans ces zones épaisses de l'échantillon, dans lesquelles plusieurs modes de cavités sont autorisés, et par suite autant de modes polaritoniques, comme le montre la figure 2.3.

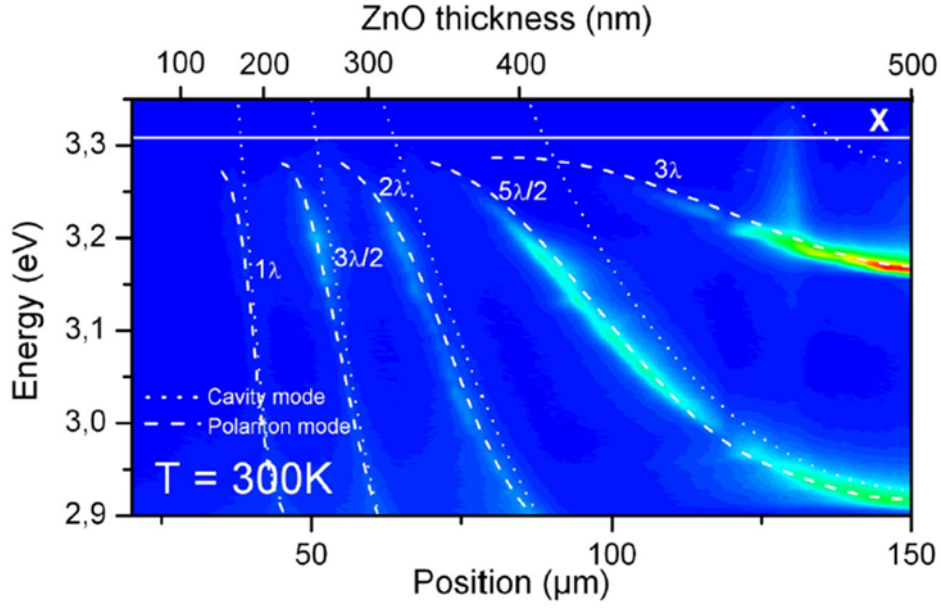


FIGURE 2.3 – Spectre d'émission sous le seuil le long du gradient d'épaisseur [21].

Cette figure constitue par ailleurs la preuve que le système est dans un état de couplage fort : au fur et à mesure que l'on s'approche du mode excitonique, la courbure des modes polaritoniques devient de plus en plus plate.

2.2.2 Observation du couplage fort et de l'effet laser

Les preuves du couplage fort ainsi que de l'obtention d'un condensat dans cette microcavité ayant fait l'objet de la référence [21], je tiens toutefois à présenter les résultats d'une mesure que j'ai effectuée et qui m'a permis, pour la première fois, d'observer l'effet laser. La figure 2.4 présente les mesures dans l'espace réel et de Fourier pour différentes puissances d'excitation. Dans l'espace de Fourier, nous distinguons deux courbes dispersions : celle à haute énergie possède une courbure plus plate que celle à basse énergie, ce qui témoigne de sa nature plus excitonique et de l'état de couplage fort. Lorsque la puissance du laser augmente, les polaritons vont relaxer le long de la branche inférieure (la branche supérieure étant défavorisée thermodynamiquement car elle est trop proche des excitons), et les photons émis proviendront préférentiellement de cette branche. Une simulation numérique basée sur le modèle semi-classique présenté en ?? nous permet de déterminer les coefficients de Hopfield : en $k_{||} = 0$, les polaritons sont à 47 % photon.

Au niveau du seuil, qui se situe entre 3 et 4 mW, on observe un amincissement de la raie d'émission et une exaltation de l'émission qui gagne presque une décade, ce qui prouve l'augmentation de la cohérence temporelle du condensat. Le léger décalage vers le bleu typique de l'apparition de l'effet laser à polaritons du fait des fortes interactions polaritons-polaritons au sein du condensat est aussi présent et vaut environ 2 meV. Dans l'espace réel, l'émission se localise au-dessus du seuil et le pic d'émission devient plus intense et est de l'ordre de $1 \mu m^2$. On pourra aussi remarquer que la courbure de la dispersion est nulle au delà du seuil, ce qui est attribuée à une transition de phase vers un verre de Bose ayant fait l'objet de la référence [42].

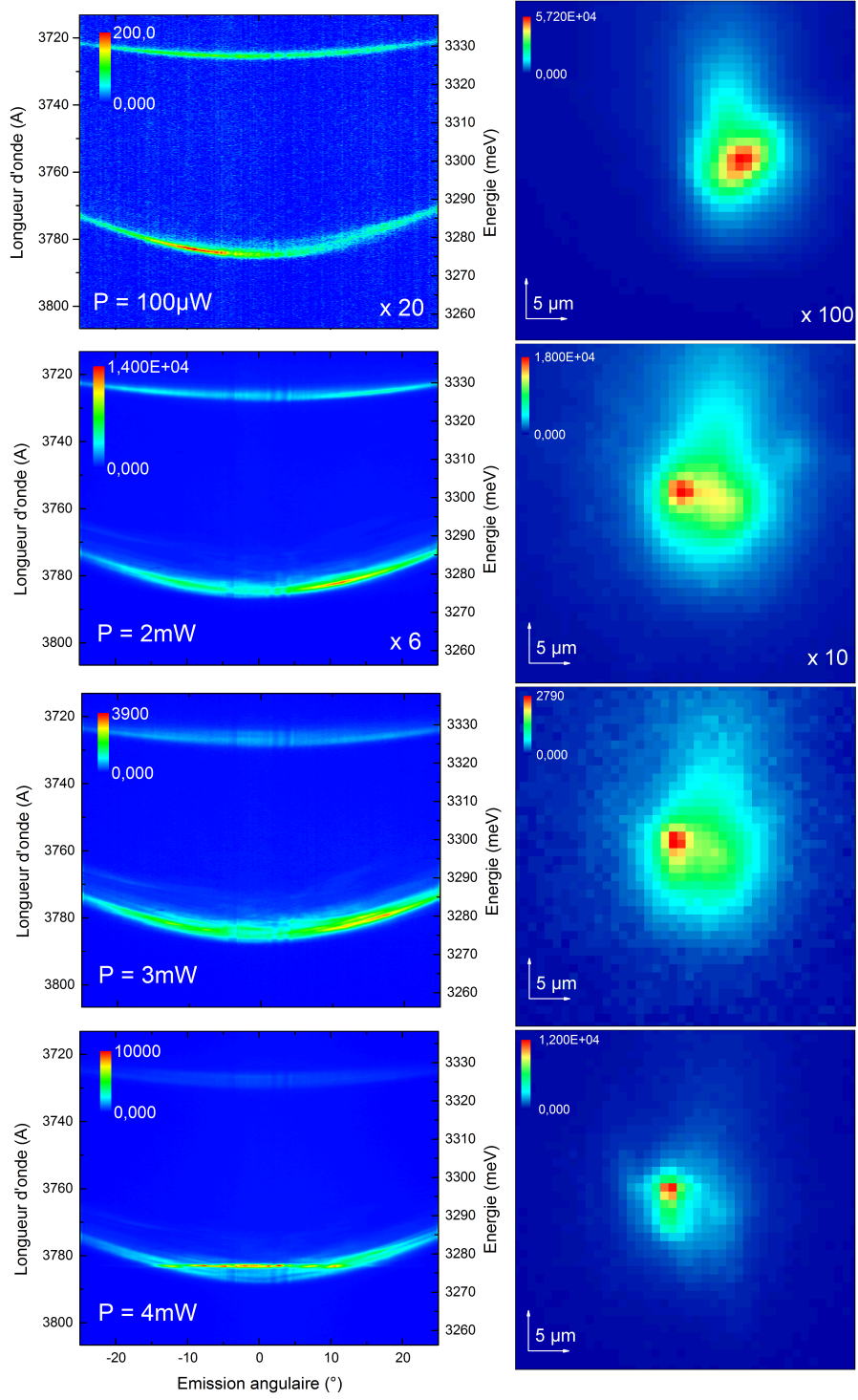


FIGURE 2.4 – Spectre d’émission dans l’espace réel et de Fourier pour des puissances moyennes allant de $100 \mu\text{W}$ à 4 mW .

2.2.3 Commutation entre les modes polaritoniques

Nous allons montrer que dans les zones épaisses, où plusieurs modes polaritoniques sont accessibles, les polaritons vont choisir une branche préférentielle pour condenser, et l’on pourra observer des commutations entre ces différentes branches en jouant sur le detuning ou la puissance d’excitation du laser.

Raisonnons tout d'abord en fonction du detuning, et considérons une zone de l'échantillon autorisant plusieurs modes polaritoniques tout en fixant la puissance de telle sorte que le système se trouve dans un état d'émission laser.

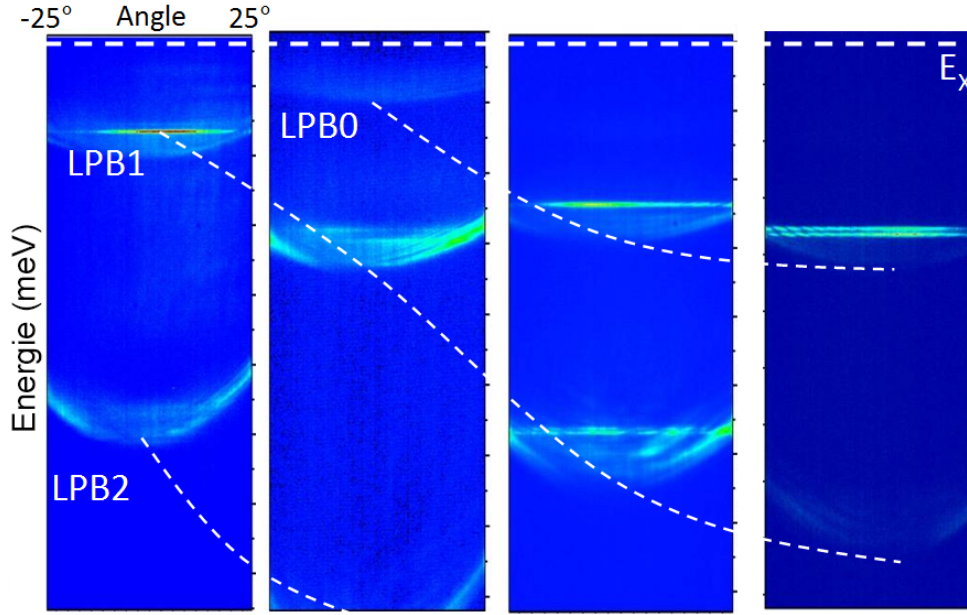


FIGURE 2.5 – Commutations polaritoniques provoquées par une diminution du detuning à une puissance d'excitation constante.

L'émission provient de la LPB1, branche sur laquelle les polaritons préfèrent relaxer, comme le montre la figure 2.5. Lorsque l'on se déplace vers des zones un peu plus épaisses, le detuning diminue ainsi que la part excitonique des polaritons, ce qui va défavoriser les interactions polaritons-polaritons qui permettent la relaxation vers l'état fondamental. Quand le mode devient trop photonique et que la condensation est défavorisée cinétiquement, le système commute au niveau de la branche plus excitonique et l'effet laser survient sur ce mode qui est cinétiquement plus favorisé et proche du detuning optimal.

Ce switching peut aussi être contrôlé en faisant varier la puissance d'excitation du laser à detuning constant. La figure 2.6 montre l'évolution de l'émission lors de l'augmentation de la puissance du laser.

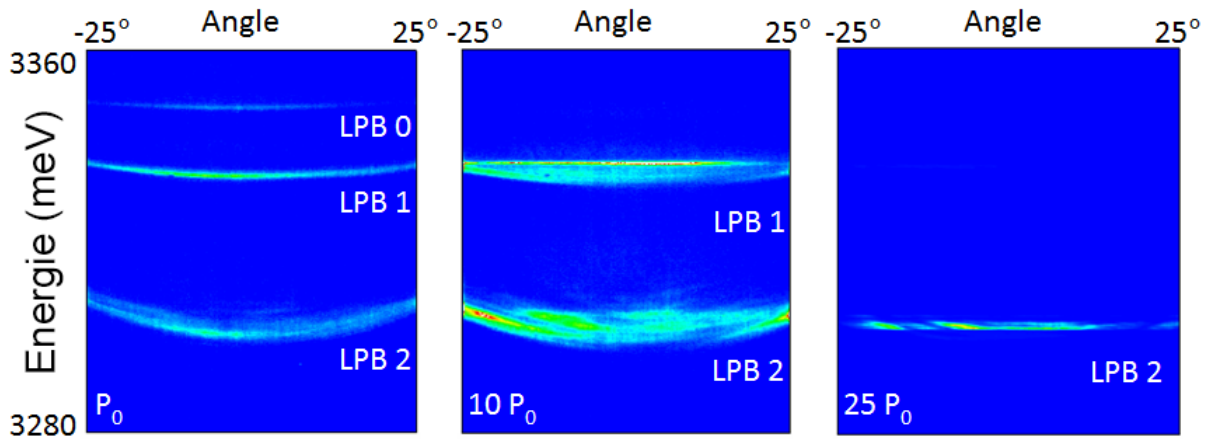


FIGURE 2.6 – Switchs polaritoniques provoqués par une augmentation de la puissance d'excitation du laser, à detuning constant.

Au seuil, l'effet laser survient au niveau de la LPB1, qui est 7 % photon et donc cinétiquement favorisée, contrairement à LPB0 qui est 27 % photon. Cependant, l'augmentation de la puissance d'excitation va créer plus de porteurs de charges et par suite plus de polaritons, ce qui va stimuler les interactions mettant en jeux les polaritons puis les autoriser à relaxer le long de la LPB0 afin d'atteindre l'état fondamental de ce mode.

Ce processus est très intéressant pour deux raisons. D'une part, il ouvre la voie vers la conception de lasers accordables qui fonctionneraient à bas seuil. D'un point de vue plus fondamental, la modification de la fraction photonique lors d'un switch permet d'étudier des condensats aux propriétés et aux comportements considérablement différents.

2.2.4 Propagation du condensat

Plusieurs mesures dans l'espace réel ont mis en avant un comportement surprenant du condensat : celui-ci ne reste pas statique sous le spot d'excitation mais se déplace. Ce phénomène est rendu possible notamment grâce aux facteurs de qualité élevés qui procurent aux polaritons une durée de vie suffisamment longue pour leur laisser le temps de se propager. D'autres cas de propagation ont été reporté, mais dans une situation où les facteurs de qualité sont de l'ordre de 30000 (dans du GaAs), et où la structure est conçue de telle sorte que les condensats de polaritons soient guidés [43].

Nous détaillons ici une étude complète d'un point de l'échantillon qui expose le cas de propagation le plus spectaculaire et intéressant que l'on ait pu observer dans l'échantillon ZFeng. La figure 2.7 présente une cartographie de l'échantillon, obtenue en pointant l'énergie du mode polaritonique pour différentes positions du spot sur l'échantillon. On rappelle que les modes polaritoniques se décale vers les basses énergies quand on augmente l'épaisseur, et se décale vers les hautes énergies quand on la diminue. Le profil d'énergie nous permettra donc de se représenter le profil d'épaisseur.

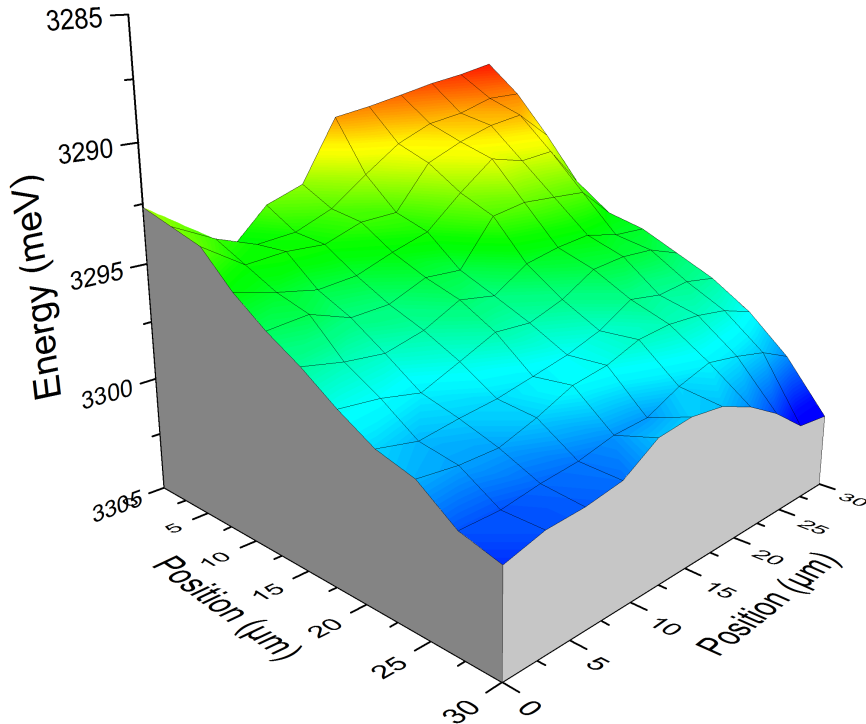


FIGURE 2.7 – Profil énergétique d'une zone de ZFeng.

Nous vérifions ici que l'échantillon présente un fort gradient, qui est de l'ordre d'une dizaine de meV sur une zone d'environ 30 μm , ainsi qu'une surface relativement homogène. L'étude des diagrammes d'émission dans le plan réel de la figure 2.8 nous permettent de quantifier le déplacement du condensat.

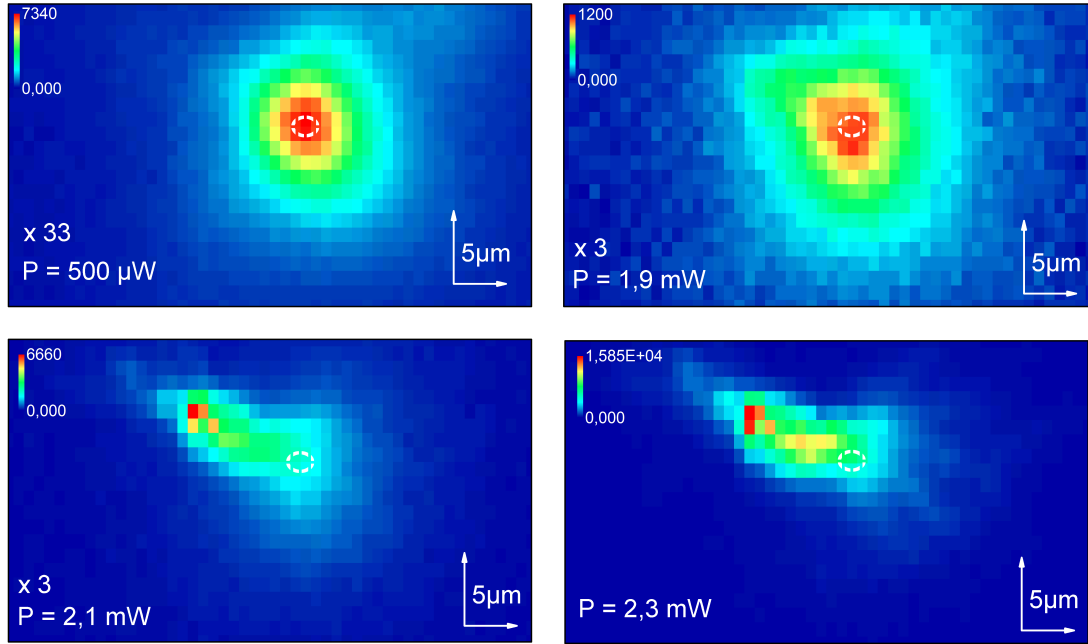


FIGURE 2.8 – Diagramme d’émission dans l’espace réel pour des puissances allant de $500 \mu\text{W}$ à 2.3 mW .

Le déplacement du condensat est très apparent au dessus du seuil, où le maximum du pic d’émission se déplace de $12 \mu\text{m}$ selon x . Le spot d’émission est représenté par l’ellipse en pointillé sur la figure. Intuitivement, on peut penser que le gradient joue un rôle majeur dans ce phénomène. En effet, toutes les autres mesures effectuées, indépendamment des autres paramètres tels que le detuning ou le profil de surface, présentent des déplacements supérieurs à $5 \mu\text{m}$. Le spot du laser jouerait un rôle répulsif qui éjecterait les polaritons et ceux-ci seraient accélérés par le gradient. Cependant, aucune corrélation n’a pu être établie entre la force du gradient et la longueur de propagation du condensat.

On se propose maintenant d’étudier les mêmes phénomènes pour une autre microcavité sensiblement différente de l’échantillon ZFeng.

2.3 Microcavité Z1232

2.3.1 Description de l’échantillon

La conception de cette microcavité est totalement différente que celle que nous venons d’étudier, dans le sens où celle-ci a été entièrement épitaxiée. En contrepartie, l’oxyde de zinc de cette microcavité est d’une qualité moindre en comparaison de celle de la microcavité ZFeng. Le substrat est une couche de silicium sur laquelle des motifs (losanges, carrés, hexagones) de différentes tailles ont été gravés, qui vont servir de précurseurs à la croissance. Le DBR inférieur est constitué par 30 paires d’AlN/AlGaIn et ceux-ci ne présentent aucune fissure pour les motifs inférieurs une centaine de μm . Ce résultat n’a jamais été réalisé auparavant et constitue une prouesse technologique. La couche de ZnO présente une épaisseur de $7\lambda/4$ ce qui n’autorise pas le multimode présent dans la microcavité ZFeng. Enfin, le DBR supérieur est constitué par 11 paires de $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$. De plus, l’échantillon Z1214 ne possède pas de gradient d’épaisseur. Cette caractéristique a été vérifiée par des mesures effectuées au laboratoire Charles Coulomb de Montpellier, qui montrent que le mode polaritonique ne se décale pas pour des déplacements de l’ordre de $100 \mu\text{m}$. Ce degré de liberté étant supprimé, nous allons pouvoir regarder l’influence de celui-ci sur le comportement du condensat. Les mesures suivantes ont été effectuées sur différents morceaux de l’échantillon, que l’on peut observer sur la photographie 2.9.

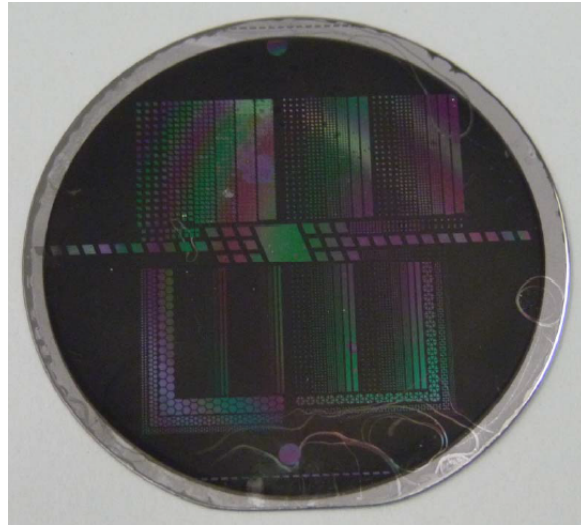


FIGURE 2.9 – Photographie de l'échantillon Z1232. On observe les motifs de différentes tailles gravés post-croissance sur le substrat de silicium

Les zones mesurables de la microcavité sont celles qui présentent les mésas de différentes formes. Cette conception particulière avait pour but de regarder l'influence de la forme et de la taille des mésas sur la viabilité des différentes couches relatives à l'échantillon. Des mesures préliminaires ont permis de déterminer le facteur de qualité de cet échantillon, qui dépasse 1400 pour certains points, comme le montre la figure 2.10 (le L2C a détecté de son côté des zones présentant un Q de 1900), ce qui sont des valeurs suffisantes pour atteindre le régime couplage fort avec un temps de vie du photon de 0.3 ps pour un Q de 1400.

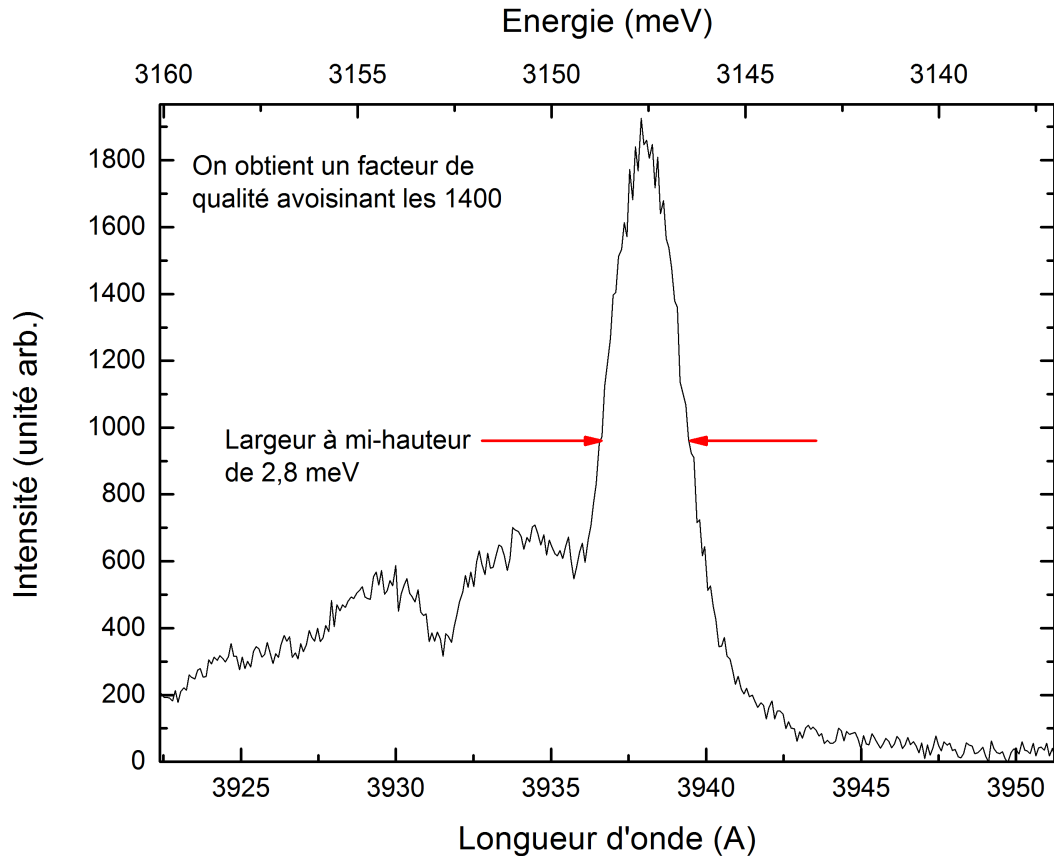


FIGURE 2.10 – Détermination du facteur de qualité de la microcavité Z1232.

2.3.2 Observation du couplage fort et de l'effet laser

Des mesures (non présentées ici) d'imagerie dans l'espace réciproque ont permis d'observer le changement de courbure des modes polaritoniques au fur et à mesure que l'on se rapproche de la relation de dispersion des excitons et donc de certifier l'état de couplage fort dans ce système. Les spectres d'émission sont présentés sur la figure 2.11 où j'ai fait le choix de mettre seulement deux spectres : avant et après le seuil, uniquement dans l'espace de Fourier. Les mesures en espace réel seront utilisées dans la section 2.3.3 afin d'étudier la propagation.

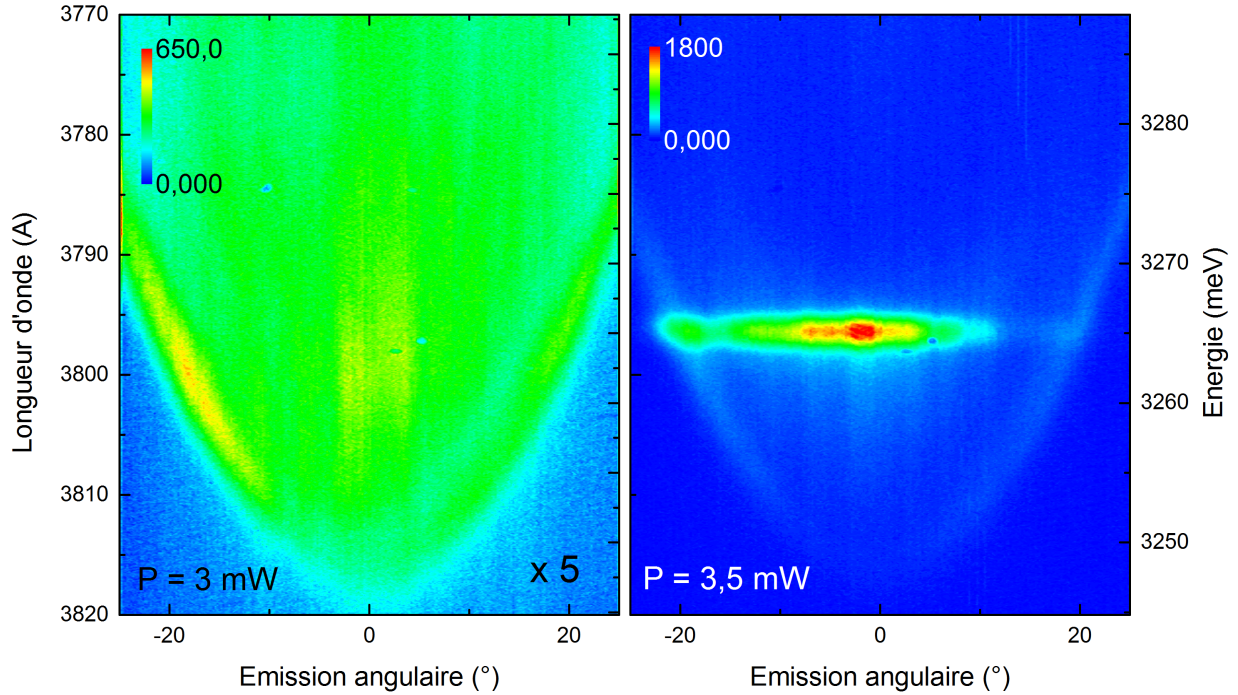


FIGURE 2.11 – Spectre d'émission dans l'espace de Fourier pour des puissances moyennes de 3 et 3.5 mW.

Le seuil de l'émission laser, situé entre 3 et 3.5 mW, est vérifié grâce à l'amincissement de la raie d'émission, l'augmentation de l'intensité et au décalage vers les hautes énergies.

Cependant, on peut noter d'une part que le seuil est deux à cinq fois supérieur à ceux de la microcavité ZFeng, d'autre part que l'intensité de l'émission est aussi beaucoup plus faible. Concernant le seuil plus élevé, cela s'explique simplement par l'énergie de déboulement de Rabi inférieure à celles que l'on trouve dans la microcavité ZFeng, ainsi que le moindre facteur de qualité. L'émission plus faible provient de la grande réflectivité du DBR supérieur, qui possède deux paires de plus que celui de la microcavité ZFeng.

2.3.3 Propagation du condensat

La figure 2.12 expose les spectres d'émission dans l'espace réel, où le cercle en pointillé représente le spot d'excitation.

Un faible déplacement du condensat selon y est visible, mais l'incertitude sur les mesures étant de l'ordre du micromètre (instabilité du spot laser, vibrations du cryostat...), on peut affirmer que le condensat reste statique.

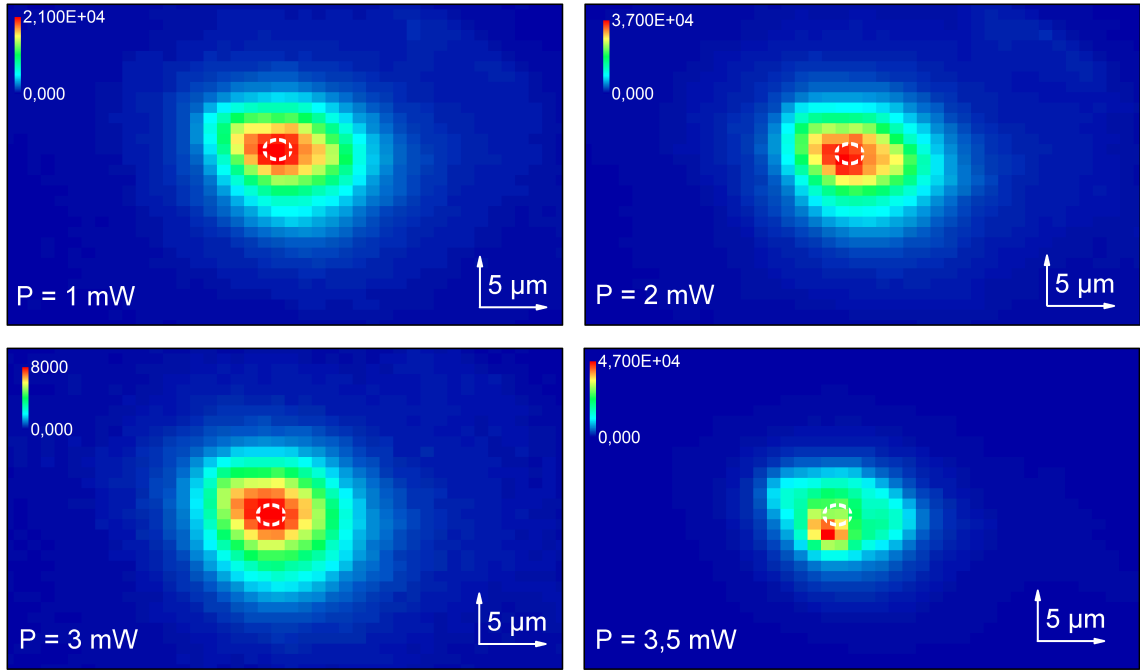


FIGURE 2.12 – Diagramme d'émission dans l'espace réel pour des puissances moyennes allant de 1 à 3.5 mW.

Ce résultat très important nous permet d'avancer que la propagation des condensats de polaritons est intimement liée à la présence ou non d'un gradient d'épaisseur de la couche active. Quand celle-ci présente un gradient, comme la microcavité ZFeng, le spot d'excitation faiblement répulsif éjecte les polaritons qui sont ensuite accélérés par ce gradient. Dans la microcavité Z1232, dont la couche active est plane, le spot expulse légèrement les polaritons qui restent autour de ce dernier.

Conclusion

Au cours de ce stage, nous avons abordé l'étude du couplage fort entre les excitons de semi-conducteurs massifs et les photons piégés dans les microcavités planaires à base d'oxyde de zinc, ainsi que de la condensation de Bose-Einstein en phase solide.

Un première partie a permis de détailler tous les outils nécessaires à la compréhension du régime de couplage fort ainsi que les conditions nécessaires à l'établissement de ce dernier. On rappelle que lorsque le temps de cohérence de l'exciton ainsi que le temps de vie du photon intra-cavité deviennent supérieurs au temps caractéristique de l'établissement du couplage exciton-photon, les états propres du systèmes sont des états mixtes appelés polaritons que l'on peut voir comme une oscillation entre l'état excitonique et photonique. Ceux-ci sont séparés par un écart en énergie appelée dédoublement de Rabi, proportionnel à la racine carrée de la force d'oscillateur de l'exciton. Or l'oxyde de zinc présente des forces d'oscillateur extrêmement élevées, cela en fait donc un candidat très approprié à l'étude du couplage fort à température ambiante.

Nous avons ensuite examiné le comportement bosonique des polaritons, qui reste valable dans la mesure d'une faible densité. Ce comportement permet bien entendu l'étude de transitions de phases quantiques, comme la condensation de Bose-Einstein. En outre, utiliser le condensat comme source de lumière cohérente, monochromatique et unidirectionnelle ouvre la voie la conception d'un nouveau type de laser appelé laser à polaritons. L'avantage de ce nouveau type de laser est qu'il fonctionne à un seuil beaucoup plus bas que les lasers actuels, ce qui serait bien sûr très avantageux en termes de consommation. L'oxyde de zinc est donc un matériau idéal pour la conception de composants fonctionnant à température ambiante.

Enfin, la partie expérimentale de ce stage nous a permis de prouver l'état de couplage fort et de l'effet laser via des mesures en champ lointain. Le changement de courbure des branches polaritoniques a été observé ce qui est typique du régime de couplage fort en microcavités, tandis que l'effet laser est prouvé en mesurant les fortes non-linéarités que montre le système au-dessus du seuil. Ensuite, d'autres phénomènes liés à la nature du condensat ont été étudiés. Tout d'abord, la possibilité d'obtenir des commutations polaritoniques a été vérifié, qui sont en très bon accord avec les modèles théoriques qui décrivent le compromis entre régime cinétique et thermodynamique. Enfin, l'étude de la propagation du condensat a été traité. On rappelle ici un résultat marquant suite aux mesures effectuées : la propagation est fortement dépendante du profil d'épaisseur de la couche active, on a pu observer des déplacements supérieurs à une dizaine de micromètres.

Une étude plus approfondie de ces phénomènes devrait permettre d'amorcer la réalisation d'autres composants opto-électroniques basés sur les condensats de polaritons, tels que les commutateurs, les transistors et finalement les circuits polaritoniques.

Annexes

A Condensation de Bose-Einstein pour des bosons massifs

Considérons un gaz de bosons massifs sans interactions, qui sont non relativistes et où le spin sera négligé. Ce système est à une température T et compris dans un volume $V = L^d$, où L est la taille du système et d sa dimension.

Le nombre total de bosons est donné par :

$$N = \int_0^{+\infty} f_{BE}(E)g(E)dE \quad (\text{A.1})$$

Où $f_{BE}(E) = \frac{1}{\exp \frac{E-\mu}{k_B T} - 1}$ est la fonction de distribution de Bose-Einstein (on notera $k_B T = \beta$)

Et $g(E)dE$ représente la densité d'états dans l'espace des énergies.

A.1 Cas tridimensionnel

Dans un système à trois dimensions, la densité d'états dans l'espace des k est donnée par :

$$g(k)d^3k = \frac{4\pi k^2 dk}{(\frac{2\pi}{L})^3} \quad (\text{A.2})$$

Et l'énergie s'écrit $E = \frac{\hbar k^2}{2m}$

On obtient aisément $g(E)dE$ tel que :

$$g(E)dE = \frac{2V}{h^3} (2m)^{\frac{3}{2}} \pi \sqrt{E} dE \text{ où } V = L^3 \quad (\text{A.3})$$

Ainsi N^{3D} s'écrit :

$$\begin{aligned} N^{3D} &= \int_0^{+\infty} \frac{1}{\exp \beta(E - \mu) - 1} \frac{2V}{h^3} (2m)^{\frac{3}{2}} \pi \sqrt{E} dE \\ &= \frac{2V}{h^3} (2m)^{\frac{3}{2}} \pi \int_0^{+\infty} \frac{1}{\exp \beta(E - \mu)} \frac{1}{1 - \exp -\beta(E - \mu)} \sqrt{E} dE \\ &= \frac{2V}{h^3} (2m)^{\frac{3}{2}} \pi \int_0^{+\infty} \frac{\sqrt{E}}{\exp \beta(E - \mu)} \left(\sum_{l=0}^{+\infty} \exp -\beta(E - \mu)l \right) dE \\ &= \frac{2V}{h^3} (2m)^{\frac{3}{2}} \pi \int_0^{+\infty} \sqrt{E} \left(\sum_{l=1}^{+\infty} \exp -\beta(E - \mu)l \right) dE \\ &= \frac{2V}{h^3} (2m)^{\frac{3}{2}} \pi \int_0^{+\infty} \sqrt{E} \left(\sum_{l=1}^{+\infty} \exp -(\beta E l) \exp(\beta \mu l) \right) dE \end{aligned}$$

On effectue un changement de variable en posant $\beta El = x$:

$$N^{3D} = \frac{2V}{h^3} (2m\beta)^{\frac{3}{2}} \pi \sum_{l=1}^{+\infty} \frac{\exp(\beta\mu l)}{l^{3/2}} \int_0^{+\infty} x^{1/2} \exp(-x) dx \quad (\text{A.4})$$

On reconnaît la fonction $\Gamma(t)$ pour l'intégrale, avec $t = 3/2$. Or $\Gamma(3/2) = \sqrt{\pi}/2$:

$$N^{3D} = \frac{V}{h^3} (2m\pi k_B T)^{\frac{3}{2}} \sum_{l=1}^{+\infty} \frac{\exp(\beta\mu l)}{l^{3/2}} \quad (\text{A.5})$$

Or le nombre moyen de particules donné par $f_{BE}(E)$ est positif, ce qui implique que $E \geq \mu$ pour E quelconque, donc μ sera négatif ou nul. N_{3D} est bien entendu maximal pour $\mu = 0$, potentiel auquel la condensation va avoir lieu. D'autre part, $\sum_{l=1}^{+\infty} \frac{1}{l^{3/2}}$ est la fonction zéta de Riemann qui vaut $\zeta(3/2) \approx 2.612$. On appellera N_c^{3D} le nombre critique de bosons au-delà duquel les bosons vont condenser, celui-ci s'écrit :

$$N_c^{3D} = \frac{V}{h^3} (2m\pi k_B T)^{\frac{3}{2}} \zeta(3/2) \quad (\text{A.6})$$

On peut ensuite exprimer la température critique :

$$T_c^{3D} = \frac{2\pi\hbar^2}{mk_B} \left(\frac{N_c^{3D}}{V\zeta(3/2)} \right)^{2/3} \quad (\text{A.7})$$

La température critique dans le cas 3D dépend uniquement de la densité de particule, le passage à la limite thermodynamique est donc possible.

A.2 Cas bidimensionnel

Dans un système à deux dimensions, la densité d'états dans l'espace des k est donnée par :

$$g(k) d^2k = \frac{2\pi k dk}{(\frac{2\pi}{L})^2} \quad (\text{A.8})$$

Et l'énergie s'écrit $E = \frac{\hbar k^2}{2m}$

On obtient aisément $g(E)dE$ tel que :

$$g(E)dE = \frac{2S}{h^2} m\pi dE \text{ où } S = L^2 \quad (\text{A.9})$$

Les mêmes types de calcul que pour le cas 3D permettent d'exprimer N^{3D} tel que :

$$N^{2D} = \int_0^{+\infty} \frac{1}{\exp \beta(E - \mu) - 1} \frac{2S}{h^2} m\pi dE = \frac{S}{h^2} 2m\pi k_B T \sum_{l=1}^{+\infty} \frac{\exp(\beta\mu l)}{l} \quad (\text{A.10})$$

Or, pour $\mu = 0$, la fonction de Riemann $\zeta(1)$ diverge. La transition de phase vers un condensat de Bose-Einstein pour un gaz de bosons 2D est impossible dans la limite thermodynamique. Cependant, dans le cas où la boîte de dimension L est finie, on peut calculer une température de condensation T_c^{2D} proportionnelle à $N^{2D}/S \ln(N^{2D})$ [23]. On voit bien que la température critique tend vers zéro quand on augmente la taille de la boîte tout en maintenant la densité constante.

B Techniques expérimentales et modélisation

La spectroscopie optique est l'étude des rayonnements réémis, absorbés ou transmis par un matériau suite à une excitation lumineuse. L'Opération de Spectroscopie optique des Solides avec laquelle j'ai travaillé dispose de plusieurs techniques d'analyses optiques : ellipsométrie, absorption optique détectée thermiquement, (micro)réflectivité (continue, résolue en angle, résolue en temps à l'échelle de la femtoseconde), mélange à quatre ondes, (micro)photoluminescence. Ces différentes techniques permettent de sonder l'échantillon étudié, afin de révéler ses propriétés intrinsèques (indice, coefficient d'extinction, constante diélectrique, forces d'oscillateurs...), structurales (épaisseur, composition d'alliage, contrainte...) et enfin les propriétés extrinsèques (dopage, défauts...). Les différents phénomènes observables suite à l'excitation lumineuse d'un matériau sont résumés sur la figure B.1.

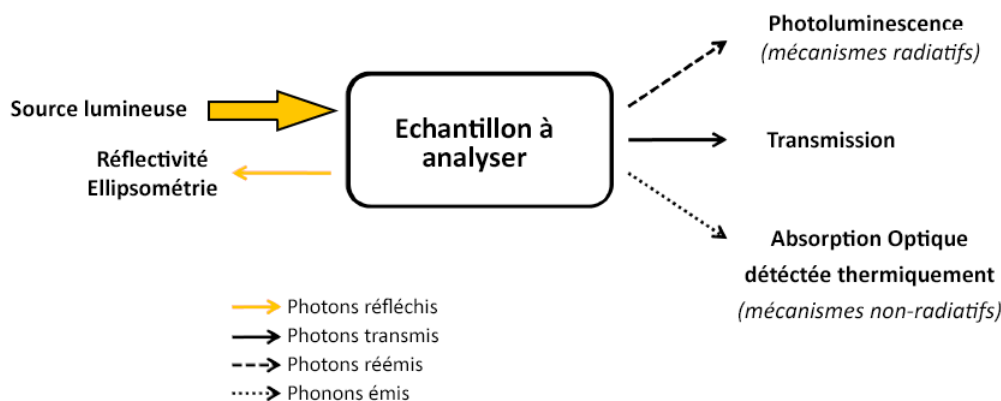


FIGURE B.1 – Réponses d'un matériau suite à son excitation lumineuse.

Lors de mon stage, j'ai eu l'occasion d'utiliser les techniques de micro-réflectivité et de micro-photoluminescence, que je vais décrire dans ce qui suit.

B.1 Réflectivité

B.1.1 Principe

La réflectivité est une technique d'analyse consistant à mesurer, en fonction de la longueur d'onde ou de l'énergie, l'intensité du faisceau lumineux réfléchi par l'échantillon. La figure B.2 montre un exemple de spectre de réflectivité d'un échantillon d'oxyde de zinc épitaxié sur saphir où trois zones aux comportements sont observés.

En dessous de 3.35 eV (1), le matériau est parfaitement transparent, la coefficient de réflexion non nul tient du fait d'une réflexion partielle au niveau de l'interface avec le substrat. Au-dessus du gap situé à environ 3.4 eV (3), le matériau est fortement absorbant. Enfin, la zone (2) reflète les transitions excitoniques liées principalement aux excitons libres du matériau, au niveau desquelles l'interaction entre le photon incident et l'exciton est forte ce qui provoque d'importantes variations de la constante diélectrique et donc du coefficient de réflectivité. Cette technique met donc principalement en évidence les transitions intrinsèques, mais aussi les modes de résonance de la microcavité, que l'on peut ajuster en se déplaçant à la surface de l'échantillon (si la couche active présente un gradient d'épaisseur), ou en faisant varier l'angle d'incidence du faisceau. Quand les modes excitonique et photonique entrent en résonance, on aperçoit un dédoublement

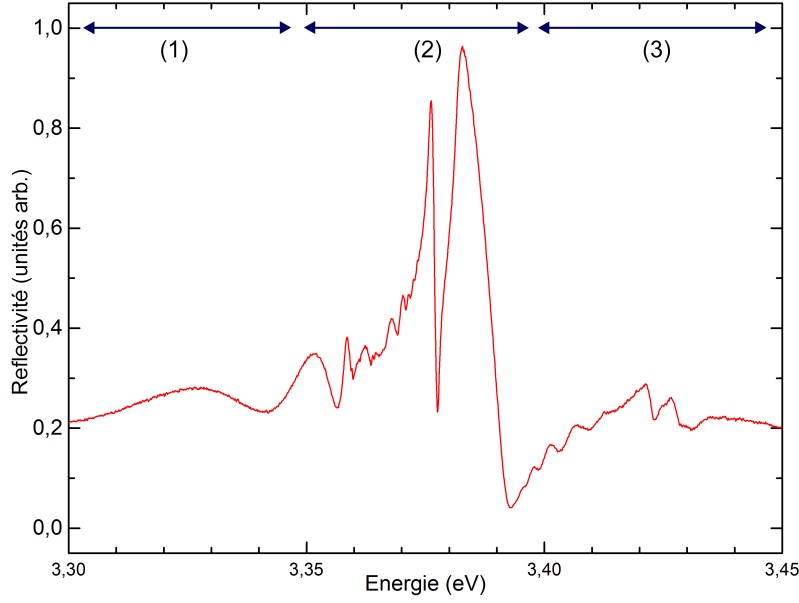


FIGURE B.2 – Spectre de réflectivité d'un échantillon de ZnO [11].

du pic de réflectivité caractéristique de l'apparition des polaritons et du couplage fort. La courbe d'anticroisement des deux modes peut aussi être déduite de ces spectres comme le montre la figure B.3, à partir d'une mesure résolue en angle, de même que l'énergie de dédoublement de Rabi.

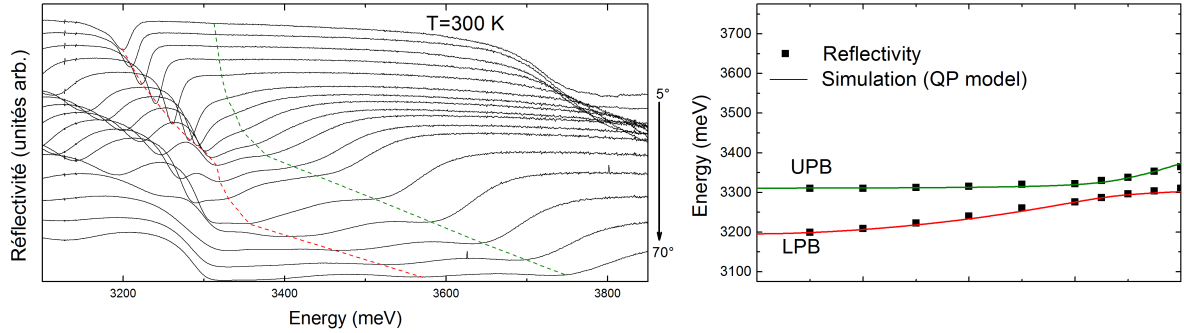


FIGURE B.3 – Courbes de dispersion présentant l'anticroisement (à droite) démontrant le couplage fort déduites des spectres de réflectivité résolue en angle d'un échantillon de ZnO (à gauche).

B.1.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental que nous utilisons afin de mesurer les spectres de réflectivité d'un échantillon est illustré sur la figure B.4. Celui-ci peut aussi servir pour effectuer une mesure de photoluminescence, sur laquelle nous reviendrons dans la section B.3.

La source lumineuse est une lampe xénon (1) émettant une lumière polychromatique dans la gamme 0,23 - 2,5 μm . Le faisceau traverse un objectif de microscope (2) de très courte distance focale afin de réduire le diamètre du spot sur l'échantillon jusqu'à 2 μm , d'où une dénomination de *micro*-réflectivité.

L'objectif permet de collecter les photons émis dans un cône situé en $\pm 25^\circ$: la résolution angulaire est assurée par un diaphragme (3) placé sur le trajet des rayons lumineux afin de sélectionner l'angle par translation. Une lentille (4), placée en amont de l'échantillon, focalise la lumière réfléchie par ce dernier sur les fentes d'entrée d'un spectromètre couplé à une caméra CCD qui va détecter le signal. Le spectromètre assure le balayage des longueurs d'onde grâce

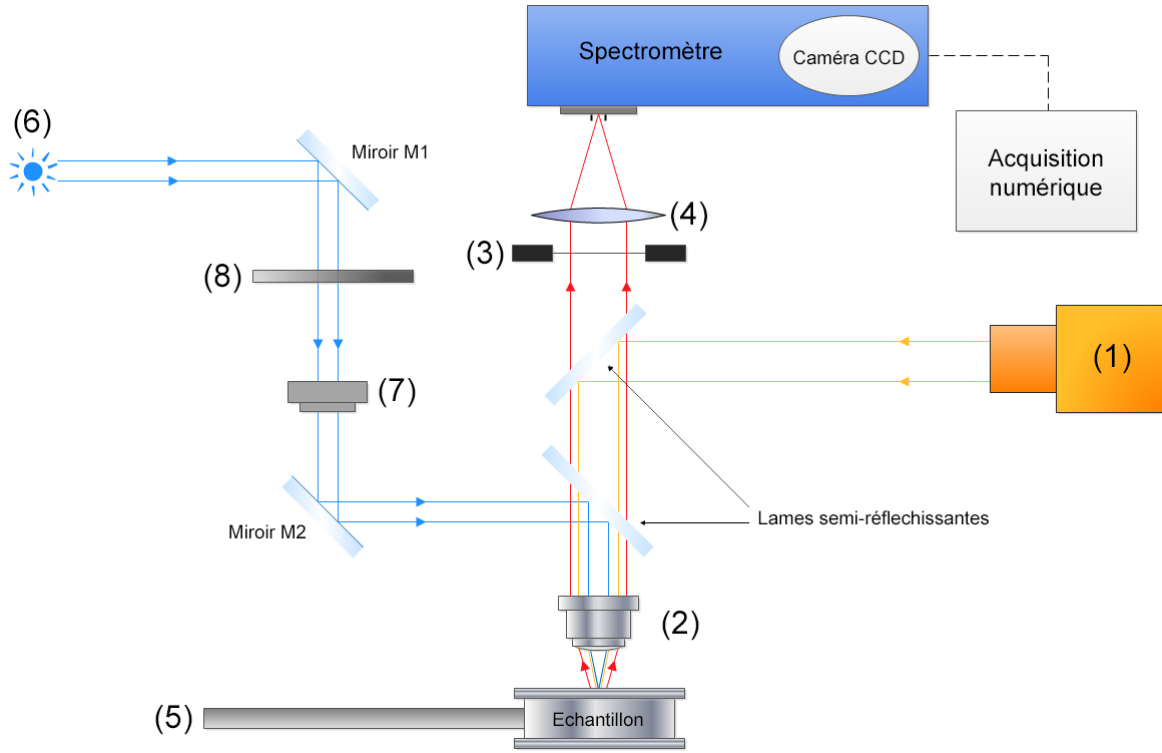


FIGURE B.4 – Dispositif expérimental du montage de réflectivité et de photoluminescence réalisé au laboratoire.

à un réseau commandé par un ordinateur. La caméra CCD, dont le capteur est une matrice de 1024 pixels sur 256, permet d'enregistrer en une seule acquisition une fenêtre de longueur d'onde dont l'étendue dépend du réseau utilisé.

Un cryostat à circulation d'hélium ou d'azote (5) contient l'échantillon qui est collé sur un support en cuivre, et permet de travailler à des températures allant de 5 à 300 K.

Les spectres obtenus sont ensuite normalisés, simplement en les divisant par le spectre de réflectivité d'un miroir d'aluminium enregistré dans le même intervalle d'énergie et avec les mêmes conditions d'expériences. Afin d'établir une corrélation entre les spectres obtenus expérimentalement et ceux attendus théoriquement, on utilise un formalisme matriciel pour calculer numériquement le coefficient de réflectivité, présenté dans la section suivante. Ces simulations nous permettront par ailleurs de déterminer les énergies de dédoublement des structures étudiées.

B.2 Modélisation des spectres de réflectivité

B.2.1 Formalisme des matrices de transfert

La méthode des matrices de transfert [44] permet de calculer la réflectivité d'une structure composée de n couches de matériaux caractérisés par leur indice optique. Celle-ci consiste à remplacer chaque couche de la structure par une matrice couche, et chaque interface entre deux couches par une matrice interface, dont le produit nous donnera une matrice totale dont on pourra déduire la réflectivité de la structure complète. Cette méthode est basée sur le fait que les équations qui gouvernent la propagation de la lumière sont linéaires et que la continuité de la composante tangentielle des champs à travers une interface entre deux milieux isotropes peut se traduire par une matrice 2×2 .

Nous considérons la structure de la figure constituée de n couches parallèles insérées entre deux milieux semi-infinis : le milieu ambiant (indiqué 0) et le substrat (indiqué $n + 1$). L'axe z est

orienté selon l'axe de croissance des couches. Tous les milieux sont supposés linéaires, homogènes et isotropes. Nous notons N_i l'indice de réfraction complexe de la $i^{\text{ème}}$ couche et d_i son épaisseur.

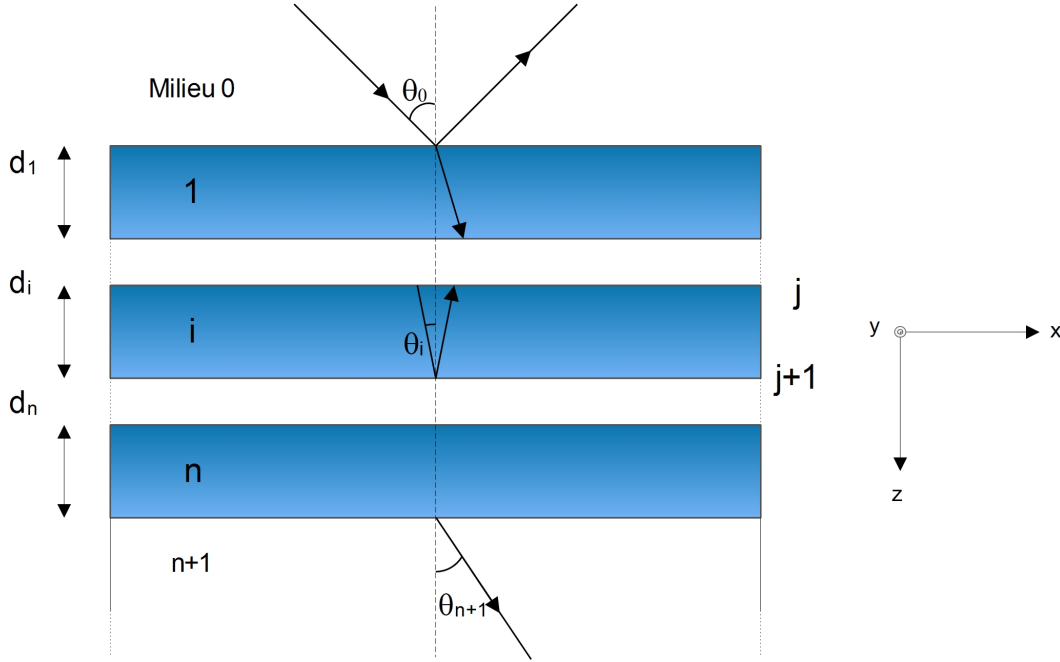


FIGURE B.5 – Schéma de la structure. j désigne l'interface entre les deux milieux $i - 1$ et i .

Nous noterons $E^+(z)$ et $E^-(z)$ les amplitudes complexes des ondes planes, se dirigeant respectivement vers les z positifs et vers les z négatifs. Le champ total en z peut être décrit par un vecteur à deux composantes :

$$E(z) = \begin{pmatrix} E^+(z) \\ E^-(z) \end{pmatrix} \quad (\text{B.1})$$

Le champ en z peut être relié au champ en z' par une matrice appelée T telle que :

$$\begin{pmatrix} E^+(z) \\ E^-(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E^+(z') \\ E^-(z') \end{pmatrix} \quad (\text{B.2})$$

La matrice T est en fait le produit entre une matrice interface (que l'on appellera I) et une matrice couche (que l'on appellera C), grâce à laquelle on décrira l'ensemble de la structure.

a Matrice interface I

Cette matrice relie les champs à l'interface entre deux milieux $i - 1$ et i tel que :

$$\begin{pmatrix} E_{j,i-1}^+(z) \\ E_{j,i-1}^-(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{11} & I_{12} \\ I_{21} & I_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{j,i}^+(z) \\ E_{j,i}^-(z) \end{pmatrix} \quad (\text{B.3})$$

Les systèmes d'équations suivants sont obtenus en écrivant les amplitudes réfléchies et transmises, et exprimant les composantes du champ dans le milieu $i-1$ en fonction du milieu i .

$$\begin{cases} E_{j,i}^+ = t_{i-1,i} E_{j,i-1}^+ + r_{i,i-1} E_{j,i}^- \\ E_{j,i-1}^- = r_{i-1,i} E_{j,i-1}^+ + t_{i,i-1} E_{j,i}^- \end{cases}$$

$$\begin{cases} E_{j,i-1}^+ = \frac{1}{t_{i-1,i}} (E_{j,i}^+ + r_{i-1,i} E_{j,i}^-) \\ E_{j,i-1}^- = \frac{1}{t_{i-1,i}} (r_{i-1,i} E_{j,i}^+ + r_{i-1,i} E_{j,i}^-) \end{cases}$$

Or, $r_{i,i-1} = -r_{i-1,i}$ et $t_{i,i-1}t_{i-1,i} + r_{i-1,i}^2 = 1$, ce qui nous permet de déduire la matrice interface qui s'écrit :

$$I = \frac{1}{t_j} \begin{pmatrix} 1 & r_j \\ r_j & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{B.4})$$

Où r_j et t_j sont simplement les coefficients de Fresnel.

b Matrice couche C

Quand on considère une seule couche, caractérisée par son indice et son épaisseur, on peut relier les champs à l'entrée en z_0 et à la sortie de la couche en $z_0 + d$ par :

$$\begin{pmatrix} E_j^+(z_0) \\ E_j^-(z_0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \exp j\phi_i & 0 \\ 0 & \exp -j\phi_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_j^+(z_0 + d) \\ E_j^-(z_0 + d) \end{pmatrix} \quad (\text{B.5})$$

Où ϕ_i est le déphasage induit par la traversée de la couche i qui s'écrit :

$$\phi = \frac{\omega}{c} N_i d \cos \theta_i \quad (\text{B.6})$$

c Matrice T

La matrice T qui caractérise l'intégralité de la structure, est obtenue en multipliant les matrices I et C, et relie les champs électriques du milieu d'incidence et du substrat.

$$\begin{pmatrix} E_0^+ \\ E_0^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{n+1}^+ \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{B.7})$$

On peut donc exprimer E_0^+ et E_0^- tels que $E_0^+ = T_{11}E_{n+1}^+$ et $E_0^- = T_{21}E_{n+1}^+$. On obtient les coefficients de réflexion et transmission en amplitude :

$$r = \frac{E_0^-}{E_0^+} = \frac{T_{21}}{T_{11}} \text{ et } t = \frac{E_0^-}{E_0^+} = \frac{T_{21}}{T_{11}} \quad (\text{B.8})$$

Et en intensité :

$$R = rr^* = \left| \frac{T_{21}}{T_{11}} \right|^2 \text{ et } R = \frac{N_{n+1}}{N_0} tt^* = \frac{N_{n+1}}{N_0} \left| \frac{1}{T_{11}} \right|^2 \quad (\text{B.9})$$

B.2.2 Modélisation de la constante diélectrique

Afin de caractériser la constante diélectrique de la couche active (qui va nous permettre de déterminer par la suite les propriétés optiques du matériau), nous assimilerons les excitons à des oscillateurs harmoniques, que nous traiterons grâce au modèle de Drude-Lorentz.

Considérons un ensemble d'oscillateurs, le principe fondamental de la dynamique s'écrit :

$$m \frac{d^2 \vec{u}}{dt^2} = -\gamma \frac{d\vec{u}}{dt} - \omega_0^2 \vec{u} - e\vec{E} \quad \text{où} \quad \begin{cases} m \text{ la masse effective,} \\ \vec{u} \text{ le vecteur déplacement,} \\ \gamma \text{ le coefficient d'amortissement,} \\ \omega_0 \text{ la constante de rappel,} \\ e \text{ la charge élémentaire,} \\ \text{et } \vec{E} = \vec{E}_0 \exp [j(\vec{k}\vec{u} - \omega t)] \end{cases} \quad (\text{B.10})$$

En cherchant des solutions de la forme $\vec{u} = \vec{u}_0 \exp [j(\vec{k}\vec{u} - \omega t)]$, on obtient :

$$\vec{u} = \frac{-e\vec{E}}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - j\gamma\omega)} \quad (\text{B.11})$$

Cette relation nous permet de déduire le vecteur polarisation pour un ensemble de N oscillateurs :

$$\vec{P} = -eN\vec{u} = \frac{Ne^2\vec{E}}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - j\gamma\omega)} \quad (\text{B.12})$$

Puis la constante diélectrique grâce à la relation constitutive du milieu qui s'écrit $\vec{D} = \epsilon\vec{P} = \epsilon_0\epsilon_b\vec{E} + \vec{P}$:

$$\epsilon_r = \epsilon_b + \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - j\gamma\omega} \quad (\text{B.13})$$

Où ϵ_b représente les contribution hors résonance de l'ensemble des autres transitions optiques. ω_p^2 est la pulsation plasma au carré, et vaut $Ne^2/m\epsilon_0$, ce qui est l'expression classique de la force d'oscillateur que nous avons introduit dans la section. Finalement, on peut écrire l'expression de la constante diélectrique en fonction de l'énergie telle que :

$$\epsilon_r = \epsilon_b + \frac{A}{E_{exc}^2 - E^2 - j\gamma E} \quad (\text{B.14})$$

Où E_{exc} est l'énergie de l'exciton, $\hbar\gamma$ l'élargissement à mi-hauteur, et A le paramètre lié à la force d'oscillateur de la transition.

B.3 Photoluminescence

B.3.1 Principe

Cette technique d'analyse renseigne sur les propriétés intrinsèques du matériau, mais surtout sur les propriétés extrinsèques comme les défauts ou les niveaux d'impuretés. L'échantillon est excité grâce à un faisceau laser, dont l'énergie est supérieure au gap de ce dernier, et l'absorption du photon crée une paire électron-trou possédant une quantité de mouvement importante. Le retour à l'équilibre peut se faire via des processus radiatifs, avec émission de photons, ou via des processus non radiatifs qui mettent en jeu des phonons. La spectroscopie de photoluminescence est l'analyse des photons réémis par un échantillon. Il existe différents processus de recombinaisons optiques (recombinaison bande à bande, excitons libres, excitons piégés sur donneurs...) que nous ne détaillerons pas ici car nous nous intéressons uniquement à la photoluminescence provenant du couplage fort. En effet, les polaritons peuvent émettre de la lumière lorsque leur composante photon s'échappe de la microcavité.

B.3.2 Dispositif expérimental

Le dispositif est sensiblement le même que pour le montage de réflectivité (voir figure B.4), la différence vient de la source d'excitation (6), qui dans ce cas est un laser 266 nm pulsé, dont la durée de l'impulsion est de 130 fs avec un taux de répétition de 76 MHz. Un expanseur de faisceau (7) peut être ajouté sur le trajet du laser pour augmenter la surface éclairée sur l'objectif et reformer un faisceau de rayons parallèles. Enfin une roue de densités optiques (8) est utilisée pour abaisser la densité de puissance sur l'échantillon.

B.3.3 Imagerie dans l'espace de Fourier

Contrairement à une imagerie dans le domaine spatial qui permet d'obtenir directement le spectre d'émission en deux dimensions, l'imagerie dans l'espace de Fourier permet d'obtenir directement les relations de dispersion polaritoniques. En effet, on sonde ici la distribution des polaritons dans l'espace réciproque en imageant le plan de Fourier à l'entrée du monochromateur. On peut définir la direction d'un photon sortant de la microcavité par le couple (θ, ϕ) , θ étant l'angle d'émission du photon par rapport à la normale de la microcavité et ϕ l'azimut du

photon. Le plan de Fourier est le plan dont chaque point rassemble tous les photons venant d'une direction de l'échantillon, le montage optique permettant d'observer ce plan est présenté sur la figure suivante :

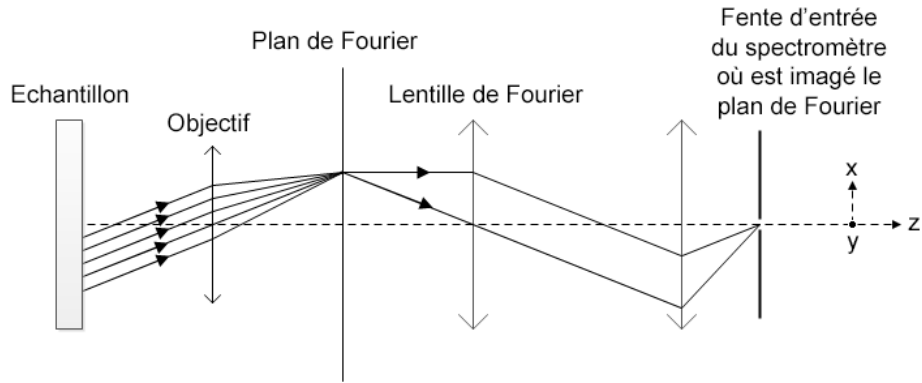


FIGURE B.6 – Montage optique destiné à imager le plan de Fourier.

On image le plan de Fourier directement dans la fente d'entrée du monochromateur, orientée suivant l'axe x , on conserve donc l'information sur l'angle d'émission θ dans la direction de la fente (direction x), et la longueur d'onde d'émission λ peut être analysée dans la direction perpendiculaire (direction y) grâce au réseau de diffraction du monochromateur, et un simple changement de variable permet de passer du couple (θ, ϕ) au couple (E, k) , et donc d'obtenir la relation de dispersion polaritonique. On pourra passer simplement passer d'une imagerie à l'autre en enlevant ou en mettant la lentille de Fourier dans le montage optique.

Bibliographie

- [1] F. BERNARDOT ET AL., *Vacuum Rabi Splitting Observed on a Microscopic Atomic Sample in a Microwave Cavity*, Europhysics Letters, **17** :33 (1992).
- [2] J. J. HOPFIELD, *Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals*, Physical Review, **112** :1555 (1958).
- [3] R. M. STEVENSON ET AL., *Continuous Wave Observation of Massive Polariton Redistribution by Stimulated Scattering in Semiconductor Microcavities*, Physical Review Letters, **85** :3680 (2000).
- [4] M. H. ANDERSON ET AL., *Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor*, Science, **269** :198 (1995).
- [5] J. KASPRZAK ET AL., *Bose-Einstein condensation of exciton polaritons*, Nature, **443** :409 (2006).
- [6] A. IMAMOGLU, R. J. RAM, S. PAU, et Y. YAMAMOTO, *Nonequilibrium condensates and lasers without inversion : Exciton-polariton lasers*, Physical Review A, **53** :4250 (1996).
- [7] H. DENG ET AL., *Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity*, Proceedings of the National Academy of Sciences, **100** :15318 (2003).
- [8] E. MALLET ET AL., *Accurate determination of homogeneous and inhomogeneous excitonic broadening in ZnO by linear and nonlinear spectroscopies*, Physical Review B, **87** :161202 (2013).
- [9] S. FAURE ET AL., *Comparison of strong coupling regimes in bulk GaAs, GaN, and ZnO semiconductor microcavities*, Physical Review B, **78** :235323 (2008).
- [10] G. MALPUECH ET AL., *Room-temperature polariton lasers based on GaN microcavities*, Applied Physics Letters, **81** :412 (2002).
- [11] F. MÉDARD, *Conception et spectroscopie de microcavités à base de ZnO en régime de couplage fort pour l'obtention d'un laser à polaritons*, Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal (2010).
- [12] H. MORKOÇ et . ÖZGÜR, *Zinc Oxide*, Wiley-VCH (2009).
- [13] M. R. WAGNER ET AL., *Γ 7 valence band symmetry related hole fine splitting of bound excitons in ZnO observed in magneto-optical studies*, Physical Review B, **80** :205203 (2009).
- [14] H. BRUNE et M. PIVETTA, *Cours de Physique du Solide*, EPFL (2013).
- [15] J. FRENKEL, *On the transformation of light into heat in solids*, Physical Review, **37** :17 (1931).
- [16] G. H. WANNIER, *The structure of electronic excitation levels in insulating crystals*, Physical Review, **52** :191 (1937).
- [17] H. DENG, H. HAUG, et Y. YAMAMOTO, *Dynamic condensation of exciton-polaritons*, Reviews of modern physics, **82** :1490 (2010).
- [18] W. Y. LIANG et A. D. YOFFE, *Transmission Spectra of ZnO Single Crystals*, Physical Review Letters, **20** :59 (1968).
- [19] P. YEH, *Optical waves in layered media*, Wiley (1988).
- [20] G. BJORK, Y. YAMAMOTO, et H. HEITMAN, *Spontaneous emission control in semiconductor microcavities*, Plenum Press (1995).
- [21] F. LI ET AL., *From Excitonic to Photonic Polariton Condensate in a ZnO-Based Microcavity*, Physical Review Letters, **110** :196406 (2013).
- [22] C. COHEN-TANNOUDJI, J. DUPONT-ROC, et G. GRYNBERG, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, Editions du CNRS (1988).

- [23] M. RICHARD, *Quasi-condensation de polaritons sous excitation incohérente dans les microcavités II-VI à base de CdTe*, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier (2004).
- [24] C. H. HENRY et J. J. HOPFIELD, *Raman Scattering by Polaritons*, Physical Review Letters, **15** :964 (1965).
- [25] C. WEISBUCH, M. NISHIOKA, A. ISHIKAWA, et Y. ARAKAWA, *Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity*, Physical Review Letters, **69** :3314 (1992).
- [26] A. KAVOKIN et B. GIL, *GaN microcavities : Giant Rabi splitting and optical anisotropy*, Applied Physics Letters, **72** :2880 (1998).
- [27] F. SEMOND ET AL., *Strong light-matter coupling at room temperature in simple geometry GaN microcavities grown on silicon*, Applied Physics Letters, **87** :021102 (2005).
- [28] M. ZAMFIRESCU ET AL., *ZnO as a material mostly adapted for the realization of room-temperature polariton lasers*, Physical Review B, **65** :161205 (2002).
- [29] V. SAVONA, L. C. ANDREANI, P. SCHWENDIMANN, et A. QUATTROPANI, *Quantum well excitons in semiconductor microcavities : Unified treatment of weak and strong coupling regimes*, Solid State Communications, **93** :733 (1995).
- [30] M. R. VLADIMIROVA, A. V. KAVOKIN, et M. A. KALITEEVSKI, *Dispersion of bulk exciton polaritons in a semiconductor microcavity*, Physical Review B, **54** :14566 (1996).
- [31] S. N. BOSE, *Plancks Law and Light Quantum Hypothesis*, Z. Physik, **26** :178 (1924).
- [32] A. EINSTEIN, *Quantentheorie des einatomigen idealen Gases*, Sitzungsber. Kgl. Preuss. Akad. Wiss. (1925).
- [33] S. A. MOSKALENKO, *Reversible Optico-Hydrodynamic Phenomena a Nonideal Exciton Gas*, Fiz. Tverd. Tela, **4** :2 (1962).
- [34] J. M. BLATT, K. W. BÖER, et W. BRANDT, *Bose-Einstein Condensation of Excitons*, Physical Review, **126** :1691 (1962).
- [35] H. HAUG et S. KOCH, *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors*, World Scientific (1990).
- [36] A. KAVOKIN et G. MALPUECH, *Cavity Polaritons*, Academic Press (2003).
- [37] V. B. BEREZINSKII, *Sov. Phys. JETP*, **64** :6 (1972).
- [38] J. M. KOSTERLITZ et D. J. THOULESS, *Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems*, Solid State Physics, **6** :1181 (1973).
- [39] R. HIVET ET AL., *Half-solitons in a polariton quantum fluid behave like magnetic monopoles*, Nature Physics, **8** :724 (2012).
- [40] J. LEVRAT ET AL., *Condensation phase diagram of cavity polaritons in GaN-based microcavities : Experiment and theory*, Physical Review B, **81** :125305 (2010).
- [41] L. OROSZ ET AL., *LO-phonon-assisted polariton lasing in a ZnO-based microcavity*, Physical Review B, **85** :121201 (2012).
- [42] G. MALPUECH ET AL., *Bose Glass and Superfluid Phases of Cavity Polaritons*, Physical Review Letters, **98** :206402 (2007).
- [43] E. WERTZ ET AL., *Spontaneous formation and optical manipulation of extended polariton condensates*, Nature Physics, **6** :860 (2010).
- [44] R. M. A. AZZAM et N. M. BASHARA, *Ellipsometry and polarized light*, Elsevier (1999).

Résumé

Etude des polaritons excitoniques dans des microcavités planaires à base de ZnO

Ce mémoire est consacré à l'étude spectroscopique du couplage fort lumière-matière en microcavité à base de ZnO ainsi qu'à la condensation de Bose-Einstein en phase solide, et contribue aux travaux menés pour l'obtention d'un laser à polaritons fonctionnant jusqu'à température ambiante.

Les structures étudiées seront caractérisées grâce à des mesures de réflectivité et de photoluminescence dans le plan réel et dans le plan de Fourier, ce qui permet d'obtenir directement les relations de dispersion des polaritons excitoniques de cavité et de démontrer l'état de couplage fort. Des simulations numériques basées sur le formalisme des matrices de transfert et un modèle de quasi-particule nous permettront de modéliser nos structures et de vérifier les corrélations avec les résultats issus des expériences.

Une étude plus particulière sera dédiée à la propagation du condensat de polaritons ainsi qu'aux paramètres affectant cette propagation, puis à la possibilité d'effectuer des commutations entre les modes polaritoniques.

Mots clefs : *couplage fort lumière-matière, condensat de Bose-Einstein, laser à polaritons, microcavité, spectroscopies optiques, réflectivité, photoluminescence, ZnO*

Abstract

Study of excitonic polaritons in a planar ZnO based microcavity

This report is devoted to the spectroscopic study of the strong light-matter coupling in ZnO-based planar microcavities as well as Bose-Einstein condensation in the solid state, and contributes to the work to obtain a polariton laser operating up to room temperature.

The structures studied are characterized through reflectivity measurements and photoluminescence in the real plane and the Fourier plane, which directly provides polaritons dispersion and demonstrate the state of strong coupling regime. Numerical simulations based on the transfer matrices formalism and a quasi-particle model will allow us to model our structures and check correlations with results from experiments.

A more specific study will be dedicated to the propagation of the polariton condensate as well as the parameters the propagation parameters and the possibility to make switching between polaritons modes.

Keywords : *strong light-matter coupling, Bose-Einstein condensate, polaritons laser, microcavity, optical spectroscopy, reflectivity, photoluminescence, ZnO*