



HAL
open science

Relaxation des polaritons dans une microcavité contenant un gaz d'électrons

Mathieu Perrin

► **To cite this version:**

Mathieu Perrin. Relaxation des polaritons dans une microcavité contenant un gaz d'électrons. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT: . tel-00119378

HAL Id: tel-00119378

<https://theses.hal.science/tel-00119378>

Submitted on 8 Dec 2006

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

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

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI
Spécialité : Lasers et matière

présentée par
Mathieu PERRIN

pour obtenir le titre de
DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS VI

Sujet de la thèse :

**Relaxation des polaritons dans une microcavité
contenant un gaz d'électrons**

Soutenue le 2 juin 2006 devant le jury composé de :

Mr Thierry AMAND	Rapporteur
Mr Guillaume MALPUECH	Rapporteur
Mme Maria CHAMARRO	Examineur
Mr Daniel LE SI DANG	Examineur
Mr Claude DELALANDE	Directeur de thèse
Mme Jacqueline BLOCH	Co-Directrice de thèse

Résumé : Ce travail est consacré à l'étude de différents mécanismes de relaxation dans des microcavités semi-conductrices.

La réponse optique de ces dispositifs est décrite en termes de modes mixtes exciton-photon, les polaritons de cavité. En raison de leur relation de dispersion particulière, et notamment de leur faible masse effective, les polaritons sont un candidat intéressant pour l'observation d'effets de stimulation bosonique. Cependant, le temps de vie des polaritons, de l'ordre de quelques ps, ne permet pas d'obtenir une relaxation suffisamment efficace : on observe un goulet d'étranglement de la relaxation, qui empêche l'observation d'une stimulation bosonique de la relaxation.

Dans ce travail, nous avons étudié la relaxation des polaritons dans une cavité contenant un gaz d'électrons de densité contrôlable. Dans un premier temps, la densité d'électrons a été mesurée par différentes méthodes spectroscopiques (photoluminescence à basse et forte densité et spectroscopie Raman), et nous avons montré que la densité d'électrons peut être variée, indépendamment de la densité de polaritons, entre 0 et 10^{11} cm⁻². Cet échantillon nous a ainsi permis d'étudier un nouveau mécanisme de relaxation : la relaxation par collisions polariton-électron, qui était encore mal connu auparavant. Ce mécanisme de collisions s'avère très efficace, et permet d'augmenter d'un ordre de grandeur les facteurs d'occupation dans les états de polariton proches de $k_{\parallel} = 0$. La comparaison avec la relaxation par collisions *polariton-polariton* montre cependant que les deux mécanismes de collisions sont aussi efficaces l'un que l'autre, contrairement à ce qui avait été proposé théoriquement. La différence observée entre théorie et expérience est discutée dans le manuscrit. Enfin, nous avons étudié la photoluminescence résolue en temps des polaritons dans cette cavité et montré que les modifications observées sont en grande partie dues aux mécanismes de formation des excitons.

Mots clés : Polaritons, Excitons, Microcavités semi-conductrices, Relaxation, Collisions polariton-électron.

Remerciements

Au début de ce travail de thèse, j'étais censé répartir mon temps à égalité entre deux laboratoires, le LPN à Marcoussis et le LPA à Paris. Cependant, ce qui a commencé au LPN comme une simple mise en évidence que "des électrons sont injectés" et "ils ont un effet sur les polaritons" s'est révélé suffisamment riche en résultats pour que je passe la totalité de ma thèse dessus. Je tiens à remercier Claude Delalande d'avoir accepté d'être mon directeur de thèse et d'avoir continué à jouer son rôle d'encadrement bien que je me sois enfui au LPN. En particulier, j'ai beaucoup apprécié les remarques faites lors de la relecture du manuscrit. Je remercie également Guillaume Malpuech, Thierry Amand, Daniel Le Si Dang et Maria Chamarro de l'intérêt qu'ils ont montré pour mon travail en acceptant de faire partie du jury de thèse. Merci en particulier à Guillaume Malpuech et Thierry Amand d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit.

Je tiens à remercier du fond du cœur Jacqueline Bloch qui a assuré l'encadrement de cette thèse au quotidien et avec qui j'ai eu le plaisir de partager mon bureau pendant plus de trois ans. Notre relation, un peu difficile la première année, s'est par la suite développée vers une complicité de plus en plus grande au fur et à mesure que l'on apprenait à se connaître et à s'apprécier. Aujourd'hui, elle est riche du temps passé ensemble, que ce soit sur la manip, à regarder nos spectres sous tous les angles, ou tout simplement à parler des dernières bêtises de Jojo-le-sage. Tu es une expérimentatrice hors pair, et tu m'a appris énormément de choses sur ce plan, notamment à tirer le maximum d'informations de nos expériences sans les emmener trop loin. La manière dont tu arbitres les articles est pour moi caractéristique de la façon dont tu as encadré ma thèse : lorsque tu reçois un nouvel article, tu as souvent la sensation que quelque chose ne va pas, que les auteurs y mettent plus que ce que leurs données veulent dire. À plusieurs reprises, j'ai vu cette sensation diffuse se préciser petit à petit en une liste d'expériences complémentaires que les auteurs doivent vérifier pour améliorer leur article et le voir publié. Bien des fois au cours de ma thèse, c'est ce niveau d'exigence et cette capacité de proposition, associés à ton souci constant que je ne reste pas "seul dans mon coin" avec des données difficiles à interpréter, qui m'ont débloqué et permis d'avancer. Pour cela, pour la passion que tu mets dans ton travail et dans ta vie tout simplement, merci beaucoup.

Un grand merci également pour Pascale Senellart, qui a participé à la quasi-totalité de nos discussions scientifiques et qui a fait avancer à plusieurs reprises notre compréhension du système grâce à ses très bonnes idées. Merci en particulier d'avoir insisté pour que je fasse les expériences à énergie de piège constant et non à *désaccord* constant, et de nous avoir conseillé de comparer nos résultats à un modèle de formation bimoléculaire des excitons. Mais surtout merci d'être une boule d'énergie pure avec une volonté à faire bouger les montagnes. J'ai rarement rencontré des personnes ayant à ce point de l'empathie et de la générosité, la volonté d'une relation humaine franche ainsi que la capacité à s'indigner et à se rebeller face à l'injustice. Enfin, si j'ai pu avancer sur les collisions polariton-électron, c'est que je pouvais m'appuyer sur le solide travail de thèse que tu avais réalisé sur les collisions polariton-polariton et la connaissance que tu avais du système. Merci pour cela également.

Je remercie Daniele Bajoni pour l'aide qu'il m'a apportée dans les expériences de PL résolue en temps. Tu t'es acharné sur la manip jusqu'à en extraire des jeux de données complets d'une part et cohérents d'autre part, et je crois que tu as réussi à obtenir le maximum d'informations de cet "échantillon mal gravé", comme tu l'appelles. Je tiens à te remercier aussi pour toutes les discussions que l'on a eues à l'heure du déjeuner ainsi que dans le bus et le RER.

Je remercie également Bernard Sermage, retraité de fraîche date qui aborde la physique avec une âme d'enfant. J'ai beaucoup apprécié ta chaleur dans la poignée de main du matin et dans tes éclats de rire sonores qui s'entendent d'un bout à l'autre du labo, ainsi que ta connaissance extrêmement précise des semiconducteurs en général et de la photoluminescence résolue en temps en particulier.

Je remercie Paul Voisin qui nous apporte beaucoup par sa connaissance extensive de la physique des semiconducteurs. Bien des fois, après t'avoir posé une question, je me suis entendu répondre : "Oui, c'est un sujet qui a été très à la mode à la fin des années 80, les débats ont été menés par tel, tel et tel groupe, qui ont apporté tel, tel et tel argument décisif". C'est non seulement très impressionnant, mais aussi redoutablement efficace pour nous autres doctorants. Merci à Olivier Krebs pour sa grande capacité d'analyse. Avec Paul, vous avez un don remarquable pour reformuler les problèmes que l'on vous soumet d'une manière inattendue et leur apporter un éclairage nouveau. Merci également pour l'aide concernant le matériel expérimental.

Je remercie notre dynamique épitaxieur Aristide Lemaître pour tous les échantillons qu'il a réalisé pour moi. Merci en particulier pour la grande cavité, ainsi que pour la série d'échantillons ayant des distances variables entre les puits quantiques étroits et le puits quantique large. Merci surtout de t'inviter dans les salles d'expériences et d'être un lien utile entre les différentes personnes que compte le laboratoire. Je te souhaite moins de fuites et de coups durs à l'avenir.

Merci à Bernard Jusserand pour les mesures d'effet Raman électronique réalisées sur mon échantillon : elles m'ont donné véritablement confiance dans les modèles que j'utilisais. J'espère que ces échantillons vont te permettre de belles manipulations sur les plasmons. Merci à Jean-Marc Jancu pour les calculs de liaisons fortes qu'il a réalisés, et à Jérôme Tignon pour les discussions du début de ma thèse et son aide lors des projets de TP en licence.

J'ai eu beaucoup de plaisir à discuter avec tous les doctorants et post-doctorants du laboratoire. Je souhaite à Julien Hours une très bonne réussite dans l'informatique. Merci aux autres membres et anciens membres du groupe : Emmanuelle Peter, Benoît Eble, Sabine Laurent, Kashia Kowalik et Arek Arkadiusz.

Enfin, merci à mes amis proches, Jean-Philippe, François, Diego, Frédéric, à mes parents Bernard et Françoise, et merci à ma compagne Marina pour tout l'amour qu'elle me donne jour après jour.

Table des matières

Introduction	11
1 Couplage fort exciton-photon dans les microcavités	15
1.1 Introduction	15
1.2 Excitons dans un puits quantique	18
1.2.1 Fonction d'onde et énergie de l'exciton	18
1.2.2 Couplage des excitons au champ électromagnétique . .	27
1.3 Photons en microcavité	31
1.3.1 Principe d'une cavité Fabry-Pérot	32
1.3.2 Miroirs de Bragg	35
1.3.3 Microcavités à miroirs interférentiels	37
1.3.4 Largeur de raie du mode de cavité	40
1.4 Couplage fort exciton-photon : les polaritons de microcavité .	44
1.4.1 Description quantique du couplage exciton-photon . .	46
1.4.2 Transition couplage fort - couplage faible	50
1.4.3 Photoluminescence des polaritons	52
1.5 Conclusion	55
2 Recherche d'une stimulation de la relaxation des polaritons	57
2.1 Introduction	58
2.2 Laser à polaritons et condensation de Bose-Einstein des po- laritons	59
2.2.1 Principe et intérêt d'un laser à polaritons	59
2.2.2 Propriétés attendues d'un laser à polaritons	60
2.3 Goulet d'étranglement de la relaxation des polaritons	65
2.3.1 Relaxation des polaritons par émission de phonons . .	65
2.3.2 Relaxation par les collisions polariton-polariton	68
2.3.3 Conclusion : différences entre microcavités II-VI et mi- crocavités III-V	71
2.4 Relaxation des polaritons par collisions polariton-électron . .	73
2.4.1 Modélisation de la relaxation par les collisions polariton- électron	73

2.4.2	Premières expériences réalisées sur une cavité à concentration variable d'électrons	75
2.5	Conclusion	78
3	Photoinjection d'un gaz d'électrons	81
3.1	Introduction	81
3.2	Transfert d'électrons entre puits quantiques	83
3.3	Estimation de n_e à faible densité	87
3.3.1	Description des spectres de luminescence	87
3.3.2	Excitation de la photoluminescence	90
3.3.3	Modélisation des intensités de trion et d'exciton	93
3.4	Estimation de n_e à forte densité	95
3.4.1	Description des spectres de luminescence	96
3.4.2	Modélisation des formes de raie à forte densité	98
3.4.3	Ajustement des spectres expérimentaux	103
3.4.4	Validation de la mesure par effet Raman électronique	107
3.4.5	Bilan : relation entre n_e et P_{HeNe}	109
3.5	Estimation de n_e en cavité et à différentes températures	110
3.5.1	Effet de la cavité	111
3.5.2	Variation de n_e avec la température	113
3.6	Comparaison des deux méthodes et conclusion	117
4	Étude des collisions en excitation continue	119
4.1	Introduction	120
4.2	Dispositif expérimental	121
4.2.1	Schéma du dispositif expérimental	121
4.2.2	Mesure des facteurs d'occupation	122
4.3	Effet des électrons sur la dispersion	124
4.3.1	Relations de dispersion en l'absence d'électrons	124
4.3.2	Relations de dispersion en présence d'électrons	126
4.3.3	Écrantage du couplage fort par les électrons	127
4.4	Relaxation en l'absence d'électrons	128
4.4.1	Observations expérimentales : distribution de population pour différents désaccords	128
4.4.2	Analyse : goulet d'étranglement de la relaxation	129
4.4.3	Diminution du goulet d'étranglement de la relaxation par les collisions polaritons-polaritons	133
4.4.4	Rôle de la température sur les collisions polariton-polariton	137
4.5	Relaxation en présence d'électrons	140
4.6	Comparaison entre les différents mécanismes de relaxation	144
4.6.1	Variation simultanée de la densité d'électrons et de la densité de polaritons	144

4.6.2	La largeur de raie dans le réservoir : un paramètre clé de la relaxation	146
4.7	Discussion et conclusion	147
4.7.1	Comparaison à la bibliographie existante	147
4.7.2	Conclusion	151
5	Étude de la dynamique de relaxation	155
5.1	Introduction	155
5.2	Dynamique de relaxation des excitons	156
5.2.1	Accélération de la dynamique due à une augmentation de la densité d'excitons	156
5.2.2	Accélération de la dynamique due à une augmentation de la densité d'électrons	165
5.3	Dynamique de relaxation des polaritons	170
5.3.1	Désaccord négatif	170
5.3.2	Désaccord nul	178
5.3.3	Modèle à trois ensembles	180
5.4	Conclusion	183
6	Conclusion générale	185
6.1	Bilan	185
6.2	Perspectives	187
A	Structure et caractérisation de l'échantillon	193
A.1	Structure de l'échantillon	193
A.2	Caractérisation à température ambiante	194
	Liste des publications	197
	Bibliographie	199

Introduction

Depuis une vingtaine d'année, les progrès effectués par les méthodes d'épitaxie permettent de faire varier la composition chimique des cristaux de semiconducteurs avec une précision spatiale de l'ordre de la monocouche atomique. Il est ainsi possible de restreindre le mouvement des ondes électroniques à deux (puits quantique), une (fil quantique), voire zéro dimension (boîte quantique). La lumière elle aussi peut se voir confinée dans des cavités de dimensions micrométriques et de formes diverses (microcavités planes, micropiliers, microdisques, microtores, cavités à cristaux photoniques). Les facteurs de qualité très élevés atteints actuellement, de l'ordre de 30 000 pour une cavité plane [96] et jusqu'à 600 000 pour les cavités à cristaux photoniques [114], permettent aux photons d'effectuer plusieurs dizaines de milliers d'aller-retours dans la cavité. Ensemble, ces progrès techniques ont ouvert la voie à l'étude de l'interaction matière-rayonnement dans les semiconducteurs.

La force du couplage lumière-matière n'est en effet pas une caractéristique *intrinsèque* déterminée par le matériau utilisé, mais peut dans une certaine mesure être contrôlée artificiellement. Dès 1946, PURCELL propose d'altérer le taux d'émission spontanée d'un atome en plaçant celui-ci à l'intérieur d'une cavité [82]. L'émission spontanée est un processus qui n'est correctement décrit que par la mécanique quantique : les fluctuations quantiques du champ électromagnétique dans le vide rendent le niveau excité de l'atome instable et forcent l'atome à relaxer vers son état fondamental. Selon que l'on construise une cavité résonnante ou désaccordée par rapport à la transition atomique, les fluctuations du champ sont intensifiées ou diminuées, et l'émission spontanée peut être accélérée ou inhibée.

Les idées de PURCELL ont été appliquées avec succès à la physique des semiconducteurs, en particulier au sein du laboratoire de photonique et de nanostructures. Une augmentation d'un facteur 5 du taux d'émission spontanée a été montrée en 1998 par J.M. GÉRARD, en utilisant un ensemble de boîtes quantiques dans un micropilier [36], puis en 2001 l'effet Purcell a été démontré sur des boîtes quantiques uniques [113]. L'accélération de l'émission spontanée est aujourd'hui employée pour produire des sources de photons uniques et indiscernables [130], qui sont essentiels dans plusieurs protocoles d'information quantique [60].

Dans certaines configurations expérimentales, l'émission spontanée peut être tellement modifiée qu'elle en devient *réversible* : le photon émis est alors réabsorbé puis réémis plusieurs fois avant de sortir de la cavité. Ce régime d'interaction, dit de couplage fort, a été observé pour la première fois dans l'interaction d'un ensemble d'atomes avec une cavité supraconductrice [6]. En insérant un puits quantique dans une cavité optique de haute finesse, WEISBUCH a montré que le régime de couplage fort peut également s'établir entre l'exciton du puits quantique et le mode de la microcavité [132].

On aboutit alors à la formation de nouveaux états propres, appelés *polaritons de microcavité* et héritant de certaines des propriétés de l'exciton et du photon. De leur composante excitonique, les polaritons gardent la possibilité d'interagir entre eux et avec les phonons du réseau cristallin qui les entourent. De leur composante photonique, les polaritons héritent d'une faible masse effective, environ quatre ordres de grandeur plus faible que celle de l'exciton. Associée à la nature bosonique des polaritons, la très faible valeur de leur masse effective a très rapidement fait des polaritons un candidat de choix pour l'étude d'effets bosoniques en physique des semiconducteurs [52]. L'amplification paramétrique et l'oscillation paramétrique des polaritons ont été observées en 2000 [102, 116], démontrant que les polaritons se comportent effectivement comme des bosons à basse densité. Sous excitation non résonnante, on s'attend soit à observer la condensation de Bose-Einstein, dans le cas où l'équilibre thermodynamique du système est atteint, soit à observer la stimulation de la relaxation des polaritons vers un état particulier. Ce dernier effet a été dénommé *effet laser à polaritons* en raison de son analogie avec l'effet laser "classique".

Le temps de vie des polaritons dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$ est cependant très court, de l'ordre de la picoseconde, soit près de 2 ordres de grandeur de moins que le temps de relaxation des polaritons par émission de phonons à partir des états de grand vecteur d'onde. En conséquence, sous excitation non résonnante, il se forme un goulet d'étranglement de la relaxation [124, 74] : les polaritons s'accumulent dans les états de grand vecteur d'onde qui forment un réservoir, et seule une faible fraction de la population relaxe vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$. Pour pouvoir obtenir un laser à polaritons, il est nécessaire que le facteur d'occupation en $k_{\parallel} = 0$ devienne supérieur à 1, de manière à ce que la stimulation de la relaxation ait un rôle important. Il n'est pas possible d'obtenir un tel facteur d'occupation à l'aide de la relaxation par émission de phonons.

Un mécanisme de relaxation concurrent est constitué par les collisions polariton-polariton. Le taux de relaxation vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$ est alors proportionnel à la densité de polaritons, ce qui explique que la relaxation par collisions polariton-polariton l'emporte sur la relaxation par émission de phonons lorsque la densité de polaritons dépasse les 10^8 cm^{-2} , et devienne le mécanisme prépondérant. Les collisions polariton-polariton ont été étudiées expérimentalement [105, 106, 107, 122, 120, 121] et théo-

riquement [125]. Dans les microcavités de semiconducteurs II-VI, ce mécanisme est suffisamment efficace pour que la relaxation soit stimulée et que la structure fonctionne comme un laser à polaritons. Dans les microcavités de semiconducteurs III-V, en revanche, il a été montré que lorsque l'on augmente la puissance d'excitation, le régime de couplage fort disparaît avant que le laser à polaritons ne soit observé [15]. En conséquence, un effet laser "conventionnel" se développe en régime de couplage faible.

En 2002, une proposition théorique est émise par G. MALPUECH et ses collaborateurs [67]. Ces derniers ont calculé le taux de relaxation des polaritons en supposant qu'une faible densité d'électrons est présente dans le puits quantique. Les collisions polariton-électron sont en effet plus efficaces que les collisions polariton-polariton pour deux raisons. Tout d'abord, les collisions polariton-électron font intervenir *une particule chargée*, et l'élément de matrice d'interaction est donc plus important que pour une collision entre deux particules neutres. D'autre part, les électrons ont une *masse* beaucoup plus faible que celle des excitons, donc la relaxation en énergie des polaritons du réservoir excitonique jusqu'à l'état $k_{\parallel} = 0$ requiert un moins grand nombre de collisions. En modélisant ce processus de collision, MALPUECH prévoit que les collisions avec les électrons sont suffisamment efficaces pour que le facteur d'occupation dépasse 1 et qu'un laser à polaritons se développe.

Au cours de cette thèse, nous nous sommes attachés à tester cette prévision théorique sur un échantillon où la densité d'électrons peut être variée optiquement. Le plan de la thèse est le suivant.

▷ Le chapitre 1 est une introduction à la physique des polaritons de microcavité. Une première partie présente les propriétés des excitons dans un puits quantique. Nous discutons en particulier la nature quasi-bosonique des excitons ainsi que le régime de couplage faible des excitons avec le champ électromagnétique lorsque le puits quantique est inséré dans un semiconducteur homogène. Dans une deuxième partie, nous présentons les propriétés des microcavités fabriquées à partir d'empilements périodiques de semiconducteurs. La troisième partie est dédiée au régime de couplage fort, lorsque le puits quantique est placé en un ventre du champ électromagnétique de la microcavité. Nous décrivons les relations de dispersion des polaritons ainsi que les propriétés optiques qui nous permettent de créer et de détecter des polaritons.

▷ Le deuxième chapitre est conçu comme une brève revue historique sur la recherche de la stimulation de la relaxation des polaritons. Nous présentons tout d'abord l'enjeu des recherches sur le laser à polaritons ainsi que la spécificité de ce dispositif par rapport à un laser "conventionnel". Une deuxième partie expose la problématique posée par le goulet d'étranglement de la relaxation des polaritons lorsque la relaxation est dominée par l'émission de phonons acoustiques ou les collisions polariton-polariton. Nous présentons alors la proposition théorique de MALPUECH et de ses collabo-

rateurs concernant les collisions polariton-électron, ainsi que les premières expériences réalisées sur une cavité à concentration variable d'électrons.

▷ Le troisième chapitre détaille la façon dont nous avons mis en évidence l'injection optique des électrons ainsi que la mesure des densités d'électrons dans notre échantillon. Les mesures réalisées dans ce chapitre ont été réalisées sur une partie gravée de l'échantillon. Ainsi, l'émission de lumière a lieu en régime de couplage faible et la physique est celle d'un puits quantique contenant une densité variable d'électrons. À faible densité d'électrons, les électrons et les trous sont liés entre eux et nous observons une raie excitonique et une raie trionique. Nous avons modélisé les intensités de luminescence de ces deux raies afin de mesurer la densité d'électrons. À forte densité d'électrons, le gaz d'électrons est dégénéré et son niveau de Fermi peut être mesuré. Des mesures de photoluminescence et d'effet Raman électronique ont été réalisées et donnent le même niveau de Fermi. Ainsi, nous pouvons connaître la densité d'électrons dans l'échantillon gravé, puis dans la microcavité complète, avec une bonne précision.

▷ Le chapitre 4 s'intéresse à la relaxation des polaritons sous excitation continue non résonnante. Un dispositif de photoluminescence résolue en angle permet de mesurer les facteurs d'occupation en régime stationnaire le long de la branche de polariton de basse énergie. Dans un premier temps, nous étudions la relaxation en l'absence du gaz d'électrons. En désaccord négatif, un goulet d'étranglement est observé à basse puissance d'excitation. Lorsque la puissance d'excitation est augmentée, le goulet d'étranglement de la relaxation diminue grâce aux collisions polariton-polariton, puis le système passe en régime de couplage faible. Dans un second temps, nous étudions l'amplitude du goulet d'étranglement en présence du gaz d'électrons. Nous démontrons expérimentalement que l'amplitude du goulet d'étranglement diminue continûment avec la densité d'électrons, et la population dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$ est multipliée par 10 environ à la densité d'électrons maximale (au-delà de laquelle le système passe en régime de couplage faible). L'efficacité de la relaxation par les collisions polariton-électron est enfin comparée à celle des collisions polariton-polariton.

▷ Le dernier chapitre est centré sur la dynamique de relaxation sous excitation impulsionnelle. Nous étudions d'une part la photoluminescence résolue en temps du puits quantique situé hors de la cavité et d'autre part celle de la microcavité complète, ce qui nous permet d'identifier clairement les effets provenant de la physique des excitons et ceux provenant de la relaxation des polaritons le long de leur relation de dispersion. Nous montrons notamment qu'en présence d'un gaz d'électrons, le temps de formation des excitons se raccourcit et que la dynamique est fortement accélérée. Un modèle basé sur les équations d'évolution du système nous permet de reproduire la dynamique observée en $k_{\parallel} = 0$ comme dans les états de grand vecteur d'onde.

Chapitre 1

Couplage fort exciton-photon dans les microcavités

Sommaire

1.1	Introduction	15
1.2	Excitons dans un puits quantique	18
1.2.1	Fonction d'onde et énergie de l'exciton	18
1.2.2	Couplage des excitons au champ électromagnétique	27
1.3	Photons en microcavité	31
1.3.1	Principe d'une cavité Fabry-Pérot	32
1.3.2	Miroirs de Bragg	35
1.3.3	Microcavités à miroirs interférentiels	37
1.3.4	Largeur de raie du mode de cavité	40
1.4	Couplage fort exciton-photon : les polaritons de microcavité	44
1.4.1	Description quantique du couplage exciton-photon	46
1.4.2	Transition couplage fort - couplage faible	50
1.4.3	Photoluminescence des polaritons	52
1.5	Conclusion	55

1.1 Introduction

L'interaction entre la lumière et la matière est un domaine qui attise depuis longtemps la curiosité du monde scientifique. Depuis l'avènement de l'électrodynamique quantique, nous disposons d'une description très poussée et précise du couplage entre les charges et le champ électromagnétique, et l'exploration des effets prédits par cette théorie se poursuit de manière continue depuis plus de 60 ans.

On distingue habituellement deux régimes différents pour l'interaction lumière-matière. Dans le premier cas, qualifié de *couplage faible*, le hamiltonien de couplage entre les deux systèmes (lumière et matière) est considéré comme une *perturbation* par rapport à la somme des hamiltoniens propres à chacun des systèmes. En conséquence du couplage perturbatif avec la lumière, les niveaux d'énergie électroniques sont instables : un système matériel placé dans un état excité relaxe spontanément vers son état fondamental en émettant des photons. Le taux d'émission spontanée est alors donné par la règle d'or de Fermi. En 1946, dans un article aussi court que célèbre, PURCELL propose de modifier le taux d'émission spontanée d'un système matériel en changeant son environnement électromagnétique [82]. L'effet Purcell est confirmé dans les années 80 par des expériences sur les atomes de Rydberg placés à l'intérieur d'une cavité : l'émission spontanée peut être soit exaltée [38], soit inhibée [51], selon la densité de modes disponibles pour accueillir le rayonnement.

A cette époque, l'autre régime, dit de *couplage fort*, paraissait être à portée de main. Citons les auteurs de l'article sur l'exaltation de l'émission spontanée [38] :

“With a tenfold increase in Q , [...] the emitted photon would be stored in the cavity long enough for the atom to be able to reabsorb it.”

Comme cette citation le souligne, dans le régime de couplage fort l'émission spontanée est réversible. On ne peut plus distinguer d'un côté la lumière (un mode du champ électromagnétique) et de l'autre la matière (dans notre cas,

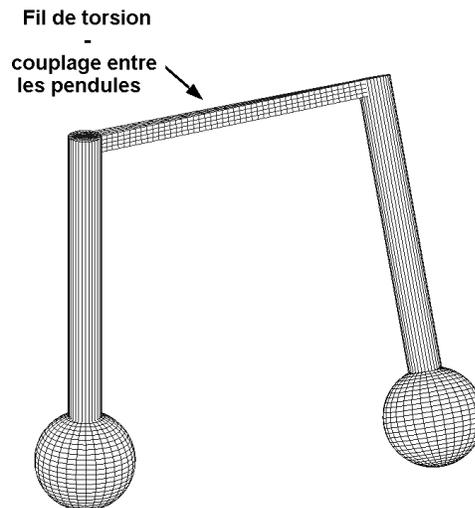


FIG. 1.1 – Schéma d'un système de deux pendules couplés par un fil de torsion

une onde de polarisation associée à un exciton) : l'énergie oscille alternativement entre les deux systèmes.

Une analogie peut être faite avec un système mécanique composé de deux oscillateurs couplés, par exemple deux pendules identiques reliés par un fil de torsion (Figure 1.1). Dans ce cas également, si l'on excite *sélectivement* un des deux pendules, le deuxième pendule se met en mouvement, puis absorbe toute l'énergie mécanique du système, avant que l'énergie mécanique du premier pendule n'augmente à nouveau. Ainsi, si l'on excite sélectivement l'un des deux pendules, l'énergie oscille de l'un à l'autre. Cependant, il est également possible d'exciter le système selon un autre mode, par exemple les deux pendules en phase, ou encore en opposition de phase l'un par rapport à l'autre. Dans ce cas, l'énergie mécanique de chacun des pendules reste *constante* au cours du temps (en négligeant l'amortissement global du système dû aux pertes). Puisque le mouvement des pendules reste alors identique à lui-même au cours du temps, de tels modes sont appelés modes stationnaires du système couplé. Dans une microcavité en régime de couplage fort, l'onde de polarisation et l'onde lumineuse jouent le rôle des deux pendules, et le couplage dipolaire électrique (couplage lumière-matière) celui du fil de torsion. En analogie avec le système mécanique, une onde stationnaire peut également être créée, mixte en ce sens que les deux ondes de départ sont excitées simultanément.

Le régime de couplage fort pour des atomes en cavité a effectivement été atteint dans les années 80 [55, 84]. Toutefois, dans ces premières expériences, le couplage avec le champ électromagnétique était augmenté en plaçant en moyenne un grand nombre d'atomes simultanément dans la cavité. Le régime de couplage fort entre un atome unique et une cavité a été obtenu dans le domaine optique en 1992 [127] (voir également la référence [14] pour une mesure de la précession de Rabi résolue en temps).

En physique du solide, HOPFIELD prévoit dès 1959 [47] que les ondes de polarisation dans les matériaux massifs tridimensionnels sont intrinsèquement en régime de couplage fort avec la lumière et forment donc des particules mixtes exciton-photon ou phonon optique-photon appelées "polariton". HOPFIELD participe également en 1965 aux premières mises en évidence expérimentale de ses propres prédictions, dans le cas où l'onde de polarisation est un exciton (polariton "excitonique" [48]) ainsi que dans le cas où l'onde de polarisation est un phonon optique (polariton "phononique" [45]). Ce dernier cas est plus éloigné de notre sujet et nous ne parlerons par la suite que des polaritons excitoniques. L'étude expérimentale des polaritons démarre véritablement dans les années 1970, où la cryogénie et les lasers accordables deviennent plus couramment disponibles dans les laboratoires. La courbe de dispersion des polaritons au voisinage de la résonance a été mesurée par différentes techniques : par l'absorption à 2 photons [33] tout d'abord, puis par la diffusion Brillouin et Raman [129, 110, 62]. Globalement, ces mesures ont permis de décrire les courbes de dispersion des polaritons d'exciton lourd

et d'exciton léger sur approximativement 15% de la zone de Brillouin, et de déterminer les masses des excitons ainsi que leurs forces d'oscillateur.

En 1992, WEISBUCH et ses collaborateurs [132] renouvellent le sujet en montrant que le régime de couplage fort entre les excitons et la lumière peut également être atteint lorsqu'un puits quantique est inséré dans une microcavité plane. La technologie nécessaire pour réaliser ce dispositif est identique à celle utilisée dans un laser à émission par la surface. Elle est donc suffisamment mature pour que plusieurs groupes reproduisent rapidement le résultat de Weisbuch et donnent ainsi naissance au domaine de recherche dans lequel s'inscrit ce travail de thèse.

Très récemment, trois groupes sont parvenu à démontrer le régime de couplage fort pour une boîte quantique insérée dans une microcavité 0-D [88, 134, 77]. Le système est alors l'analogie d'un atome en couplage fort avec une cavité et semble très prometteur dans le cadre du traitement quantique de l'information.

L'objectif de ce chapitre est d'introduire une description des polaritons de microcavité en seconde quantification. Pour cela, nous commençons par décrire les propriétés des états excitoniques dans un puits quantique (1.2). Dans un second temps, nous décrivons les microcavités utilisées en soulignant les particularités liées à l'emploi de miroirs interférentiels (1.3). Nous décrivons enfin les caractéristiques du couplage fort entre excitons et photons dans ces microcavités (1.4).

1.2 Excitons dans un puits quantique

1.2.1 Fonction d'onde et énergie de l'exciton

Lorsqu'un semiconducteur se trouve dans son état fondamental, tous les électrons sont dans la bande de valence, et la bande de conduction est vide. Dans cette section, nous cherchons à décrire le premier état excité de ce semiconducteur.

Pour fixer les idées, supposons que le matériau a un gap direct situé au centre de la zone de Brillouin comme le GaAs. Dans l'approximation à un électron, l'effet de tous les autres porteurs sur l'électron considéré est approché par un potentiel moyen ayant la périodicité du cristal. Le premier état excité est alors constitué d'un électron dans l'état $\mathbf{k} = 0$ de la bande de conduction du cristal et d'un trou en $\mathbf{k} = 0$ dans la bande de valence. L'électron et le trou sont délocalisés dans tout le cristal de semiconducteur, et non corrélés l'un à l'autre, c'est à dire que la probabilité de trouver l'électron à un endroit donné du cristal est indépendante de la probabilité de trouver le trou à un endroit quelconque. Toutefois, cet état apparaît comme le premier état excité uniquement parce que l'approximation à un électron a "gommé" les interactions individuelles entre porteurs. Si l'on tient compte de l'interaction coulombienne entre les porteurs, il se forme un état lié de la

paire électron-trou, l'exciton, d'énergie plus faible que le gap et dans lequel l'électron et le trou sont proches l'un de l'autre.

Dans cette section, nous donnons une description simplifiée des premiers états excités d'un semiconducteur. Nous commençons par présenter brièvement l'approximation de la fonction enveloppe dans laquelle nous nous plaçons par la suite. Ce cadre conceptuel permet de traiter les excitations d'un semiconducteur comme des quasiparticules massives, et s'applique avec succès au calcul des structures de bandes (au voisinage du centre de zone), à celui des hétérostructures comme à celui des états excitoniques. Pour plus de détails sur l'emploi de cette approximation, le lecteur se référera à l'ouvrage de référence écrit par G. BASTARD [5].

Nous décrivons ensuite les excitons de puits quantique à partir d'hypothèses simplificatrices. En particulier, nous supposons que les relations de dispersion des électrons et des trous sont parfaitement paraboliques, et nous négligeons les effets dus au spin [1, 3]. A la fin de cette section, nous donnons une description alternative de l'exciton en termes d'opérateur de création et de destruction. Cette approche permet de décrire des états où plusieurs excitons sont présents dans le puits quantique ainsi que de justifier la vision de l'exciton comme une quasiparticule bosonique.

Approximation de la fonction enveloppe

Dans l'approche la plus simple, un semiconducteur massif est décrit dans l'approximation à un électron, c'est à dire en considérant que le potentiel créé sur un électron par tous les autres électrons est moyenné très rapidement. Dans cette approximation, les N électrons du semiconducteur sont supposés indépendants les uns des autres, et les seules corrélations restant entre eux sont dues au principe d'antisymétrisation de la fonction d'onde. Si l'on note Ψ_l les états propres du hamiltonien à une particule, les états propres du système des N électrons sont des états antisymétrisés à partir des états Ψ_l et s'écrivent sous la forme :

$$|\Psi_1 : n_1, \Psi_2 : n_2, \dots, \Psi_l : n_l, \dots\rangle \quad (1.1)$$

où $n_l = 0$ ou 1 représente le facteur d'occupation de l'état propre à une particule Ψ_l .

Grâce au théorème de Bloch (conséquence de l'invariance par translation du potentiel cristallin), nous disposons d'informations sur les fonctions d'ondes à un électron Ψ_l . Les niveaux d'énergie du semiconducteur sont regroupés en bandes électroniques (indexées par le nombre quantique n), à l'intérieur desquelles les états sont repérés par leur vecteur d'onde \mathbf{k} . La fonction d'onde à un électron peut s'écrire sous la forme $\Psi_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \cdot \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$. La fonction $u_{n\mathbf{k}}$ est invariante par les translations du cristal et est appelée la partie rapidement variable, ou atomique de la fonction d'onde de Bloch. L'exponentielle lentement variable (à l'échelle de la cellule cristalline) est la

fonction enveloppe. Cette fonction n'est une onde plane que dans le cas d'un semiconducteur massif, et peut être fortement modifiée dans des nanostructures de dimensionnalité réduite, telles que des puits, des fils ou des boîtes quantiques.

L'approximation de la fonction enveloppe consiste à supposer que la partie rapidement variable de la fonction d'onde est indépendante de \mathbf{k} à l'ordre 0 : $u_{n\mathbf{k}} = u_{n\mathbf{0}}$, et également que cette fonction dépend peu du matériau considéré (GaAs, AlAs ou un alliage de ces deux matériaux). Bien sûr, puisqu'elle est basée sur un développement limité par rapport à \mathbf{k} , cette approximation est d'autant plus valable que l'on est proche du centre de la zone de Brillouin. Le critère de validité à considérer est que l'énergie $E_{n\mathbf{k}}$ de l'état $|\Psi_{n\mathbf{k}}\rangle$ soit beaucoup plus proche de $E_{n\mathbf{0}}$ que de tous les $E_{n'\mathbf{0}}$, où $n' \neq n$ [5].

Le principal avantage de l'approximation de la fonction enveloppe est de décrire les excitations d'un semiconducteur comme des quasiparticules libres de se propager dans ce semiconducteur.

Dans le matériau massif, l'approximation de la fonction enveloppe permet de montrer que la relation de dispersion est parabolique au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$: $E_e = E_e^0 + \hbar^2 k^2 / 2m_e$ et $E_t = -E_t^0 - \hbar^2 k^2 / 2m_t$. En présence d'un champ électrique appliqué, un électron dans la bande de conduction (respectivement un trou dans la bande de valence) se comporte comme une particule libre de charge $-e$ et de masse m_e (respectivement $+e$ et m_t pour le trou). Le mouvement de l'électron et du trou sont ceux d'une particule "libre" dont la fonction d'onde est la fonction enveloppe. La seule "trace" restante de la partie rapidement variable de la fonction d'onde et du potentiel cristallin se trouve dans les valeurs du gap $E_g = E_e^0 + E_t^0$ et de la masse effective (m_e, m_h) à considérer.

L'approximation de la fonction enveloppe permet également de calculer les niveaux d'énergie des hétérostructures. Là aussi, une quasiparticule est associée à l'électron, mais les paramètres provenant de la partie microscopique de la fonction d'onde de Bloch sont différents dans les deux matériaux : $E_e^0(\text{GaAs}) \neq E_e^0(\text{AlAs})$. À cause de la différence de gap entre les deux matériaux, l'un agit comme une barrière de potentiel pour les électrons contenus dans l'autre matériau (la différence de masse effective a également un effet, mais cet effet est faible, et nous le négligerons par la suite). Dans notre cas, le GaAs agit comme un puits aussi bien pour les électrons que pour les trous et l'AlAs agit comme une barrière (voir la Figure 1.2).

Enfin, on montre que les interactions coulombiennes entre électrons et trous peuvent également se traiter dans l'approximation de la fonction enveloppe [1, 61]. Pour justifier l'emploi de l'approximation de la fonction enveloppe dans ce cas, il est nécessaire de considérer le hamiltonien microscopique en allant au-delà de l'approximation d'états à un électron. Un terme d'interaction coulombienne, dans lequel l'électron a une charge $-e$ et le trou une charge $+e$ apparaît dans le hamiltonien associé à la fonction enveloppe

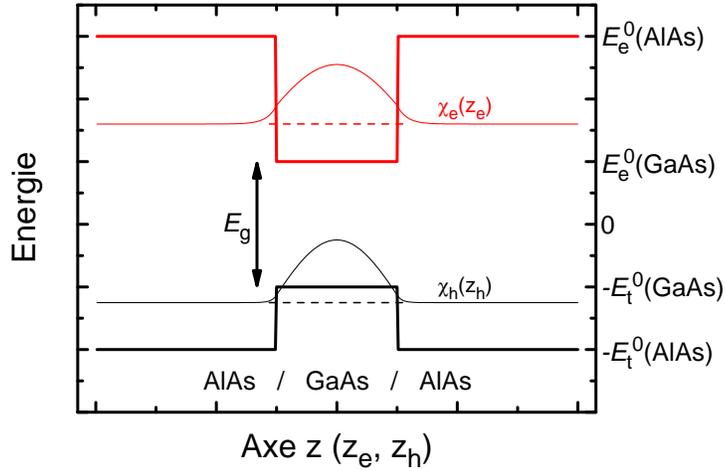


FIG. 1.2 – Schéma d'un puits quantique de GaAs entouré de barrières en AlAs. Voir dans le texte pour la signification des termes. Les lignes tiretées représentent les énergies de confinement E_1 des électrons et HH_1 des trous, et servent également d'origine des ordonnées pour les fonctions χ_e et χ_h .

d'une paire électron-trou.

Hamiltonien associé à la fonction enveloppe d'un exciton

Nous pouvons donc décrire le mouvement d'une paire électron trou en interaction coulombienne dans un puits quantique à l'aide de la fonction enveloppe. La position de l'électron (resp. du trou) est notée \mathbf{r}_e (resp. \mathbf{r}_h). Le schéma du puits quantique est donné sur la figure 1.2. Le hamiltonien de la fonction enveloppe de la paire électron-trou est donné par :

$$H = E_g + H_e + H_h + H_{e-h} \quad (1.2)$$

où E_g désigne le gap du GaAs, et les trois autres hamiltoniens sont :

$$H_e = -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}_e}^2}{2m_e} + B_e(z_e), \quad H_h = -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}_h}^2}{2m_h} + B_h(z_h), \quad \text{et} \quad H_{e-h} = \frac{-e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r |\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|}.$$

Les fonctions B_e et B_h sont les fonctions de confinement de l'électron et du trou, égales à 0 dans le GaAs et à $B_{e,h} = E_{e,h}^0(\text{AlAs}) - E_{e,h}^0(\text{GaAs})$ dans la barrière en AlAs.

Il est utile de regrouper d'une part les termes correspondant au mouvement selon z et d'autre part ceux correspondant au mouvement dans le plan des couches. Pour cela, nous introduisons les coordonnées dans le plan $\boldsymbol{\rho}_e$ et $\boldsymbol{\rho}_h$ de l'électron et du trou : $\mathbf{r}_{e,h} = \boldsymbol{\rho}_{e,h} + z_{e,h} \cdot \mathbf{e}_z$. En passant dans le système

de coordonnées du centre de masse et du mouvement relatif ($M = m_e + m_h$) :

$$\mathbf{R} = \frac{m_e}{M} \boldsymbol{\rho}_e + \frac{m_h}{M} \boldsymbol{\rho}_h, \quad \text{et} \quad \mathbf{r} = \boldsymbol{\rho}_e - \boldsymbol{\rho}_h,$$

le hamiltonien s'écrit :

$$H = E_g + H_{\text{c.m.}} + H_z^e + H_z^t + H_{\text{rel.}}, \quad (1.3)$$

$$\begin{aligned} H_z^e &= -\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{\partial^2}{\partial z_e^2} + B_e, & H_{\text{c.m.}} &= -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{R}}^2}{2M}, \\ H_z^h &= -\frac{\hbar^2}{2m_h} \frac{\partial^2}{\partial z_h^2} + B_h, & H_{\text{rel.}} &= -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{2\mu} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r \sqrt{r^2 + (z_e - z_h)^2}}, \end{aligned}$$

où μ est la masse réduite du système : $\mu^{-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$.

De ces quatre hamiltoniens, le plus simple est celui associé au centre de masse, $H_{\text{c.m.}}$. Il correspond au hamiltonien d'une particule bidimensionnelle de masse M , libre de se déplacer dans le plan des couches. C'est par ailleurs le seul à faire intervenir la variable \mathbf{R} . Il commute donc avec les autres hamiltoniens et peut être diagonalisé de manière indépendante (la fonction enveloppe est séparable par rapport à \mathbf{R}). Les fonctions propres de ce hamiltonien sont indexées par le vecteur d'onde dans le plan \mathbf{k}_{\parallel} et s'écrivent $1/\sqrt{S} \cdot \exp(i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathbf{R})$ où S est la surface de quantification. L'énergie (cinétique) correspondante est $\hbar^2 k_{\parallel}^2 / 2M$.

Les deux hamiltoniens H_z^e et H_z^t ne contiennent que des termes en z et sont équivalents au hamiltonien d'une particule unidimensionnelle confinée dans un puits de potentiel rectangulaire. Les fonctions propres de ce hamiltonien sont sinusoïdales dans le puits et exponentiellement décroissantes à l'intérieur de la barrière. Sur la Figure 1.2, nous avons représenté les états fondamentaux χ_e et χ_h de ces deux hamiltoniens. Pour tracer ces fonctions, l'origine des ordonnées a été décalée de façon à correspondre aux énergies propres de confinement E_1 et HH_1 associées à χ_e et à χ_h .

Notons que le dernier hamiltonien, $H_{\text{rel.}}$, dépend à la fois de \mathbf{r} et de z_e et z_h . En conséquence, il mélange les différents états propres de $H_z^{e,t}$ et la diagonalisation du hamiltonien total H n'est en général pas faisable analytiquement. Une approximation de l'état fondamental peut cependant être trouvée grâce au principe variationnel, en minimisant la fonctionnelle $\langle \psi | H | \psi \rangle$ sur une classe de fonctions d'essai ψ "bien choisies" (voir la référence [5, p.134] pour une discussion des différents choix possibles, et également [1, p.86] pour le cas limite des puits quantiques larges). Le cas le plus simple est justement de négliger le mélange des différents états propres de $H_z^{e,t}$ et

de considérer une fonction enveloppe séparable :

$$\psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}, z_e, z_h) = \frac{1}{\sqrt{S}} \exp(i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathbf{R}) \cdot \chi_e(z_e) \cdot \chi_h(z_h) \cdot \phi(\mathbf{r}), \quad (1.4)$$

$$\text{où } \phi(\mathbf{r}) = \sqrt{\frac{2}{\pi a_0^2}} \exp\left(-\frac{|\mathbf{r}|}{a_0}\right) \quad (1.5)$$

est la fonction d'onde du mouvement interne de l'exciton, et χ_e et χ_h sont les états fondamentaux de H_z^e et H_z^t , représentés sur la figure 1.2. Le paramètre a_0 , appelé rayon de Bohr de l'exciton, est utilisé comme paramètre de la minimisation de $\langle \psi | H | \psi \rangle$. Par rapport à l'état fondamental du semiconducteur, l'énergie de cet état d'exciton sera :

$$E(\mathbf{k}_{\parallel}) = E_g + E_1 + HH_1 + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2M} - E_{\text{liais.}} \quad (1.6)$$

Dans notre cas, celui d'un puits quantique de 200 Å de GaAs entouré d'AlAs, le gap E_g est égal à 1.519 eV, l'énergie de confinement des électrons et des trous est $E_1 = 13$ meV et $HH_1 = 3$ meV, et l'énergie de liaison de l'exciton, trouvée par minimisation de $\langle \psi | H_{\text{rel.}} | \psi \rangle$, est $E_{\text{liais.}} = 8$ meV [3]. Dans le cas particulier d'un exciton parfaitement bidimensionnel, le rayon de Bohr est $a_0^{2D} = a_{\text{Bohr}}^{3D}/2$, et l'énergie de liaison est $E_{\text{liais.}}^{2D} = 4E_{\text{liais.}}^{3D}$.

Notons que l'exciton dont on a donné l'énergie ci-dessus ne correspond qu'à un état possible parmi d'autres. En effet, si les états excitoniques associés à différentes valeurs de l'énergie de confinement (E_2 , HH_2 , etc...) ne sont pas observés expérimentalement, d'autres états propres sont possibles pour $H_{\text{rel.}}$. En particulier, dans le cas limite d'un exciton bidimensionnel, l'état interne est indexé par le nombre quantique principal n et l'énergie de l'exciton devient

$$E_n(k_{\parallel}) = E_g + E_1 + HH_1 + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2M} - \frac{E_{\text{liais.}}}{4(n-1/2)^2} \quad (1.7)$$

En théorie, il existe donc une infinité d'états entre l'état fondamental et l'énergie des paires électron-trou libres : $E_{\infty} = E_g + E_1 + HH_1$. En pratique, en plus de l'état fondamental (1s), seul le premier état excité (2s) est observé, les autres étant trop proches les uns des autres pour être distingués. Enfin, nous avons considéré ici le cas de l'exciton de trou lourd, mais il est également possible de former des excitons à partir de la bande de trous légers. Le traitement mathématique est le même que ci-dessus, et la principale différence vient de l'énergie de confinement des trous. Dans notre cas, l'énergie de confinement du trou léger est $LH_1 = 8$ meV, résultant en un décalage de 5 meV entre les deux excitons.

Opérateur de création d'un exciton

Rappelons que la fonction d'onde $\psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}, z_e, z_h)$ proposée dans l'équation 1.4 n'est que la partie enveloppe de la fonction d'onde totale associée à l'exciton dans l'état $|\mathbf{k}_\parallel\rangle$. En tenant compte de la partie rapidement variable, la fonction d'onde totale s'écrit $\langle \mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h | \mathbf{k}_\parallel \rangle = \psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) \cdot u_c(\mathbf{r}_e) \cdot u_v(\mathbf{r}_h)$. Nous proposons ici une description équivalente de l'exciton dans le cadre de la seconde quantification qui fait mieux ressortir la notion de quasiparticule associée à cet état. L'état fondamental du semiconducteur est alors noté $|0\rangle$ et est assimilé au vide. Les états excités à une particule, correspondant à un électron de vecteur d'onde dans le plan \mathbf{k}_e et à un trou de vecteur d'onde dans le plan \mathbf{k}_h sont notés $|\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h\rangle = a_{\mathbf{k}_e}^+ b_{\mathbf{k}_h}^+ |0\rangle$. $a_{\mathbf{k}_e}^+$ et $b_{\mathbf{k}_h}^+$ sont les opérateurs de création des électrons et des trous et suivent une relation de commutation fermionique. L'exciton étant un état corrélé des paires électron-trou, son opérateur de création s'écrit comme une combinaison linéaire des opérateurs de création des électrons et des trous. Pour un exciton dans l'état $|\mathbf{k}_\parallel\rangle$, on a ainsi :

$$B_{\mathbf{k}_\parallel}^+ = \sum_{\mathbf{k}'_e, \mathbf{k}'_h} \mathfrak{B}_{\mathbf{k}_\parallel}(\mathbf{k}'_e, \mathbf{k}'_h) a_{\mathbf{k}'_e}^+ b_{\mathbf{k}'_h}^+ . \quad (1.8)$$

Notons que la description en seconde quantification de l'exciton nécessiterait en toute rigueur de parler de *mode* \mathbf{k}_\parallel , et de réserver le terme *d'état* aux états contenant 0, 1, ... n excitons dans ce mode. Au cours de cette thèse, nous utiliserons néanmoins fréquemment le terme d'état \mathbf{k}_\parallel comme synonyme de mode \mathbf{k}_\parallel .

Les coefficients $\mathfrak{B}_{\mathbf{k}_\parallel}(\mathbf{k}'_e, \mathbf{k}'_h)$ de la décomposition peuvent être déterminés à l'aide du produit scalaire suivant :

$$\langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | \mathbf{k}_\parallel \rangle = \langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | B_{\mathbf{k}_\parallel}^+ | 0 \rangle \quad (1.9)$$

$$= \langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | \left[\sum_{\mathbf{k}'_e, \mathbf{k}'_h} \mathfrak{B}_{\mathbf{k}_\parallel}(\mathbf{k}'_e, \mathbf{k}'_h) a_{\mathbf{k}'_e}^+ b_{\mathbf{k}'_h}^+ \right] | 0 \rangle \quad (1.10)$$

$$= \sum_{\mathbf{k}'_e, \mathbf{k}'_h} \mathfrak{B}_{\mathbf{k}_\parallel}(\mathbf{k}'_e, \mathbf{k}'_h) \langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | \mathbf{k}'_e, \mathbf{k}'_h \rangle \quad (1.11)$$

$$= \mathfrak{B}_{\mathbf{k}_\parallel}(\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h) . \quad (1.12)$$

Nous sommes alors ramenés au problème de décomposer la fonction d'onde $|\mathbf{k}_\parallel\rangle$ de l'exciton sur celle des paires électron-trou libres $|\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h\rangle$. En utilisant la fonction d'onde de l'électron $\langle \mathbf{r}_e | \mathbf{k}_e \rangle = 1/\sqrt{S} \exp(i\mathbf{k}_e \cdot \boldsymbol{\rho}_e) \cdot \chi_e(z_e) \cdot u_c(\mathbf{r}_e)$ (l'expression de $\langle \mathbf{r}_h | \mathbf{k}_h \rangle$ étant similaire), nous avons :

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | \mathbf{k}_\parallel \rangle &= \int \frac{d^3 \mathbf{r}_e d^3 \mathbf{r}_h}{S^{3/2}} e^{[-i\mathbf{k}_e \cdot \boldsymbol{\rho}_e - i\mathbf{k}_h \cdot \boldsymbol{\rho}_h + i\mathbf{k}_\parallel \cdot \mathbf{R}] \\ &\quad \times |\chi_e(z_e)|^2 |\chi_h(z_h)|^2 \phi(\mathbf{r}) |u_c(\mathbf{r}_e)|^2 |u_v(\mathbf{r}_h)|^2 \end{aligned} \quad (1.13)$$

On peut effectuer l'intégration sur la partie rapidement variable de la fonction d'onde en considérant que les fonctions χ_e , χ_h et ϕ sont quasiment constantes à l'échelle de la maille atomique (voir [5, p.55]). Il vient :

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | \mathbf{k}_\parallel \rangle &= \int \frac{d^3 \mathbf{r}_e d^3 \mathbf{r}_h}{S^{3/2}} e^{[-i\mathbf{k}_e \cdot \boldsymbol{\rho}_e - i\mathbf{k}_h \cdot \boldsymbol{\rho}_h + i\mathbf{k}_\parallel \cdot \mathbf{R}]} |\chi_e(z_e)|^2 |\chi_h(z_h)|^2 \phi(\mathbf{r}) \\ &= \int \frac{d^2 \boldsymbol{\rho}_e d^2 \boldsymbol{\rho}_h}{S^{3/2}} e^{[-i\mathbf{k}_e \cdot \boldsymbol{\rho}_e - i\mathbf{k}_h \cdot \boldsymbol{\rho}_h + i\mathbf{k}_\parallel \cdot \mathbf{R}]} \phi(\mathbf{r}) \end{aligned}$$

Parmi les coordonnées $\boldsymbol{\rho}_e$, $\boldsymbol{\rho}_h$ et \mathbf{R} , \mathbf{r} , seules deux sont linéairement indépendantes. Nous choisissons de tout exprimer en fonction de $\boldsymbol{\rho}_h$ et \mathbf{r} .

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | \mathbf{k}_\parallel \rangle &= \int \frac{d^2 \boldsymbol{\rho}_h d^2 \mathbf{r}}{S^{3/2}} e^{[-i\mathbf{k}_e \cdot (\mathbf{r} + \boldsymbol{\rho}_h) - i\mathbf{k}_h \cdot \boldsymbol{\rho}_h + i\mathbf{k}_\parallel \cdot (\frac{m_e}{M} \mathbf{r} + \boldsymbol{\rho}_h)]} \phi(\mathbf{r}) \\ &= \delta_{\mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h, \mathbf{k}_\parallel} \int \frac{d^2 \mathbf{r}}{\sqrt{S}} e^{[-i(\mathbf{k}_e - \frac{m_e}{M} \mathbf{k}_\parallel) \cdot \mathbf{r}]} \phi(\mathbf{r}) \\ &= \delta_{\mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h, \mathbf{k}_\parallel} \times \bar{\phi}(\mathbf{k}_e - \frac{m_e}{M} \mathbf{k}_\parallel), \end{aligned}$$

où $\bar{\phi}(\mathbf{k})$ est le coefficient de Fourier de la fonction d'onde du mouvement interne. L'opérateur de création d'un exciton dans l'état $|\mathbf{k}_\parallel\rangle$ s'écrit alors :

$$B_{\mathbf{k}_\parallel}^+ = \sum_{\mathbf{k}_e} \bar{\phi}(\mathbf{k}_e - \frac{m_e}{M} \mathbf{k}_\parallel) a_{\mathbf{k}_e}^+ b_{\mathbf{k}_\parallel - \mathbf{k}_e}^+, \quad (1.14)$$

$$= \sum_{\mathbf{k}} \bar{\phi}(\mathbf{k}) a_{\frac{m_e}{M} \mathbf{k}_\parallel + \mathbf{k}}^+ b_{\frac{m_h}{M} \mathbf{k}_\parallel - \mathbf{k}}^+. \quad (1.15)$$

Pour un exciton dans l'état 1s, le coefficient de Fourier $\bar{\phi}(\mathbf{k})$ correspondant à la fonction enveloppe donnée par l'équation 1.5 est donné par :

$$\bar{\phi}(\mathbf{k}) = \frac{\sqrt{8\pi a_0^2/S}}{[1 + (ka_0)^2]^{3/2}}. \quad (1.16)$$

Cette fonction forme un pic de largeur $1/a_0$ centré sur $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. Le vecteur d'onde des électrons participant à la construction de l'exciton sera donc centré sur $\mathbf{k}_e = (m_e/M) \cdot \mathbf{k}_\parallel$. Cette relation entre le vecteur d'onde de l'exciton et le vecteur d'onde moyen des électrons provient du fait que les paquets d'onde d'électrons et de trous "voyagent" dans le puits quantique à la même vitesse de groupe que l'exciton : $\mathbf{v}_e = \hbar \mathbf{k}_e / m_e = \hbar \mathbf{k}_h / m_h = \hbar \mathbf{k}_\parallel / M = \mathbf{v}_X$. D'autre part, les seules paires électron-trou utilisées dans la construction de l'exciton sont celles de vecteur d'onde total $\mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h = \mathbf{k}_\parallel$, ce qui résulte de l'invariance du système par translation dans le plan des couches.

Dans la limite où peu d'excitons sont présents dans le système, la décomposition de l'opérateur de création d'exciton (1.15) permet de comprendre

pourquoi un exciton, formé à partir de paires électron-trou fermioniques, se comporte néanmoins comme un boson. Nous voyons en effet que la création d'un exciton résulte en une occupation infime $|\bar{\phi}(\mathbf{k})|^2$ de chaque état fermionique de paire électron trou. On peut donc créer plusieurs excitons dans le même état sans que le principe de Pauli ne soit violé.

Une comparaison est possible avec l'atome d'hydrogène, qui est lui aussi un boson composite réalisé à partir de deux fermions. Le rayon de Bohr des excitons est d'environ 100 Å, comparé à 0.5 Å pour le rayon de Bohr atomique. La fonction $|\bar{\phi}(\mathbf{k})|^2$ de l'exciton est donc beaucoup plus piquée dans l'espace des \mathbf{k} que celle de l'atome d'hydrogène et l'on a, pour $\mathbf{k} = 0$, $|\bar{\phi}(0)|_{\text{exc}}^2 \sim 200|\bar{\phi}(0)|_{\text{H}}^2$. En conséquence, le poids de chacun des états fermioniques intervenant dans la construction de l'exciton est environ 200 fois plus grand que pour ceux intervenant dans la construction de l'atome d'hydrogène et la nature fermionique sous-jacente des constituants se révèle à des densités plus faibles lorsque l'on remplit les états excitoniques.

A partir de l'équation 1.15, nous pouvons calculer le commutateur de Bose des états excitoniques :

$$\left[B_{\mathbf{k}_{\parallel}}, B_{\mathbf{k}_{\parallel}}^+ \right] = \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \bar{\phi}^*(\mathbf{k}) \bar{\phi}(\mathbf{k}') \cdot \left[b_{\mathbf{k}_h - \mathbf{k}}^- a_{\mathbf{k}_e + \mathbf{k}}^-, a_{\mathbf{k}_e + \mathbf{k}'}^+ b_{\mathbf{k}_h - \mathbf{k}'}^+ \right], \quad (1.17)$$

$$= \sum_{\mathbf{k}} |\bar{\phi}(\mathbf{k})|^2 \cdot (1 - a_{\mathbf{k}_e + \mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}_e + \mathbf{k}}^- - b_{\mathbf{k}_h - \mathbf{k}}^+ b_{\mathbf{k}_h - \mathbf{k}}^-), \quad (1.18)$$

$$= 1 - \sum_{\mathbf{k}} |\bar{\phi}(\mathbf{k})|^2 \cdot (\hat{n}_{e, \widetilde{\mathbf{k}}_e + \mathbf{k}} + \hat{n}_{h, \widetilde{\mathbf{k}}_h - \mathbf{k}}), \quad (1.19)$$

où $\widetilde{\mathbf{k}}_e = (m_e/M) \cdot \mathbf{k}_{\parallel}$ et $\widetilde{\mathbf{k}}_h = (m_h/M) \cdot \mathbf{k}_{\parallel}$ sont les vecteurs d'ondes moyens des électrons et des trous, et $\hat{n}_{e, \mathbf{k}} = a_{\mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}}$ et $\hat{n}_{h, \mathbf{k}} = b_{\mathbf{k}}^+ b_{\mathbf{k}}$ sont les opérateurs nombres associés aux électrons et aux trous. Sur cette expression, nous voyons que si un électron est présent dans un des états $|\mathbf{k}\rangle$, alors $\hat{n}_{e, \mathbf{k}} = 1$ et la valeur du commutateur de Bose des excitons s'éloigne de 1.

Une approximation de la valeur moyenne de ce commutateur dans un état à n excitons par unité de surface a été effectuée [43] :

$$\left\langle \left[B_{\mathbf{k}_{\parallel}}, B_{\mathbf{k}_{\parallel}}^+ \right] \right\rangle \approx 1 - O(n a_{2D}^2), \quad (1.20)$$

où a_{2D} est le rayon de Bohr des excitons. Cette relation permet d'estimer l'ordre de grandeur de la densité à partir de laquelle l'exciton ne se comporte plus comme un boson : $n_{\text{sat}} \sim 1/a_{2D}^2$. SCHMITT-RINK a développé un modèle théorique basé sur la saturation de la force d'oscillateur donnant $n_{\text{sat}} = 0.117/\pi a_{2D}^2$ [103], mais la valeur de ce préfacteur reste sujet à débats [20, 119].

1.2.2 Couplage des excitons au champ électromagnétique

Nous décrivons à présent le couplage des excitons au champ électromagnétique, en supposant que le puits quantique est inséré dans un diélectrique homogène d'indice n .

Force d'oscillateur

En physique classique, on rend compte de l'interaction lumière matière par une susceptibilité électrique reliant le champ électromagnétique et le champ de polarisation. Dans le modèle de l'électron élastiquement lié, le mouvement d'un électron est assimilé à celui d'un oscillateur harmonique amorti résonnant à la fréquence ω_0 . Le mouvement d'un électron répond à l'équation :

$$m_0[\ddot{\mathbf{r}} + 2\gamma\dot{\mathbf{r}} + \omega_0^2\mathbf{r}] = -e\mathbf{E}, \quad (1.21)$$

où \mathbf{E} est le champ électrique local agissant sur l'oscillateur et m_0 est la masse de l'électron libre. Pour une onde monochromatique à la fréquence ω , chaque électron crée un dipôle

$$\mathbf{d} = -e\mathbf{r} = \frac{e^2}{m_0} \frac{\mathbf{E}}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2i\gamma\omega}. \quad (1.22)$$

La polarisation macroscopique \mathbf{P} du matériau est trouvée en multipliant le dipôle élémentaire \mathbf{d} par le nombre d'oscillateurs par unité de volume, noté f/V :

$$\mathbf{P} = \epsilon_0\chi(\omega)\mathbf{E}, \quad (1.23)$$

$$\chi(\omega) = \frac{f}{V} \frac{e^2}{m_0\epsilon_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2i\gamma\omega}, \quad (1.24)$$

soit, si $\omega_0 \gg \gamma$ et $|\omega - \omega_0| \ll \omega + \omega_0$:

$$\chi(\omega) = \frac{f}{V} \frac{e^2}{2m_0\epsilon_0\omega_0} \frac{1}{\omega_0 - \omega - i\gamma}. \quad (1.25)$$

En mécanique quantique, l'interaction entre les particules et le champ donne lieu au hamiltonien $\mathbf{d}\cdot\mathbf{E}$, où le dipôle \mathbf{d} est quantifié et le champ \mathbf{E} est classique (approche dite semi-classique). Dans l'approximation des grandes longueurs d'onde, la mécanique quantique confirme le modèle phénoménologique ci-dessus, et permet de préciser les valeurs des différents paramètres : $\hbar\omega_0$ est la différence d'énergie entre deux niveaux électroniques $|i\rangle$ et $|f\rangle$, γ est l'élargissement de cette transition, et la force d'oscillateur f pour une onde polarisée selon $\boldsymbol{\epsilon}$ est donnée par [1, 19, 39] :

$$f = \frac{2}{m_0\hbar\omega_0} |\langle f|\boldsymbol{\epsilon}\cdot\sum \mathbf{p}_k|i\rangle|^2 = \frac{2m_0\omega_0}{\hbar} |\langle f|\boldsymbol{\epsilon}\cdot\sum \mathbf{r}_k|i\rangle|^2, \quad (1.26)$$

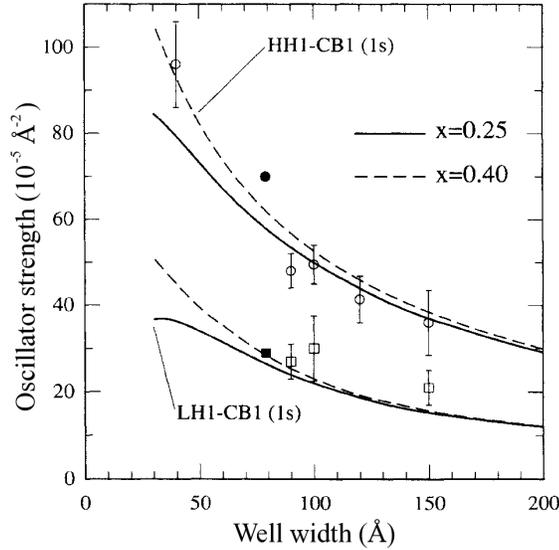


FIG. 1.3 – Force d’oscillateur par unité de surface en fonction de l’épaisseur pour un puits quantique de GaAs entouré par des barrières en $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. L’exciton de trou lourd (resp. de trou léger) est noté HH1-CB1 (resp. LH1-CB1) et la polarisation est supposée être dans le plan des couches. Figure extraite de [3].

où r_k et p_k désignent la position et l’impulsion de l’électron k .

Pour un puits quantique, la force d’oscillateur est proportionnelle à la surface du puits quantique excité par l’onde. La force d’oscillateur de l’exciton 1s par unité de surface vaut [1] :

$$\frac{f}{S} = \frac{2}{m_0 \hbar \omega_0} |\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p}_{cv}|^2 |\phi(0)|^2 \left| \int dz \chi_e(z) \chi_h(z) \right|^2, \quad (1.27)$$

où $\mathbf{p}_{cv} = \langle u_c | \mathbf{p} | u_v \rangle$ est l’élément de matrice de Kane caractéristique du matériau, et les fonctions enveloppes ϕ , χ_e et χ_h ont été définies précédemment. En vue d’obtenir des valeurs de f/S comparables aux résultats expérimentaux, ANDREANI [3] a réalisé une modélisation de l’exciton bien plus précise que celle développée ci-dessus. Il a notamment pris en compte l’anisotropie des masses effectives, la différence des masses effectives et des constantes diélectriques dans le puits et dans la barrière, le couplage entre trous lourds et trous légers, ainsi que le couplage coulombien entre les excitons appartenant à différentes bandes. Les forces d’oscillateur résultant de ce calcul sont reprises sur la figure 1.3.

Si l’on note $E_X(k_{\parallel})$ la dispersion en énergie de l’exciton du puits quan-

tique, la constante diélectrique s'écrit :

$$\epsilon(E, k_{\parallel}) = n_{\text{puits}}^2 + \frac{f}{S L_{\text{puits}}} \frac{\hbar^2 e^2}{2m_0 \epsilon_0 E_X(k_{\parallel})} \frac{1}{E_X(k_{\parallel}) - E - i\Gamma}, \quad (1.28)$$

où n_{puits} est l'indice optique dû à toutes les autres transitions très éloignées en énergie de celle qui nous intéresse et Γ est l'élargissement homogène non radiatif.

La force d'oscillateur par unité de surface est directement proportionnelle à la probabilité d'absorption d'un photon lors de la traversée du puits quantique : si l'on note $a(E)$ la probabilité d'absorption d'un photon d'énergie E , on a :

$$\int a(E) dE = \frac{\pi \hbar e^2}{2n_{\text{puits}} m_0 \epsilon_0 c} \frac{f}{S}. \quad (1.29)$$

La résonance excitonique est donc d'autant plus visible sur le spectre d'absorption que la force d'oscillateur par unité de surface est grande.

Excitons noirs, excitons brillants : les règles de sélection

D'après l'expression 1.27, le couplage de l'exciton au champ électromagnétique est déterminé par l'élément de matrice "atomique" p_{cv} d'une part, et par l'intégrale de recouvrement entre l'électron et le trou $\int \chi_e(z) \chi_h(z) dz$ d'autre part. Chacun de ces deux termes impose ses propres règles de sélection. Ainsi, pour un puits quantique symétrique l'intégrale de recouvrement est nulle lorsque χ_e et χ_h sont de parité opposée. Dans la limite de barrières infinies, il est de plus nécessaire d'avoir $\chi_e = \chi_h$.

Les règles de sélection provenant de p_{cv} sont dues au moment cinétique $\pm 3/2$ des trous et $\pm 1/2$ des électrons. Ainsi, l'exciton de trou lourd n'est pas couplé à la composante de l'onde polarisée selon l'axe de croissance z du puits quantique. Par ailleurs, il existe des excitons de trou lourd de moment cinétique total $J = 2$ non couplés à l'onde électromagnétique (le photon ayant un spin égal à 1). Pour cette raison, les excitons $J = 2$ sont appelés excitons noirs. En ce qui concerne les trous légers, on a $p_{cv}(HH) = \sqrt{3} p_{cv}(LH)$ pour une onde polarisée dans le plan. La différence dans les éléments de matrice est d'ailleurs le terme dominant permettant d'expliquer la différence de force d'oscillateur par unité de surface des excitons de trou lourd et de trou léger : comme le montre la figure 1.3, le rapport des forces d'oscillateur $f(HH)/f(LH)$ est compris entre 2 et 3 pour toutes les épaisseurs de puits quantiques considérées.

Dans un puits quantique parfaitement bidimensionnel, un exciton de vecteur d'onde dans le plan k_{\parallel} se couple avec les photons ayant le même vecteur d'onde dans le plan, mais avec toutes les valeurs possibles de k_z . L'état $|\mathbf{k}_{\parallel}\rangle$ de l'exciton est donc couplé à un continuum d'états photoniques. Une différence fondamentale apparaît selon que l'énergie $E_X(k_{\parallel})$ de l'exciton est située en-dessous ou au-dessus de la ligne de lumière du matériau

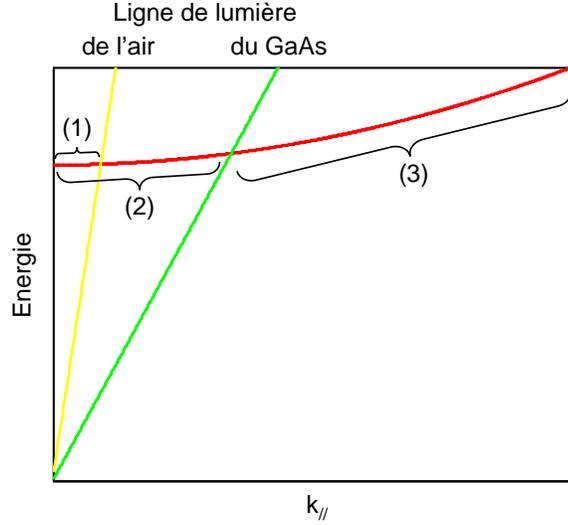


FIG. 1.4 – Relation de dispersion de l'exciton et lignes de lumière de l'air et du GaAs. Les différentes zones de la relation de dispersion de l'exciton sont (1) les excitons susceptibles d'émettre spontanément des photons dans l'air, (2) les excitons susceptibles d'émettre spontanément des photons dans le substrat de GaAs, et (3) les excitons non radiants.

$E_{\text{lum}}(k_{\parallel}) = (\hbar c/n_{\text{puits}})k_{\parallel}$. En effet, pour $E_X(k_{\parallel}) > E_{\text{lum}}(k_{\parallel})$, les modes du champ électromagnétique sont propagatifs et l'exciton peut être radiatif. En revanche, si $E_X(k_{\parallel}) < E_{\text{lum}}(k_{\parallel})$, les modes du champ électromagnétique sont évanescents dans toutes les directions, et l'exciton est non radiatif (le seul effet du couplage à ces modes non radiants est une faible modification de l'énergie des excitons [1, p.96]). Ces excitons sont appelés excitons non radiants.

La Figure 1.4 compare la relation de dispersion $E_X(k_{\parallel})$ des excitons et la ligne de lumière dans l'air et le GaAs. Les excitons non radiants sont caractérisés par leur vecteur d'onde $k_{\parallel} > k_{\text{rad}}$, où

$$k_{\text{rad}} = \frac{n_{\text{puits}}}{\hbar c} E_X(k_{\text{rad}}) \approx \frac{n_{\text{puits}}}{\hbar c} E_X(0). \quad (1.30)$$

En effet, la différence $E_{\text{rad}} = E_X(k_{\text{rad}}) - E_X(0) = \hbar^2 k_{\text{rad}}^2 / 2m_X$ est de l'ordre de 0.2 meV, et donc négligeable devant $E_X(k_{\parallel})$.

Temps de vie radiatif

Le taux de déclin radiatif pour les excitons en $k_{\parallel} = 0$ est donné par la règle d'or de Fermi. Le résultat est le suivant :

$$\Gamma_0 = \frac{e^2}{2n_{\text{puits}}m_0\epsilon_0c} \frac{f}{S}. \quad (1.31)$$

Pour un puits quantique de 200 \AA ($f/S = 30 \times 10^{-5} \text{ \AA}^{-2}$), cette formule donne un temps de vie radiatif de $1/\Gamma_0 \approx 22 \text{ ps}$ pour les excitons en $k_{\parallel} = 0$.

Cependant, puisque seuls les états excitoniques $J_z = \pm 1$ d'énergie cinétique inférieure à $E_{\text{rad}} \approx 0.2 \text{ meV}$ sont radiants, le temps de vie observé peut être beaucoup plus long que $1/\Gamma_0$. Ainsi pour un gaz d'excitons thermalisé à une température $T \gg E_{\text{rad}}/k_B = 2 \text{ K}$, la majeure partie de la population est non radiante. En supposant que les 4 états de spin sont peuplés de manière égale, le temps de déclin de la population totale est [1] :

$$\tau(T) = \frac{3}{2} \frac{k_B T}{E_{\text{rad}}} \frac{1}{\Gamma_0}. \quad (1.32)$$

Le temps de déclin est donc proportionnel à la température, ce qui peut être relié au caractère bidimensionnel du puits quantique.

1.3 Photons en microcavité

Afin d'obtenir le régime de couplage fort, il est nécessaire d'augmenter l'intensité du couplage entre l'exciton et le champ. Pour cela, nous devons utiliser des cavités présentant à la fois un faible volume effectif de façon à ce que le champ électrique créé par un seul photon soit plus intense, et un grand temps de vie, afin de diminuer les pertes par couplage de la lumière hors de la cavité. Les microcavités diélectriques présentent à cet égard de nombreux avantages sur les microcavités à base de miroirs métalliques, tout d'abord parce que l'on peut les fabriquer lors de la même étape d'épitaxie que le puits quantique, mais également parce que les miroirs de Bragg utilisés pour confiner la lumière ont des pertes par absorption négligeables et un coefficient de réflectivité supérieur à 99.9%.

Beaucoup de propriétés de ces microcavités (résonance, finesse, dispersion angulaire, ...) peuvent être comprises à partir de celles d'une cavité Fabry-Pérot à miroirs métalliques. Dans un premier temps, nous rappelons donc brièvement les caractéristiques d'une telle cavité (1.3.1).

À cause de la faible différence d'indices, le dioptré situé à l'interface de deux semiconducteurs différents a un coefficient de réflectivité de l'ordre de 1%. En utilisant les effets d'interférences constructives entre les ondes réfléchies par plusieurs dioptrés, il est possible d'obtenir des coefficients de réflectivité proches de 100% en empilant de nombreuses couches de semiconducteur les unes sur les autres. L'empilement qui en résulte est alors appelé miroir de Bragg, et ses propriétés sont décrites au § 1.3.2. Une microcavité peut également être construite en plaçant deux miroirs de Bragg autour d'un espaceur. Les microcavités sont décrites au § 1.3.3 et le dernier paragraphe est consacré aux facteurs d'élargissement du mode de la cavité.

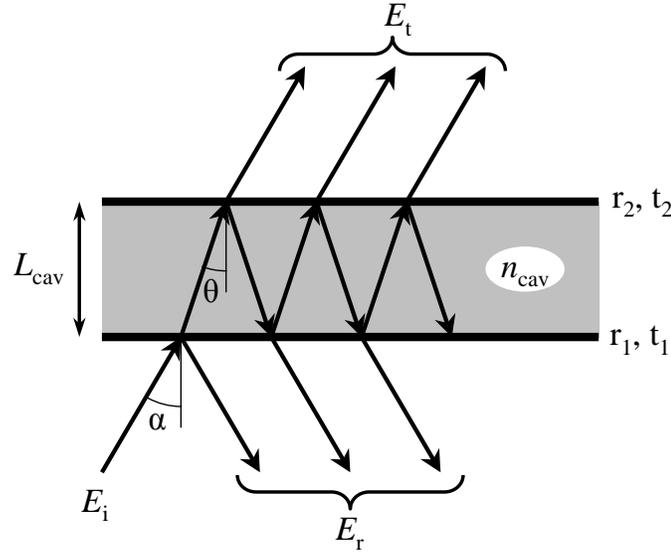


FIG. 1.5 – Schéma de principe d'un interféromètre de Fabry-Pérot à miroirs métalliques.

1.3.1 Principe d'une cavité Fabry-Pérot

La Figure 1.5 présente le schéma de principe du résonateur Fabry-Pérot. Nous considérons deux miroirs parallèles décrits par leur réflectivité (resp. transmission) r_1, r_2 (resp. t_1, t_2). Ils entourent une cavité d'épaisseur L_{cav} , d'indice n_{cav} . Les grandeurs r_1, r_2, t_1, t_2 sont prises réelles et positives, et comme $n_{\text{cav}} > n_{\text{air}}$, l'onde n'est pas déphasée lors d'une réflexion à l'intérieur de la cavité et est déphasée de π lors d'une réflexion à l'extérieur.

Une onde progressive plane monochromatique est incidente sur la cavité avec un angle α tel que $n_{\text{air}} \sin \alpha = n_{\text{cav}} \sin \theta$ (θ est l'angle de l'onde avec la normale à l'intérieur de la cavité). Pour simplifier, nous supposons que l'onde a une polarisation transverse électrique (TE), c'est-à-dire que le champ électrique est perpendiculaire au plan de la feuille sur la figure 1.5. Après un aller simple à l'intérieur de la cavité, l'onde a accumulé un déphasage $\phi = 2\pi \cdot (n_{\text{cav}} L_{\text{cav}} \cos \theta) / \lambda$. L'onde transmise s'écrit alors comme une somme de toutes les ondes réfléchies et transmises par les miroirs. En notation complexe, si l'on note \underline{E}_i le champ électrique de l'onde incidente et

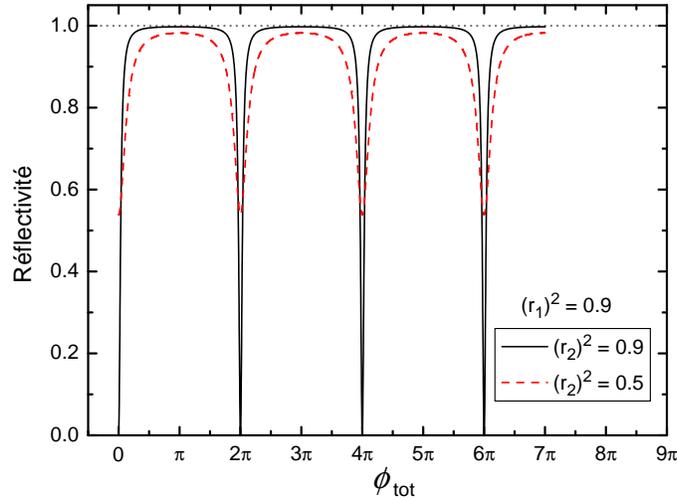


FIG. 1.6 – Coefficient de réflectivité d’une cavité Fabry-Pérot en fonction du déphasage total lors d’un aller-retour (loi d’Airy). L’un des miroirs a un coefficient de réflectivité en énergie $R_1 = 90\%$ et l’on a considéré deux coefficients de réflectivité pour le second miroir : $R_2 = 50\%$ (ligne tiretée) et $R_2 = 90\%$ (ligne continue).

\underline{E}_t celui de l’onde transmise, nous avons :

$$\underline{E}_t = \underline{E}_i \cdot t_1 \cdot e^{i\phi} \cdot t_2 + \underline{E}_i \cdot t_1 \cdot e^{i\phi} \cdot \overbrace{\left(r_2 e^{i\phi} r_1 e^{i\phi} \right)}^{1 \text{ aller-retour}} \cdot t_2 + \dots$$

$$+ \underline{E}_i \cdot t_1 \cdot e^{i\phi} \cdot \left(r_2 e^{i\phi} r_1 e^{i\phi} \right)^n \cdot t_2 + \dots \quad (1.33)$$

$$\Rightarrow \underline{E}_t = \underline{E}_i \cdot t_1 \cdot t_2 \cdot e^{i\phi} \cdot \left(\frac{1}{1 - r_1 r_2 e^{2i\phi}} \right). \quad (1.34)$$

En notant $\phi_{\text{tot}} = 2\phi$ le déphasage lors d’un aller-retour, le coefficient de transmission de l’interféromètre suit une loi d’Airy :

$$T = \left| \frac{\underline{E}_t}{\underline{E}_i} \right|^2 = \frac{(t_1 t_2)^2}{1 + (r_1 r_2)^2 - 2r_1 r_2 \cos(\phi_{\text{tot}})}, \quad (1.35)$$

$$\phi_{\text{tot}} = 2\phi = 2 \frac{E}{\hbar c} n_{\text{cav}} L_{\text{cav}} \cos \theta. \quad (1.36)$$

Comme nous n’avons pas introduit de pertes dans le système (absorption des miroirs ou de la cavité, diffusion sur les interfaces, ...), le coefficient de réflectivité R de la cavité se déduit de T à partir de la formule $R + T = 1$. La Figure 1.6 représente R en fonction de ϕ_{tot} pour $R_1 = (r_1)^2 = 0.9$ et deux valeurs de R_2 . À partir de la formule 1.35 et de la figure 1.6, on peut montrer les caractéristiques suivantes de la cavité Fabry-Pérot :

- Le coefficient de réflectivité décroît jusqu'à une valeur R_{\min} proche de 0 pour des valeurs périodiques de ϕ_{tot} : $\phi_{\text{tot}} = p \times 2\pi$. Chaque valeur entière de p définit donc un mode particulier du Fabry-Pérot. En incidence normale, les modes sont donnés par $n_{\text{cav}}L_{\text{cav}} = p\lambda/2$. En particulier, une cavité vérifiant $n_{\text{cav}}L_{\text{cav}} = \lambda_{\text{res}}/2$ pour une longueur d'onde fixée λ_{res} est appelée "cavité $\lambda/2$ " à la longueur d'onde λ_{res} . C'est la plus petite cavité que l'on puisse construire et qui soit résonnante à cette longueur d'onde.
- De manière plus générale, si l'on tient compte d'un déphasage lors de la réflexion sur les miroirs ($r_1 \rightarrow r_1 e^{i\phi_1(E)}$, $r_2 \rightarrow r_2 e^{i\phi_2(E)}$), les modes sont définis par :

$$\phi_{\text{tot}}(E) = 2\phi(E) + \phi_1(E) + \phi_2(E) = p \times 2\pi. \quad (1.37)$$

Cette équation nous sera utile par la suite dans le cas des miroirs de Bragg, pour lesquels la phase à la réflexion $\phi_1(E)$ n'est pas constante.

- La réflectivité est maximale entre les modes ($\phi_{\text{tot}} = \pi$) et minimale au creux des modes. Nous avons :

$$R_{\min} = \left[\frac{r_1 - r_2}{1 - r_1 r_2} \right]^2 \quad \text{et} \quad R_{\max} = \left[\frac{r_1 + r_2}{1 + r_1 r_2} \right]^2. \quad (1.38)$$

Les modes sont donc plus contrastés ($R_{\min} = 0$) lorsque les miroirs sont identiques : $r_1 = r_2$. Par ailleurs, des miroirs fortement réfléchissants ($r_1, r_2 \approx 1$) sont nécessaires si l'on veut éviter que le champ ne pénètre dans la cavité à une énergie autre que celle des modes.

- En incidence normale, l'intervalle spectral libre ΔE (écart entre deux modes) et la largeur de raie à mi-hauteur δE sont donnés respectivement par :

$$\Delta\phi_{\text{tot}} = 2\pi \quad \Longrightarrow \quad \Delta E = \frac{\pi\hbar c}{n_{\text{cav}}L_{\text{cav}}} \quad (1.39)$$

$$\delta\phi_{\text{tot}} = 2 \frac{1 - r_1 r_2}{\sqrt{r_1 r_2}} \quad \Longrightarrow \quad \delta E = \frac{\hbar c}{n_{\text{cav}}L_{\text{cav}}} \cdot \frac{1 - r_1 r_2}{\sqrt{r_1 r_2}}, \quad (1.40)$$

en supposant que les pertes lors d'un aller-retour à l'intérieur de la cavité sont faibles ($r_1 r_2 = 1 - \epsilon$).

À partir de ces deux grandeurs, on peut définir deux facteurs numériques, appelés respectivement la *finesse* de la cavité et le *facteur de qualité* du mode considéré :

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta E}{\delta E} = \frac{\Delta\phi_{\text{tot}}}{\delta\phi_{\text{tot}}} = \frac{\pi\sqrt{r_1 r_2}}{1 - r_1 r_2}, \quad (1.41)$$

$$Q = \frac{E}{\delta E} = \frac{\phi_{\text{tot}}}{\delta\phi_{\text{tot}}} = p \times \mathcal{F} = \frac{p\pi\sqrt{r_1 r_2}}{1 - r_1 r_2}. \quad (1.42)$$

Leur signification physique est liée au temps d'échappement de l'énergie hors de la cavité, plus simplement appelé temps de vie de la cavité, par $\tau_{\text{cav}} = \hbar Q/E$. La finesse de la cavité correspond au nombre de fois qu'un photon peut être réfléchi par les miroirs avant de sortir de la cavité. Il est uniquement lié aux caractéristiques des miroirs. Le facteur de qualité est également lié aux caractéristiques des miroirs mais il est de plus proportionnel à la taille du mode de la cavité, par l'intermédiaire du nombre p . Pour un jeu de miroirs donné, permettant au photon de faire \mathcal{F} aller-retour, celui-ci restera dans le mode de la cavité durant un temps caractéristique correspondant à $Q/2\pi$ périodes optiques.

Considérons maintenant la relation de dispersion des modes de la cavité. Pour une onde incidente avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_{\text{air}} = (\mathbf{k}_{\parallel}, k_z^{\text{air}})$, le vecteur d'onde dans la cavité s'écrit $\mathbf{k}_{\text{cav}} = (\mathbf{k}_{\parallel}, k_z^{\text{cav}})$ (\mathbf{k}_{\parallel} est conservé à cause de l'invariance du système par translation plane). Par ailleurs, $k_{\text{cav}} = n_{\text{cav}} k_{\text{air}} = n_{\text{cav}} E/\hbar c$. Le mode p vérifie donc :

$$\phi_{\text{tot}} = p \times 2\pi, \quad (1.43)$$

$$2.k_z^{\text{cav}}.L_{\text{cav}} = p \times 2\pi, \quad (1.44)$$

$$L_{\text{cav}} \cdot \sqrt{\left(\frac{n_{\text{cav}}E}{\hbar c}\right)^2 - k_{\parallel}^2} = p\pi, \quad (1.45)$$

$$\Rightarrow E(k_{\parallel}) = \sqrt{E_p^2 + \left(\frac{\hbar c}{n_{\text{cav}}} k_{\parallel}\right)^2}, \quad (1.46)$$

$$\approx E_p + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_{\text{ph}}}, \quad (1.47)$$

où E_p est l'énergie du mode p en incidence normale, et $m_{\text{ph}} = n_{\text{cav}}^2 E_p/c^2$ est la masse effective du photon en cavité, qui est correctement définie tant que la relation de dispersion est parabolique. En pratique, si l'énergie $E_p = E(k_{\parallel} = 0)$ est proche d'une résonance excitonique, la relation de dispersion du mode p dévie de cette parabole de moins de 5% tant que $k_{\parallel} < k_{\text{rad}}$, où $k_{\text{rad}} = n_{\text{cav}} E_X/\hbar c$ a été défini au § 1.2.2 comme le vecteur d'onde à partir duquel l'exciton n'est plus radiatif.

1.3.2 Miroirs de Bragg

Un miroir de Bragg est un cristal photonique unidimensionnel, c'est-à-dire un empilement périodique de couches diélectriques d'indice n_L et n_H comme représenté sur la Figure 1.7. Dans notre cas, les deux diélectriques sont des semiconducteurs que l'on utilise à une énergie inférieure au gap. Les épaisseurs des couches L_L et L_H sont choisies pour que les épaisseurs optiques soient égales à $\lambda/4$: $n_L L_L = n_H L_H = \lambda_{\text{Bragg}}/4$ à une longueur

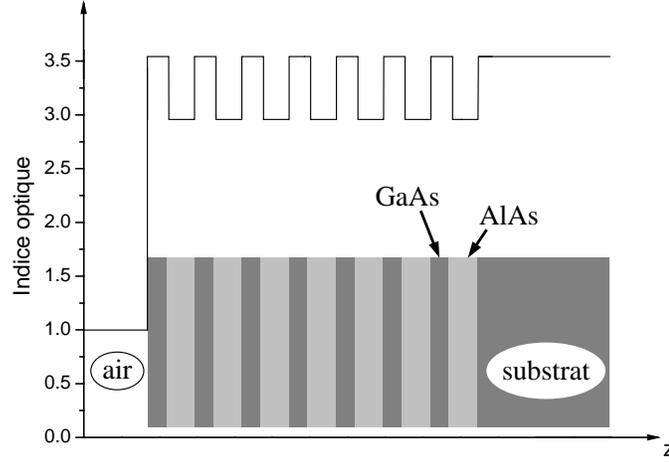


FIG. 1.7 – Représentation schématique d'un miroir de Bragg comportant 7 paires, et indice optique correspondant.

d'onde λ_{Bragg} déterminée. Pour une onde incidente sur la structure à la longueur d'onde λ_{Bragg} , les ondes réfléchies par chacun des dioptrés sont en phase les unes avec les autres. À l'inverse, les ondes transmises interfèrent destructivement, et la structure se comporte globalement comme un miroir.

Les résultats numériques que nous reportons ici sont obtenus à l'aide d'une méthode de matrices de transfert. Une présentation détaillée de cette méthode peut être trouvée dans de nombreux ouvrages [133, 73, 12, 101] et ne sera pas reprise ici. Mentionnons simplement que l'essence de la méthode des matrices de transfert est de réécrire la loi de Fresnel de la réfraction sous une forme matricielle, reliant les champs $[E^+, E^-]_{z_2}$ en un point particulier de l'axe z à leur valeur en un point $z_1 < z_2$ (E^+ et E^- sont les composantes propagatives de E : $E = E^+ e^{-ik_z z} + E^- e^{+ik_z z}$). La matrice $M_{z_2 \leftarrow z_1}$ qui fait passer de l'interface z_1 à l'interface z_2 ,

$$\begin{bmatrix} E^+ \\ E^- \end{bmatrix}_{z_2} = M_{z_2 \leftarrow z_1} \begin{bmatrix} E^+ \\ E^- \end{bmatrix}_{z_1}, \quad (1.48)$$

présente la propriété de pouvoir être multipliée : $M_{z_2 \leftarrow z_0} = M_{z_2 \leftarrow z_1} \times M_{z_1 \leftarrow z_0}$. En combinant un certain nombre de matrices élémentaires, on peut alors calculer la matrice de transfert d'un empilement de diélectriques.

La Figure 1.8 présente la réflectivité du miroir de Bragg en fonction du nombre de périodes N_{paires} de l'empilement (chaque période contenant une couche de type 1 et une couche de type 2). Nous avons considéré $n_L = n_{\text{AlAs}} = 2.96$ et $n_H = n_{\text{GaAs}} = 3.54$, la longueur d'onde λ_{Bragg} étant choisie pour correspondre à une énergie $E_{\text{Bragg}} = 1.53$ eV. Le miroir de Bragg est au contact de l'air ($n_{\text{air}} = 1$) du côté de l'onde incidente, et du GaAs du

côté du substrat ($n_{\text{sub}} = n_{\text{GaAs}}$). Dans le cas où l'onde incidente provient du substrat, ou du milieu intracavité, il est nécessaire d'invertir n_{air} et n_{sub} dans les expressions que nous donnons.

Lorsque l'on augmente le nombre de paires, nous voyons sur la Figure 1.8 qu'une bande interdite se développe de part et d'autre de E_{Bragg} : le coefficient de réflectivité de la structure tend exponentiellement vers 1 sur une plage d'énergie de largeur ΔE . Plus précisément, on peut montrer que si $n_L < n_H$, $(n_H - n_L) \ll (n_H + n_L)$ et $1 \ll N_{\text{paires}}$, on a

$$R(E_{\text{Bragg}}) \approx 1 - 4 \frac{n_{\text{sub}}}{n_{\text{air}}} \left(\frac{n_L}{n_H} \right)^{2N_{\text{paires}}} \quad \text{et} \quad \frac{\Delta E}{E_{\text{Bragg}}} \approx \frac{4(n_H - n_L)}{\pi(n_H + n_L)}. \quad (1.49)$$

Nous comprenons alors tout l'intérêt qu'il y a à choisir des matériaux ayant un fort contraste d'indice, c'est-à-dire n_H aussi différent de n_L que possible. En effet, pour un nombre de paires fixé, le comportement du miroir de Bragg s'approche de celui d'un miroir parfait ($R = 1$ sur une plage ΔE maximale) lorsque $n_H \gg n_L$. Cependant, à la différence d'un miroir métallique, la lumière réfléchiée par le miroir de Bragg subit un déphasage dépendant de l'énergie :

$$\phi_{\text{ref}}(E) = \frac{n_{\text{air}} L_{\text{Bragg}}}{\hbar c} (E - E_{\text{Bragg}}), \quad \text{où} \quad (1.50)$$

$$L_{\text{Bragg}} = \frac{p_0 \lambda_{\text{Bragg}}}{2 n_{\text{air}}} \quad \text{et} \quad p_0 = \frac{n_L}{n_H - n_L} = 5.1. \quad (1.51)$$

Rappelons que l'indice n_{air} , arbitraire dans cette formule, est celui du milieu de l'onde incidente, et doit être remplacé par n_{cav} dans le cas d'une onde provenant de l'intérieur d'une cavité. En comparant cette expression avec celle obtenue pour le déphasage lors d'un aller simple au travers d'une cavité Fabry-Pérot : $\phi(E) = n_{\text{cav}} L_{\text{cav}} E / \hbar c$, nous voyons que le déphasage obtenu lors d'une réflexion correspond à une propagation du champ sur une épaisseur totale L_{Bragg} à l'intérieur du miroir. Avec cette définition, L_{Bragg} correspond à un aller-retour à l'intérieur du miroir, de sorte que le champ pénètre dans le miroir de Bragg jusqu'à $L_{\text{Bragg}}/2 = (p_0/4)(\lambda/n) \approx 1.26\lambda/n$.

1.3.3 Microcavités à miroirs interférentiels

Venons en maintenant aux microcavités constituées par deux miroirs de Bragg entourant une couche d'épaisseur L_{cav} (cf. Figure 1.9(a)). Puisque les miroirs de Bragg sont réfléchissants à la longueur d'onde λ_{Bragg} , nous pouvons former une cavité à partir du moment où $n_{\text{cav}} L_{\text{cav}} = p \lambda_{\text{Bragg}}/2$ (p entier). Sur la figure 1.9(b), nous traçons le coefficient de réflectivité de trois microcavités λ de GaAs ($n = 3.54$) en incidence normale, les épaisseurs étant calculées pour $E_{\text{Bragg}} = 1530$ meV. On remarque que la largeur de raie diminue lorsque le nombre de paires augmente. Comme pour un interféromètre

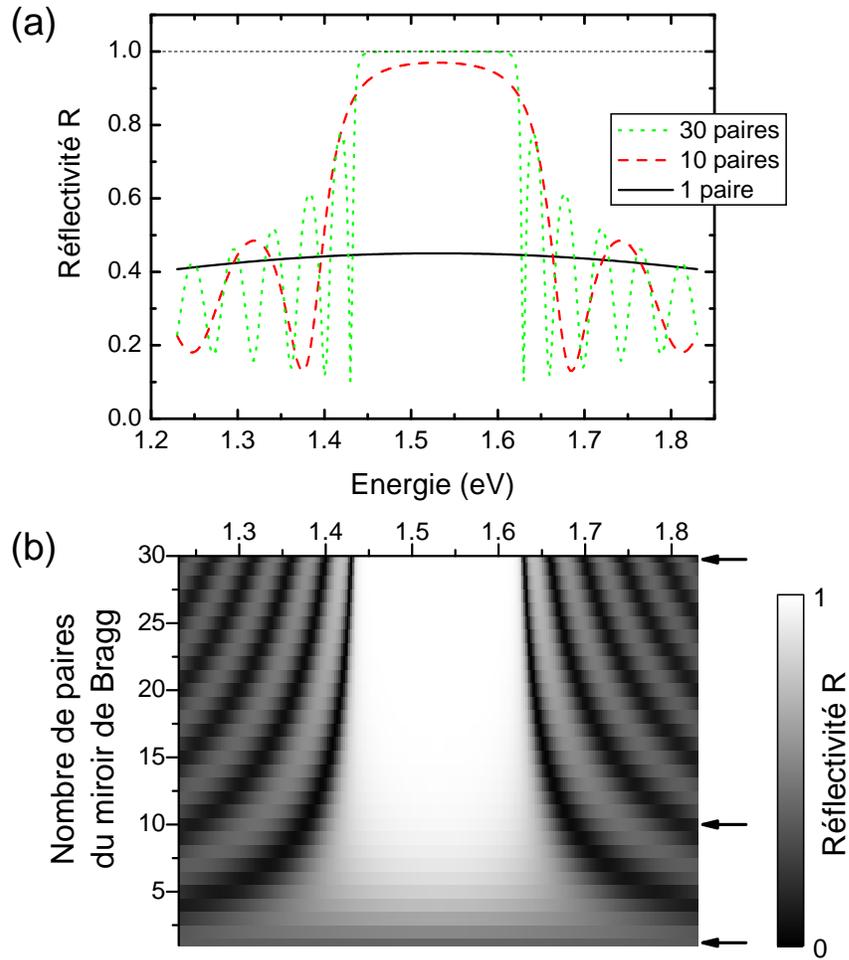


FIG. 1.8 – (a) Spectre de réflectivité calculé en incidence normale d'un miroir de Bragg pour trois nombres de paires différents : $N_{\text{paires}} = 1, 10, 30$. La figure du bas (b) -montre l'évolution des spectres de réflectivité en fonction du nombre de paires. Le coefficient de réflectivité est montré par une échelle de gris sur la droite de la figure. Les flèches indiquent les trois cas représentés sur la partie (a).

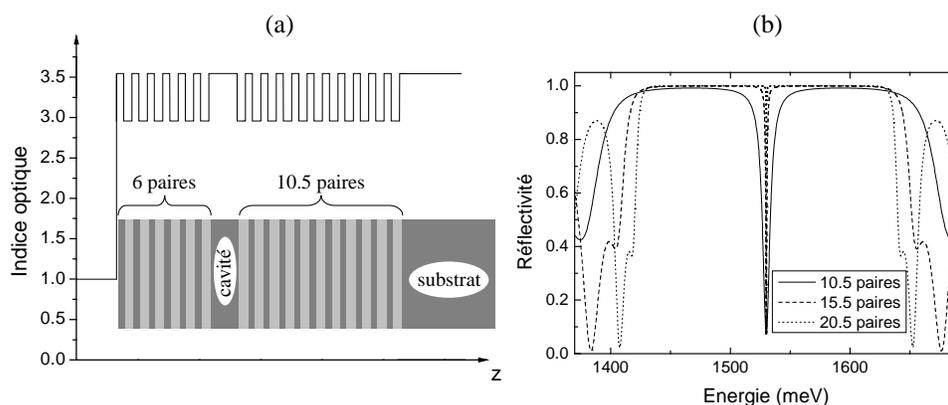


FIG. 1.9 – (a) Représentation schématique d'une microcavité diélectrique. Une différence de 4.5 est maintenue entre le nombre de paires du miroir proche du substrat et de celui au contact de l'air, afin de compenser la différence d'indice entre n_{sub} et n_{air} . (b) Coefficient de réflectivité de cette microcavité (courbe en traits pleins), ainsi que de deux autres microcavités. Le nombre de paires est celui du miroir au contact du substrat.

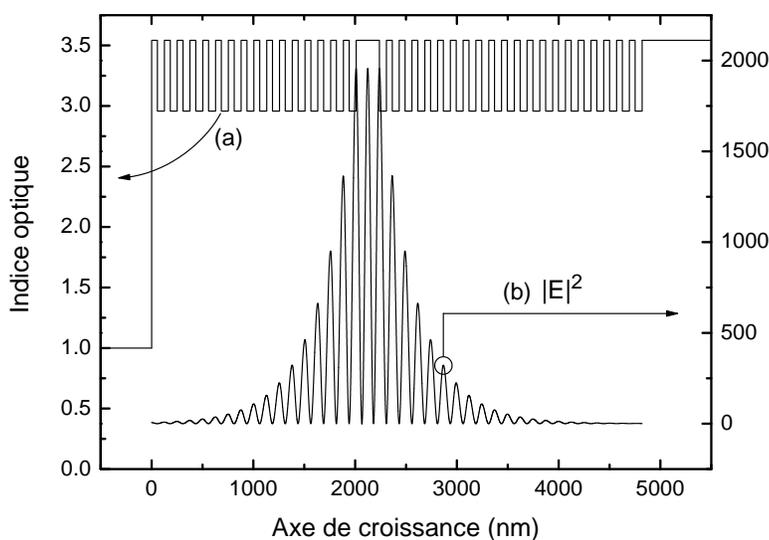


FIG. 1.10 – Mode longitudinal d'une microcavité λ . La courbe (a) représente l'indice optique le long de l'axe de croissance, et la courbe (b) est proportionnelle à $|E|^2$, pour une onde incidente $|E_i| = 1$.

de Fabry-Pérot, la cavité devient de plus en plus sélective spectralement et angulairement lorsque la réflectivité des miroirs tend vers 1.

La Figure 1.10 montre le profil du mode lorsque la microcavité est éclairée en incidence normale par une onde d'amplitude 1 et à la longueur d'onde de résonance. La densité d'énergie du champ électromagnétique est augmentée d'un facteur 2000 à l'intérieur de la cavité par rapport à sa valeur à l'extérieur. Pour une cavité λ telle que celle-ci, le mode présente trois ventres principaux : l'un au milieu de la cavité et deux sur les bords. Par ailleurs, le champ décroît exponentiellement à l'intérieur des miroirs, en marquant des maxima à chaque période du miroir de Bragg. Cette décroissance exponentielle permet de comprendre l'origine de la longueur L_{Bragg} intervenant dans l'équation 1.50 : la lumière n'est pas complètement réfléchi à l'interface cavité/miroir de Bragg. Au lieu de cela, une onde exponentiellement décroissante pénètre dans le miroir sur une distance $L_{\text{Bragg}}/2$ nécessaire à l'établissement des interférences destructives.

Jusque là, seule la réflectivité en incidence normale ($k_{\parallel} = 0$) a été présentée. Pour des vecteur d'ondes \mathbf{k}_{\parallel} non nuls mais faibles devant $E_C(k_{\parallel} = 0)/\hbar c$, où $E_C(k_{\parallel})$ désigne l'énergie de résonance de la cavité, le mode de la cavité est séparable vis à vis de z et de la coordonnée dans le plan des couches \mathbf{r} : $E(\mathbf{r}, z, t) = E_0 \varphi(z) e^{i[\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} - \omega t]}$. La dispersion du mode de la cavité est la même que celle d'une cavité Fabry-Pérot :

$$E_C(k_{\parallel}) = \sqrt{E_C(k_{\parallel} = 0)^2 + \left(\frac{\hbar c}{n_{\text{eff}}} k_{\parallel}\right)^2}, \quad \text{où} \quad (1.52)$$

$$(n_{\text{eff}})^2 = \int \varepsilon(z) \varphi(z)^2. \quad (1.53)$$

$\varepsilon(z)$ est la constante diélectrique variable de la structure, et sa valeur moyenne pondérée par la forme du mode donne l'indice effectif n_{eff} de la structure. Pour les faibles valeurs de k_{\parallel} , le mode longitudinal $\varphi(z)$ est indépendant de k_{\parallel} et on choisit la fonction φ normalisée par $\int \varphi(z)^2 = 1$.

1.3.4 Largeur de raie du mode de cavité

Puisque nous connaissons le coefficient de réflectivité en énergie $R \approx 1$ des miroirs de Bragg, supposés identiques, nous pouvons traiter la microcavité comme un Fabry-Pérot et en déduire la largeur à mi-hauteur du mode optique. Pour cela, rappelons que la largeur du mode est définie à partir de la fonction d'Airy :

$$T(\phi_{\text{tot}}) = \frac{(1 - R)^2}{1 + R^2 - 2R \cos(\phi_{\text{tot}})}, \quad (1.54)$$

par $\delta\phi_{\text{tot}} \approx 2(1 - R)$. Cependant, à l'expression du déphasage sur un aller-retour dans la cavité,

$$\phi_{\text{cav}} = 2 \frac{E}{\hbar c} n_{\text{cav}} L_{\text{cav}}, \quad (1.55)$$

il faut ajouter le déphasage dû à la propagation dans chacun des deux miroirs. Nous avons donc :

$$\phi_{\text{tot}} = 2 \frac{E}{\hbar c} n_{\text{cav}} L_{\text{cav}} + 2 \frac{E - E_{\text{Bragg}}}{\hbar c} n_{\text{cav}} L_{\text{Bragg}}. \quad (1.56)$$

La figure 1.11 montre une méthode graphique permettant d'obtenir la largeur à mi-hauteur du mode de la cavité :

$$\delta E = (1 - R) \cdot \frac{\hbar c}{n_{\text{cav}}(L_{\text{cav}} + L_{\text{Bragg}})}. \quad (1.57)$$

À réflectivité égale, le mode de la cavité diélectrique est donc spectralement plus fin que celui d'un Fabry-Pérot constitué de miroirs métalliques. Nous voyons sur l'expression 1.57 que la taille de la cavité est augmentée à cause de la propagation dans les miroirs. Ainsi, l'augmentation du facteur de qualité se paie au prix d'une augmentation de la taille effective du mode, qui passe de $n_{\text{cav}} L_{\text{cav}} = \lambda$ à $n_{\text{cav}}(L_{\text{cav}} + L_{\text{Bragg}}) = 3.5\lambda$.

En présence d'une absorption résiduelle dans le milieu intracavité, le coefficient R de l'expression 1.57 doit être remplacé par $Re^{-\alpha L}$, où α est le coefficient d'absorption par unité de longueur et $L = L_{\text{cav}} + L_{\text{Bragg}}$ est la taille effective du mode de la cavité. En supposant les pertes faibles ($R = 1 - \varepsilon$ et $e^{-\alpha L} = 1 - \alpha L$), on obtient $\delta E = (\varepsilon + \alpha L)\hbar c/n_{\text{cav}}L$. La limitation de la largeur de raie imposée par l'absorption résiduelle est donc $\delta E = \hbar c\alpha/n_{\text{cav}}$. Pour le GaAs non dopé ($\alpha \sim 1 \text{ cm}^{-1}$ à basse température et en dessous du gap), ceci correspond à $\delta E = 5.5 \mu\text{eV}$, soit un temps de vie de cavité maximal $\tau_{\text{cav}} = (n_{\text{cav}}/c) \cdot (1/\alpha)$ de 120 ps. Notons qu'une expression identique de τ_{cav} est obtenue si l'on suppose que les photons se propagent en ligne droite à la vitesse c/n sur une longueur $1/\alpha$ avant de disparaître.

Enfin, les fluctuations de taille de la cavité sont également un facteur d'élargissement spectral. Sur la figure 1.12, nous reportons les calculs du coefficient de réflectivité faits respectivement sur une cavité λ idéale et sur un ensemble statistique de 1000 cavités. La taille des cavités de cet ensemble statistique suit une loi gaussienne, centrée sur la valeur de la cavité idéale et dont l'écart-type est de 0.2 monocouches atomiques. Le calcul réalisé sur un ensemble statistique permet de rendre compte d'une cavité réelle présentant des fluctuations d'épaisseur $L_{\text{cav}} = L_{\text{cav}}(x, y)$. Cependant, puisque nous avons simplement moyenné les coefficients de réflectivité de toutes les cavités de l'ensemble statistique, ce modèle n'est réaliste que lorsque la longueur de corrélation de la fonction $L_{\text{cav}}(x, y)$ est grande devant la longueur d'onde. Sous cette condition, la cavité présentant des fluctuations d'épaisseur peut être découpée en un ensemble de cavités microscopiques indépendantes. À l'inverse, si $L_{\text{cav}}(x, y)$ varie plus rapidement que la longueur d'onde, l'onde lumineuse verra une épaisseur moyenne. À partir de mesures de réflectivité résolues à l'échelle microscopique [76], il a été montré que la réalité est

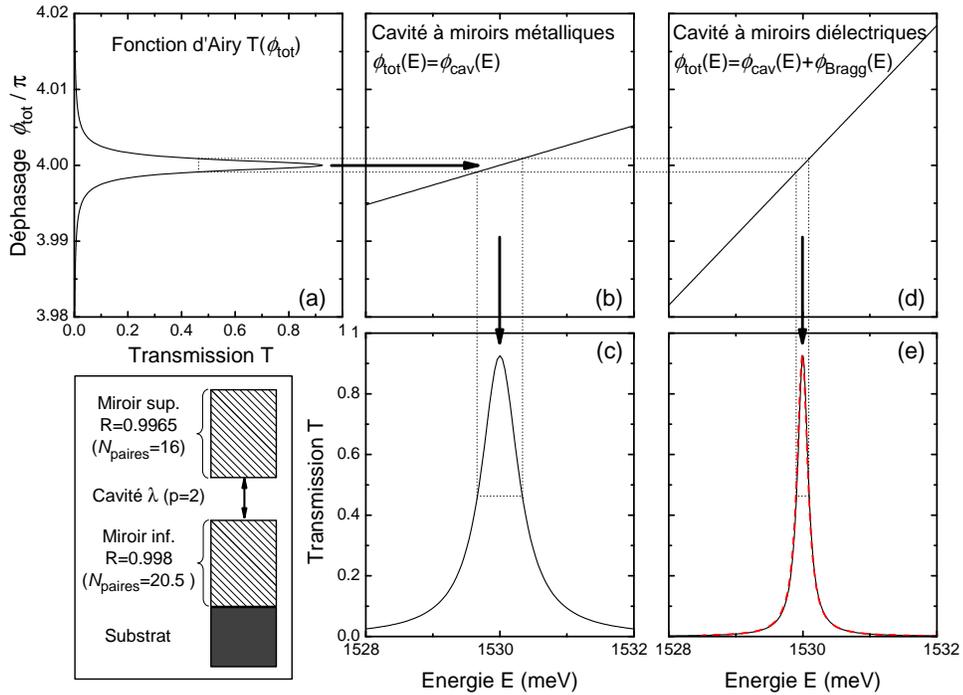


FIG. 1.11 – Méthode graphique permettant d’expliquer la différence entre miroirs métalliques et miroirs diélectriques. Les coefficients de réflectivité utilisés pour les deux miroirs correspondent à des miroirs de Bragg de 16 et 20.5 paires respectivement (équation 1.49). La fonction d’Airy (1.35) pour ce jeu de miroirs est tracée en (a). En (b) et (c) est représenté le cas où les miroirs sont métalliques : la phase à la réflexion est indépendante de l’énergie. En (d) et (e), le déphasage dû à la pénétration du champ dans les miroirs de Bragg est pris en compte. Le résultat de la simulation complète par les matrices de transfert (courbe pointillée de (e)) est difficilement distinguable.

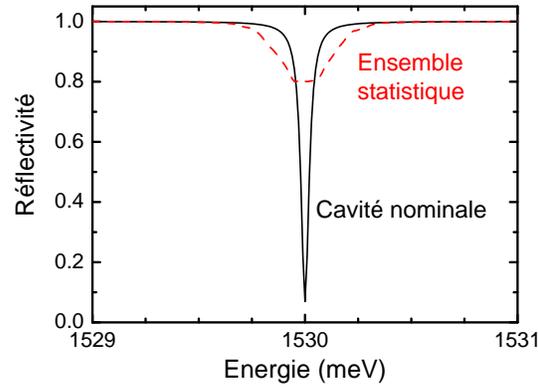


FIG. 1.12 – Coefficient de réflectivité pour une microcavité nominale $L_{\text{cav}} = \lambda/n_{\text{cav}}$ et coefficient de réflectivité moyenné sur un ensemble statistique de 1000 cavités $L_{\text{cav}} = \lambda/n_{\text{cav}} \pm 0.2$ monocouches.

intermédiaire entre ces deux situation : des fluctuations brusques de l'épaisseur sont observées, mais l'amplitude de ces fluctuations est inférieure à une monocouche.

Expérimentalement, un record de finesse a été établi par STANLEY et ses collaborateurs [115] qui sont parvenus à mesurer une largeur de raie de $120 \mu\text{eV}$ sur une microcavité λ plane, correspondant à un facteur de qualité de 11000. Des largeurs de raie similaires ($190 \mu\text{eV}$) ont été démontrées pour une microcavité contenant un puits quantique en régime de couplage fort [54, 13]. Le facteur de qualité observé est cependant plus de deux fois plus faible que le facteur de qualité attendu théoriquement : $Q = 23000$. En examinant les sources possibles d'élargissement, STANLEY montre que la largeur de raie expérimentale est limitée par l'effet conjoint des fluctuations d'épaisseur à grande échelle et de la diffraction. En effet, pour avoir une épaisseur constante de la cavité, on serait tenté de limiter la taille latérale d du spot de mesure. À cause de la diffraction, ceci nécessite d'explorer des angles compris entre 0 et $\theta \approx 1.22\lambda/d$, soit quelques degrés. Sur cette plage angulaire, la cavité est résonnante à différentes longueurs d'onde, résultant en un élargissement du mode lors de la mesure. En gravant la microcavité plane, la relation de dispersion est discrétisée et le problème disparaît. SANVITTO et ses collaborateurs ont ainsi démontré un facteur de qualité $Q = 30000$ (soit une largeur de raie de $43 \mu\text{eV}$) [96] sur des micropiliers de 5 à $10 \mu\text{m}$. Ce facteur de qualité est le même que celui prévu théoriquement pour la microcavité plane qui a été gravée. Là aussi, des largeurs de raies comparables ($70 \mu\text{eV}$) ont été obtenues très récemment sur des cavités gravées pour des modes 0D en régime de couplage fort avec l'exciton d'un puits quantique [21].

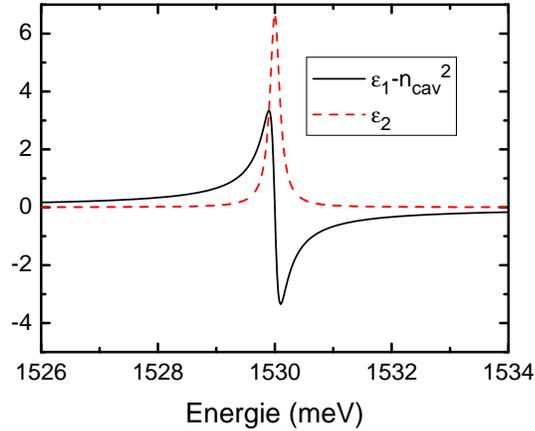


FIG. 1.13 – Partie réelle et imaginaire de la constante diélectrique (eq. 1.28) au voisinage d’une résonance excitonique. L’épaisseur du puits quantique est de 200 \AA ($f/S = 30 \times 10^{-5} \text{ \AA}^{-2}$, $\Gamma = 0.1 \text{ meV}$, $E_X = 1530 \text{ meV}$), et nous avons soustrait la constante diélectrique n_{cav}^2 due à toutes les autres résonances du système.

1.4 Couplage fort exciton-photon : les polaritons de microcavité

Après avoir présenté les états excitoniques du puits quantique (§ 1.2) ainsi que les modes confinés de la microcavité (§ 1.3), nous décrivons dans cette partie le régime de couplage fort entre excitons et photons.

Il existe plusieurs modèles équivalents permettant de décrire le régime de couplage fort. Il a en particulier été montré [99, 1, 101, 135, 46] que le régime de couplage fort dans les microcavités pouvait être traité de manière semiclassique, c’est-à-dire en calculant la constante diélectrique du puits quantique à l’aide de la mécanique quantique et en injectant le résultat dans le calcul des modes de la microcavité. Avant d’aborder un calcul entièrement quantique, nous esquissons ce calcul semiclassique, en ne considérant dans un premier temps que le déphasage induit par la partie réelle de la constante diélectrique du puits quantique, et en supposant que la transition excitonique est résonnante avec le mode de la cavité ($\delta = 0$). L’expression de la constante diélectrique $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ en fonction de la force d’oscillateur est donnée par l’équation 1.28 p.29, et nous avons tracé ϵ_1 et ϵ_2 sur la Figure 1.13.

À cause des fortes variations de ϵ_1 au voisinage de la résonance, l’épaisseur optique $\sqrt{\epsilon_1}L_{\text{puits}}$ du puits quantique varie fortement avec l’énergie de l’onde incidente. La Figure 1.14(b) montre le déphasage ϕ_{tot} lors d’un aller-retour dans la cavité dans deux situations différentes. Dans le cas d’une cavité “vide”, ϕ_{tot} varie linéairement et nous trouvons un mode unique, qui

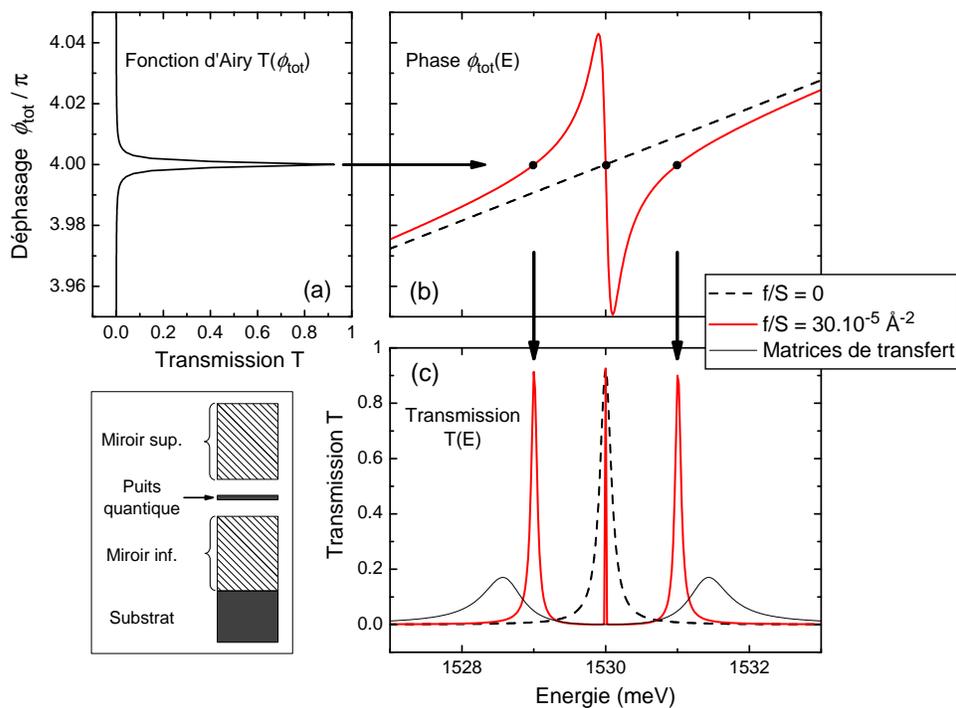


FIG. 1.14 – (a) Fonction d'Airy $T(\phi_{\text{tot}})$. (b) Déphasage $\phi_{\text{tot}}(E)$ lors d'un aller-retour dans la cavité, soit lorsque la cavité est vide (courbe pointillée), soit lorsque la cavité contient un puits quantique de 200 \AA dont la constante diélectrique est représentée sur la figure 1.13 (courbe en trait plein). (c) Courbes de transmission correspondantes $T(E) = T \circ \phi_{\text{tot}}(E)$. La courbe en traits fins est la simulation complète à l'aide des matrices de transfert.

a été étudié au § 1.3. Dans le cas où la force d'oscillateur du puits quantique est importante, l'épaisseur optique de la cavité est suffisamment modifiée au voisinage de la résonance pour que trois maxima apparaissent dans la transmission du système total {cavité + puits}. Les énergies de résonance sont repérées par des points sur la Figure 1.14(b).

En ne prenant en compte que le *déphasage* induit par le puits quantique, la présentation ci-dessus explique pourquoi plusieurs résonances sont observées en présence d'un pic d'absorption. Elle souffre cependant de sa trop grande simplicité. En particulier, *l'absorption* est maximale à l'énergie du pic central de la cavité. Le deuxième maximum de la figure 1.14(c) est donc un artefact et n'existe que si l'on néglige l'absorption. Un autre effet de l'absorption est de diminuer l'intensité des deux pics restants.

Enfin, le déphasage induit par la traversée du puits quantique est indépendant de la position de ce puits quantique, notamment parce que nous avons négligé la *réflexion* de l'onde lumineuse à l'interface du puits quantique. Pour calculer de manière complète les spectres de transmission, il suffit d'insérer dans la méthode des matrices de transfert la constante diélectrique complexe de la résonance excitonique (courbe en trait fin de la figure 1.14(c)). L'écart en énergie Ω entre les deux raies devient dépendant de la position z_{puits} du puits quantique : $\Omega \propto \sqrt{|E(z_{\text{puits}})|^2}$. Dans le cas particulier où le puits quantique est placé au centre de la cavité, il en résulte une augmentation de Ω d'un facteur $\sqrt{2}$ par rapport au modèle simple décrit ci-dessus [99].

1.4.1 Description quantique du couplage exciton-photon

Un modèle semiclassique permet donc de comprendre pourquoi un matériau présentant un pic d'absorption modifie les résonances de la cavité. Cependant, ce modèle est essentiellement phénoménologique : les processus quantiques élémentaires du couplage lumière matière ont été "cachés" dans la constante diélectrique utilisée pour le puits quantique. Si l'on veut avoir une compréhension microscopique des mécanismes de relaxation, ou encore des mécanismes à l'origine des non-linéarités optiques du système, une description en termes de quasi-particules est nécessaire. Pour cela, nous plaçons dans le formalisme de la seconde quantification où $a_{k_{\parallel}}^+$ et $B_{k_{\parallel}}^+$ représentent les opérateurs de création d'un exciton et d'un photon de vecteur d'onde k_{\parallel} . En ne retenant qu'un seul mode longitudinal de la cavité et qu'une seule branche d'exciton, le hamiltonien décrivant le système non couplé est :

$$H_{\text{n.c.}} = \sum_{k_{\parallel}} E_X(k_{\parallel}) B_{k_{\parallel}}^+ B_{k_{\parallel}} + \sum_{k_{\parallel}} E_C(k_{\parallel}) a_{k_{\parallel}}^+ a_{k_{\parallel}}, \quad (1.58)$$

où les relations de dispersion des modes d'exciton et de photon sont :

$$E_X(k_{\parallel}) = E_X^0 + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_X} \quad \text{et} \quad E_C(k_{\parallel}) = \sqrt{(E_C^0)^2 + \left(\frac{\hbar c}{n_{\text{cav}}} k_{\parallel}\right)^2}. \quad (1.59)$$

Le désaccord exciton-photon en $k_{\parallel} = 0$ est un paramètre important du système et est noté $\delta = E_C^0 - E_X^0$.

En seconde quantification, le hamiltonien de couplage entre un électron et le champ est donné dans la jauge de Coulomb par :

$$H_{\text{couplage}} = -e \frac{\vec{A} \cdot \vec{p}}{m_0} + \frac{e^2 \vec{A}^2}{2m_0}, \quad (1.60)$$

où \vec{p} et \vec{A} sont des opérateurs représentant respectivement l'impulsion de l'électron et le potentiel vecteur. En négligeant les termes non résonnants de type $a_{k_{\parallel}} B_{k_{\parallel}}$ provenant du hamiltonien en " $\vec{A} \cdot \vec{p}$ " ainsi que tous les termes, de type $a_{k_{\parallel}} a_{k_{\parallel}}$, $a_{k_{\parallel}}^+ a_{k_{\parallel}}$, etc... provenant du hamiltonien en \vec{A}^2 , le couplage entre exciton et photon donne lieu au hamiltonien

$$H_{\text{couplage}} = \sum_{k_{\parallel}} V a_{k_{\parallel}}^+ B_{k_{\parallel}} + h.c. . \quad (1.61)$$

Dans le cas d'un puits quantique d'épaisseur faible devant la longueur d'onde et placé à un ventre du mode de la cavité, V est indépendant de k_{\parallel} au premier ordre et s'écrit [101, 100, 99, 98] :

$$V \approx \sqrt{\frac{E_X^0 \hbar \Gamma_0}{2\pi} \frac{\lambda}{n_{\text{cav}} L_{\text{eff}}}} \propto \sqrt{\frac{f/S}{L_{\text{eff}}}}, \quad (1.62)$$

où Γ_0 est le taux radiatif des excitons en $k_{\parallel} = 0$ et en l'absence de la cavité (1.31) et $L_{\text{eff}} = L_{\text{cav}} + L_{\text{Bragg}}$ est la longueur effective du mode de la cavité.

Il est alors possible de réécrire le hamiltonien $H = H_{\text{n.c.}} + H_{\text{couplage}}$ sous la forme d'un hamiltonien décrivant un système de 2 quasiparticules libres. Pour cela, nous introduisons les opérateurs de création suivants :

$$p_1^+ = \alpha_1 a^+ + \beta_1 B^+, \quad (1.63)$$

$$p_2^+ = \alpha_2 a^+ + \beta_2 B^+, \quad (1.64)$$

où il est sous-entendu que α , β et p^+ dépendent de k_{\parallel} . Les particules créées par les opérateurs p_1^+ et p_2^+ sont des particules mixtes, superposition linéaire d'un exciton et d'un photon. Ces deux particules sont appelées les polaritons.

Les coefficients α_j et β_j , $j = 1, 2$ sont trouvés en imposant que le hamiltonien H soit diagonal vis à vis des opérateurs p_j^+ , ce que l'on peut écrire $[H, p_j^+] = E_j p_j^+$, où E_j est l'énergie de la quasiparticule j [98]. Ce problème

s'avère être séparable en k_{\parallel} et équivalent, pour chaque k_{\parallel} , à la diagonalisation de la matrice symétrique

$$H_{k_{\parallel}} = \begin{pmatrix} E_C(k_{\parallel}) & V \\ V & E_X(k_{\parallel}) \end{pmatrix}. \quad (1.65)$$

Les deux valeurs propres de $H_{k_{\parallel}}$ sont les énergies

$$E_1 = \frac{E_X + E_C}{2} - \frac{\Delta}{2} \quad \text{et} \quad E_2 = \frac{E_X + E_C}{2} + \frac{\Delta}{2}, \quad (1.66)$$

où la dépendance en k_{\parallel} est sous entendue et où l'on a introduit la quantité $\Delta = \sqrt{4V^2 + \delta(k)^2}$, $\delta(k_{\parallel}) = E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})$. Les vecteurs propres de $H_{k_{\parallel}}$ ont pour coordonnées (α_j, β_j) , avec :

$$\alpha_1 = \sqrt{\frac{\Delta + \delta(k_{\parallel})}{2\Delta}} \quad \alpha_2 = -\beta_1, \quad (1.67)$$

$$\beta_1 = -\sqrt{\frac{\Delta - \delta(k_{\parallel})}{2\Delta}} \quad \beta_2 = \alpha_1. \quad (1.68)$$

Le hamiltonien du système s'écrit alors $H = \sum_k E_1 p_1^+ p_1 + E_2 p_2^+ p_2$. Les polaritons créés par p_1^+ sont les polaritons de *basse énergie* et ceux créés par p_2^+ sont les polaritons de *haute énergie*. Les coefficients α_j ($j = 1, 2$) sont les composantes photoniques des deux polaritons et les β_j sont leurs composantes excitoniques. Les coefficients (α_j, β_j) sont également appelés coefficients de Hopfield en hommage au physicien qui les a introduits dans le cadre des polaritons du matériau massif [47]. Nous appelons enfin *poids photon* (resp. poids exciton) la quantité α_j^2 (resp. β_j^2). À la résonance ($\delta(k) = 0$) les poids excitoniques et photoniques des deux branches sont égaux à 1/2 et les polaritons basse et haute énergie sont moitié-exciton et moitié-photon. Les polaritons sont alors séparés par une énergie $\Omega = \Delta_{\min} = 2V$ appelée dédoublement de Rabi du système.

La Figure 1.15 présente les relations de dispersions des états de polaritons pour différents désaccords $\delta \equiv \delta(0)$. Pour chaque désaccord, nous avons également tracé la dispersion des modes d'exciton et de photon non couplés. En désaccord négatif ou nul, le couplage fort se caractérise par un anticroisement des relations de dispersion. Nous avons par ailleurs tracé en insert le poids exciton et le poids photon de la branche basse de polariton en fonction de k_{\parallel} .

Nous voyons par exemple en désaccord négatif [Figure 1.15(c)] que la dispersion des polaritons est fortement modifiée par rapport à celle de l'exciton. En centre de zone, elle s'approche de la parabole décrivant les états de photons de petit vecteur d'onde. Pour les grands k_{\parallel} , au contraire, elle rejoint la parabole décrivant les états excitoniques (bien que la dispersion de l'exciton soit parabolique, ceci n'est pas apparent à l'échelle de la figure 1.15,

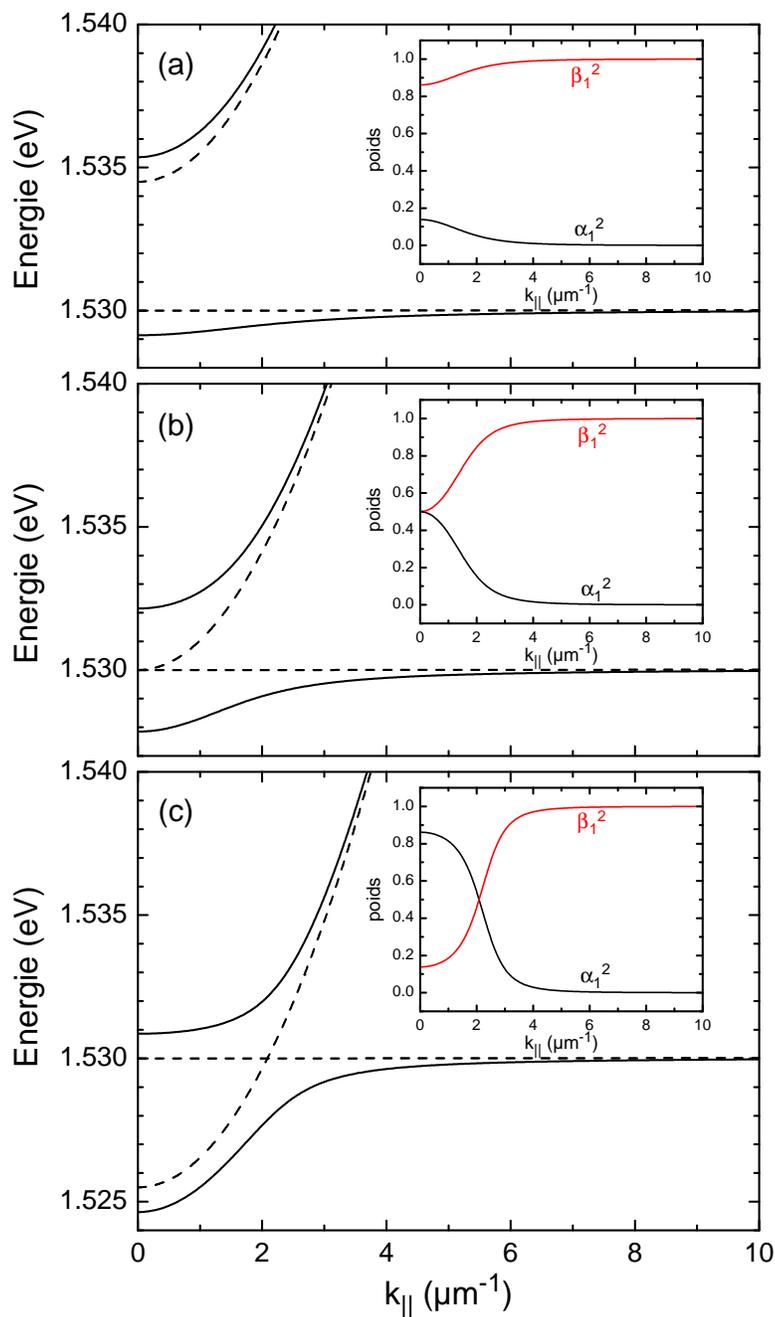


FIG. 1.15 – Relation de dispersion de l'exciton et du mode de la cavité (lignes tiretées) ainsi que des deux branches de polariton (lignes continues). Le dédoublement de Rabi est $\Omega = 4.3$ meV et les désaccords sont (a) $\delta = +4.5$ meV, (b) $\delta = 0$ et (c) $\delta = -4.5$ meV. L'insert de chaque figure montre le poids exciton et le poids photon de la branche de polaritons basse énergie.

qui ne couvre que 0.1% de la zone de Brillouin). Ainsi, le polariton de basse énergie est de type “photon” ($\alpha_1 \sim 1$) en $k_{\parallel} = 0$, et change de nature pour devenir exciton aux grands vecteurs d’onde dans le plan. La différence entre la relation de dispersion des polaritons et celle des excitons signifie d’autre part que la densité en énergie d’états varie fortement le long de la relation de dispersion. En centre de zone, elle est ainsi entre trois et quatre ordres de grandeur plus faible que dans la région des grands vecteurs d’onde.

La description des polaritons par l’intermédiaire de la seconde quantification est particulièrement adaptée à la modélisation de la relaxation. En effet, les processus de relaxation par phonon acoustique, par collisions polaritons-polaritons ou par collisions polaritons-électrons concernent la composante excitonique β_j du polariton et varient donc fortement le long de la relation de dispersion. D’autre part, ces processus dépendent de la densité d’état final qui, elle aussi, varie fortement avec k_{\parallel} . Ces propriétés particulières aux polaritons vont jouer un rôle essentiel dans leur relaxation comme nous le verrons au chapitre 2.

1.4.2 Transition couplage fort - couplage faible

Dans le hamiltonien que nous avons considéré ci-dessus, seul le couplage des excitons avec les photons du mode de la microcavité est pris en compte, et l’on a négligé le couplage avec des continuums, comme par exemple le couplage du champ à l’intérieur de la cavité avec le continuum de modes à l’extérieur de la cavité. En conséquence, pour chaque valeur de k_{\parallel} nous avons un couplage un pour un des états d’énergie – un état d’exciton couplé avec un état de photon – les états propres du système sont des états mixtes, et le système est toujours en régime de couplage fort. Si l’on veut comprendre la transition vers le régime de couplage faible, il est nécessaire d’introduire de la dissipation dans notre modèle.

Pour cela, nous utilisons l’analogie introduite au début de ce chapitre entre le couplage exciton-photon d’une part et le couplage entre deux pendules d’autre part. Dans cette analogie, le premier pendule représente l’exciton et a une fréquence propre E_X/\hbar , le deuxième pendule a une fréquence E_C/\hbar et le fil de torsion qui relie les deux pendules fait osciller l’énergie de l’un à l’autre avec une fréquence Ω/\hbar . Nous modélisons la dissipation en introduisant un amortissement exponentiel avec un temps caractéristique τ_C pour le deuxième pendule. Si les pendules sont fortement découplés de leur environnement ($1/\tau_C \ll \Omega/\hbar$), les modes propres du système sont toujours des modes mixtes et le système est en régime de couplage fort. À l’inverse, le régime de couplage faible correspond au cas où la dissipation est plus rapide que le couplage entre les deux systèmes ($1/\tau_C \gg \Omega/\hbar$). Chacun des deux pendules peut alors être excité indépendamment de l’autre et la dynamique de chacun des pendules correspond à une oscillation amortie. La principale conséquence du couplage avec la cavité en régime de couplage faible est de

donner une durée de vie finie à l'exciton : l'exciton émet un photon dans la cavité et ce dernier disparaît avant d'avoir eu le temps d'être réabsorbé par le puits quantique.

SAVONA a modélisé le couplage du mode de la cavité avec les modes extérieurs qui donne une largeur de raie γ_c (approximation du quasimode [101]) ainsi que l'élargissement homogène de l'exciton (largeur de raie γ_e). Il montre que l'on n'a pas moins de 5 expressions différentes pour l'écart entre les deux raies [99], selon que l'on considère les spectres d'absorption, de transmission, de réflectivité, de photoluminescence, ou encore la self énergie des polaritons. Il n'est donc pas aisé de définir précisément une frontière entre le régime de couplage fort et celui de couplage faible. Ainsi, on pourrait définir le régime de couplage fort par la présence d'oscillations de Rabi (les oscillations de Rabi correspondent à une oscillation – amortie – de la probabilité $P_{\text{exc}}(t)$ d'être dans l'état d'exciton à un instant t en partant de $P_{\text{exc}}(0) = 1$). Cependant, ce critère retient comme couplage fort des situations où les oscillations sont très fortement amorties, dans le cas où $\Omega \ll \gamma_e = \gamma_c$ [99], et qui sont expérimentalement indistinguables du régime de couplage faible (décroissance exponentielle de $P_{\text{exc}}(t)$). Le critère habituellement retenu pour être en régime de couplage fort est que le dédoublement de Rabi soit plus grand que la largeur des raies à résonance : $\Omega > (\gamma_c + \gamma_e)/2$.

Pour une microcavité donnée, la largeur de raie γ_c et la longueur effective du mode L_{eff} intervenant dans l'expression de Ω sont faiblement dépendantes des conditions expérimentales. À l'inverse, la raie excitonique peut être fortement modifiée par l'interaction de l'exciton avec son environnement. Dès lors, tout facteur d'élargissement de la raie excitonique (élargissement inhomogène, température, densité de porteurs, etc. . .), ainsi que toute diminution de la force d'oscillateur de l'exciton est susceptible de faire passer le système en régime de couplage faible.

En 1995, HOUDRÉ et ses collaborateurs ont étudié l'influence de la densité d'excitation sur le régime de couplage fort. La figure 1.16, issue de leur article [49], montre deux spectres de photoluminescence. Le premier (a) est pris à faible densité d'excitation et à la résonance entre le mode de la cavité et l'exciton. Les deux raies de polaritons sont observées, alors que sur le second spectre (b), mesuré pour une plus grande densité d'excitation, une seule raie est observée. Le système est passé en régime de couplage faible, correspondant à la luminescence de l'exciton filtré par la cavité.

En extrayant la force d'oscillateur de l'exciton en fonction de la densité de porteurs créés, HOUDRÉ estime la densité de saturation à $n_{\text{sat}} = 4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ par puits quantique, c'est à dire sensiblement la même densité que celle donnée par le modèle de SCHMITT-RINK [103], ou encore que les densités trouvées plus récemment par BUTTÉ et ses collaborateurs ($n_{\text{sat}} = 7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [15]). Bien que de HOUDRÉ et de BUTTÉ aient utilisé des puits peu profonds d'InGaAs, les résultats, et notamment les valeurs des densités critiques, sont identiques dans le cas de la cavité en GaAs que nous utilisons.

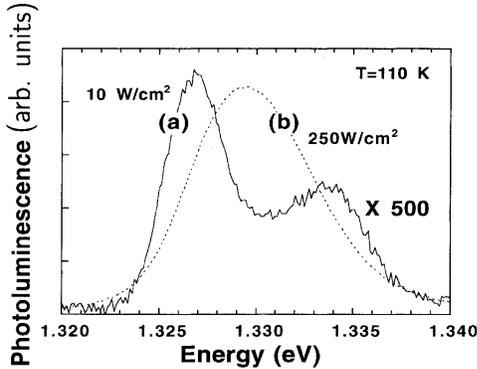


FIG. 1.16 – Saturation du couplage fort observée en photoluminescence sous excitation non résonnante. Deux raies sont observées à faible puissance (a), et une seule à forte puissance (b). Figure extraite de [49].

Dans cette première étude, HOUDRÉ et ses collaborateurs attribuent entièrement la saturation du couplage fort à la baisse de force d’oscillateur de l’exciton. Une étude plus récente [53], théorique et expérimentale, a éclairci le rôle respectif de l’élargissement de la transition excitonique et de la baisse de la force d’oscillateur. Un modèle à N corps est utilisé pour rendre compte de la réponse non linéaire du matériau au champ électromagnétique en présence d’une forte densité de porteurs. Les équations donnant la polarisation du matériau sont résolues simultanément aux équations de Maxwell afin de calculer le spectre de transmission de la structure. Les spectres théoriques issus de ce modèle se comparent qualitativement aux résultats expérimentaux, et montrent que pour de faibles densités d’excitation, les raies de polaritons s’élargissent avec la puissance, puis dans un deuxième temps, le système passe en régime de couplage faible à cause de la réduction de la force d’oscillateur.

1.4.3 Photoluminescence des polaritons

Nous avons vu en § 1.2.2 dans le cas d’un puits quantique “nu” (c’est-à-dire non inséré dans une microcavité) qu’un exciton de vecteur d’onde $k < k_{\text{rad}}$ pouvait se désexciter par émission spontanée. La lumière est alors émise dans le continuum des modes radiatifs du champ électromagnétique. Inversement, pour un puits quantique inséré une microcavité idéale, dont les miroirs auraient une réflectivité égale à 1, il est clair que l’émission spontanée n’est plus possible : les modes du champ électromagnétique sont discrets et le couplage de l’exciton à ces modes donne lieu à des états de polariton stationnaires. En réalité, si l’on prend en compte la transmission finie des miroirs de la cavité, les polaritons peuvent émettre de la lumière par l’échappement

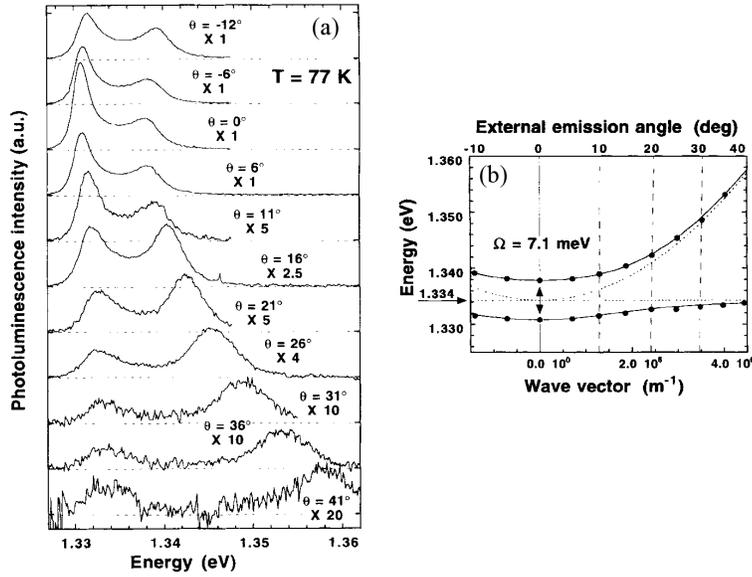


FIG. 1.17 – Première expérience de photoluminescence résolue en angle. (a) Spectres de photoluminescence à différents angles. (b) Énergie des pics de luminescence reportés en fonction du vecteur d'onde k_{\parallel} . Figure extraite de [50].

de leur partie photon hors de la cavité.

HOUDRÉ et ses collaborateurs ont ainsi mesuré la photoluminescence des polaritons sous excitation non résonnante [50] (figure 1.17(a)). Lors de l'échappement des polaritons hors de la cavité, le vecteur d'onde $\mathbf{k} = (\mathbf{k}_{\parallel}, k_z)$ du photon émis doit vérifier la conservation simultanée (i) du vecteur d'onde dans le plan \mathbf{k}_{\parallel} et (ii) de l'énergie. Expérimentalement, k_{\parallel} peut être mesuré à partir de l'angle d'émission : $k_{\parallel} = \hbar c E \sin \theta$, où θ est l'angle d'émission de la lumière et E est l'énergie du pic de luminescence à l'angle θ . Dans l'article de HOUDRÉ, une sélection angulaire est utilisée et permet de remonter à la relation de dispersion $E(k_{\parallel})$ des polaritons.

SAVONA et ses collaborateurs [100] ont calculé l'élargissement radiatif des polaritons dû au couplage de la microcavité avec les modes extérieurs. Nous avons reporté sur la figure 1.18 le taux de déclin radiatif le long de la branche basse de polaritons pour une structure typique de semiconducteurs III-V. On distingue 3 zones distinctes pour le couplage au champ électromagnétique.

En premier lieu, pour $k < 0.35k_{\text{rad}}$, on peut négliger le couplage de l'exciton avec les modes autres que le mode central de la microcavité. L'exciton est donc couplé fortement au mode confiné de la microcavité et le taux de déclin reporté est celui des polaritons. Dans cette zone, une bonne approximation pour le taux de déclin est donnée par $\Gamma_k = \alpha_k^2 \gamma_{\text{cav}}$, où α_k^2 est le

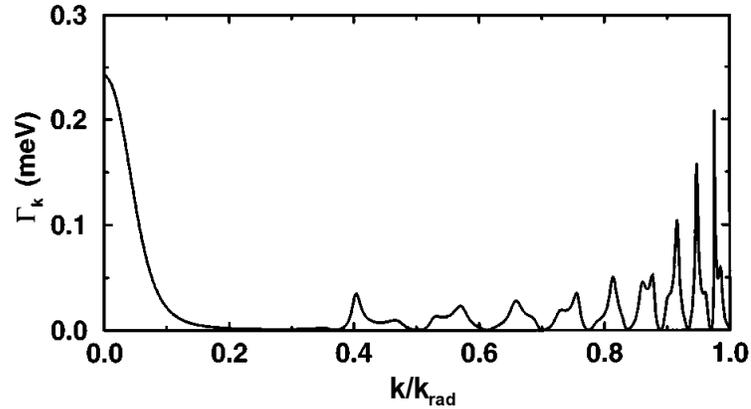


FIG. 1.18 – Taux de déclin radiatif des polaritons le long de la branche basse énergie. Figure extraite de [124].

poids photon des polaritons et γ_{cav} est la largeur de raie du mode de la microcavité.

Une deuxième zone est constituée par les états k situés entre $0.35k_{rad}$ et k_{rad} . En raison de la dispersion des modes, l'exciton entre alors en couplage faible avec les modes de fuite des miroirs. L'exciton acquiert donc un temps de vie fini, et d'autant plus grand que la densité de modes est grande. La densité de modes présente quant à elle des résonances lorsque le champ électromagnétique extérieur peut traverser la cavité. Les pics de la figure 1.18 proviennent donc du passage de chacun des modes de fuite en résonance avec l'exciton. TASSONE a de plus calculé [123] que le temps de vie moyen des excitons dans cette zone est le même que pour un puits quantique “nu”. Ainsi, la microcavité modifie localement (dans l'espace des k) le temps de vie des excitons, mais le temps de déclin de la population d'exciton totale reste sensiblement le même. Notons toutefois que le couplage avec les modes de fuite n'est pas nécessairement faible : dans les semiconducteurs II-VI, où le dipôle est plus important, le régime de couplage fort a été démontré entre l'exciton et les modes de fuite de la cavité [92].

Enfin, la troisième zone est constituée par les excitons non radiants de vecteur d'onde $k > k_{rad}$. Dans le cas où le gaz d'excitons est thermalisé, comme pour un puits quantique “nu”, la majeure partie de la population se trouve dans ces états non radiants de grand vecteur d'onde, et sur une plage d'énergie de l'ordre de $k_B T$ au dessus de l'énergie E_X^0 .

Les expériences de photoluminescence résolue en angle, telle que celle de HOUDRÉ décrite ci-dessus, permettent de sonder la première de ces trois zones, où le temps de vie varie comme $\tau_k = \Gamma_k^{-1} = 1/(\alpha_k^2 \gamma_{cav})$. À partir de la relation de dispersion, nous pouvons calculer les poids photons de chacun des états de polariton et, connaissant la valeur de γ_{cav} , en déduire leur temps de

vie radiatif. Le temps de vie radiatif nous permet de relier deux grandeurs, d'une part l'intensité de luminescence résolue en k : $I(k)$, et d'autre part le facteur d'occupation de l'état k : $f(k)$. En régime continu, on a

$$I(k) \propto \frac{f(k)}{\tau_k}. \quad (1.69)$$

Le coefficient de proportionnalité entre les deux grandeurs dépend des détails du dispositif expérimental (taille du spot, efficacité de détection, ...) et sera déterminé au chapitre 4. Notons que le temps de vie radiatif τ_k varie comme α_k^{-2} , et augmente exponentiellement avec k dès lors que $\delta(k) > 0$. C'est donc un élément important à prendre en compte pour la mesure de la distribution de population.

1.5 Conclusion

Pour un puits quantique "nu" inséré dans une matrice de semiconducteur homogène, c'est-à-dire autour duquel les modes du champ électromagnétique sont les mêmes que dans l'espace libre, l'exciton est en couplage faible avec le rayonnement. Il en résulte une instabilité de l'exciton qui se recombine en émettant spontanément de la lumière. À l'inverse, en plaçant ce puits quantique en résonance et au maximum d'intensité du mode d'une microcavité, le confinement de la lumière permet d'atteindre le régime de couplage fort entre l'exciton et le mode. L'émission de lumière est alors un processus réversible conduisant à un échange continu d'énergie entre l'exciton et le mode. Le système couplé formé par l'exciton et le mode de la cavité peut être décrit par ses états propres qui sont les polaritons.

Si l'on s'intéresse aux propriétés du système dans l'espace réciproque, on remarque que les états de grand vecteur d'onde sont très peu modifiés par le couplage fort. La dispersion en énergie du mode est beaucoup plus importante que celle de l'exciton et ce dernier est en couplage faible avec les modes de fuite des miroirs. Le polariton de basse énergie est alors très similaire à l'exciton et le polariton de haute énergie au photon. En revanche, une modification importante a lieu au centre de la zone de Brillouin. Le couplage induit alors un anticroisement des relations de dispersion, et les polaritons ont une nature mixte exciton-photon.

Du fait de leur nature mixte, les polaritons acquièrent certaines des propriétés de leurs deux éléments constitutifs. De par leur nature excitonique ils interagissent entre eux et avec leur environnement. Une première conséquence en est la perte du couplage fort lorsque la densité d'excitation est augmentée ; une deuxième est que les polaritons ont la possibilité de relaxer le long de leur relation de dispersion. De par leur nature photonique, les polaritons de la branche basse ont une très faible masse effective en $k_{\parallel} = 0$. Nous verrons au chapitre suivant tout l'intérêt que cette propriété présente dans le cadre de l'obtention d'une phase cohérente macroscopique de polaritons.

Chapitre 2

Recherche d'une stimulation de la relaxation des polaritons

Sommaire

2.1	Introduction	58
2.2	Laser à polaritons et condensation de Bose-Einstein des polaritons	59
2.2.1	Principe et intérêt d'un laser à polaritons	59
2.2.2	Propriétés attendues d'un laser à polaritons	60
2.3	Goulet d'étranglement de la relaxation des po- laritons	65
2.3.1	Relaxation des polaritons par émission de phonons	65
2.3.2	Relaxation par les collisions polariton-polariton . .	68
2.3.3	Conclusion : différences entre microcavités II-VI et microcavités III-V	71
2.4	Relaxation des polaritons par collisions polariton- électron	73
2.4.1	Modélisation de la relaxation par les collisions polariton- électron	73
2.4.2	Premières expériences réalisées sur une cavité à concentration variable d'électrons	75
2.5	Conclusion	78

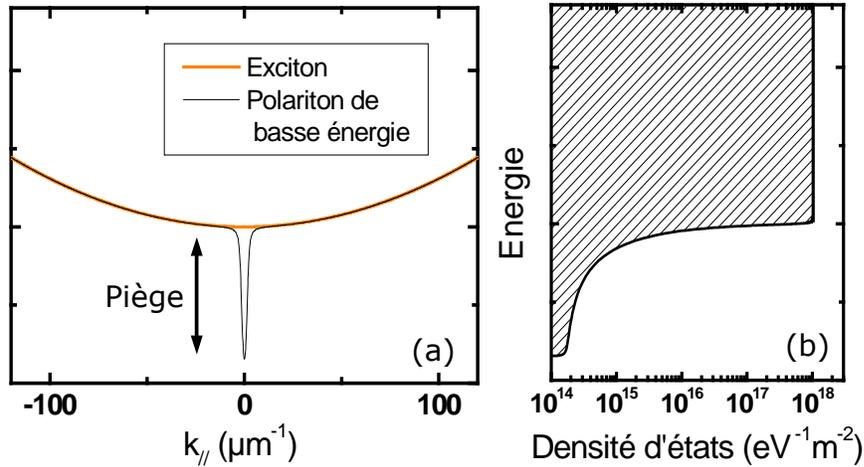


FIG. 2.1 – (a) Relation de dispersion des excitons (trait épais) et des polaritons (trait fin). (b) Densité d'états en énergie des polaritons de basse énergie.

2.1 Introduction

Quelques années après la mise en évidence expérimentale du régime de couplage fort dans les microcavités [132], les polaritons sont apparus comme un candidat intéressant pour l'observation d'effets bosoniques dans les semi-conducteurs [52] pour deux raisons : d'une part les polaritons obéissent à une statistique de Bose, tout au moins à basse densité, et d'autre part la densité d'états en centre de zone est faible. Nous avons tracé sur la figure 2.1(b) la densité d'états en énergie des polaritons. Une différence considérable apparaît entre les états de grand vecteur d'onde, où la densité d'états est celle de l'exciton : 10^{18} états par eV et par cm^2 , et les états proches de $k_{\parallel} = 0$, où la densité d'états est $\sim 10^4$ fois plus faible. Si l'on suppose la population de polaritons thermalisée à la température T et que l'on augmente la densité de polaritons, les états devraient se remplir progressivement par une distribution de Bose-Einstein des polaritons. Nous obtenons alors des facteurs d'occupation de l'ordre de 1 en $k_{\parallel} = 0$ à une densité 10 000 fois plus faible que si la même expérience avait été réalisée avec un gaz d'excitons. Lorsque le facteur d'occupation d'un état dépasse 1, un effet de stimulation bosonique devrait apparaître : de même que dans un laser, l'émission de lumière est stimulée lorsque le nombre de photons dans le mode optique dépasse 1, la relaxation des polaritons est stimulée par l'occupation de l'état final. Il en résulte un effet d'avalanche dans la relaxation des polaritons qui devient non linéaire.

À de plus fortes densités de polaritons, il est même prévu théoriquement

l'apparition d'une population macroscopique de polaritons dans un état cohérent, similaire à un condensat de Bose-Einstein. Bien qu'un condensat de Bose-Einstein désigne en toute rigueur un état d'équilibre thermodynamique ayant une cohérence spatiale à longue distance, dans ce travail de thèse nous utiliserons le terme de *condensat* pour désigner la population (partiellement) cohérente de polaritons, que le système soit ou non à l'équilibre thermodynamique, ainsi que le terme de *laser à polaritons* pour souligner le caractère hors équilibre du fonctionnement de la structure.

Ce chapitre est conçu comme une brève revue historique sur la recherche de la stimulation de la relaxation des polaritons. Nous présentons tout d'abord (section 2.2) les prévisions théoriques concernant le laser à polaritons, ainsi que sa spécificité par rapport à un laser "conventionnel". Dans la section 2.3, la problématique posée par le goulet d'étranglement de la relaxation des polaritons est exposée. Les études présentées dans cette partie ont montré que la population de polaritons n'atteint pas un équilibre thermodynamique. En conséquence, le système passe en couplage faible à des densités plus faibles que la densité critique de condensation. La condensation n'est donc pas possible lorsque la relaxation est dominée par les interactions des polaritons avec les phonons ou par les interactions polariton-polariton. Au début de ce travail de thèse, une proposition théorique montre que la relaxation par interactions polariton-*électron* est très efficace, et pourrait être suffisamment efficace pour permettre une condensation des polaritons. Ces résultats, à l'initiative de ce travail de thèse, ainsi que l'état de l'art des expériences réalisées au début de la thèse font l'objet de la section 2.4.

2.2 Laser à polaritons et condensation de Bose-Einstein des polaritons

2.2.1 Principe et intérêt d'un laser à polaritons

L'idée sous-tendant le laser à polaritons est d'utiliser le caractère bosonique des polaritons pour obtenir une population macroscopique dans un état cohérent. Si $W_{k \rightarrow k'}$ désigne le taux de diffusion de l'état k vers l'état k' de polariton, on peut écrire $W_{k \rightarrow k'} = W_{k \rightarrow k'}^0(1 + f_{k'})$, où $f_{k'}$ désigne le facteur d'occupation de l'état final et W^0 est le taux de diffusion spontanée, observé lorsque l'état k' est faiblement occupé. Dès que $f_{k'}$ dépasse 1, le taux de diffusion augmente, "attirant" de plus en plus de polaritons dans l'état k' . Grâce à cette stimulation, la population dans l'état k' augmente exponentiellement avec la densité d'excitation. Plusieurs états k' différents peuvent entrer en compétition pour la stimulation de la relaxation. Ainsi, le laser à polaritons fonctionne sur un principe différent de la condensation de Bose qui se développe uniquement sur l'état de plus basse énergie, et il est possible de l'observer hors d'équilibre thermodynamique.

En 1996, dans la première étude théorique réalisée sur le laser à polaritons [52], IMAMOGLU montre que celui-ci a les propriétés d'un laser à bas seuil. D'une part, la lumière émise par un condensat cohérent est elle-même cohérente, comme dans le cas d'un laser "conventionnel", et d'autre part, le seuil est suffisamment bas pour que le laser à polaritons fonctionne sans inversion de population. En effet, pour obtenir l'effet laser dans un semiconducteur en régime de couplage faible, il est nécessaire que le niveau de Fermi des électrons et des trous pénètre à l'intérieur des bandes respectives (inversion de population), alors que pour produire un laser à polaritons, il "suffit" d'avoir un facteur d'occupation grand devant 1 des états en centre de zone. En écrivant l'occupation des états de paires électron-trou correspondant à un laser à polaritons, IMAMOGLU montre que la population électronique n'est pas inversée [52].

Par ailleurs, un laser à polaritons implique l'occupation grande devant 1 d'un état partiellement excitonique. Le laser à polaritons fournit donc un système additionnel dans le cadre plus vaste de l'étude des condensats. À cause de leur forte relation de dispersion, les polaritons de microcavité présentent même un intérêt particulier pour l'étude des condensats. En effet, si nous supposons que la population est à l'équilibre thermique, la condition de dégénérescence quantique (condition pour que la nature ondulatoire des particules soit apparente à l'échelle de la distance inter-particules) est obtenue lorsque $n\lambda_{dB}^2 \gtrsim 1$, où n est la densité surfacique et λ_{dB} est la longueur d'onde de De Broglie thermique des particules. On peut réécrire cette condition sous la forme $n \gtrsim D(E)k_B T$. Elle est donc d'autant plus facile à réaliser que la densité d'états $D(E)$ est faible. La figure 2.1 montre que cette densité d'états est 10^4 fois plus faible dans le cas des polaritons que dans celui des excitons. Pour cette raison, l'apparition d'un condensat est attendue à des températures plus élevées que pour les excitons, voire à température ambiante pour des matériaux à grande force d'oscillateur tels que le GaN [69]. Nous verrons cependant par la suite que l'équilibre thermique supposé lors de l'établissement de cette relation est difficile à atteindre pour une cavité à base de GaAs.

2.2.2 Propriétés attendues d'un laser à polaritons

Les premiers travaux de IMAMOGLU négligeaient de nombreuses caractéristiques propres aux polaritons, et notamment la relation de dispersion particulière de la branche de basse énergie. Un travail théorique intense a par la suite permis de préciser les propriétés attendues lorsque le laser à polaritons commence à fonctionner et qu'un condensat se forme. Nous détaillons ici certaines des propriétés attendues théoriquement d'un laser à polaritons.

Dans un laser à polaritons, la relaxation devient stimulée par l'occupation de l'état final. On s'attend en conséquence à une forte non linéarité de l'intensité d'émission avec la puissance d'excitation lorsque l'on franchit le

seuil de la stimulation [126, 80]. Le facteur d'occupation dans l'état où la relaxation est stimulée augmente d'un facteur 100 à 1000 au franchissement du seuil, puis la non-linéarité s'atténue une fois le seuil franchi, et l'émission devient linéaire avec la puissance d'excitation.

La présence de la stimulation bosonique devrait aussi être visible dans la largeur de raie de l'émission. Dans un laser "conventionnel", la largeur de raie est donnée par la formule de Schawlow-Townes : au delà du seuil, la largeur de raie diminue comme $\delta E = \delta E^{(0)} / (1 + \langle N_0 \rangle)$, où $\delta E^{(0)}$ est la largeur de raie en dessous du seuil et $\langle N_0 \rangle$ est le nombre moyen de photons présents dans la cavité. Pour un laser à polaritons, on s'attend à ce que la largeur de raie *diminue dans un premier temps* avec la même formule que ci-dessus, puis *augmente* lorsque $\langle N_0 \rangle$ dépasse une valeur de l'ordre de 100 [126, 81]. En effet, en raison des interactions coulombiennes à l'intérieur du condensat (interactions d'échange essentiellement), l'énergie de la raie de polariton est décalée vers le bleu d'une valeur $V N_0$ proportionnelle au nombre de polaritons dans le condensat [18, 125]. Or N_0 fluctue au cours du temps en suivant une statistique poissonnienne. Il en résulte un élargissement de la raie proportionnel à $\langle N_0 \rangle$, qui finit par l'emporter lorsque $\langle N_0 \rangle$ augmente. Ce comportement particulier de la largeur de raie, composé d'une diminution puis d'une augmentation, est caractéristique des condensats en interaction et n'est pas observé dans un laser.

Le groupe de G. MALPUECH et A. KAVOKIN s'est intéressé à l'évolution de la distribution statistique des polaritons lorsque le seuil est franchi. Un premier modèle néglige les fluctuations des facteurs d'occupation dans les états autres que le condensat [95], puis un deuxième modèle tient compte des fluctuations dans tous les états de la branche basse de polaritons [64]. Ces auteurs montrent que la cohérence temporelle d'ordre 2 augmente une fois le seuil de la stimulation franchi, puisque le coefficient $g^{(2)}(\tau = 0)$ passe progressivement de 2 à 1. La statistique des polaritons, thermique en dessous du seuil, devient poissonnienne au delà.

La dynamique du spin du condensat a également été abordée [65]. Dans le cas où deux condensats non corrélés sont produits, l'un dans l'état de spin σ_+ et l'autre dans l'état de spin σ_- , la lumière produite présente des propriétés de polarisation particulières en fonction du nombre de polaritons dans chacun des condensats. Si les deux condensats contiennent exactement le même nombre de polaritons, la lumière émise est la somme de deux ondes polarisées circulairement et oscillant à la même fréquence. La lumière émise est donc polarisée linéairement, et sa direction de polarisation montre la différence de phase entre les deux condensats. Elle devrait donc varier pour chaque réalisation de l'expérience, lorsqu'une nouvelle impulsion laser crée deux nouveaux condensats avec des phases différentes. Dans le cas général, soit parce que l'un des deux condensats est plus intense que l'autre, soit à cause des fluctuations statistiques du nombre de particules dans chacun des deux condensats, la lumière est polarisée elliptiquement et l'axe de cette el-

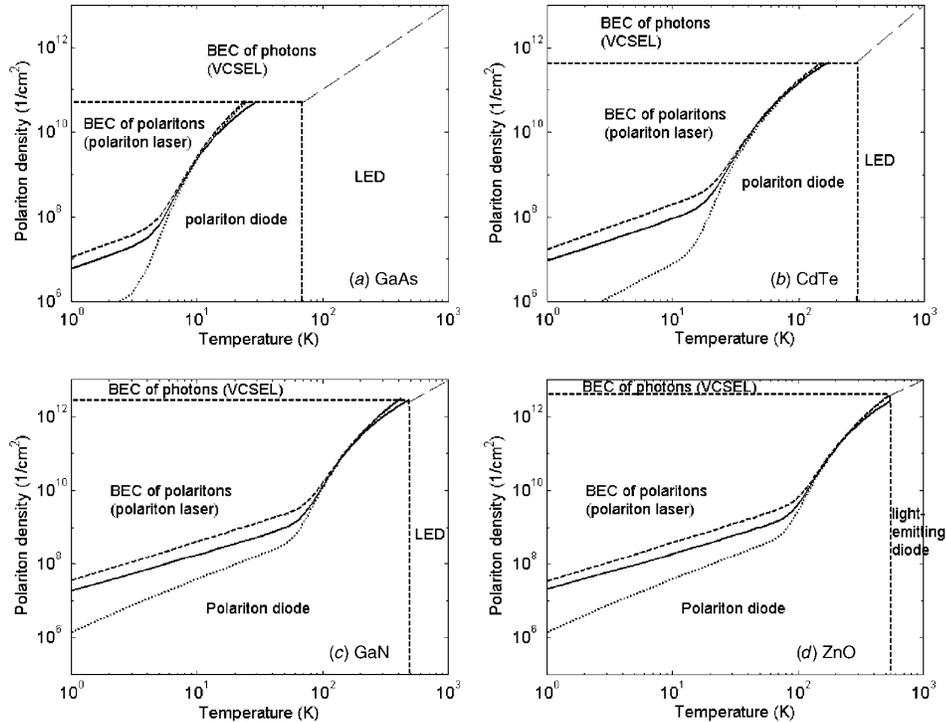


FIG. 2.2 – Diagramme de phase pour des microcavités à base de GaAs (a), de CdTe (b), de GaN (c) et de ZnO (d), lorsque la population de polaritons est à l'équilibre thermodynamique. Les frontières horizontale et verticale correspondent respectivement à la perte du couplage fort et à la dissociation thermique des excitons. Les frontières entre la diode à polaritons et le condensat correspondent soit à la transition de Kosterlitz-Thouless (ligne en traits pleins), soit à la condensation d'un système de taille latérale finie : $100 \mu\text{m}$ (ligne pointillée) et 1 m (ligne tiretée). Figure extraite de [56] et de [68].

lipse est donné par la différence de phase entre les deux condensats. Lorsque l'un des deux condensats est plus intense que l'autre, la dégénérescence de spin est levée et les deux condensats ont des fréquences légèrement différentes. En conséquence, ils se déphasent l'un par rapport à l'autre, et l'axe de l'ellipse tourne au cours du temps avec une période de l'ordre de la dizaine de picoseconde. Enfin, le temps de déclin de la polarisation est très sensible à la cohérence temporelle d'ordre deux du système : alors que le taux de polarisation décroît en moins de 40 ps lorsque $g^{(2)}(0)$ est compris entre 2 et 1.1, il devient égal à 1 ns lorsque $g^{(2)}(0) = 1$.

Nous avons souligné que la stimulation de la relaxation est un effet bosonique dynamique qui n'implique pas forcément que le système soit à l'équi-

libre thermodynamique. G. MALPUECH a calculé le diagramme de phase du système dans le cas limite où l'équilibre est réalisé [68, 56]. Il est à noter que dans un système bidimensionnel tel que les polaritons de microcavité il ne peut exister de véritable condensation de Bose-Einstein. Plus précisément, la température de condensation devient nulle à la limite thermodynamique où le nombre de particules $N \rightarrow \infty$, la surface de l'échantillon $S \rightarrow \infty$ avec N/S constant. Cependant, une quasi transition de phase est réalisable dans un système de taille finie, dans le sens où la population de l'état $k_{\parallel} = 0$ augmente brusquement (mais sans discontinuité) en dessous d'une certaine température. La température critique de cette quasi-condensation dépend de la surface comme $1/\log(S)$, de sorte que même si T_c tend vers 0 dans la limite thermodynamique, elle reste non nulle dans le cas où S est finie. Enfin, si la condensation de Bose ne peut être réalisée dans la limite thermodynamique, il existe néanmoins une transition de phase possible entre un état normal et un état superfluide, appelée transition de Kosterlitz-Thouless.

Le diagramme de phase repris sur la figure 2.2 montre la frontière entre la phase normale, nommée polariton diode et la phase condensée, notée BEC, pour quatre matériaux différents. Les frontières horizontale et verticale correspondent à la perte du couplage fort et à la dissociation thermique des excitons respectivement, et les trois frontières représentées correspondent soit à la transition de Kosterlitz-Thouless (ligne en traits pleins), soit à la condensation d'un système de taille latérale finie : $100 \mu m$ (ligne pointillée) et $1 m$ (ligne tiretée). Nous voyons que la température maximale à laquelle un condensat de Bose peut être obtenu est environ 7 ordres de grandeur plus importante que dans les condensats atomiques, et peut même atteindre la température ambiante dans le cas du GaN et du ZnO. La température critique très élevée attendue pour ces deux matériaux est due à la forte énergie de liaison de l'exciton. Un autre modèle montre que la température critique est proportionnelle au dédoublement de Rabi de la structure [58].

À cause des interactions entre particules, les relations de dispersion sont fortement modifiées en présence du condensat. Sur la figure 2.3, nous montrons le coefficient d'absorption de la cavité le long des branches de dispersion, calculé par KEELING à $\delta = 0$ en supposant l'équilibre thermique [57]. À basse densité, le potentiel chimique est inférieur au niveau d'énergie fondamental de la structure et la relation de dispersion est celle des polaritons (la bande large présente entre les deux branches est due à la prise en compte d'un élargissement inhomogène des excitons). Lorsqu'un condensat est présent à une énergie $\omega = \mu$ en bas de la branche de polaritons, les interactions entre polaritons jouent un rôle important et doivent être correctement prises en compte lors du calcul des relations de dispersion (théorie de Bogoliubov). Tout d'abord, il apparaît deux nouvelles branches, symétriques des premières par rapport au condensat. Comme le montre la figure, ces deux nouvelles branches se manifestent par du gain sur un faisceau laser incident. Les branches supérieures sont également modifiées par les interac-

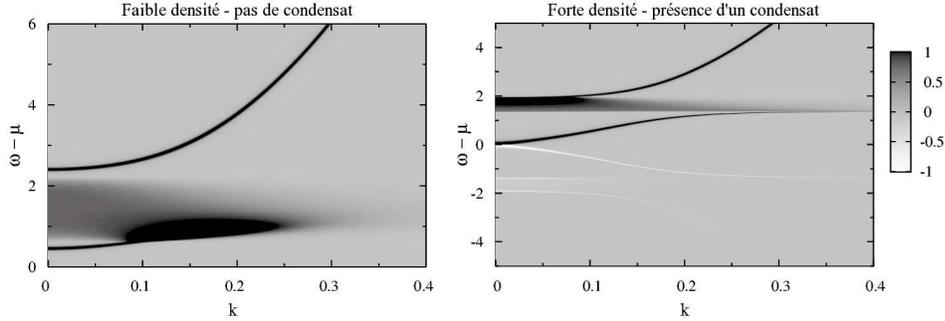


FIG. 2.3 – Relation de dispersion de la microcavité en l'absence et en présence d'un condensat. Les niveaux de gris représentent le coefficient d'absorption de la cavité, ramené artificiellement entre -1 et 1. Les valeurs négatives représentent une amplification de l'onde incidente. Figure extraite de [57].

tions : en bas de la branche basse, la relation de dispersion devient *linéaire* alors qu'elle était parabolique en l'absence du condensat. Les excitations élémentaires du système ne sont alors plus les polaritons, mais correspondent à la propagation d'ondes de densité collectives — ondes sonores — à l'intérieur du condensat. À plus grande énergie, la relation de dispersion redevient identique à celle des polaritons.

Afin de mettre en évidence la superfluidité du condensat, CARUSOTTO et CIUTI [16] proposent d'étudier la diffusion Rayleigh résonnante d'une microcavité. Dans l'expérience proposée, le condensat est créé par un laser quasi-résonnant avec la branche basse de polaritons et la superfluidité du condensat est observée par l'intermédiaire de la diffusion Rayleigh résonnante. En l'absence de condensat, les polaritons peuvent être diffusés élastiquement par le potentiel aléatoire dû au désordre, soit à l'intérieur du puits quantique (rugosité aux interfaces, désordre d'alliage, ...), soit à l'intérieur de la cavité (fluctuations d'épaisseur de la cavité). La diffusion des polaritons par le désordre est élastique, donc le vecteur d'onde dans le plan des polaritons change de direction sans changer de norme. On peut donc observer la diffusion lors d'une expérience en réflexion ou en transmission par une diffusion de la lumière laser sur un cercle, appelé cercle élastique de diffusion Rayleigh. Lorsque la vitesse du condensat créé est inférieure à la vitesse du son dans le condensat, le condensat devient superfluide et n'est plus diffusé par le potentiel de désordre, ce qui donne lieu à la suppression de la diffusion Rayleigh du laser. Soulignons que dans ce cas, la cohérence du condensat provient de celle du laser et ne se développe pas spontanément. Cette étude a toutefois été récemment étendue au cas d'un condensat se développant spontanément [71].

Comme nous pouvons le voir dans les études discutées ci-dessus, une

compréhension de la nature et des propriétés spécifiques attendues d'un condensat de polaritons commence à se développer dans la communauté scientifique.

2.3 Goulet d'étranglement de la relaxation des polaritons

Nous venons de présenter l'intérêt d'un laser à polaritons ainsi que certaines des particularités attendues des condensats de polaritons. Le laser à polaritons fonctionne cependant sur un principe dynamique, et il est donc nécessaire que la relaxation des polaritons soit plus efficace que les pertes radiatives hors de la cavité. Ces pertes sont plus fortes pour les états proches de $k_{\parallel} = 0$ et tendent à dépleter les états de basse énergie. Nous rappelons ici les résultats obtenus ces dernières années dans l'étude de la relaxation des polaritons.

2.3.1 Relaxation des polaritons par émission de phonons

Dans le cas des polaritons du matériau massif, il a été établi dans les années 1970 que la population de polaritons ne parvient pas à atteindre un état d'équilibre thermodynamique. Lorsque l'on excite le système de manière non résonnante, les polaritons s'accumulent dans les états de type excitonique de la relation de dispersion et ne "peuplent" pas les états de plus basse énergie ayant un poids photonique important. Le fait que la relaxation soit moins efficace pour les polaritons que pour les excitons était alors connue sous le nom de goulet d'étranglement de la relaxation [128, 44]. En 1997, TASSONE [124] étend ce concept aux polaritons de microcavité. Il étudie théoriquement la relaxation et la luminescence des polaritons sous excitation non résonnante en prenant en compte les mécanismes suivants : la formation des excitons, la relaxation le long des branches de polariton, et le déclin radiatif des polaritons, traités dans le cadre d'un modèle semiclassique.

Dans cette première étude, le seul processus de relaxation pris en compte est l'émission de phonons acoustiques, représentée schématiquement sur la figure 2.4(a). Lors de l'émission d'un phonon, une partie de l'énergie et du vecteur d'onde du polariton est cédée au phonon. L'énergie totale et le vecteur d'onde dans le plan étant conservés au cours de l'interaction, on a :

$$E_{\text{ph}}(\mathbf{q}_{\text{ph}}) = E_{\text{pol}}(\mathbf{k}_{\parallel}^{\text{ini}}) - E_{\text{pol}}(\mathbf{k}_{\parallel}^{\text{fin}}), \quad (2.1)$$

$$\mathbf{q}_{\parallel} = \mathbf{k}_{\parallel}^{\text{ini}} - \mathbf{k}_{\parallel}^{\text{fin}}, \quad (2.2)$$

lorsqu'un polariton dans l'état $\mathbf{k}_{\parallel}^{\text{ini}}$ relaxe vers l'état $\mathbf{k}_{\parallel}^{\text{fin}}$ en émettant un phonon de vecteur d'onde $\mathbf{q}_{\text{ph}} = (\mathbf{q}_{\parallel}, q_z)$. La composante q_z n'est pas une quantité conservée, ce qui permet à un polariton dans un état initial donné d'émettre un phonon vers un continuum d'états finaux.

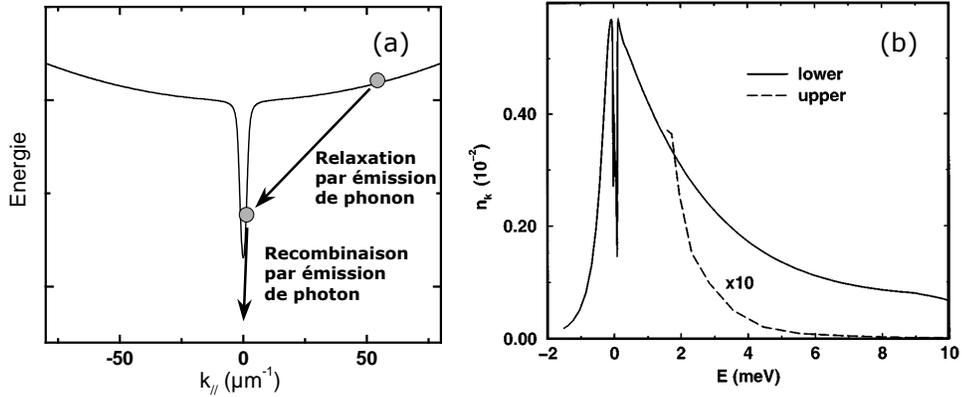


FIG. 2.4 – (a) Représentation schématique de la relaxation des polaritons par émission de phonons et de la recombinaison radiative des polaritons. (b) Distribution de population en régime stationnaire calculée par TASSONE pour un désaccord $\delta = 0$ et une température de 30 K. L'origine des énergies correspond à l'énergie de l'exciton en $k_{||} = 0$. Figure extraite de [124].

Sur la figure 2.4(b), nous voyons la distribution de population calculée numériquement par TASSONE pour une excitation continue. La référence des énergies correspond à l'énergie de l'exciton non couplé en $k_{||} = 0$. Ce modèle montre que la population de polaritons se décompose en deux sous-ensembles. Le premier ensemble correspond à une population excitonique dans les états de grand vecteur d'onde ($E > 0$), dont la dynamique est la même que celle des excitons dans un puits quantique hors de la cavité. Mis à part une dépletion de la population autour de $E \approx 0$, c'est-à-dire pour les états de l'exciton en couplage faible avec les modes de fuite de la microcavité, ce premier sous-ensemble est à l'équilibre thermique avec le réseau. Le deuxième ensemble est constitué des états proches de $k_{||} = 0$, où la relation de dispersion est fortement modifiée par rapport à celle de l'exciton (correspondant à $-1.8 \text{ meV} < E < 0$ sur la figure). Si le gaz de polaritons était thermalisé, on s'attendrait à ce que le facteur d'occupation des polaritons soit plus important dans les états proches de $k_{||} = 0$, mais c'est en réalité l'inverse qui se produit : en régime stationnaire, le facteur d'occupation des états proches de $k_{||} = 0$ est beaucoup plus faible que celui des états de grand vecteur d'onde. Pour cette raison, les états de grand vecteur d'onde forment le *réservoir excitonique*, dans lequel la population s'accumule et le *goulet d'étranglement de la relaxation* est la zone de la relation de dispersion située à l'interface entre le réservoir excitonique et les états faiblement peuplés autour de $k_{||} = 0$.

En fait, la population en centre de zone est fixée par la compétition entre la relaxation par émission de phonons d'une part, et les pertes radiatives du

système d'autre part : plus la relaxation vers un état k_{\parallel} donné est rapide et plus la population atteinte par cet état en régime stationnaire sera proche de la population d'équilibre thermique. La comparaison des états du réservoir excitonique et des états proches de $k_{\parallel} = 0$ montre que la thermalisation du système est influencée par une combinaison de plusieurs facteurs :

- Le taux de relaxation vers un état k_{\parallel} donné est proportionnel au poids excitonique de cet état. Le poids excitonique des polaritons diminue lorsque l'on se rapproche de l'état $k_{\parallel} = 0$, donc le temps caractéristique de relaxation vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$ est plus long que les temps caractéristiques de relaxation dans le réservoir.
- Le temps de vie des états proches de $k_{\parallel} = 0$ est de l'ordre du temps de vie du photon en cavité (de l'ordre de 1 ps), alors que le temps de vie des états de grand k_{\parallel} est de l'ordre de 100 ps. La population contenue dans les états de grand k_{\parallel} disposera donc de "plus de temps" pour atteindre l'équilibre thermique avec le réseau cristallin.
- Lorsqu'un polariton passe de l'état \mathbf{k}_{\parallel} d'énergie $E_{LP}(k_{\parallel})$ à l'état $k_{\parallel} = 0$, il y a émission d'un phonon de vecteur d'onde $\mathbf{q} = (\mathbf{q}_{\parallel}, q_z)$ et d'énergie $E_{\text{ph}}(q) = \hbar c_s q$. L'émission de ce phonon est gouvernée par les équations 2.1 et 2.2. Cependant, puisque la dispersion des phonons est plate à l'échelle de celle des polaritons, presque toute l'énergie perdue par le polariton lors de la relaxation est cédée à la composante selon z du phonon : $\hbar c_s q_z = E_{LP}(k_{\parallel}) - E_{LP}(0)$. Or il existe une coupure dans le vecteur d'onde q_z échangé lors d'une émission de phonons, au delà de laquelle le taux de relaxation diminue exponentiellement. Cette limite est donnée par $q_z^{\text{max}} = 2\pi/L$, où L est l'épaisseur du puits quantique et correspond à une énergie du phonon émis de l'ordre de 1 à 2 meV. Donc la relaxation par émission de phonon est peu efficace lorsque l'état $k_{\parallel} = 0$ est situé à plus de 2 meV en dessous du réservoir. Dans ce cas, plusieurs phonons doivent être émis à la suite l'un de l'autre pour que les polaritons relaxent vers l'état $k_{\parallel} = 0$.

Tous ces éléments vont dans le sens d'une moins bonne thermalisation des états proches de $k_{\parallel} = 0$ par rapport aux états du réservoir excitonique. Les facteurs d'occupations diminuent exponentiellement dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$. Pour cette raison, le facteur d'occupation ne dépasse pas la valeur 1 et le seuil du laser à polaritons n'est pas atteint.

Outre la prédiction du goulet d'étranglement de la relaxation, TASSONE montre que la photoluminescence résolue en angle permet de l'étudier expérimentalement. En effet, l'angle θ de luminescence détermine de façon unique l'état k_{\parallel} des polaritons émettant la lumière, car on a $\sin \theta = \hbar c k_{\parallel} / E_{LP}(k_{\parallel})$. Connaissant le temps de vie radiatif des polaritons dans l'état k_{\parallel} , nous pouvons mesurer le facteur d'occupation de l'état k_{\parallel} à partir de l'intensité de luminescence de cet état. La photoluminescence résolue en angle est à la base de toutes les études expérimentales de la relaxation des polaritons, no-

tamment de ce travail de thèse et sera exposée plus en détail au chapitre 4.

Les prédictions de TASSONE concernant le goulet d'étranglement de la relaxation ont été confirmées expérimentalement dans les années 1999-2000 [105, 106, 120, 74]. Parmi les différents groupes ayant étudié la relaxation des polaritons, MÜLLER et ses collaborateurs se sont plus particulièrement intéressés à la relaxation par émission de phonons [74] dans les microcavités à base de semiconducteurs II-VI. D'après ces expériences, le facteur d'occupation des états varie fortement lorsque l'on parcourt la branche basse de polaritons. Plus que du vecteur d'onde, le facteur d'occupation d'un état dépend de l'énergie de l'état concerné, et surtout de l'écart entre cet état et le réservoir excitonique. Le facteur d'occupation est maximal pour des polaritons situés à moins de 4 meV du réservoir, puis baisse exponentiellement lorsque l'énergie des polaritons s'écarte de celle des excitons. L'observation du goulet d'étranglement de la relaxation, lorsque l'émission de phonons est le processus de relaxation prédominant fait l'objet du § 4.4.1 de cette thèse.

2.3.2 Relaxation par les collisions polariton-polariton

En 1999, Pascale SENELLART, alors en thèse dans notre groupe, rapporte l'observation d'une non linéarité dans la photoluminescence de la branche basse, lorsque l'échantillon est excité par un faisceau laser non résonnant [105]. La non linéarité de la luminescence est initialement attribuée à la stimulation de la relaxation des polaritons par effet Bose. La non-linéarité est observée la même année que l'étude théorique des collisions polariton-polariton par TASSONE [125], et dans un deuxième article, P. SENELLART l'attribue à ce mécanisme de relaxation nouvellement étudié. Par ailleurs, elle montre expérimentalement que les collisions polariton-polariton permettent de réduire efficacement le goulet d'étranglement de la relaxation. Les spectres de photoluminescence résolue en angle issus de cette étude et repris sur la figure 2.5(a) et (b) changent de manière caractéristique lorsque la puissance est augmentée : à faible puissance, l'intensité de luminescence est maximale à un angle fini (16.5° dans l'échantillon étudié), alors que le maximum de luminescence se déplace vers un angle de 0° correspondant à l'état $k_{\parallel} = 0$, lorsque la puissance est augmentée. Sur la figure 2.5(f), les intensités de photoluminescence ont été transformées en facteur d'occupation. Nous voyons que les polaritons "descendent en énergie" vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$ lorsque l'on augmente la puissance — dans le sens où l'énergie moyenne de la population de polaritons est de plus en plus faible.

L'évolution du facteur d'occupation de l'état $k_{\parallel} = 0$ avec la puissance d'excitation est montrée sur la figure 2.5(e). Il y a un changement de régime à une puissance P_{seuil} d'environ 0.5 W.cm^{-2} : pour des puissances plus faibles, la population de l'état $k_{\parallel} = 0$ évolue linéairement avec la puissance, alors que pour des puissances plus fortes, l'évolution est quadratique. La puissance P_{seuil} correspond au seuil au-delà duquel les collisions polariton-polariton

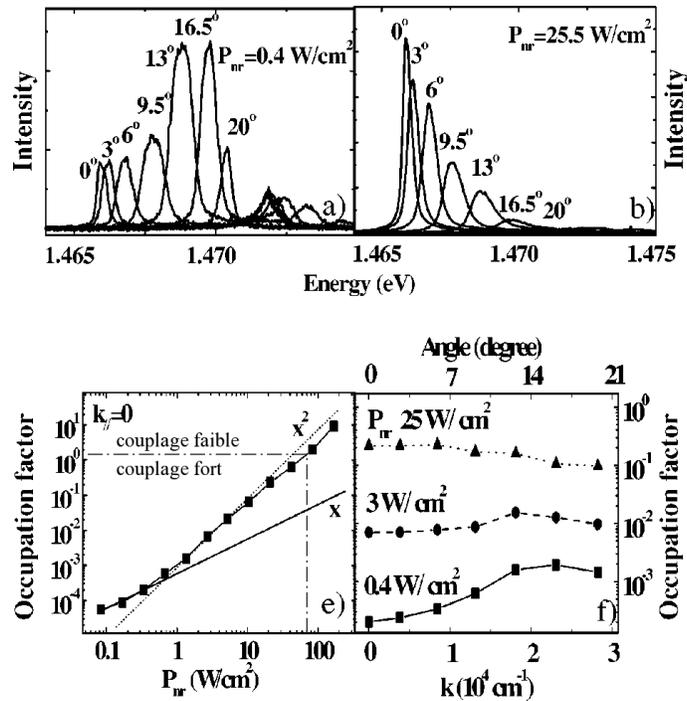


FIG. 2.5 – Photoluminescence résolue en angle à basse puissance (a) et à forte puissance (b). Le panneau (f) montre les facteurs d'occupation de la branche basse déduits des mesures de photoluminescence, et le panneau (e) montre le facteur d'occupation dans l'état $k_{\parallel} = 0$. Figure extraite de [106].

jouent un rôle important. À basse densité de polaritons (pour $P < P_{\text{seuil}}$), les états proches de $k_{\parallel} = 0$ sont peuplés par émission de phonons à partir du réservoir. Un mécanisme concurrent correspond à la collision entre deux polaritons du réservoir dans lequel un polariton passe de l'état k_1 à l'état $k'_1 \approx 0$, alors qu'un polariton passe de l'état k_2 à l'état k'_2 situé à plus grande énergie dans le réservoir. Ce deuxième mécanisme est quadratique vis à vis de la puissance d'excitation et finit par l'emporter sur la relaxation par émission de phonons.

Grâce aux collisions polaritons-polaritons, le goulet d'étranglement de la relaxation est fortement diminué [106, 120], et l'on parvient, à forte puissance d'excitation, à un facteur d'occupation en $k_{\parallel} = 0$ supérieur à celui du réservoir. Cependant, à la plus forte densité de polaritons admise par le système (c'est-à-dire à la densité d'écrantage du couplage fort), la population n'est pas thermalisée et le facteur d'occupation est de l'ordre de l'unité. En conséquence, dans les semiconducteurs III-V, ni la condensation de Bose ni

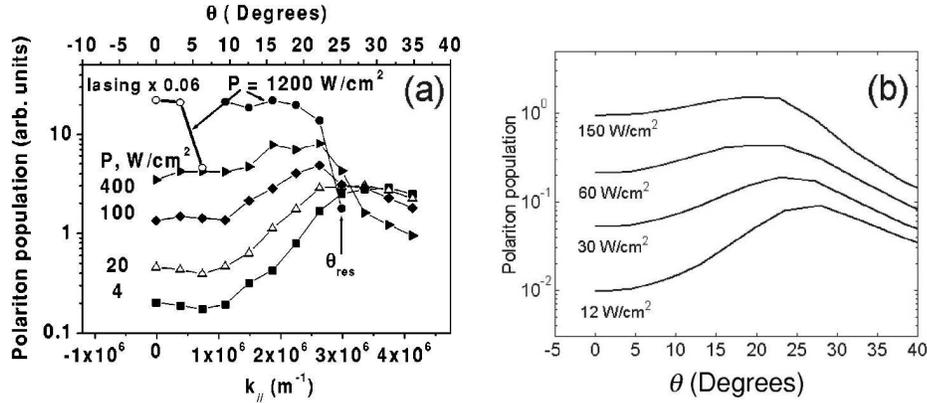


FIG. 2.6 – Comparaison entre la distribution de population le long de la branche basse mesurée expérimentalement pour différentes puissances d’excitation (a) et celle attendue théoriquement (b). La figure (b) montre les facteurs d’occupation absolus, alors que dans la figure (a), les facteurs d’occupation sont divisés par la puissance incidente. $\delta = -8.7$ meV. Figures extraites de [15].

le laser à polaritons ne sont observés. En 2002, dans une étude expérimentale détaillée sur plusieurs désaccords, BUTTÉ [15] montre que lorsque l’on augmente la densité de polaritons, le système passe en couplage faible et l’on observe un effet laser “conventionnel” avant l’effet de laser à polaritons.

Dans l’article de BUTTÉ, les expériences sont comparées à un modèle de la dynamique de relaxation. La figure 2.6(a) montre les mesures du facteur d’occupation le long de la branche basse de polaritons obtenues pour différentes puissances d’excitation. Notons qu’à la plus forte puissance étudiée, une raie fine et intense se développe, laquelle a été attribuée à un effet laser “conventionnel”. Pour des puissances plus faibles ($P < 200$ W.cm⁻²), lorsque le système est en couplage fort, le modèle de relaxation des polaritons s’applique et est en bon accord avec les mesures. La figure 2.6(b) montre les facteurs d’occupation calculés dans le cas particulier du désaccord $\delta = -8.7$ meV. Dans ce cas, comme pour les autres désaccords étudiés dans l’article, les courbes obtenues sont très proches des courbes expérimentales. Ainsi, la modélisation et les expériences convergent sur le résultat suivant : les facteurs d’occupation restent inférieurs à 1 dans toute la gamme de densité où le système est en régime de couplage fort. Par ordre de puissance croissante, les différents seuils rencontrés sont donc :

1. le seuil des collisions polariton-polariton,
2. le seuil de la transition couplage fort-couplage faible,
3. le seuil laser “conventionnel”.

Cependant, même si la relaxation par interactions polariton-polariton ne permet pas d'atteindre un régime de relaxation stimulée, les facteurs d'occupation obtenus sont de l'ordre de 1, indiquant que l'on est proche d'un régime de stimulation de la relaxation.

2.3.3 Conclusion : différences entre microcavités II-VI et microcavités III-V

À l'heure actuelle, l'observation d'un laser à polaritons dans les microcavités de semiconducteurs III-V a été annoncée mais reste toujours contestée. Une forte non linéarité de l'intensité de photoluminescence a en effet été observée en 2002 dans le groupe de YAMAMOTO [26, 131], et montre un effet de stimulation avec un seuil de 300 W.cm^{-2} . Cependant, il reste à démontrer que la structure soit bien en couplage fort au delà du seuil de la stimulation : la puissance d'excitation au seuil est similaire à la puissance de saturation des cavités GaAs et la raie non linéaire se développe à une énergie proche de l'exciton, n'écartant pas la possibilité d'un effet laser "conventionnel". Les expériences de YAMAMOTO présentent deux particularités importantes par rapport aux expériences précédentes : d'une part l'échantillon comporte un nombre important de puits quantiques (12), ce qui permet d'atteindre un dédoublement de Rabi de 15 meV, et d'autre part l'excitation optique est résonnante avec le réservoir excitonique (on parle alors d'excitation froide). Il est possible que ces deux différences par rapport aux expériences précédentes permettent d'obtenir un laser à polaritons. Avant de conclure définitivement, les expériences du groupe de YAMAMOTO ont donc besoin d'être confirmées, si possible par un groupe indépendant.

La situation est différente dans le domaine des semiconducteurs II-VI. Dans ces microcavités, en effet, une forte non linéarité dans la luminescence de l'état $k_{\parallel} = 0$ a été observée dès 1998 [23]. Depuis cette date, plusieurs expériences montrent qu'une émission cohérente se développe spontanément au-delà du seuil. Sur la figure 2.7, nous reproduisons les spectres de photoluminescence résolue en temps effectuée dans notre groupe sur un échantillon réalisé à Grenoble [10]. Trois modifications importantes de l'émission sont observées lorsque le seuil est franchi : tout d'abord l'intensité de luminescence est multipliée par 100, alors que la puissance est multipliée par 3 seulement, ensuite la dynamique du système est fortement accélérée, et enfin la largeur de raie passe de 3 meV à 0.2 meV, montrant que l'émission acquiert une cohérence temporelle d'ordre 1 [23, 10]. Sur un échantillon similaire, M. RICHARD a observé que selon les conditions expérimentales, la stimulation de la relaxation apparaît soit en $k_{\parallel} = 0$, soit sur un ensemble d'états $k_{\parallel} \neq 0$ ayant tous la même énergie. Dans ce deuxième cas, la lumière émise par un état $k_{\parallel}^{(1)}$ peut être superposée à celle émise par un état $k_{\parallel}^{(2)}$ afin de créer des interférences. Les expériences de M. RICHARD montrent que le contraste des franges d'interférences augmente brusquement au-dessus du

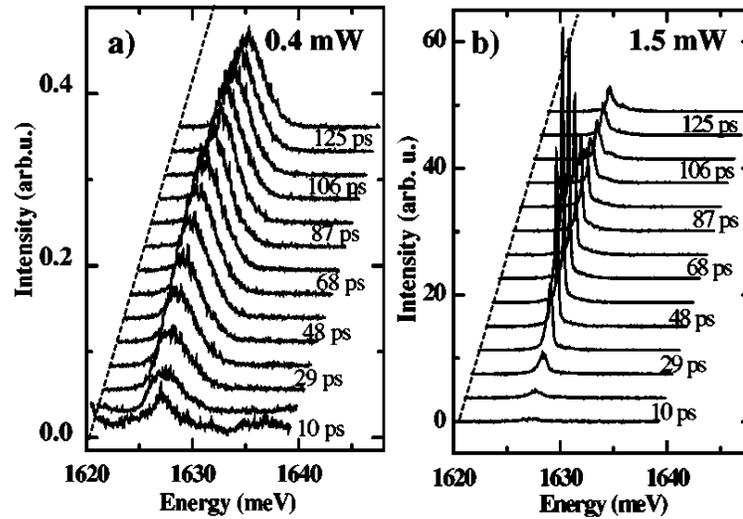


FIG. 2.7 – Spectres de photoluminescence résolue en temps de l'état $k_{\parallel} = 0$ dans une microcavité de semiconducteurs II-VI, en dessous du seuil de stimulation (a) et au dessus du seuil (b). Figure extraite de [10].

seuil de la stimulation, montrant que l'émission acquiert une cohérence dans le plan transverse [90, 91].

Enfin, d'autres expériences ont montré que la stimulation observée dans les semiconducteurs II-VI avait bien lieu en régime de couplage fort. D'une part, à l'inverse d'un laser "conventionnel", le seuil de la non-linéarité ne dépend pas du nombre de puits quantiques dans le système [11]. La relation de dispersion a d'autre part été mesurée à un délai de 20 ps par rapport à l'impulsion laser [10]. On pourrait en effet penser que le régime de couplage change au cours du temps, et passe d'un couplage faible au couplage fort lorsque la densité de polaritons a suffisamment diminué. Ces mesures montrent que le système est bien en couplage fort dès le début de l'émission, lorsque la population de porteurs est la plus importante. L'apparition d'une cohérence n'est donc pas due à une émission stimulée de photons en régime de couplage faible (effet laser "conventionnel"), mais bien à un laser à polaritons.

À ce jour, il n'existe pas d'explication simple permettant de comprendre la différence de comportement entre les microcavités à base de semiconducteurs II-VI et celles à base de semiconducteurs III-V. Une différence importante concerne le rayon de Bohr des excitons, qui est plus de deux fois plus faible dans le CdTe que dans le GaAs. En conséquence, la densité de saturation du couplage fort sera plus de quatre fois plus élevée, autorisant l'exploration d'une gamme de densité plus importante. Cependant, d'autres

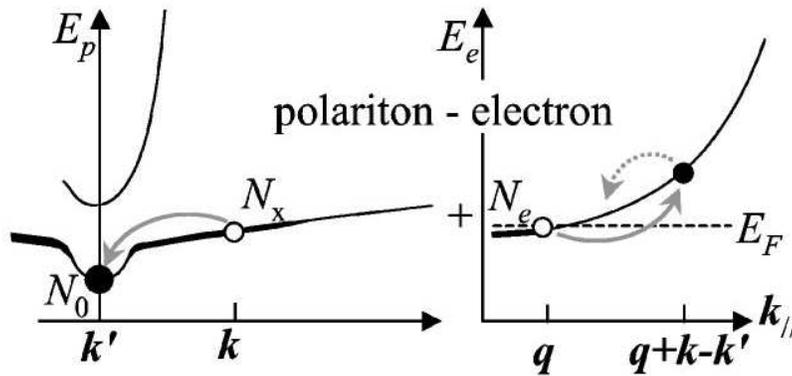


FIG. 2.8 – Représentation schématique des collisions polariton-électron : un polariton du réservoir est diffusé en $k' \approx 0$, alors qu'un électron "absorbe" l'énergie de recul. La population électronique est maintenue à l'équilibre thermique par interaction avec les phonons (flèche pointillée de la figure). Figure extraite de [67].

paramètres essentiels pour l'étude de la relaxation, tels que le dédoublement de Rabi, l'énergie des phonons optiques ou le temps de vie de la cavité sont également très différents d'une famille de semiconducteurs à l'autre et rentrent en ligne de compte. Sur le plan théorique, les simulations de l'article de BUTTÉ comme ceux de TASSONE montrent effectivement que le laser à polaritons ne fonctionne pas dans les semiconducteurs III-V. À l'inverse, en utilisant les paramètres des matériaux II-VI, PORRAS prédit une condensation possible dans les semiconducteurs II-VI [80], mais sans expliciter le rôle respectif de chacun des paramètres.

2.4 Relaxation des polaritons par collisions polariton-électron

2.4.1 Modélisation de la relaxation par les collisions polariton-électron

D'après les études précédentes, dans les microcavités de semiconducteurs III-V, les collisions polariton-polariton permettent d'obtenir des facteurs d'occupations de l'ordre de 1 lorsque le couplage fort disparaît. Le système semble donc être très proche d'un régime de relaxation stimulée. Ainsi, si l'on réussit à trouver un mécanisme de relaxation plus efficace que les collisions polariton-polariton, le système fonctionnera comme un laser à polaritons.

En 2002, Guillaume MALPUECH et ses collaborateurs proposent d'injec-

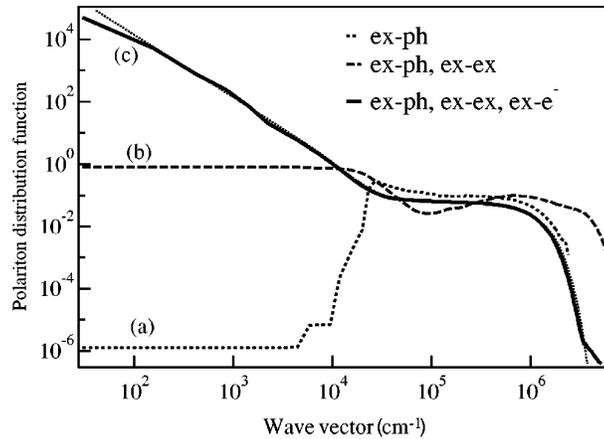


FIG. 2.9 – Distribution de population atteinte en régime permanent pour une puissance de pompe constante. La distribution de population est calculée en prenant en compte (a) seulement la relaxation par interaction avec les phonons, (b) en ajoutant les collisions polariton-polariton ($n_{\text{pol}} = 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$), et (c) en ajoutant les collisions avec un gaz d'électrons ($n_{\text{pol}} = 1.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ et $n_e = 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$). Figure extraite de [56] et de [67].

ter un gaz d'électrons de faible densité dans la zone active et d'accélérer la relaxation des polaritons grâce aux collisions polariton-électron [67, 56]. La figure 2.8 montre le processus élémentaire d'une collision polariton-électron. Au cours de cette collision, un polariton du réservoir relaxe vers l'état $k_{\parallel} = 0$, tandis qu'un électron absorbe la différence d'énergie et de vecteur d'onde entre les deux états de polariton. D'après MALPUECH, ce mécanisme serait plus efficace que les collisions polariton-polariton. D'une part, les collisions polariton-électron font intervenir *une espèce chargée*, et l'élément de matrice d'interaction est donc plus important que pour une collision entre deux espèces neutres. D'autre part, les électrons ont une *masse* beaucoup plus faible que celle des excitons, donc la relaxation en énergie des polaritons du réservoir excitonique jusqu'à l'état $k_{\parallel} = 0$ requiert un moins grand nombre de collisions.

MALPUECH et al. ont calculé les taux de diffusion associés aux collisions polariton-électron et modélisé la dynamique de relaxation des populations à partir d'équations d'évolution des populations. La figure 2.9 montre la distribution de population atteinte en régime stationnaire lorsque l'on inclut successivement (a) l'émission de phonons, (b) les collisions polariton-polariton, et (c) les collisions polariton-électron avec une densité $n_e = 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ d'électrons. D'après ces calculs, seule la relaxation par collisions avec un

gaz d'électrons libres est suffisamment efficace pour faire franchir le seuil de 1 polariton par état. La relaxation est alors stimulée et la distribution de population se rapproche d'une distribution thermalisée, donnée par la ligne pointillée de la figure. L'étude de la relaxation par collisions polariton-électron paraît donc particulièrement intéressante, puisque non seulement l'effet laser à polaritons, mais également la condensation de Bose-Einstein sont attendus.

2.4.2 Premières expériences réalisées sur une cavité à concentration variable d'électrons

Sur le plan expérimental, une microcavité dans laquelle une concentration variable d'électrons peut être injectée optiquement a été réalisée par Loren PFEIFFER et étudiée par le groupe Israélien d'E. COHEN [86, 87], avant même que MALPUECH ne propose d'utiliser les collisions polariton-électron (l'objectif initial de ces expériences était d'observer un déplacement des polaritons chargés sous l'action d'un champ électrique).

Dans cet échantillon, la zone active de la cavité est constituée par un puits quantique dit de type mixte, c'est à dire qu'un puits quantique de type II pour les électrons est placé juste à côté d'un puits quantique de type I. Deux faisceaux lasers sont alors utilisés. Le premier (L_1), de basse énergie, est absorbé uniquement dans le puits quantique de type I, dont l'exciton est en couplage fort avec le mode de la microcavité. Ce premier faisceau laser permet de créer une population de polaritons. Le deuxième faisceau, L_2 , a une énergie suffisante pour être absorbé dans le puits quantique de type II. Les électrons et les trous créés lors de l'absorption de ce faisceau sont alors spatialement séparés : les trous restent dans le puits quantique de type II, alors que les électrons relaxent dans le puits quantique de type I. Le principe de fonctionnement des puits quantiques de type mixte est présenté plus en détail dans le chapitre 3, chapitre dans lequel la zone active de notre propre cavité est étudiée. En conclusion, dans cette structure, une concentration variable d'électrons, proportionnelle à la puissance du faisceau laser de haute énergie peut être injectée optiquement dans le puits quantique de type I.

Dans un premier temps, le groupe d'E. COHEN a montré que les électrons ont un effet important sur les relations de dispersion [86, 87]. En effet, en présence d'un gaz d'électrons, l'exciton chargé X^- , également appelé trion, acquiert une force d'oscillateur suffisante pour passer en régime de couplage fort. Une nouvelle branche de polaritons apparaît, qui est une superposition d'état du photon, de l'exciton, et du trion.

L'étude des collisions polariton-électron commence en 2002 avec un article de RAMON [85]. À partir de mesures de réflectivité, ce dernier montre que les raies de polaritons sont élargies en présence d'un gaz d'électrons, et peuvent être décrites en supposant un exciton élargi par les collisions exciton-électron, puis en considérant le couplage de cet exciton au mode de

la microcavité. Dans ce travail, les interactions polariton-électron sont mises en évidence par leur effet sur les largeurs de raies, et leur importance sur la relaxation des polaritons n'est pas abordée.

QARRY est la première à rapporter, en 2003, une augmentation de la relaxation des polaritons en présence d'un gaz d'électrons [83]. Sur la figure 2.10(c) est tracée la relation de dispersion des polaritons. Les 4 branches observées proviennent du couplage fort entre 1 mode de cavité et 3 résonances excitoniques : l'exciton de trou lourd, neutre et chargé, et l'exciton de trou léger.

Les spectres expérimentaux obtenus font l'objet de la figure 2.10(a). L'excitation lumineuse est résonnante avec la branche notée $P4$, et la luminescence des branches $P1$ et $P2$ est intégrée sur une plage angulaire de 28° , marquée en gris sur la figure, le paramètre I_{L2} reporté étant proportionnel à la densité n_e d'électrons injectés. Plus cette densité est importante, plus l'intensité de luminescence de la zone observée est forte, augmentant d'un facteur de l'ordre de 10 entre la plus faible et la plus forte densité observée. QARRY établit que l'augmentation de la luminescence provient d'une meilleure relaxation des polaritons en présence du gaz d'électrons. Les différents canaux de relaxation envisageables entre l'état dans lequel les polaritons sont créés et l'ensemble des états détectés sont marqués par des flèches sur la figure 2.10(c). Ces différents canaux de relaxation sont utilisés pour construire un modèle reproduisant qualitativement les spectres observés (Figure 2.10(b)).

Des constatations similaires sont faites à d'autres désaccords. L'intensité de photoluminescence dans la zone sélectionnée augmente d'un ordre de grandeur en présence du gaz d'électrons, puis sature lorsque la densité d'électrons s'approche de la densité d'écrantage du couplage fort.

Dans l'étude de QARRY, la luminescence est intégrée sur une large plage angulaire et il n'est pas possible de déterminer la contribution de chacun des états à la raie de luminescence observée. Dans un travail ultérieur, LAGOUDAKIS [63] étudie spécifiquement l'augmentation de la luminescence dans l'état $k_{\parallel} = 0$, en sélectionnant angulairement l'émission de la cavité. L'influence des électrons sur la relaxation est mesurée par le facteur d'amplification de la luminescence η , défini comme le rapport

$$\eta = \frac{PL(L_1 + L_2) - PL(L_2)}{PL(L_1) + PL(L_2)}, \quad (2.3)$$

où $PL(L_1)$, $PL(L_2)$ et $PL(L_1 + L_2)$ désignent les intensités de photoluminescence en présence du faisceau laser L_1 seulement, du faisceau laser L_2 seulement ou des deux faisceaux simultanément. LAGOUDAKIS montre que η dépend du désaccord exciton-photon, comme nous pouvons le voir sur la figure 2.11 : alors que l'on a $\eta = 0$ pour $\delta = 0$, η augmente vers les désaccords

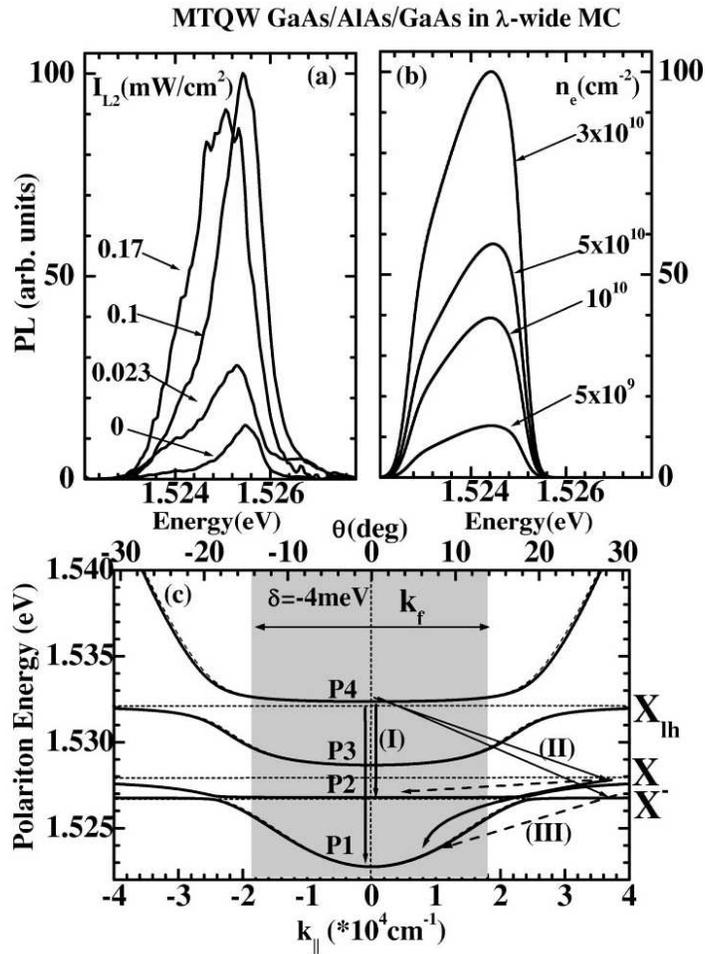


FIG. 2.10 – (a) Spectres de photoluminescence observés à $\delta = -4$ meV. (b) Spectres de photoluminescence calculés pour différentes densités n_e . (c) Relations de dispersion résultant du couplage fort du photon avec les trions (X^-), les excitons de trou lourd (X) et les excitons de trou léger (X_{lh}). La zone de détection est marquée par une bande grise. Figure extraite de [83].

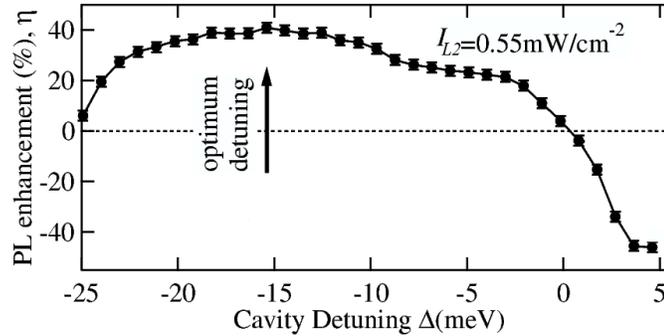


FIG. 2.11 – Amplification de la photoluminescence en $k_{\parallel} = 0$ en fonction du désaccord exciton-photon. Figure extraite de [63].

négatifs, jusqu'à une valeur maximale de $\eta \approx 40\%$ à un désaccord optimal de $\delta = -15$ meV.

La valeur obtenue semble en contradiction avec l'augmentation d'un facteur 10 observée par QARRY sur le même échantillon. Pour estimer l'augmentation maximale de la luminescence, il est nécessaire d'estimer la densité maximale d'électrons, c'est à dire celle au delà de laquelle l'exciton est en régime de couplage faible. Pour estimer cette densité maximale, LAGOUDAKIS s'est placé en $\delta = -15.5$ meV, et a pris comme critère le décalage vers le rouge de la raie excitonique. Ce décalage vers les basses énergies est interprété comme la signature du passage en couplage faible, alors que nous pensons qu'il s'agit de l'apparition du trion dans les spectres de photoluminescence. Ainsi, les mesures de LAGOUDAKIS sont probablement effectuées à relativement basse densité d'électrons, ce qui permettrait de comprendre la différence entre les deux expériences.

LAGOUDAKIS observe de plus qu'en présence d'une intensité constante du laser L_2 injectant les électrons, la largeur de raie de l'exciton diminue avec la température. Nous verrons que cette baisse s'explique plus probablement par la baisse de la densité d'électrons elle-même lorsque l'on augmente la température que par une baisse de l'efficacité des collisions polariton-électron dans la relaxation.

2.5 Conclusion

Au début de cette thèse, le problème du goulet d'étranglement de la relaxation est clairement identifié. Les interactions des polaritons avec les phonons comme les interactions polariton-polariton sont trop peu efficaces pour permettre une condensation de Bose-Einstein des polaritons [15]. Une proposition de G. MALPUECH [67] est à l'origine d'un renouveau du sujet : il prédit en effet que les collisions polariton-électron sont suffisamment effi-

caces pour stimuler la relaxation et permettre à la population de polaritons d'atteindre l'équilibre thermique.

Les premières expériences réalisées sur une microcavité contenant un gaz d'électrons [83, 63] montrent qu'effectivement, une forte augmentation de l'intensité de luminescence est observée en présence du gaz d'électrons, mais sans montrer quantitativement comment le goulet d'étranglement de la relaxation est réduit, ni si l'équilibre thermique est effectivement atteint.

Dans ce travail de thèse, nous poursuivons ces premières études de la relaxation des polaritons. Nous nous sommes en particulier attachés à quantifier la redistribution de la population de polaritons en présence du gaz d'électrons (Chapitre 4), ainsi qu'à étudier la dynamique de relaxation des polaritons (Chapitre 5). Avant de s'intéresser aux collisions polariton-électron proprement dites, il nous est apparu nécessaire de vérifier que l'on injecte effectivement des électrons dans la structure et de quantifier la densité d'électrons en fonction de la puissance du laser HeNe. Cette étude est présentée en détails dans le prochain chapitre.

Chapitre 3

Photoinjection d'un gaz d'électrons dans un puits quantique

Sommaire

3.1	Introduction	81
3.2	Transfert d'électrons entre puits quantiques	83
3.3	Estimation de n_e à faible densité	87
3.3.1	Description des spectres de luminescence	87
3.3.2	Excitation de la photoluminescence	90
3.3.3	Modélisation des intensités de trion et d'exciton	93
3.4	Estimation de n_e à forte densité	95
3.4.1	Description des spectres de luminescence	96
3.4.2	Modélisation des formes de raie à forte densité	98
3.4.3	Ajustement des spectres expérimentaux	103
3.4.4	Validation de la mesure par effet Raman électronique	107
3.4.5	Bilan : relation entre n_e et P_{HeNe}	109
3.5	Estimation de n_e en cavité et à différentes températures	110
3.5.1	Effet de la cavité	111
3.5.2	Variation de n_e avec la température	113
3.6	Comparaison des deux méthodes et conclusion	117

3.1 Introduction

En vue de contrôler la densité d'électrons injectés dans une microcavité en régime de couplage fort, nous avons réalisé et étudié des puits quantiques dits puits quantiques de type mixte type-I type-II, dans lesquels les

électrons sont injectés optiquement. Ces structures ont été choisies en raison des avantages pratiques qu'elles possèdent comparées à des structures à dopage chimique :

1. Les puits quantiques de type mixte permettent d'avoir accès à de faibles densités d'électrons ($\sim 10^8 \text{ cm}^{-2}$), de sorte que l'exciton ne soit pas écranté. Le régime de faible dopage est en revanche beaucoup plus difficile à contrôler dans le cas de puits quantiques à dopage chimique.
2. Dans un puits quantique à dopage chimique, la densité d'électrons peut être contrôlée grâce au champ électrique créé par une grille métallique, lequel modifie les fonctions d'ondes des électrons et des trous. Une première conséquence est que l'énergie de l'exciton et donc le désaccord exciton-cavité sont modifiés. Simultanément, le couplage de l'exciton avec le mode de la cavité est diminué. Ce sont donc les deux paramètres clés du couplage fort exciton-photon qui sont modifiés lorsque l'on change la densité d'électrons.

Nous avons donc opté pour une méthode entièrement optique de contrôle de la densité d'électrons. Cette méthode a été présentée pour la première fois par le groupe de P. DAWSON [24, 34], et celui de E. COHEN [86] a été le premier à l'utiliser dans une microcavité en régime de couplage fort.

Une des problématiques de ces structures est la mesure des faibles densités d'électrons mises en jeu. Différents effets ont été utilisés à cette fin : MANASSEN et ses collaborateurs [70] et ESSER et ses collaborateurs [30] supposent l'équilibre entre les populations d'excitons et d'excitons chargés : $X + e^- \rightleftharpoons X^-$. Conformément à la loi d'action de masse, cet équilibre est déplacé vers la droite lorsque l'on augmente la densité d'électrons. On peut alors déduire la densité du gaz d'électrons à partir du rapport n_X/n_{X^-} . Une autre possibilité est d'exploiter la polarisation du gaz d'électrons sous champ magnétique [4], qui atteint 100% lorsque le champ magnétique dépasse la valeur critique $E_{\text{fermi}}/g\mu_B$ (voir la Figure 3.1). La polarisation du gaz d'électrons peut être "lue" à partir de l'émission du trion et sa mesure en fonction du champ magnétique permet d'extraire l'énergie de Fermi et donc la densité d'électrons. Nous avons pour notre part utilisé deux autres méthodes, la modélisation des raies de luminescence [40] et l'effet Raman électronique qui permettent également de mesurer l'énergie de Fermi à forte densité. En extrapolant linéairement ces mesures vers les basses densités, nous avons comparé ces méthodes à celle basée sur l'équilibre entre X et X^- .

Le présent chapitre détaille la façon dont nous avons mis en évidence l'injection optique des électrons ainsi que la mesure des densités d'électrons dans notre échantillon. Notons que pour obtenir les résultats expérimentaux présentés ici, nous avons isolé la zone active de la microcavité 32A21 étudiée tout au long de cette thèse et décrite dans l'annexe A. Le miroir supérieur

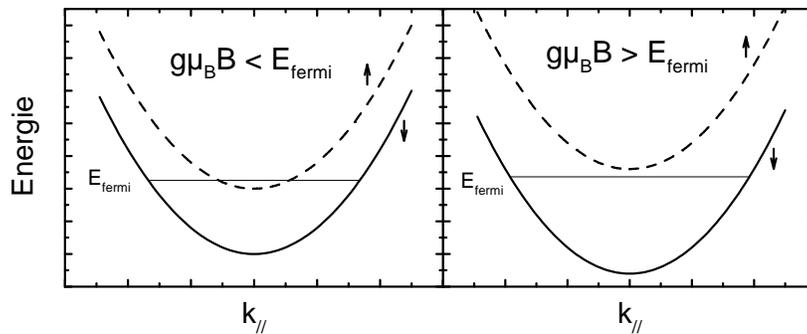


FIG. 3.1 – Polarisation d'un gaz d'électrons soumis à un champ magnétique. Les relations de dispersion sont tracées pour les deux niveaux de spin, notés $|\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\rangle$. Sur la figure de gauche, le champ magnétique est suffisamment faible pour que les deux niveaux soient peuplés. Sur la figure de droite, seul le niveau $|\downarrow\rangle$ est peuplé et la polarisation atteint 100%. La mesure du taux de polarisation du gaz d'électrons en fonction du champ permet donc de mesurer l'énergie de Fermi de la structure [4].

de la cavité a été gravé sur une partie de l'échantillon, ce qui nous permet d'étudier exactement l'échantillon dans lequel a lieu le couplage fort lumière matière tout en s'affranchissant des effets de cavité. La section 3.2 présente le principe de l'injection optique d'électrons ainsi que les différents niveaux d'énergie d'électrons et de trous présents dans notre structure. Dans la section 3.3, nous montrons la caractérisation de l'échantillon à faible densité d'électrons, lorsque les spectres de luminescence sont dominés par les effets excitoniques et nous évaluons la densité d'électrons. A plus forte densité d'électrons, le gaz d'électrons est dégénéré et les spectres de luminescence sont ceux d'un plasma de paires électrons-trous. La section 3.4 détaille la modélisation des spectres de luminescence dans ce régime de plus forte densité, ce qui nous permet d'extraire l'énergie de Fermi du gaz d'électrons. La comparaison de ce modèle avec des mesures par effet Raman électronique réalisée par B. JUSSERAND sur le même échantillon montre un excellent accord entre les deux méthodes. Puis nous quantifions l'efficacité de l'injection des électrons lorsque la zone active est en cavité et lorsque la température est variée (section 3.5). Pour finir, nous comparons les différentes méthodes de mesure de la densité.

3.2 Transfert d'électrons entre puits quantiques

Grâce à une utilisation "subtile" des bandes de conduction de l'AlAs et du GaAs, il est possible de transférer des électrons d'un puits quantique étroit à un puits quantique large. La figure 3.2 montre les bandes de valence

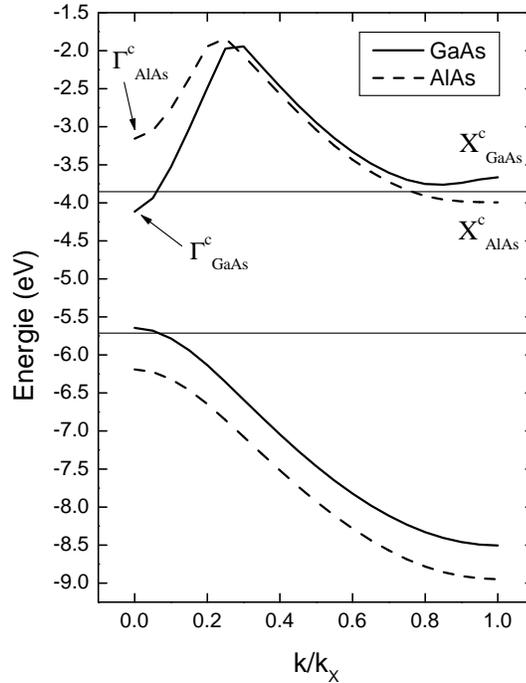


FIG. 3.2 – Bandes de valence et de conduction de l'AlAs et du GaAs le long de l'axe (ΓX). L'énergie nulle correspond à un électron dans le vide. Les lignes horizontales montrent l'énergie des niveaux d'électrons et de trous confinés en Γ dans le puits quantique étroit (26 Å) de notre structure.

et de conduction des deux matériaux massifs le long de l'axe (ΓX) de la zone de Brillouin. Comme on peut le voir sur cette figure, l'état Γ^c_{AlAs} a une énergie plus élevée que le niveau correspondant dans le GaAs : Γ^c_{GaAs} . Ainsi, dans une hétérostructure GaAs/AlAs, au point Γ de la zone de Brillouin, le GaAs est un puits pour les électrons et l'AlAs est une barrière. Mais *ce rôle est inversé dans la vallée X*, comme le montre la figure 3.2. C'est alors l'AlAs qui est un puits quantique pour les électrons et le GaAs qui est une barrière.

Tant que le niveau Γ^c_{GaAs} reste le niveau le plus bas dans toute la structure, les électrons relaxent préférentiellement vers celui-ci et sont donc confinés dans la couche de GaAs. La situation est en revanche très différente lorsque l'on considère un puits quantique AlAs/GaAs/AlAs. Dans ce cas, l'énergie de confinement du puits quantique s'ajoute à l'énergie du matériau massif et, si le puits quantique est suffisamment étroit, le niveau Γ^c_{GaAs} fortement confiné peut passer au-dessus du niveau X^c_{AlAs} . Lors de leur relaxation, les électrons ne restent donc pas confinés dans le GaAs, qui ne se comporte comme un puits quantique que pour les trous.

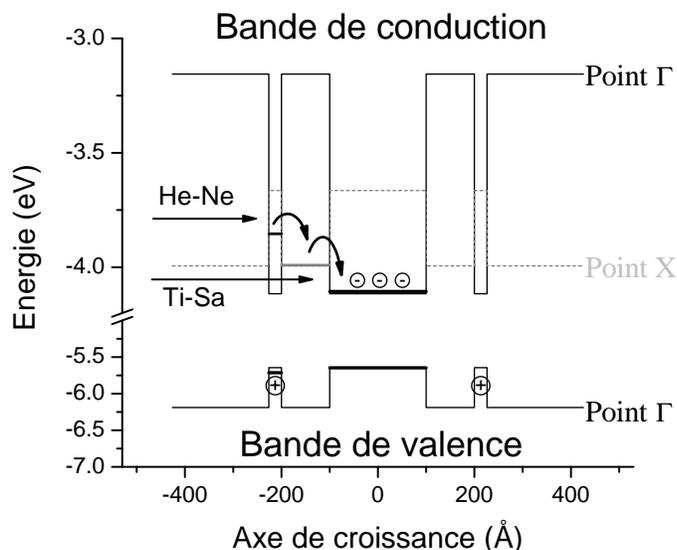


FIG. 3.3 – Structure de bande de la couche active de la microcavité 32A21 le long de l'axe de croissance. Deux puits quantiques étroits (26 Å) encadrent le puits quantique large (200 Å). Les traits plus épais montrent les niveaux confinés calculés par une méthode de masse effective. Une cascade de niveaux permet à un électron créé dans le puits quantique étroit de relaxer efficacement (par émission de phonons optiques) vers le puits quantique large.

La structure de bande de la zone active de notre microcavité 32A21 est représentée sur la Figure 3.3. La figure 3.4 montre la relation de dispersion de la structure calculée par J. M. JANCU par une méthode de liaisons fortes. D'après ce calcul, le niveau Γ du puits quantique étroit se trouve 50 meV au-dessus des niveaux X de la barrière, qui eux-mêmes se trouvent 220 meV au-dessus du niveau Γ^c du puits quantique large. Le transfert d'un électron de l'un des deux puits quantiques étroits vers le puits quantique large peut donc se faire simplement par émission de phonons optiques, ce qui est un mécanisme très efficace. Il est en effet mentionné dans la littérature des temps subpicoseconde [34] pour le transfert $\Gamma \rightarrow X$, et de l'ordre de 30 ps [31] pour le transfert suivant $X \rightarrow \Gamma$. Un tel transfert rapide n'existe pas pour les trous, et la seule possibilité de relaxation des trous dans le puits quantique large est par effet tunnel à travers la barrière d'AlAs. Lorsque des paires électron-trou sont créées optiquement, un gaz d'électrons se forme dans le puits quantique large et un gaz de trous dans les puits quantiques étroits. Le temps de vie de ces gaz de porteurs est très long et gouverné par le temps tunnel des trous.

Voyons par exemple quel est l'effet d'un faisceau laser Hélium-Néon, qui est d'énergie suffisante ($E_{HeNe} = 1.96 \text{ eV}$) pour être absorbé dans les

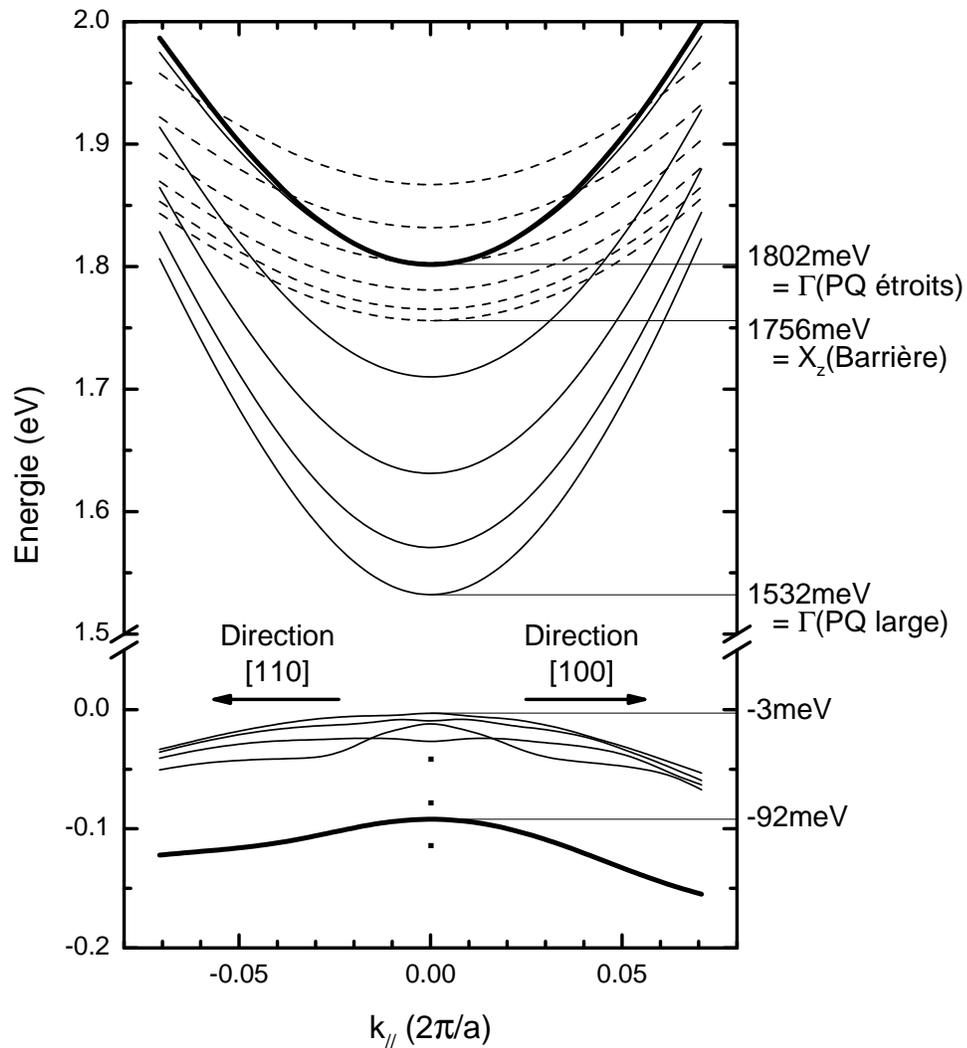


FIG. 3.4 – Relation de dispersion de notre structure calculée par un modèle de liaisons fortes le long des deux directions principales du puits quantique. Les traits épais, fins et tiretés représentent les niveaux localisés dans les puits quantiques étroits, dans le puits quantique large et dans les barrières respectivement.

puits quantiques étroits. Notons A le coefficient d'absorption de ces puits quantiques et P_{HeNe} la densité de puissance du laser HeNe, et analysons l'ordre de grandeur de la densité n_e d'électrons transférés. Sous excitation continue, le flux de photons absorbé : $A P_{HeNe}/E_{HeNe}$ est égal au flux de trous traversant la barrière par effet tunnel, pour se recombiner avec les électrons contenus dans le puits large. La densité de trous dans le puits étroit est égale à n_e et le temps caractéristique du transfert, noté τ_{tunnel} , est de l'ordre de 10^{-4} s [34, 25, 66]. L'égalité entre le flux de photons absorbés et le flux de trous traversant la barrière par effet tunnel nous donne la densité d'électrons :

$$A \frac{P_{HeNe}}{E_{HeNe}} = \frac{n_e}{\tau_{tunnel}} \quad (3.1)$$

$$\Rightarrow n_e = \frac{A P_{HeNe} \tau_{tunnel}}{E_{HeNe}}. \quad (3.2)$$

D'autre part, une partie du faisceau laser est également absorbée dans le puits quantique large où il crée une densité n_X d'excitons. Le coefficient d'absorption du puits large est du même ordre de grandeur que A , et pour simplifier notre analyse, nous supposons que ces coefficients d'absorption sont égaux. De la même façon que précédemment, on a :

$$A \frac{P_{HeNe}}{E_{HeNe}} = \frac{n_X}{\tau_X} \quad (3.3)$$

$$\Rightarrow \frac{n_X}{n_e} = \frac{\tau_X}{\tau_{tunnel}}, \quad (3.4)$$

où τ_X est le temps de vie des excitons dans le puits large. Comme τ_X est de l'ordre de la centaine de picoseconde, soit environ 6 ordres de grandeurs inférieur à τ_{tunnel} , la densité d'excitons créée par le laser HeNe sera négligeable devant la densité d'électrons.

En revanche, si l'on ajoute un faisceau laser Titane-Saphir d'énergie plus faible que la bande interdite des puits quantiques étroits, celui-ci ne crée que des excitons et le rapport précédent devient

$$\frac{n_X}{n_e} = \frac{\tau_X}{\tau_{tunnel}} \frac{P_{TiSa}}{P_{HeNe}}. \quad (3.5)$$

Cette structure nous permet donc de faire très simplement varier les densités d'électrons et d'excitons dans le puits large : un laser HeNe de faible intensité injecte des électrons et un laser TiSa injecte des excitons.

3.3 Estimation de n_e à faible densité

3.3.1 Description des spectres de luminescence

La Figure 3.5 montre l'évolution des spectres de photoluminescence de la zone active de notre microcavité 32A21 à $T = 15$ K en présence des deux

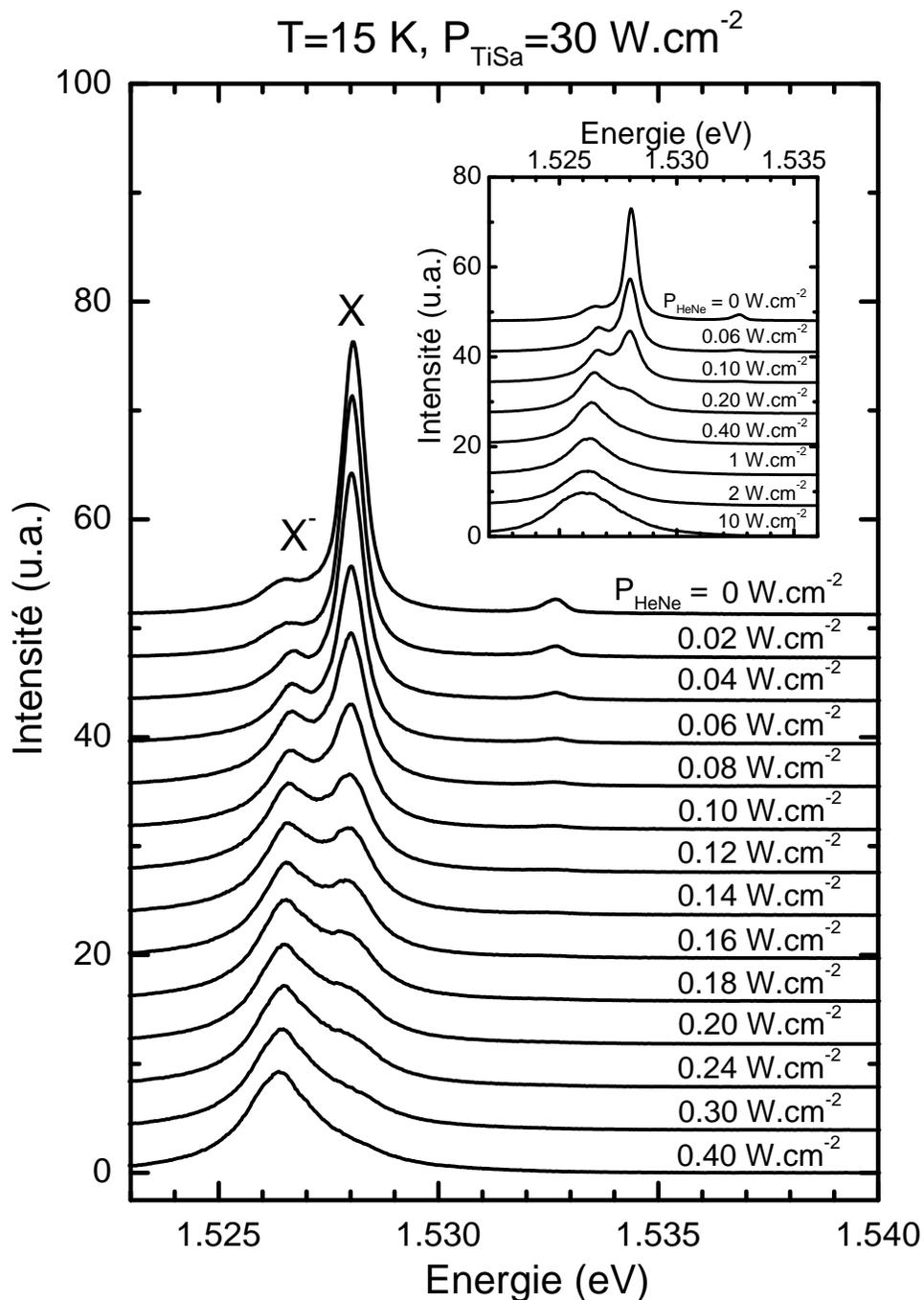


FIG. 3.5 – Photoluminescence de la zone active pour différentes puissances du laser HeNe. Une intensité constante du laser TiSa est ajoutée afin d'augmenter le signal de luminescence. $T = 15\text{ K}$, $E_{\text{HeNe}} = 1.96\text{ eV}$ et $E_{\text{TiSa}} = 1.64\text{ eV}$. Dans l'insert, la puissance du laser HeNe est variée jusqu'à $P_{\text{HeNe}} = 10\text{ W.cm}^{-2}$.

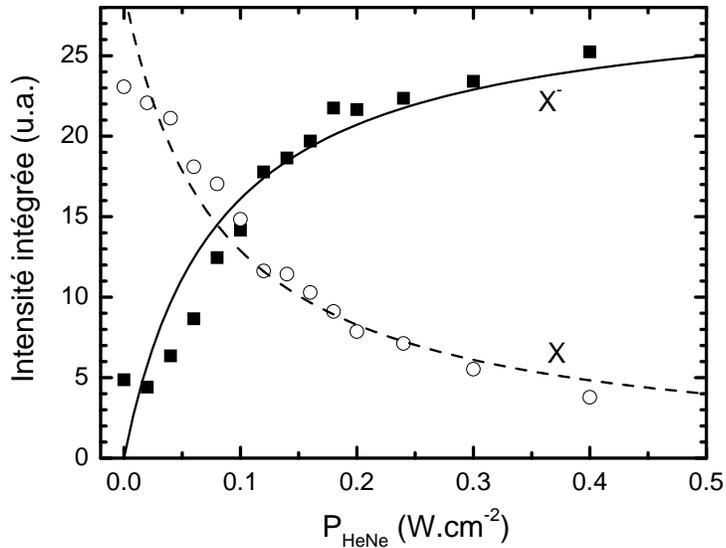


FIG. 3.6 – Intensité des raies d’exciton (X) et de trion (X^-) en fonction de la puissance du laser HeNe. $T = 15 \text{ K}$ et $P_{\text{TiSa}} = 30 \text{ W.cm}^{-2}$. Les deux courbes sont des ajustements correspondant au modèle développé au § 3.3.3.

faisceaux lasers. Le laser TiSa, de puissance $P_{\text{TiSa}} = 30 \text{ W.cm}^{-2}$ permet d’augmenter la luminescence de la zone active, tandis que la puissance du laser HeNe est variée afin d’injecter plus ou moins d’électrons.

Les spectres à basse puissance montrent deux raies fines, notées X et X^- et attribuées respectivement à la recombinaison de l’exciton et du trion, comme nous allons le voir au § 3.3.2. Nous trouvons une énergie de liaison du trion de 1.4 meV, en accord avec la littérature sur le sujet (1 meV pour un puits quantique de 250 Å [29], 1.2 à 1.3 meV pour des puits quantiques de 200 Å [37, 70]). Les largeurs de raies du trion et de l’exciton sont de 0.6 et 0.5 meV respectivement, montrant la très grande qualité de l’échantillon.

Lorsque l’on augmente la puissance du laser HeNe, l’intensité de la raie de trion augmente et celle de la raie d’exciton diminue (Figure 3.6), montrant que l’on a de plus en plus de trions dans notre système. Lorsque l’on continue d’augmenter l’intensité de ce laser, la raie haute énergie disparaît complètement, puis la raie basse énergie s’élargit fortement. A cette puissance, la densité d’électrons devient suffisamment forte pour que les interactions entre électrons et trous soient écrantées, et l’on voit alors la recombinaison d’un plasma de paires électron-trou. Ce régime est exploré plus en détails dans la partie suivante (§ 3.4).

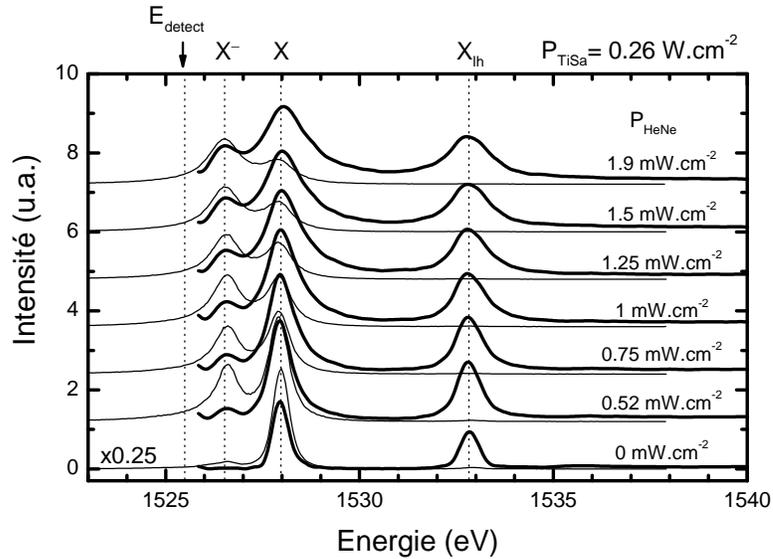


FIG. 3.7 – Photoluminescence (traits fins) et excitation de la photoluminescence (traits larges) en présence des deux faisceaux. Le spectre de luminescence correspondant à $P_{\text{HeNe}} = 0$ a été divisé par 4. $T = 4$ K. Pour l'excitation de la photoluminescence, l'énergie de détection est $E_{\text{detect}} = 1525.5$ meV.

3.3.2 Excitation de la photoluminescence

L'identification des raies est réalisée en comparant les spectres de photoluminescence à ceux d'excitation de la photoluminescence (PLE). Les spectres de PLE sont montrés sur la Figure 3.7. En l'absence du laser HeNe la raie X se retrouve sur les spectres de PLE, accompagnée des autres traits caractéristiques d'une raie excitonique, notamment l'exciton de trou léger qui forme une résonance à 5 meV de l'exciton de trou lourd. A plus haute énergie, l'absorption augmente progressivement, correspondant au continuum d'absorption du puits quantique. La raie X est donc attribuée à l'exciton.

En présence du laser HeNe, la raie notée X^- dans les spectres de luminescence se retrouve à la même énergie dans les spectres de PLE. Peu visible lorsque la puissance du laser HeNe est faible, l'intensité de la raie X^- augmente avec la puissance du laser HeNe. Sur la figure 3.8 nous montrons que l'intensité normalisée de cette raie est proportionnelle à P_{HeNe} . La force d'oscillateur de la raie X^- est donc proportionnelle à P_{HeNe} .

Ce résultat est compatible avec l'attribution de cette raie au trion. En effet, on peut montrer que la force d'oscillateur du trion est linéaire avec la densité d'électrons [28]. Ceci peut se comprendre par le raisonnement simple suivant. La création d'un trion par absorption du faisceau laser correspond à

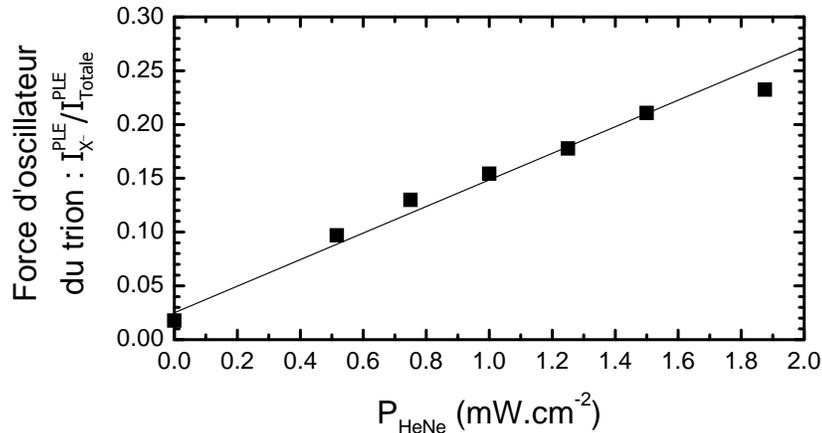


FIG. 3.8 – Dans les spectres d’excitation de photoluminescence de la figure 3.7, l’aire intégrée de la raie de trion est normalisée par l’aire totale du spectre. Le résultat, tracé ici, est proportionnel à la force d’oscillateur du trion.

la transition, notée $(e, k_{\parallel}) \rightarrow (X^-, k_{\parallel})$, entre l’état où un électron de vecteur d’onde k_{\parallel} est présent dans le puits quantique et l’état où l’électron a été remplacé par un *trion* de même vecteur d’onde. Lorsque le puits quantique ne contient pas d’électrons, l’état initial est vide et l’absorption à l’énergie de la transition trionique est nulle. Si l’on tient compte des facteurs d’occupation dans les états (e, k_{\parallel}) et (X^-, k_{\parallel}) , la probabilité d’absorption devient proportionnelle à $f_{e, k_{\parallel}} \cdot (1 - f_{X^-, k_{\parallel}})$. Le terme $(1 - f_{X^-, k_{\parallel}})$ provient du principe de Pauli pour le trion : si l’état (X^-, k_{\parallel}) contient déjà un trion, l’absorption sera nulle car il est impossible d’en créer un deuxième dans le même état. Dans les conditions expérimentales étudiées ici, la densité de trions reste faible, de sorte que l’on peut raisonnablement faire l’approximation $f_{X^-, k_{\parallel}} \ll 1$. La probabilité d’absorption et la force d’oscillateur de la transition sont donc proportionnelles à $f_{e, k_{\parallel}} \propto n_e$. Le calcul du coefficient de proportionnalité entre la force d’oscillateur du trion et la densité d’électrons a été réalisé à partir des équations de Bloch des semiconducteurs dans le cas d’un fil quantique [28], mais n’est malheureusement pas disponible à l’heure actuelle pour un puits quantique. Pour conclure, la variation en intensité de la raie X^- avec P_{HeNe} , ainsi que sa position en énergie permettent de l’attribuer au trion.

Il est étonnant de voir apparaître la raie X^- même en l’absence du laser HeNe, et ce comportement a déjà été observé sur des puits quantiques de type mixte par d’autres groupes [70]. L’échantillon étant nominaleme nt non dopé, la formation de trions est en effet très peu probable. Une étude en fonction de la puissance du laser TiSa (voir la Figure 3.9 (a), où nous varions

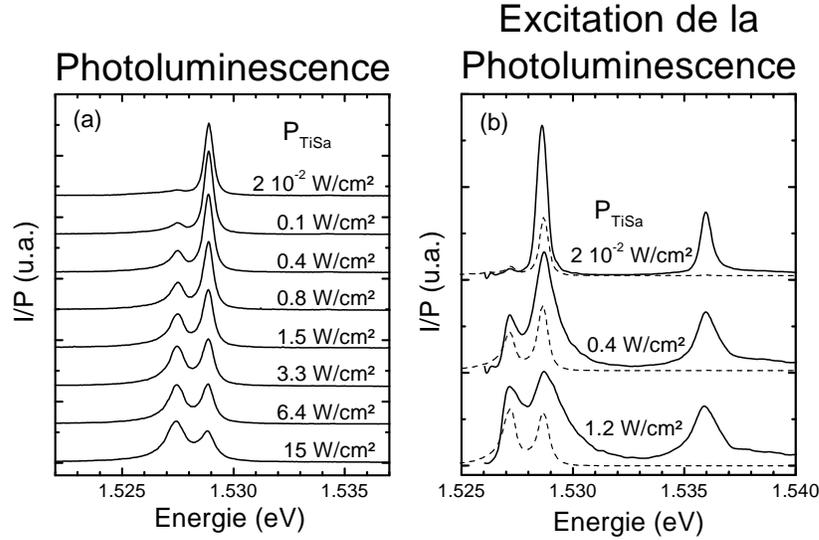


FIG. 3.9 – Variation de l'intensité des raies de trion et d'exciton avec la puissance du laser TiSa. $P_{HeNe} = 0$. Les spectres sont normalisés à la puissance d'excitation. $T=4K$. Pour la figure (b), les spectres en lignes tiretées sont les spectres de photoluminescence et les spectres en lignes continues sont ceux d'excitation de la photoluminescence, correspondant à une énergie de détection $E_d = 1525.6$ meV.

P_{TiSa} en gardant $P_{HeNe} = 0$) montre que la raie X^- disparaît totalement lorsque l'on diminue la puissance. Cette raie a donc un comportement non linéaire avec la puissance du laser TiSa.

Nous avons envisagé deux possibilités pour expliquer le comportement de cette raie : soit elle est due à des biexcitons formés dans le puits quantique large (dans cette hypothèse, l'énergie de liaison des biexcitons est la même que celle des trions et les deux raies sont confondues), soit le laser TiSa injecte lui aussi des électrons. Les spectres d'excitation de la photoluminescence de la Figure 3.9 (b), réalisés en maintenant $P_{HeNe} = 0$, nous permettent d'éliminer la première hypothèse. Si la formation d'un biexciton était possible, on devrait en effet observer une résonance lorsque le laser est exactement entre le pic de luminescence de l'exciton et celui du biexciton, et correspondant à la situation où deux photons sont absorbés pour former un biexciton. Or nous voyons sur ces spectres deux résonances séparées par 1.4 meV, soit exactement la même énergie que l'énergie de liaison du trion. D'autre part, dans un autre échantillon contenant un puits quantique large mais pas de puits quantique étroit, et de la même quantité que celui étudié ici, nous n'observons pas de raie à l'énergie du trion. Il existe donc bien une injection d'électrons par le laser TiSa.

La quantité d'électrons injectée par le laser TiSa reste toutefois très faible en comparaison avec celle injectée par le laser HeNe. Si l'on regarde par exemple à quelle puissance les intensités des raies X et X^- sont égales, on obtient $P_{HeNe} \approx 0.5 \text{ mW.cm}^{-2}$ lorsque les électrons sont injectés par le laser HeNe et $P_{TiSa} \approx 3 \text{ W.cm}^{-2}$ lorsqu'ils sont injectés par le laser TiSa, soit une efficacité 6000 fois plus faible du laser TiSa pour injecter des électrons. On est donc amené à penser à une absorption à deux photons de ce laser dans le puits quantique étroit. À cause de l'injection d'électrons par le faisceau du laser TiSa, la densité d'électrons et celle d'excitons ne peuvent plus être réglées de manière indépendante. Nous verrons par la suite que ce problème peut être résolu en travaillant à suffisamment haute température (15 K).

3.3.3 Modélisation des intensités de trion et d'exciton

Nous modélisons les spectres de luminescence à basse densité des figures 3.5 et 3.6 en supposant l'équilibre thermodynamique entre excitons et trions donné par la loi d'action de masse [30, 70, 111] :

$$\begin{aligned} X + e^- &\rightleftharpoons X^- \\ \frac{n_X n_e}{n_{X^-}} &= K(T) = 4 \frac{\Lambda_{X^-}^2}{\Lambda_X^2 \Lambda_e^2} \exp(-B_{X^-}/k_B T). \end{aligned} \quad (3.6)$$

Les différents Λ entrant dans cette équation sont les longueurs d'onde thermiques dépendant de la masse des particules : $\Lambda = \hbar \sqrt{2\pi/mk_B T}$, et le facteur 4 provient de la prise en compte des états de spin du système. La constante d'équilibre est représentée sur la figure 3.11 et vaut :

$$K(T) = \frac{2k_B T}{\pi \hbar^2} \frac{m_e m_X}{m_{X^-}} \exp(-B_{X^-}/k_B T), \quad (3.7)$$

où l'énergie $B_{X^-} = 1.4 \text{ meV}$ est l'énergie de liaison du trion.

En régime stationnaire, les densités de trions et d'excitons sont reliées aux intensités de photoluminescence I_{X^-} et I_X par :

$$I_X = \frac{n_X}{\tau_X}, \quad I_{X^-} = \frac{n_{X^-}}{\tau_{X^-}}, \quad (3.8)$$

où τ_X et τ_{X^-} sont les temps de vie radiatif de l'exciton et du trion. Ces temps de vie ont été mesurés grâce à la caméra à balayage de fente, et valent $\tau_X = 700 \text{ ps}$ et $\tau_{X^-} = 300 \text{ ps}$ (la mesure est présentée dans le chapitre 5). À l'aide des équations 3.6 et 3.8, nous pouvons alors mesurer la densité d'électrons :

$$n_e = K(T) \frac{n_{X^-}}{n_X} = K(T) \frac{\tau_{X^-}}{\tau_X} \frac{I_{X^-}}{I_X}. \quad (3.9)$$

La figure 3.10 montre le rapport des intensités de luminescence déduit des spectres expérimentaux à $T = 15 \text{ K}$, ainsi que la mesure de la densité

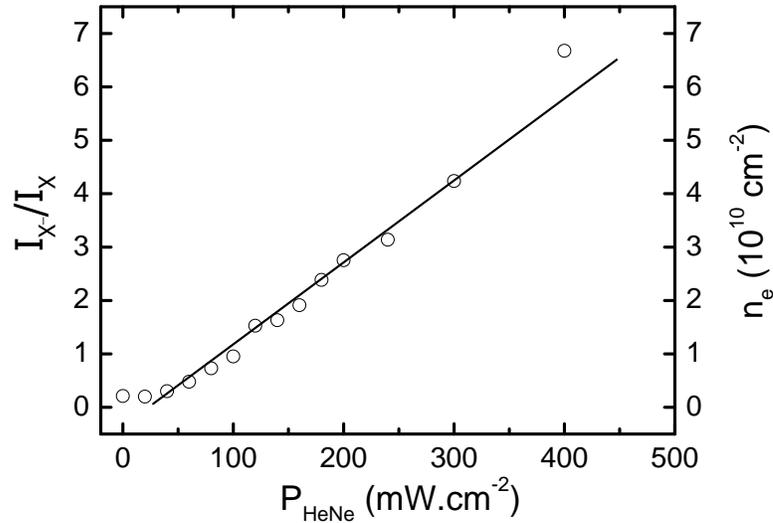


FIG. 3.10 – Rapport des intensités des raies X et X⁻ en fonction de la puissance du laser HeNe. $T = 15 \text{ K}$ et $P_{\text{TiSa}} = 30 \text{ W.cm}^{-2}$.

d'électrons en fonction de P_{HeNe} . Nous voyons que, au-dessus de $P_{\text{HeNe}} = 50 \text{ mW.cm}^{-2}$, n_e est proportionnelle à la puissance du laser HeNe et vaut :

$$n_e(\text{cm}^{-2}) = 1.4 \times 10^8 P_{\text{HeNe}}(\text{mW.cm}^{-2}). \quad (3.10)$$

La proportionnalité entre ces deux grandeurs signifie que dans cette gamme de puissance :

- l'injection d'électrons par le laser TiSa est négligeable,
- n_{X^-} est négligeable devant n_e . En effet, la formation de X⁻ nécessite un électron supplémentaire par rapport à celle de X, et tend à diminuer n_e .

Comme nous le voyons sur la figure 3.10, ces propriétés sont d'autant mieux vérifiées que la puissance du laser HeNe est importante.

À $T = 4 \text{ K}$, la constante d'équilibre $K(T)$ vaut $K = 2.8 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Toutefois à cette température, K varie beaucoup avec T : à 6 K , la constante K est déjà 6 fois plus importante et vaut $K = 1.6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ (cf. figure 3.11). En conséquence, les mesures de densité électronique sont beaucoup plus incertaines et varient entre

$$n_e(\text{cm}^{-2}) = 8 \times 10^8 P_{\text{HeNe}}(\text{mW.cm}^{-2}), \quad (3.11)$$

$$\text{et } n_e(\text{cm}^{-2}) = 5 \times 10^9 P_{\text{HeNe}}(\text{mW.cm}^{-2}). \quad (3.12)$$

L'analyse des raies de photoluminescence X/X⁻ ne permet donc de mesurer la densité d'électrons de manière fiable que lorsque la température est suffisamment élevée.

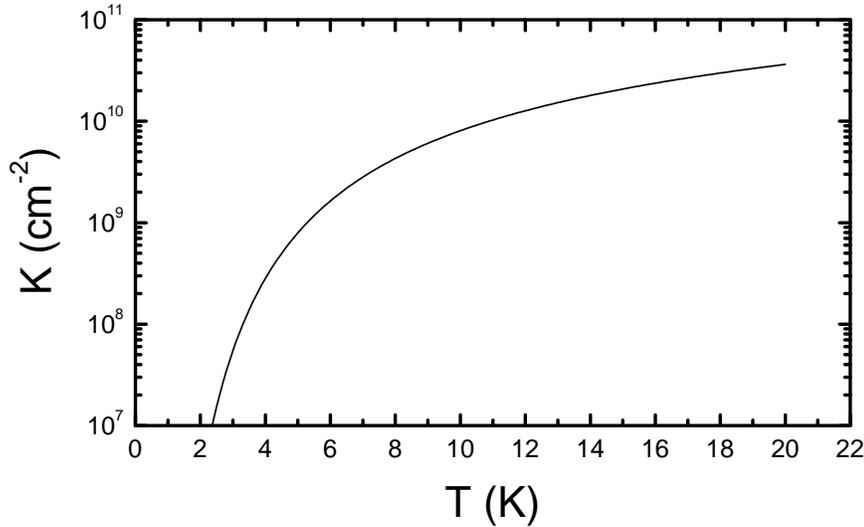


FIG. 3.11 – Variation avec la température de la constante d'équilibre entre excitons et trions.

Pour aller plus loin dans l'analyse des intensités de photoluminescence, nous supposons que l'intensité totale, $I_{tot} = I_X + I_{X^-}$ est une constante fixée par la puissance du laser TiSa. Nous négligeons donc toutes les variations de l'intensité totale qui pourraient provenir de la présence du faisceau laser HeNe. À partir des relations 3.9 et 3.10, nous trouvons que

$$n_X = \frac{\tau_X}{1+x} I_{tot}, \quad I_X = \frac{1}{1+x} I_{tot}, \quad (3.13)$$

$$n_{X^-} = \frac{x \tau_{X^-}}{1+x} I_{tot}, \quad I_{X^-} = \frac{x}{1+x} I_{tot}, \quad (3.14)$$

où

$$x = \frac{\tau_X}{\tau_{X^-}} \frac{n_e}{K(T)} = 1.5 \times 10^{-2} P_{HeNe} (\text{mW.cm}^{-2}). \quad (3.15)$$

Nous avons représenté n_X et n_{X^-} sur la figure 3.12(a), et I_X et I_{X^-} sur la figure 3.12(b). Nous voyons que ce modèle est en bon accord avec les mesures expérimentales de I_X et de I_{X^-} issues des spectres de photoluminescence. Pour conclure sur les apports de notre modélisation des intensités des raies, notons que celle-ci nous permet d'une part de vérifier qu'excitons et trions sont bien en équilibre, et d'autre part de mesurer la densité d'électrons tout en vérifiant que celle-ci est bien proportionnelle à P_{HeNe} .

3.4 Estimation de n_e à forte densité

Nous passons maintenant à l'étude de la photoluminescence lorsque le gaz d'électrons est dégénéré.

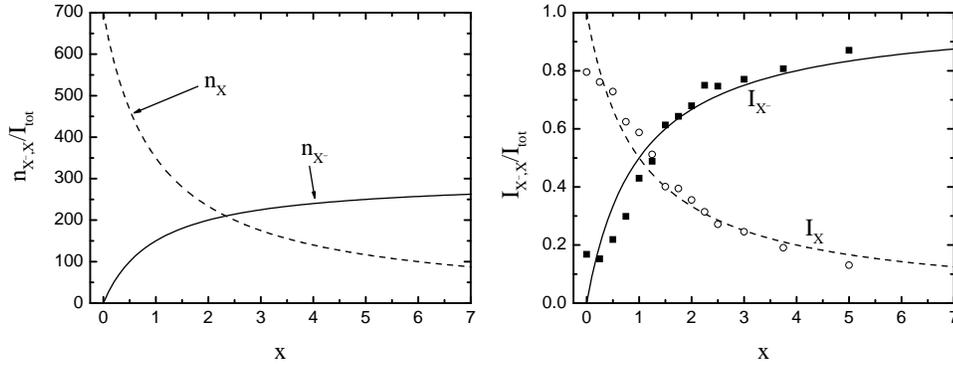


FIG. 3.12 – (a) : Variation des densités d'excitons et de trions et (b) : variation de leurs intensités de luminescence lorsque l'on augmente la puissance du laser HeNe.

3.4.1 Description des spectres de luminescence

La Figure 3.13 montre l'évolution des spectres de photoluminescence à $T = 2\text{ K}$ en fonction de P_{HeNe} . Ces spectres ont été obtenus en collaboration avec B. JUSSERAND, qui a également analysé le signal Raman provenant de la diffusion du faisceau laser TiSa. Cette analyse est présentée plus loin dans le chapitre et comparée à une analyse des raies de luminescence. Sur la figure, les spectres de photoluminescence sont tracés en échelle logarithmique de manière à faire ressortir leur forme particulière : un flanc basse énergie caractérisé par une pente et un flanc haute énergie caractérisé par deux pentes. La valeur de ces trois pentes reste sensiblement inchangée lorsque l'on varie la puissance du laser HeNe, et c'est essentiellement la largeur de la raie qui augmente avec P_{HeNe} .

La photoluminescence des puits quantiques en présence d'un gaz d'électrons de forte densité a été étudiée de manière extensive à la fin des années 1980 sur des échantillons à dopage chimique. Les trois pentes que nous observons sont donc aujourd'hui bien comprises. Pour les expliquer, la Figure 3.14 représente schématiquement la structure de bande du puits large et montre la recombinaison verticale d'un électron d'énergie E_e et d'un trou d'énergie E_t en un photon d'énergie $E = E_g + E_e + E_t$ et de vecteur d'onde négligeable. Dans le régime que nous considérons, la densité d'électrons injectés dans le puits quantique large est suffisante pour que les excitons soient écrantés. Le régime de recombinaison bande à bande est donc établi et le niveau de Fermi des électrons E_f est à l'intérieur de la bande de conduction. Le flanc basse énergie de la raie de photoluminescence correspond à une énergie de transition E telle que $E \simeq E_g$. On a alors $E_e \simeq E_t \simeq 0$. Le flanc n'est pas abrupt à cause de l'élargissement inhomogène du puits quantique. Tant que E_e reste inférieure à E_f , les facteurs d'occupation des niveaux électroniques

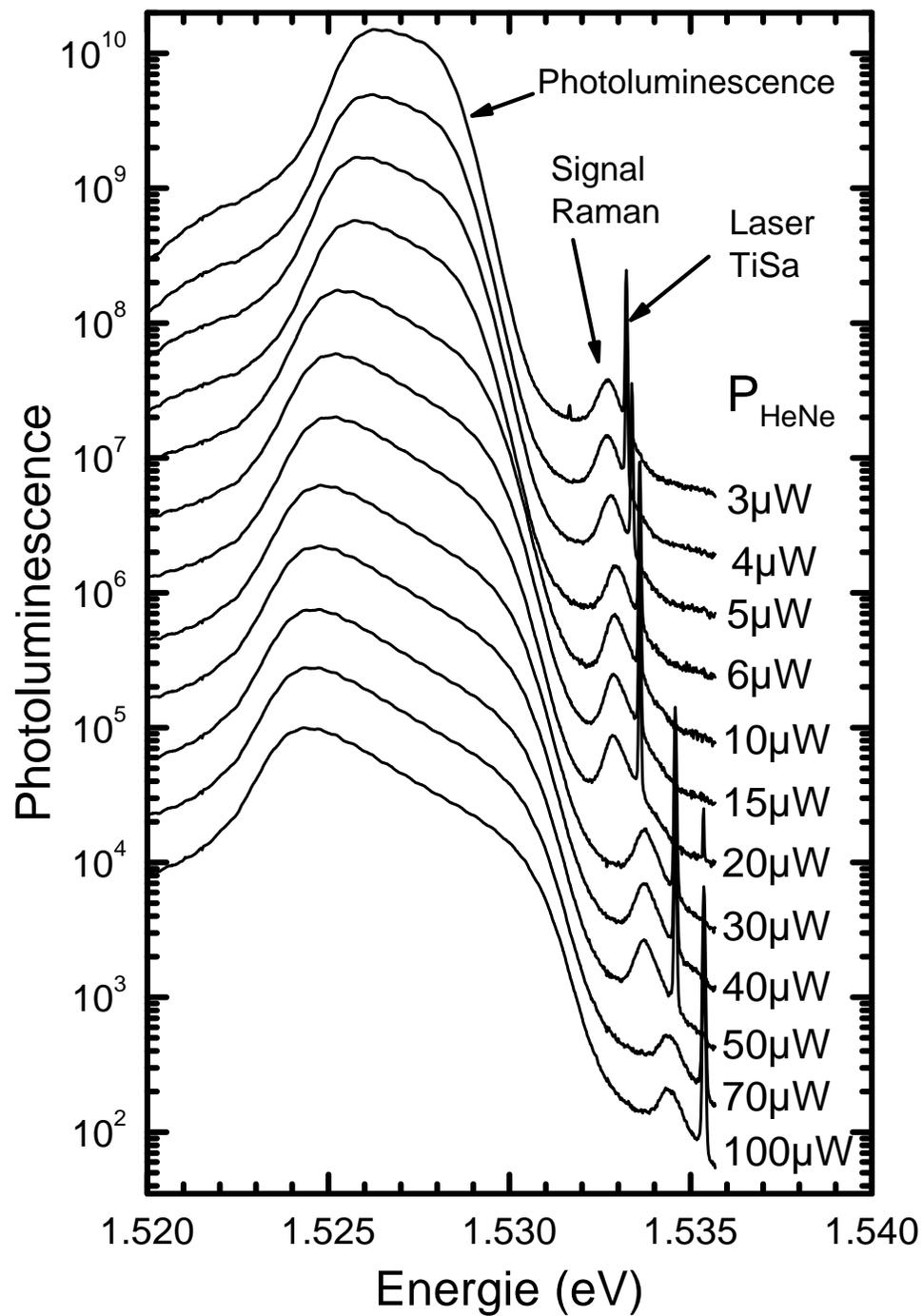


FIG. 3.13 – Photoluminescence de la zone active pour différentes puissances du laser hélium néon à $T = 2\text{K}$. Les spectres ont été décalés pour la clarté.

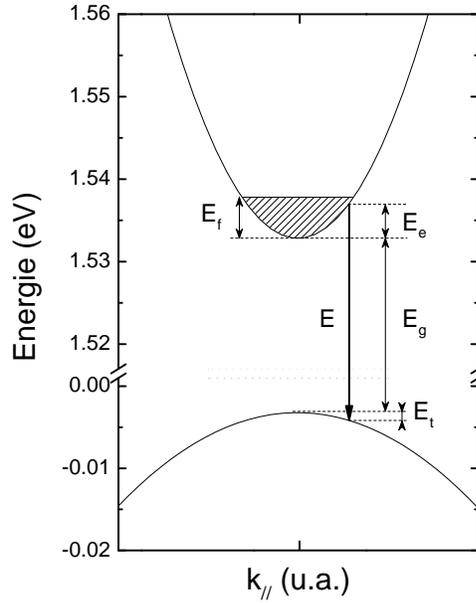


FIG. 3.14 – Schématisation des bandes de conduction et de valence dans le puits large. Les niveaux électroniques sont peuplés jusqu'au niveau de Fermi et peuvent se recombiner avec les trous présents en faible densité.

sont quasiment égaux à 1, et la variation du signal avec l'énergie correspond à la baisse du nombre de trous disponibles pour la recombinaison (la densité de trous est trop faible pour faire ressortir leur caractère fermionique et la distribution de leur population est boltzmanienne). Enfin, la troisième pente survient lorsque l'on a dépassé le niveau de Fermi. La population des électrons ainsi que le signal diminuent alors rapidement. On peut dès lors interpréter la largeur de plus en plus grande de ces spectres par une augmentation similaire de l'énergie de Fermi.

3.4.2 Modélisation des formes de raie à forte densité

Description du modèle

Nous modélisons donc la forme des spectres de photoluminescence selon un modèle issu de la référence [17] : le signal de luminescence à l'énergie E provient de la recombinaison d'électrons et de trous de vecteurs d'onde opposés k et $-k$, où k est tel que

$$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_c} + E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_v} = E \quad (3.16)$$

où m_c et m_v sont les masses effectives des électrons et des trous respectivement.

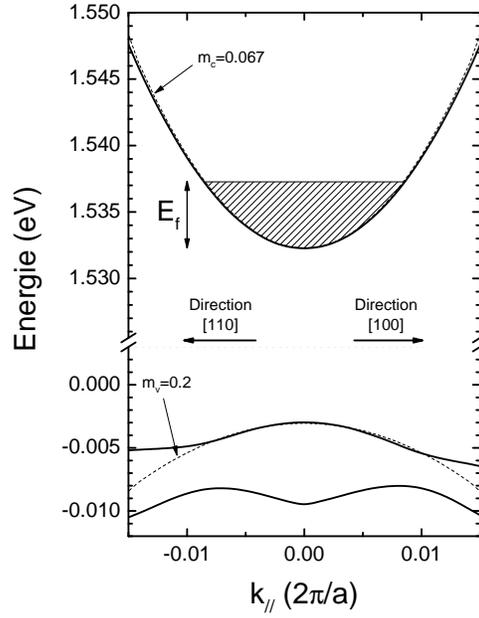


FIG. 3.15 – Dispersion calculée par J. M. JANCU par un modèle de liaisons fortes. Les lignes tiretées correspondent à des dispersions paraboliques.

Le calcul de la structure de bande par un modèle de liaisons fortes, réalisé par J. M. JANCU, (voir Figure 3.15) permet de valider notre hypothèse de bande parabolique pour les trous lourds au voisinage de $k_{||} = 0$. Les masses effectives considérées sont alors : $m_c = 0.067 m_0$ et $m_v = 0.2 m_0$, où m_0 est la masse de l'électron libre. Nous avons cependant constaté que les spectres de luminescence ne pouvaient être ajustés que si l'on considère une masse du trou lourd plus importante que celle calculée théoriquement. Pour cette raison, on note $m_v = \alpha \times 0.2 m_0$, où α est un paramètre ajustable qui sera déterminé par l'ajustement des spectres. α sera toujours trouvé supérieur à 1, ce que nous interprétons en terme de localisation des trous à basse température (tant que $k_B T$ est inférieur au potentiel de localisation des trous).

En résolvant l'équation 3.16 par rapport à k , on trouve qu'une transition à l'énergie E fait intervenir des électrons et des trous aux énergies suivantes :

$$E_e = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c} = \frac{m_v}{m_c + m_v} (E - E_g), \quad (3.17)$$

$$E_t = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_v} = \frac{m_c}{m_c + m_v} (E - E_g). \quad (3.18)$$

Pour les faibles valeurs de k considérées ici, l'élément de matrice de l'interaction dipolaire électrique ne dépend pas de k , et le taux de recombinaison

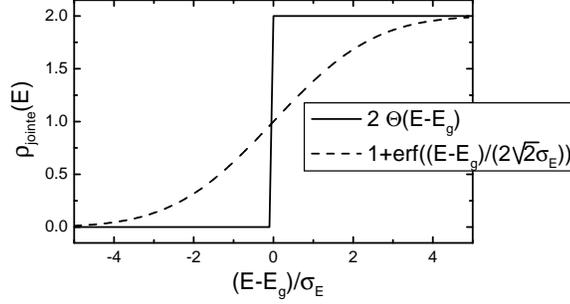


FIG. 3.16 – Densité d'états jointe en unité arbitraire dans deux cas : la ligne pleine correspond à un puits quantique parfaitement lisse, la ligne tiretée correspond à un puits quantique présentant de la rugosité aux interfaces, donnant lieu à un élargissement inhomogène σ_E .

par émission spontanée est proportionnel à :

$$I(E) \propto \rho_{\text{jointe}}(E) f_e(E_e) f_t(E_t) \quad (3.19)$$

Ici, $\rho_{\text{jointe}}(E)$ désigne la densité d'états jointe, c'est à dire le nombre de transitions optiques par unité d'énergie et de surface du puits quantique, et f_e et f_t sont les facteurs d'occupation des états d'électrons et de trous. En l'absence de désordre d'interface ou d'alliage, le puits quantique est véritablement invariant sous l'action des translations dans le plan du puits quantique et la densité d'états jointe $\rho_{\text{jointe}}(E)$ est proportionnelle à $\Theta(E - E_g)$, Θ désignant la fonction de Heaviside.

Si en revanche les interfaces sont rugueuses, le gap peut être modélisé par une variable aléatoire suivant une loi de probabilité gaussienne, d'écart-type $2\sigma_E$ et dont la moyenne est notée E_g . La densité d'états jointe $\rho_{\text{jointe}}(E)$ sera alors donnée par la convolution de la fonction Θ valable pour un puits parfaitement lisse avec cette loi de probabilité gaussienne. Le résultat est proportionnel à $1 + \text{erf}\left(\frac{E - E_g}{2\sqrt{2}\sigma_E}\right)$ qui est une primitive de la gaussienne (voir Figure 3.16 et Ref [17]). Nous supposons qu'un équilibre thermodynamique s'est établi entre les différents points de l'échantillon correspondant à différentes valeurs du gap. Autrement dit, nous supposons que le potentiel chimique est constant dans la structure. La population d'électrons peut alors être décrite par une distribution de Fermi-Dirac, de température T et de potentiel chimique μ , tandis que la faible densité de trous est décrite par une distribution de Boltzmann de même température. Finalement, la forme des spectres de luminescence peut être décrite avec la fonction suivante [40] :

$$I(E) = A \left[1 + \text{erf}\left(\frac{E - E_g}{2\sqrt{2}\sigma_E}\right) \right] \frac{1}{\exp\left(\frac{m_c}{m_c + m_v} \frac{E - E_g}{k_B T}\right)} \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{\frac{m_v}{m_c + m_v} (E - E_g) - \mu}{k_B T}\right)} \quad (3.20)$$

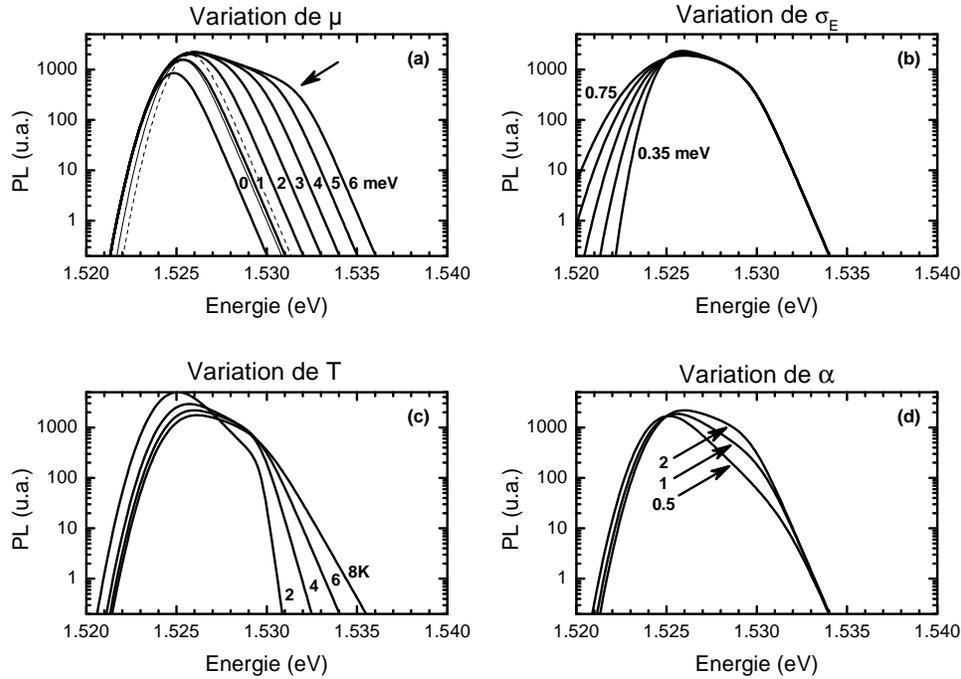


FIG. 3.17 – Spectres simulés pour différentes valeurs des paramètres de l'équation 3.20. (a) Variation du potentiel chimique des électrons de 0 à 6 meV. Les spectres en traits fins et en tiretés sont translatés à partir du spectre correspondant à un potentiel chimique nul. (b) Variation de σ_E de 0.35 à 0.75 meV par pas de 0.1 meV. (c) Variation de T de 2 à 8 K. (d) Variation de α de 0.5 à 2.

Notons que l'on pourrait envisager une autre approche du désordre aux interfaces, qui serait de calculer le spectre correspondant à un puits quantique parfaitement lisse de gap E_g , puis de convoluer ce spectre par la loi de probabilité gaussienne de E_g . Cette approche correspondrait au cas où l'on n'a pas d'équilibre thermodynamique entre les régions d'épaisseurs différentes du puits quantique. A l'inverse, notre approche suppose implicitement un parfait équilibre entre ces régions, puisque c'est *la densité d'états* que nous convoluons avec la loi de probabilité, avant de prendre un potentiel chimique et une température identiques dans tout le puits quantique. Étant donné la bonne qualité de notre échantillon, la localisation des porteurs est faible et il est tout à fait raisonnable de supposer que ceux-ci s'équilibrent rapidement dans le plan des couches.

Simulation de différentes conditions

Afin de comprendre qualitativement l'effet des différents paramètres de l'expression 3.20 avec laquelle nous modélisons les spectres de photoluminescence, nous envisageons ici l'effet d'une variation de chacun d'entre eux. Notons qu'il est nécessaire de garder le gap E_g comme paramètre variable afin de rendre compte de la renormalisation du gap en présence d'électrons. Expérimentalement, on trouve que $E_g \simeq E_g^0 - 0.6\mu$.

A	E_g	μ	σ_E	T	α
10000	1.525 meV	4 meV	0.45 meV	6 K	2

TAB. 3.1 – Valeurs “par défaut” des paramètres du modèle, correspondant à la courbe de référence de la Figure 3.17.

L'effet des autres paramètres est détaillé sur la Figure 3.17. En partant d'une même courbe de base, correspondant aux valeurs résumées dans le Tableau 3.1, nous avons fait varier les paramètres un par un. Sur la Figure 3.17(a), le potentiel chimique μ est varié de 0 à 6 meV par pas de 1 meV. Comme pour les spectres expérimentaux de la Figure 3.13, une rupture de pente est observée, indiquée par une flèche sur la figure. Cette rupture de pente survient lorsque l'énergie E_e des électrons est égale à μ . En effet, lorsque E_e dépasse μ , les facteurs d'occupation décroissent exponentiellement de 1 à 0 comme $e^{-E_e/k_B T}$, donnant au spectre de photoluminescence une pente plus forte que dans le cas $E_e < \mu$.

L'effet de σ_E est montré sur la Figure 3.17(b). Ce paramètre rend compte du désordre d'alliage et du désordre aux interfaces du puits quantique et permet de donner une largeur finie au flanc basse énergie de la raie de photoluminescence : plus σ_E est important, plus le flanc basse énergie sera large.

La température T contrôle la netteté de la rupture de pente au niveau de Fermi (Figure 3.17(c)) : plus elle est élevée, moins la rupture de pente sera nette. Ce comportement est dû au fait que la distribution de Fermi-Dirac ne se distingue d'une distribution de Boltzmann que lorsque $\mu \gg k_B T$. Ainsi, si l'on garde μ constant et que l'on augmente la température, la distribution de population des électrons évolue progressivement vers une distribution de Boltzmann qui n'a pas le comportement en “marche d'escalier” de la distribution de Fermi autour de $E_e = \mu$, et la rupture de pente disparaît progressivement. Ce comportement est très général et se retrouvera dans toute mesure de la densité d'électrons basée sur le potentiel chimique (Moss-Burstein shift en absorption, effet Raman électronique, polarisation du gaz d'électrons sous champ magnétique [4], etc. . .). Ainsi, la température des porteurs impose une limite fondamentale à toute mesure du potentiel chimique des électrons. En pratique, nous n'avons retenu que les valeurs $\mu > 2k_B T$, soit 1 meV dans les conditions de la Figure 3.17(a), sur laquelle

P_{HeNe}	A	E_g	μ	σ_E	T	α
$3 \mu W$	800000	1525.8 meV	2.1 meV	0.4 meV	4.2 K	2.15
$15 \mu W$	470000	1524.5 meV	4 meV	0.4 meV	4.3 K	2.10
$100 \mu W$	340000	1523.6 meV	5.5 meV	0.4 meV	4.3 K	2.15

TAB. 3.2 – Valeurs des paramètres de l’ajustement pour des puissances faible, moyenne et forte du laser HeNe.

on peut vérifier que cette valeur correspond bien à la valeur minimale de μ que l’on peut distinguer de $\mu = 0$.

Enfin, α représente l’écart entre la valeur de la masse effective des trous considérée dans l’expression 3.20 et la valeur théorique égale à $0.2m_0$. Dans les spectres de photoluminescence, la masse effective et la relation de dispersion des trous affecte principalement la deuxième pente. En effet, celle-ci provient de la baisse en $\exp(-E_t/k_B T)$ du nombre de trous disponibles pour la recombinaison radiative. Or pour une énergie de transition E donnée, l’énergie E_t des trous impliqués dans la transition dépend de la masse comme le montre l’équation 3.18. On observe finalement sur la figure 3.17(d) l’effet suivant du paramètre α : la deuxième pente s’approche de plus en plus d’une droite horizontale lorsque α augmente.

3.4.3 Ajustement des spectres expérimentaux

La Figure 3.18 montre les spectres de photoluminescence mesurés à une température $T = 2$ K pour différentes valeurs de la densité d’électrons, ainsi que les ajustements correspondant au modèle développé précédemment. L’accord entre simulation et expérience est excellent. Les valeurs des paramètres utilisés sont résumées dans le tableau 3.2 pour trois densités d’électrons. Dans ces ajustements, σ_E est constant car le désordre du puits quantique ne change pas avec P_{HeNe} . La température des porteurs est trouvée quasiment constante et le seul paramètre variant significativement avec P_{HeNe} est le potentiel chimique μ , qui est tracé sur la Figure 3.21, page 108 en fonction de P_{HeNe} .

Nous remarquons que l’on a toujours $\alpha \sim 2$. Ceci est dû à la localisation des trous dans le potentiel de désordre induit par les fluctuations d’épaisseur du puits quantique ou le désordre d’alliage aux interfaces : une fluctuation de ce potentiel de taille latérale L rompt la symétrie de translation dans le système. Le vecteur d’onde n’est plus un bon nombre quantique et le potentiel de désordre couple des états de différents vecteurs d’onde sur un intervalle de l’ordre de $1/L$. Ce mélange augmente la masse effective comme on peut le voir dans la limite $L \rightarrow 0$, où l’on tend vers un niveau d’énergie constante, correspondant à une masse infinie. La localisation affecte moins les électrons que les trous car ces derniers sont trois fois plus lourds.

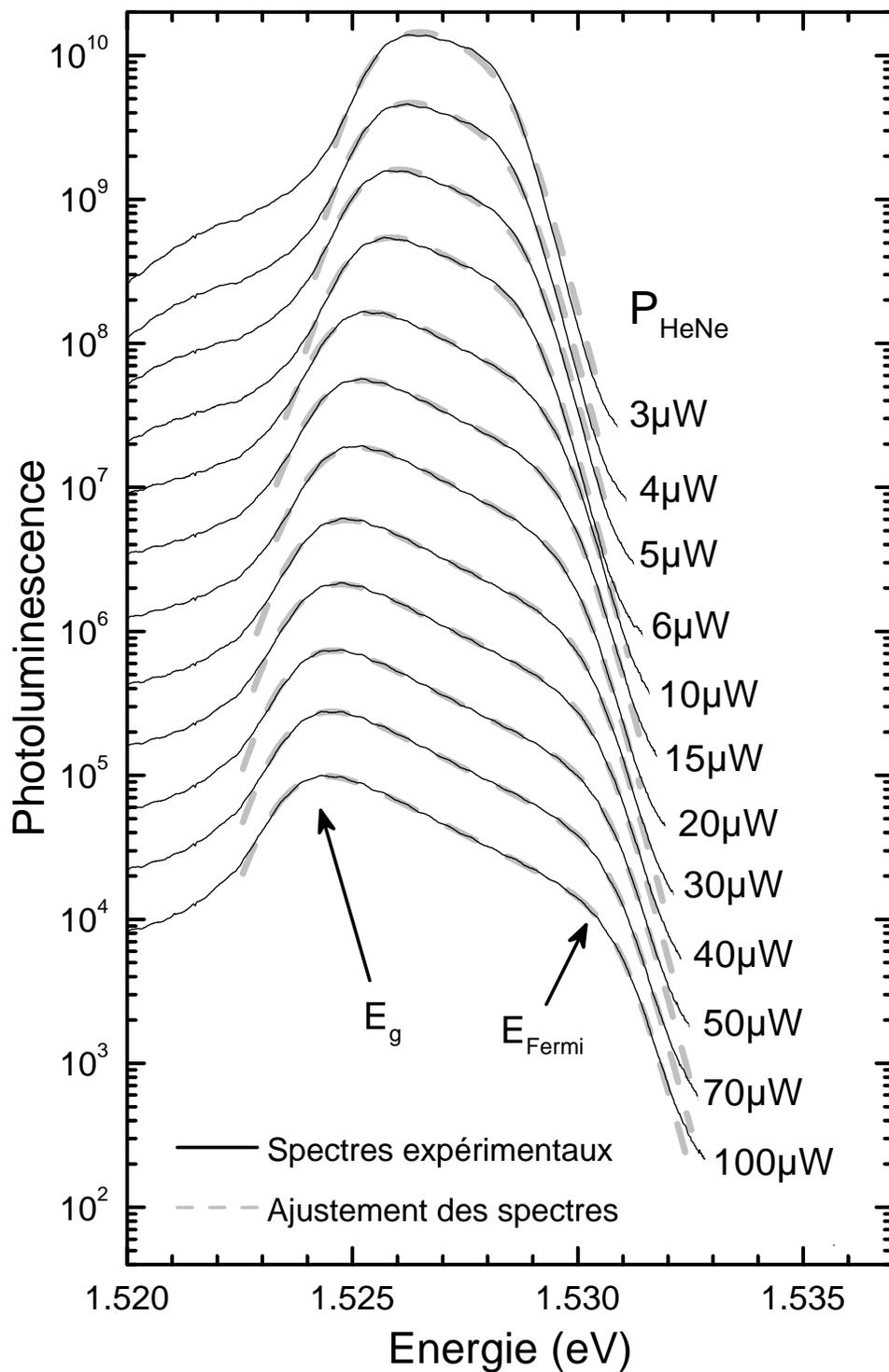


FIG. 3.18 – Spectres de photoluminescence mesurés à $T=2\text{K}$ et ajustements correspondants.

Finalement, malgré cette légère incertitude sur la structure de bande posée par la localisation latérale des trous, notre modèle permet d'extraire avec fiabilité les caractéristiques du gaz d'électrons : son niveau de Fermi et sa température.

Connaissant le potentiel chimique des électrons dans notre structure, nous pouvons alors en déduire la densité d'électrons n_e . Les deux grandeurs sont en effet liées par la condition

$$n_e = \int_0^\infty \rho_c(E) f_{\mu,T}(E) dE, \quad (3.21)$$

où $f_{\mu,T}(E)$ est la distribution de Fermi-Dirac de température T et de potentiel chimique μ . Nous avons vérifié numériquement qu'il est équivalent de prendre dans cette expression une densité d'états constante ($\sigma_E = 0$) ou de considérer la densité d'états issue de notre modèle du désordre d'alliage ($\sigma_E \neq 0$). Nous écrivons donc $\rho_c(E) = m_c/\pi\hbar^2$. Le lien entre μ et n_e est alors donné par l'équation suivante :

$$n_e = k_B T \frac{m_c}{\pi\hbar^2} \ln \left[1 + e^{\frac{\mu}{k_B T}} \right]. \quad (3.22)$$

Cette relation se simplifie à basse température, lorsque $\mu \approx E_{Fermi} \gg k_B T$:

$$n_e \approx \frac{m_c}{\pi\hbar^2} \mu, \quad \text{soit} \quad (3.23)$$

$$\boxed{n_e(\text{cm}^{-2}) \approx 2.8 \times 10^{10} \mu(\text{meV})}. \quad (3.24)$$

Afin de préciser la limite de validité de cette approximation, nous pouvons calculer la densité n_e pour laquelle la valeur exacte donnée par l'équation 3.22 diffèrera de plus de 10% de la valeur calculée par 3.23. La résolution de cette équation : $n_e = 1.1 m_c \mu / \pi \hbar^2$ donne $\mu \approx 1.8 k_B T$. Puisque nos ajustements ne sont sensibles au potentiel chimique que lorsque $\mu > 2 k_B T$, nous sommes donc toujours dans les conditions de la linéarité exprimée en 3.23.

Lorsque la puissance est augmentée, il apparaît une saturation de la densité d'électrons, qui ne peut dépasser $n_e = 1.7 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$, correspondant à $E_f = 6 \text{meV}$. Nous avons réalisé deux autres échantillons de puits quantiques de type mixte ayant la même structure nominale que l'échantillon étudié ici. Ces échantillons ont montré que la valeur de l'énergie de Fermi à la saturation varie d'un échantillon à l'autre : sur ces deux échantillons, l'un sature à $E_f = 18 \text{meV}$ et l'autre à $E_f = 30 \text{meV}$. L'origine de la saturation n'est pas comprise à ce jour.

Nous avons vu qu'à basse température, il est possible d'ajuster les spectres de photoluminescence en supposant une relation de dispersion parabolique des trous lourds seulement. À plus forte température, nous allons voir que la bande de trous légers est également peuplée, et qu'il est nécessaire de

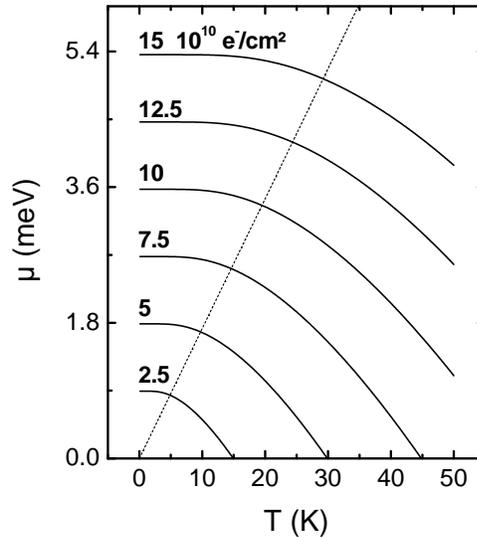


FIG. 3.19 – Potentiel chimique en fonction de la température pour les différentes densités d'électrons indiquées sur la figure. La droite tiretée ($2k_B T$) représente la valeur minimale du potentiel chimique que nous pouvons distinguer de $\mu = 0$.

considérer le détail de la bande de valence pour rendre compte des spectres de photoluminescence.

Sur la figure 3.20(a), nous montrons le spectre de photoluminescence du puits quantique à $T = 30$ K pour $P_{HeNe} = 1$ W.cm $^{-2}$. Une augmentation de l'intensité de luminescence est observée autour de 1530 meV, soit 5 meV au dessus du pic principal. On serait tenté dans un premier temps d'attribuer cette caractéristique spectrale au niveau de Fermi des électrons. La courbe (1) représente un ajustement de ce spectre par le modèle présenté précédemment en considérant une température de 30 K et un potentiel chimique $\mu = 5$ meV. À l'évidence, cet ajustement ne parvient pas à décrire le spectre de photoluminescence, montrant que la caractéristique observée à 1530 meV ne provient pas de la recombinaison au niveau de Fermi. La courbe (2) montre un ajustement considérant une distribution de Boltzmann des électrons et des trous lourds ($\mu \rightarrow -\infty$) ainsi qu'une relation de dispersion parabolique pour les trous. Cet ajustement parvient à rendre compte du spectre jusqu'à $E = 1529$ meV. Nous pensons donc que la partie située au-delà de cette énergie correspond à la recombinaison des électrons avec la bande de trous légers. Ainsi, la troisième courbe considère la relation de dispersion complète de la bande de valence calculée par un modèle de liaisons fortes. Ce modèle parvient à rendre parfaitement compte de la forme des raies de photoluminescence en considérant une distribution de

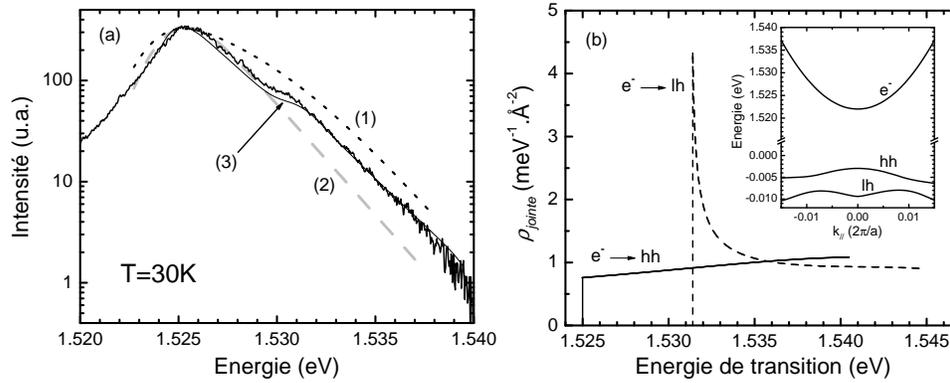


FIG. 3.20 – (a) Spectres de photoluminescence à $T = 30$ K ainsi que trois ajustements (voir dans le texte pour les détails). (b) Densité d'états jointe pour les recombinaisons vers la bande de trous lourds et vers la bande de trous légers en l'absence d'élargissement inhomogène. L'insert montre les relations de dispersion.

Boltzmann des électrons et des trous. La caractéristique spectrale observée provient donc de la recombinaison entre les électrons et les trous légers.

Pour interpréter l'importance de la recombinaison des électrons avec les trous légers, nous reportons sur la figure 3.20(b) la relation de dispersion des électrons et des trous ainsi que la densité d'états jointe pour les recombinaisons des électrons avec les trous lourds et avec les trous légers. En raison de l'anticroisement entre la branche de trous lourds et la branche de trous légers, les trous légers ont une masse *négative* et leur relation de dispersion est courbée dans le même sens que celle des électrons. Il en résulte une densité d'états jointe plus importante que pour les recombinaisons avec les trous lourds. Ainsi, malgré la plus faible force d'oscillateur des trous légers, la recombinaison des électrons avec les trous légers est clairement observée sur la relation de dispersion à $T = 30$ K.

3.4.4 Validation de la mesure par effet Raman électronique

Principe de l'effet Raman

Afin de confirmer nos mesures de densités d'électrons déduites des spectres de luminescence, B. JUSSERAND a réalisé indépendamment une analyse du signal Raman montré sur les spectres de la Figure 3.13. Comme on peut le voir sur la Figure 3.22(a), l'effet Raman électronique consiste en l'absorption d'un photon du laser et à l'émission *simultanée* d'un photon diffusé. Au cours de ce processus, le gaz d'électrons absorbe la différence d'énergie entre les deux photons : $\Delta E = E_L - E_R$. L'effet Raman est donc une méthode permettant une excitation optique de faible énergie du gaz d'électrons

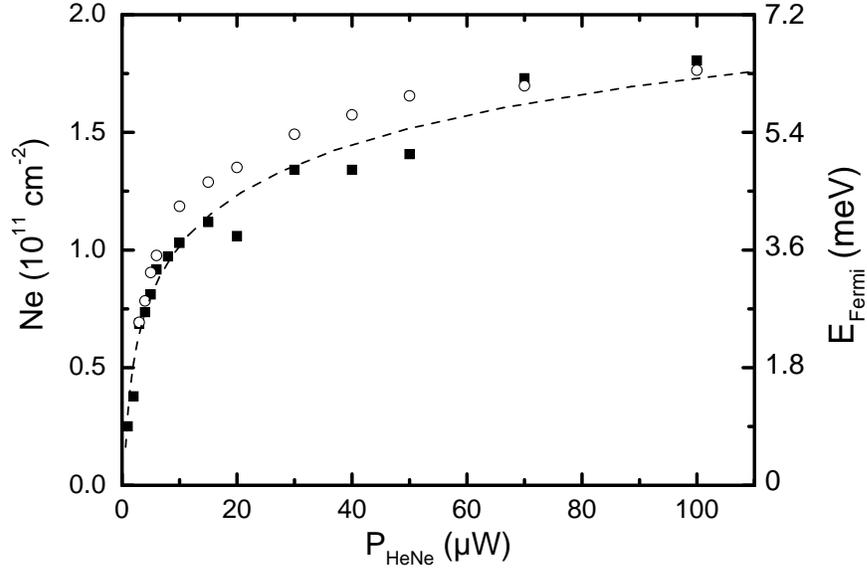


FIG. 3.21 – Comparaison des ajustements de courbe réalisés sur les spectres de la Figure 3.18 et des mesures par spectroscopie Raman électronique. La ligne tiretée est un guide pour les yeux.

(Figure 3.22(c)). Le vecteur d'onde transféré au gaz d'électrons est donné par :

$$q = (k_R + k_L)_{\parallel} \simeq \frac{2E_L}{\hbar c} \sin \theta. \quad (3.25)$$

Le vecteur d'onde diffusé est donc sélectionné par la géométrie de l'expérience (Figure 3.22(b)). L'énergie du laser E_L est fixée elle aussi par l'expérimentateur. Le signal Raman à l'énergie E_R dépend de l'occupation des états électroniques initial et final impliqués dans le processus Raman. Il s'étend sur une plage de 1 à 2 meV sous le laser (cf. Fig. 3.13) et présente un maximum d'intensité lorsque l'excitation du gaz d'électrons fait franchir le niveau de Fermi à un électron situé initialement en dessous du niveau de Fermi. La condition de résonance correspond à la situation de la Figure 3.22(c) où $\Delta E/q$ est la pente de la dispersion des électrons au niveau de Fermi de la structure. Ainsi, connaissant q et mesurant la distance ΔE entre le laser et le pic du signal Raman, nous pouvons connaître la pente au niveau de Fermi, puis le niveau de Fermi lui-même. Notons que la condition de quasi-résonance entre le laser et la transition E1LH1, reprise sur la Figure 3.22(a), est seulement utile pour augmenter l'intensité du signal Raman, et que si l'on change l'énergie du laser, le signal Raman se déplace spectralement en suivant l'énergie du laser de façon à garder ΔE constant.

Le niveau de Fermi déduit de ces mesures est représenté sur la Figure 3.21. On voit qu'il est identique aux mesures précédentes faites à partir

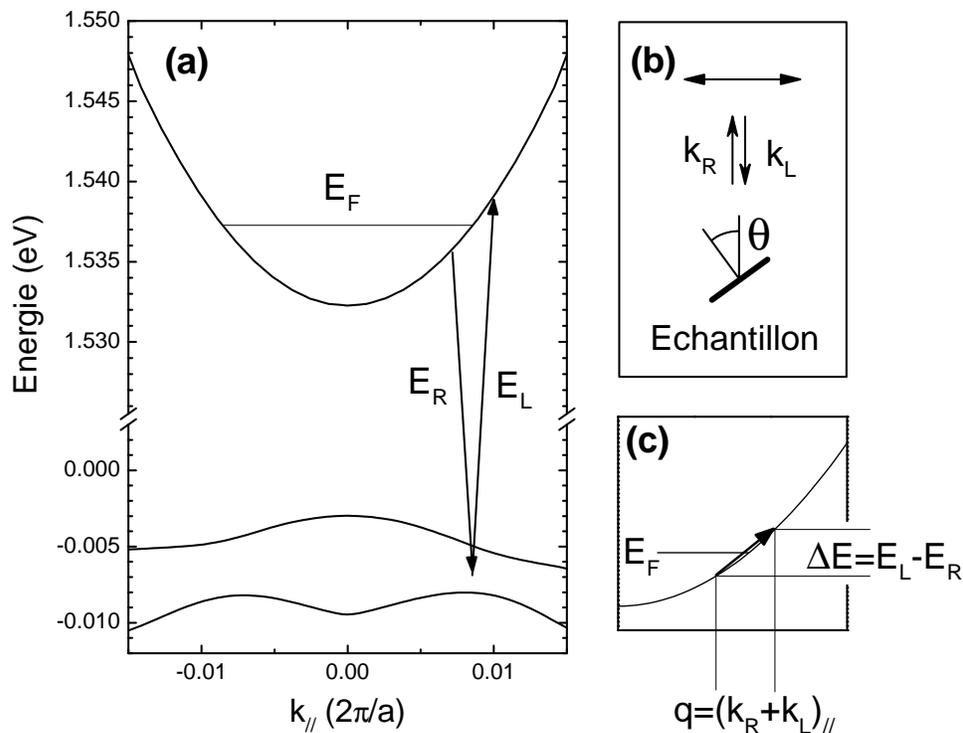


FIG. 3.22 – Principe de l’effet Raman électronique. Au cours de la diffusion, un photon à l’énergie du laser E_L est absorbé et un photon est émis à l’énergie E_R . La différence d’énergie entre les deux photons, $\Delta E = E_L - E_R$, est transmise au gaz d’électrons.

des spectres de luminescence, ce qui permet une confirmation croisée de ces deux méthodes. Ainsi, nous avons pu, par deux méthodes différentes, mesurer la densité d’électrons optiquement injectée en fonction de la puissance du laser HeNe.

3.4.5 Bilan : relation entre n_e et P_{HeNe}

Nous savons déjà, grâce à l’analyse des spectres de photoluminescence et de PLE présentée dans la partie 3.3, que dans le régime basse densité la densité d’électrons est proportionnelle à la puissance du laser HeNe. À forte densité ($\mu > 2 k_B T$), une description précise de la forme des spectres de luminescence nous permet de mesurer le niveau de Fermi du gaz d’électrons que nous injectons et d’en mesurer la densité. Pour mesurer la densité d’électrons à basse densité, nous effectuons une extrapolation linéaire des mesures effectuées à plus forte densité comme le montre la figure 3.23. À

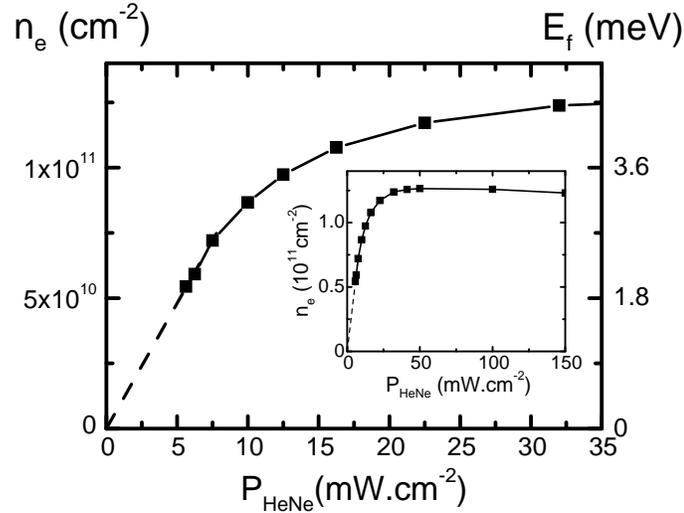


FIG. 3.23 – Densités d'électrons et énergies de Fermi en fonction de la puissance dans l'échantillon gravé à $T = 4$ K. L'insert montre la saturation à des puissances plus fortes du laser HeNe.

$T = 4$ K, nous trouvons finalement

$$\boxed{n_e(\text{cm}^{-2}) = 9 \times 10^9 P_{\text{HeNe}}(\text{mW.cm}^{-2})}. \quad (3.26)$$

3.5 Estimation de n_e en cavité et à différentes températures

Jusqu'ici, nous avons présenté uniquement des mesures faites sur le puits quantique situé hors de la cavité. Le comportement du puits quantique à l'intérieur de la cavité fait l'objet du premier paragraphe de cette section (§ 3.5.1). Outre l'absorption du laser HeNe dans les miroirs de la cavité, nous montrons que le trion peut entrer en régime de couplage fort avec le mode de la cavité lorsque la densité est augmentée. Puisque la force d'oscillateur du trion est proportionnelle à la densité d'électrons [29], la mesure du dédoublement de Rabi entre le mode de la cavité et le trion fournit un nouveau moyen de mesurer la densité d'électrons. Dans le § 3.5.2, cette technique est appliquée à la mesure de la densité d'électrons en fonction de la température.

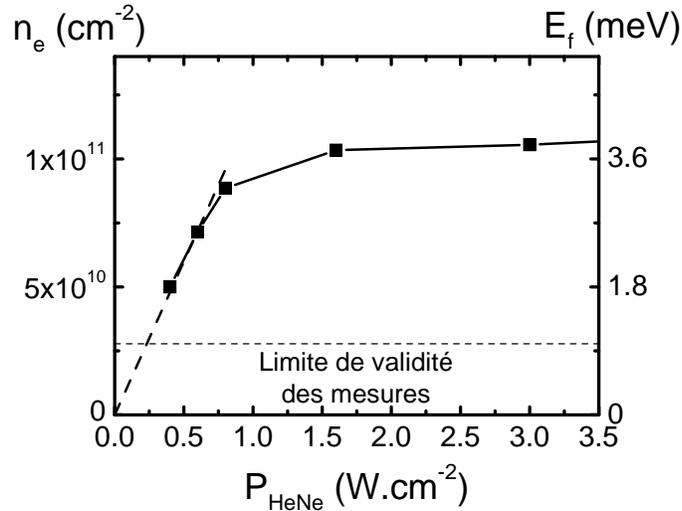


FIG. 3.24 – Énergies de Fermi à $T = 4\text{K}$ sur la cavité à un désaccord $\delta \simeq +12\text{meV}$. Notons la différence d'échelle sur l'axe des abscisses par rapport à la Figure 3.23.

3.5.1 Effet de la cavité

Mesure de l'absorption des miroirs

Les couches à fort indice du miroir de Bragg de notre cavité sont constituées d' $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$, dont le gap est inférieur à l'énergie du laser HeNe. Le miroir supérieur de la cavité absorbe donc une grande partie de la puissance incidente du laser HeNe. Nous avons effectué des ajustements de formes de raies à forte densité d'électrons dans l'échantillon en cavité. Les résultats obtenus sont reportés sur la figure 3.24. Ces mesures montrent qu'il est nécessaire d'utiliser une puissance du laser HeNe 100 fois plus forte que dans l'échantillon de référence pour obtenir un même potentiel chimique (et donc une même densité d'électrons). Ainsi, seulement 1% de la puissance incidente du laser HeNe est transmise à travers le miroir de Bragg jusqu'à la zone active.

Couplage fort du trion avec le mode de cavité

Nous avons vu dans le paragraphe 3.3.2 que la force d'oscillateur du trion f_{X^-} est proportionnelle à la densité d'électrons [29]. Dans ce paragraphe, la force d'oscillateur était mesurée à l'aide des spectres de PLE. Une mesure plus directe et plus sensible peut être réalisée grâce au couplage fort entre le trion et le mode de la microcavité [86]. Le coefficient de couplage entre le trion et le mode optique est en effet proportionnel à la racine carrée de la

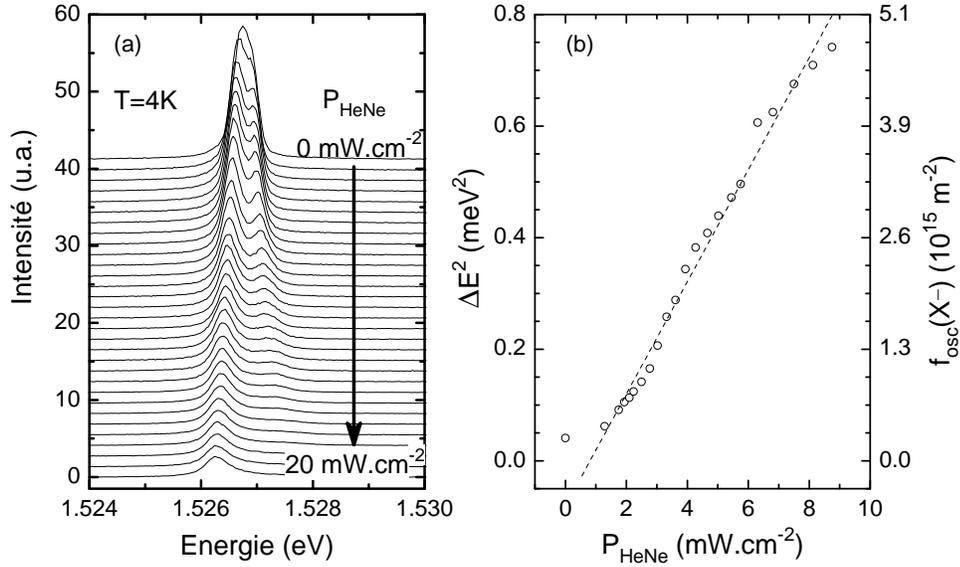


FIG. 3.25 – (a) Spectres de luminescence de la cavité. (b) Force d'oscillateur du trion en fonction de la puissance du laser HeNe. Le désaccord est choisi de façon à ce que le polariton de basse énergie soit résonnant avec le trion. $P_{Tisa} = 0.13 \text{ mW.cm}^{-2}$, $\delta \approx 2 \text{ meV}$ et P_{HeNe} est variée de 0 à 20 mW.cm^{-2} .

force d'oscillateur :

$$V_{X^-} = \hbar \sqrt{\frac{e^2}{\pi \epsilon_0 m_0 n_{cav} L_{eff}}} f_{X^-} \propto \sqrt{f_{X^-}} \propto \sqrt{n_e}, \quad (3.27)$$

où e et m_0 sont la charge et la masse d'un électron libre et n_{cav} et L_{eff} sont l'indice effectif et la longueur effective de la cavité. Le hamiltonien du système couplé formé des excitons lourds, des excitons légers, des trions et des photons est alors le suivant :

$$H = \begin{pmatrix} E_{X^-} & 0 & 0 & V_{X^-} \\ 0 & E_{X_{hh}} & 0 & V_{X_{hh}} \\ 0 & 0 & E_{X_{lh}} & V_{X_{lh}} \\ V_{X^-} & V_{X_{hh}} & V_{X_{lh}} & E_{cav} \end{pmatrix}. \quad (3.28)$$

Ce modèle sera exposé plus en détail dans le prochain chapitre. L'intérêt ici est de montrer comment nous pouvons mesurer V_{X^-} .

La figure 3.25(a) montre des spectres de photoluminescence correspondant à la résonance entre la raie de polaritons de basse énergie et le trion pour différentes puissances du laser HeNe ($k_{\parallel} = 0$ et $\delta = +2 \text{ meV}$). Pour $P_{HeNe} = 0$, la densité d'électrons est très faible et le terme V_{X^-} est petit. Le trion est en couplage faible. Lorsque l'on augmente P_{HeNe} , le terme de

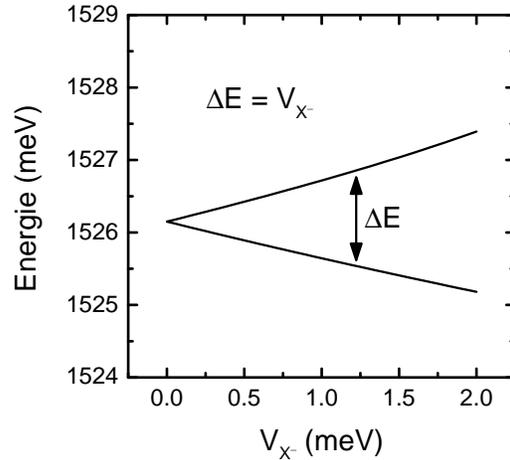


FIG. 3.26 – (a) Énergie des deux niveaux de polaritons basse énergie calculés lorsque l'on augmente la force du couplage trion-cavité V_{X^-} . $\delta = 2.2$ meV.

couplage V_{X^-} augmente et un dédoublement apparaît entre les deux raies. Schématiquement, nous pouvons dire que le trion entre en couplage fort avec le polariton de basse énergie par l'intermédiaire de la partie photonique de ce dernier.

Pour extraire V_{X^-} de ces mesures, il est nécessaire de diagonaliser la matrice 3.28 au désaccord étudié et pour différentes valeurs de V_{X^-} . Les résultats de ce calcul sont montrés sur la figure 3.26. Nous aboutissons au résultat remarquable que

$$\Delta E = V_{X^-} \propto \sqrt{f_{X^-}}, \quad (3.29)$$

où ΔE désigne l'écart en énergie entre les raies. Nous disposons donc d'un moyen direct de mesurer la force d'oscillateur du trion. Sur la figure 3.25(b), nous avons reporté les valeurs de ΔE^2 et de f_{X^-} en fonction de P_{HeNe} . On retrouve la linéarité de n_e avec P_{HeNe} . Le dédoublement de Rabi peut aussi servir de calibration de la densité d'électrons pour l'échantillon en cavité.

3.5.2 Variation de n_e avec la température

Sur la figure 3.27, la force d'oscillateur du trion est mesurée à deux températures différentes en fonction de la puissance du laser HeNe. À ces deux températures, la proportionnalité entre f_{X^-} et P_{HeNe} est toujours observée, mais une grande différence quantitative est observée, puisqu'à $T = 15$ K, une puissance 25 fois plus importante est nécessaire pour obtenir la même force d'oscillateur qu'à $T = 4$ K. Autrement dit, pour une puissance donnée du laser HeNe, la force d'oscillateur baisse d'un facteur 25 entre 4 et 15 K. Puisque la force d'oscillateur est proportionnelle à n_e , nous en déduisons que

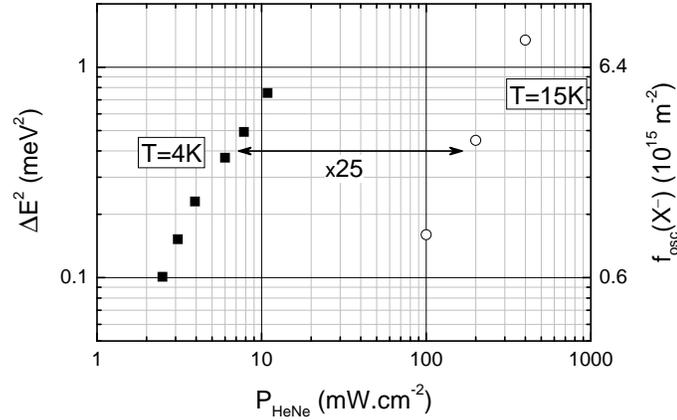


FIG. 3.27 – Échantillon en cavité : force d'oscillateur du trion mesurée à deux températures différentes. À $T = 15$ K, une puissance 25 fois plus importante est nécessaire pour obtenir la même force d'oscillateur.

l'efficacité d'injection des électrons dans le puits quantique large diminue du même facteur 25 entre 4 et 15 K.

La diminution de la densité d'électrons avec la température est vérifiée sur l'échantillon gravé. La figure 3.28 montre trois spectres réalisés sur cet échantillon, à une puissance constante du laser HeNe et à différentes températures. Nous observons un comportement très inhabituel, puisque les largeurs de raies *diminuent* avec la température.

Sur le spectre à $T = 4$ K, la densité d'électrons peut être mesurée à l'aide du modèle de la section 3.4. L'ajustement montré sur la figure donne $\mu = 4.6$ meV, soit une densité $n_e = 1.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Sur les spectres à $T = 10$ et 15 K en revanche la luminescence provient principalement du trion, et l'on voit même réapparaître la raie excitonique sur le spectre à $T = 15$ K, montrant directement que la densité d'électrons a fortement diminué. À $T = 10$ K, la densité mesurable minimale, donnée par $\mu = 2k_B T$ est $n_e^{\text{min}} = 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Puisque ce spectre ne peut être ajusté par le modèle de la section 3.4, nous sommes sûrs que la densité d'électrons réelle n_e est inférieure à n_e^{min} . À $T = 15$ K, la densité d'électrons est dans le régime basse densité, et le modèle de la section 3.3 s'applique. Nous trouvons $n_e \approx 9 \times 10^9$, correspondant effectivement à un ordre de grandeur de différence entre la densité à 4 K et celle à 15 K. Notons que le facteur 25 ne peut être retrouvé de cette façon, car à $T = 4$ K et $P_{\text{HeNe}} = 45 \text{ mW.cm}^{-2}$, la densité d'électrons est égale à la valeur de saturation, et n'est plus proportionnelle à P_{HeNe} .

La forte dépendance en température de la densité d'électrons rentre en contradiction avec le modèle de l'injection du gaz d'électrons provenant de

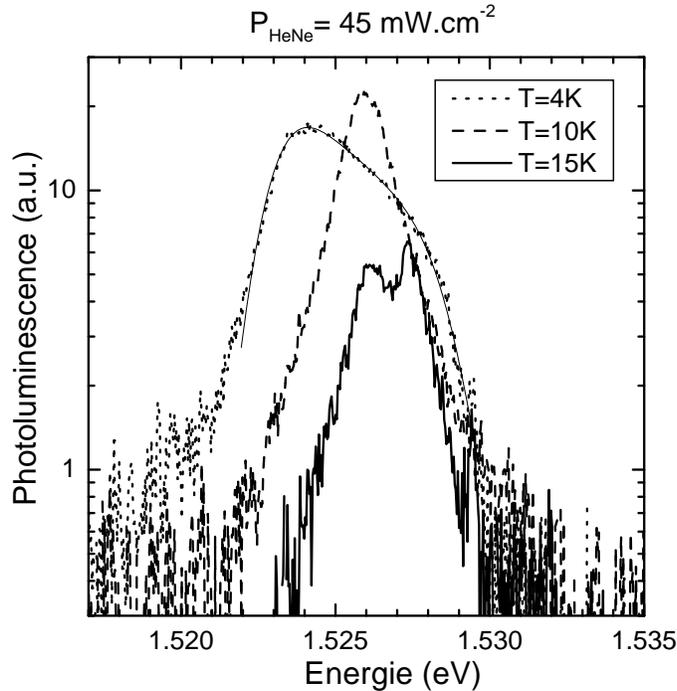


FIG. 3.28 – Effet de la température sur les spectres de photoluminescence du puits quantique large. La courbe en trait fin correspond à l’ajustement du spectre à $T=4\text{K}$.

la littérature [24, 34], et qui a été présenté au § 3.2. En effet, dans ce modèle la densité du gaz d’électrons est fixée par la compétition entre le temps de transit des électrons par les niveaux X et le temps tunnel des trous à travers les barrières d’AlAs, or ces deux temps ne sont a priori pas sensibles à la température. La forte variation de n_e avec T ainsi que la saturation de n_e à fort P_{HeNe} ne sont pas encore clairement comprises à ce jour.

Pour mieux comprendre la physique du transfert des électrons en fonction de la température, il serait utile de se tourner vers des mesures résolues en temps. La Figure 3.29 reprend des résultats obtenus par P. DAWSON en 2003 sur un échantillon de type mixte très similaire au nôtre [25] ; la principale différence est la taille du puits quantique large : 68 \AA contre 200 \AA dans notre cas. Partant d’une excitation continue de leur structure, les auteurs coupent brutalement le laser HeNe et regardent le déclin de la luminescence. On observe alors deux temps de déclin. Le premier, court et non résolu, correspond à la recombinaison des paires électron-trou directement créées dans le puits quantique large alors que le deuxième correspond à la recombinaison des électrons avec les trous contenus dans les puits quantiques étroits.

À faible excitation, le temps de déclin (0.47 ms) est égal au temps tun-

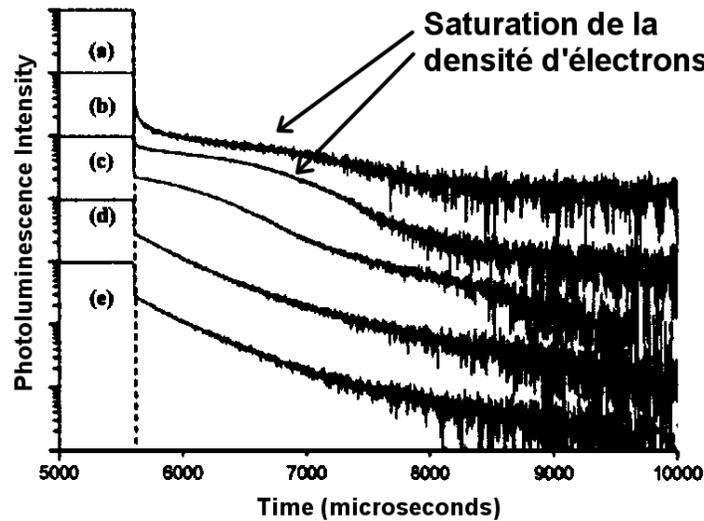


FIG. 3.29 – Dynamique du transfert entre les puits quantiques. Le laser HeNe, initialement continu, est coupé à l’instant marqué par une ligne tiretée. On observe la luminescence des porteurs dans le puits quantique large. Pour les courbes (a), (b), (c), (d) et (e), la puissance du laser HeNe vaut 1400, 130, 13, 1.2 et 0.6 $\text{mW}\cdot\text{cm}^{-2}$ respectivement. Figure extraite de [25].

nel des trous calculés par une modélisation de la bande de valence [66], ce qui valide le modèle du transfert des électrons présenté en 3.2. À plus forte excitation, en revanche, la dynamique dévie du comportement monoexponentiel. Si l’on regarde par exemple les courbes (a) et (b) de la Figure 3.29, on s’aperçoit qu’il y a trois régimes. Le premier, très rapide, est confondu avec la recombinaison des trous situés dans le puits quantique large et conduit à une saturation de la densité d’électrons. Le deuxième est en revanche très long ($\sim 2\text{ms}$), puis on retrouve le même temps de déclin qu’à basse puissance. Ces mesures montrent d’une part que le temps de vie du gaz d’électrons est effectivement très long, mais également qu’il est très sensible aux conditions expérimentales. Ainsi, si l’on veut comprendre la baisse de la densité d’électrons avec la température, il est nécessaire de comprendre plus précisément la physique du transfert d’électrons entre puits quantiques qui, on le voit sur l’exemple ci dessus, est plus complexe que le modèle simple présenté initialement. Nous n’avons pas poursuivi ces études détaillées du transfert des électrons, mais nous sommes concentrés sur la physique des polaritons de cavité.

3.6 Comparaison des deux méthodes et conclusion

Dans ce chapitre, nous avons considéré successivement deux méthodes de mesure de la densité d'électrons.

- La première est basée sur l'équilibre thermodynamique entre excitons et trions, et permet de mesurer la densité d'électrons dans le régime de basse densité. À $T = 15$ K, cette méthode donne

$$n_e(\text{cm}^{-2})_{15\text{K}} = 1.4 \times 10^8 P_{HeNe}(\text{mW.cm}^{-2}). \quad (3.30)$$

À $T = 4$ K, cette méthode n'est plus utilisable car elle donne une imprécision d'un ordre de grandeur sur la densité d'électrons (à cause de la forte variation de la constante d'équilibre K avec la température).

- La deuxième méthode est basée sur une modélisation des formes de raie de photoluminescence valable à des densités d'électrons suffisamment élevées, lorsque $\mu > 2k_B T$. À $T = 4$ K, cette méthode peut être extrapolée dans le régime basse densité, et donne

$$n_e(\text{cm}^{-2})_{4\text{K}} = 9 \times 10^9 P_{HeNe}(\text{mW.cm}^{-2}). \quad (3.31)$$

À partir de $T = 10$ K, cette méthode n'est plus utilisable car la densité d'électrons reste trop faible pour être mesurée.

Enfin, nous avons présenté des mesures de la force d'oscillateur du trion, grâce au couplage fort du trion avec le mode de la cavité. Ces mesures montrent que la densité d'électrons baisse d'un facteur 25 entre 4 et 15 K et permettent ainsi de faire le lien entre les deux méthodes rappelées ci-dessus. Si l'on applique ce facteur 25 à la deuxième méthode détaillée ci-dessus, il vient

$$n_e(\text{cm}^{-2})_{15\text{K}} = \frac{9 \times 10^9}{25} P_{HeNe}(\text{mW.cm}^{-2}), \quad (3.32)$$

$$= 3.6 \times 10^8 P_{HeNe}(\text{mW.cm}^{-2}). \quad (3.33)$$

Il reste donc un désaccord quantitatif d'un facteur 2.5 avec l'autre méthode. Nous pensons que ce facteur représente les incertitudes de mesure, inhérentes à la difficulté de mesurer n_e .

Nous avons donc montré comment le gaz d'électrons modifie les propriétés optiques du puits quantique : à faible densité, nous observons la formation du trion X^- , dont la force d'oscillateur augmentent avec la densité d'électrons. Nous avons montré que dans ce régime de basse densité, la densité d'électrons augmente linéairement avec la puissance du laser HeNe. À plus forte densité d'électrons, on observe la recombinaison d'un plasma de paires électrons-trous, dont les raies peuvent être modélisées pour en extraire la densité d'électrons. La validité de cette méthode de mesure a été vérifiée en la comparant à des mesures d'effet Raman électronique.

La suite de ce travail de thèse est consacrée à l'étude de la relaxation des polaritons en présence d'un gaz d'électrons. Afin d'éviter que le laser TiSa n'injecte lui aussi des électrons dans le puits quantique, nous nous sommes limités à une température $T = 15$ K, à laquelle la densité d'électrons injectés par le laser TiSa est négligeable. Dans ces conditions, et en tenant compte de l'absorption dans le miroir supérieur de la microcavité, nous avons :

$$\boxed{n_e(\text{cm}^{-2}) = 3.6 \times 10^6 P_{HeNe}(\text{mW} \cdot \text{cm}^{-2})}, \quad (3.34)$$

sur la partie complète (non gravée) de l'échantillon.

Chapitre 4

Collisions polariton-électron en excitation continue non résonnante

Sommaire

4.1	Introduction	120
4.2	Dispositif expérimental	121
4.2.1	Schéma du dispositif expérimental	121
4.2.2	Mesure des facteurs d'occupation	122
4.3	Effet des électrons sur la dispersion	124
4.3.1	Relations de dispersion en l'absence d'électrons	124
4.3.2	Relations de dispersion en présence d'électrons	126
4.3.3	Écrantage du couplage fort par les électrons	127
4.4	Relaxation en l'absence d'électrons	128
4.4.1	Observations expérimentales : distribution de population pour différents désaccords	128
4.4.2	Analyse : goulet d'étranglement de la relaxation	129
4.4.3	Diminution du goulet d'étranglement de la relaxation par les collisions polaritons-polaritons	133
4.4.4	Rôle de la température sur les collisions polariton-polariton	137
4.5	Relaxation en présence d'électrons	140
4.6	Comparaison entre les différents mécanismes de relaxation	144
4.6.1	Variation simultanée de la densité d'électrons et de la densité de polaritons	144
4.6.2	La largeur de raie dans le réservoir : un paramètre clé de la relaxation	146
4.7	Discussion et conclusion	147
4.7.1	Comparaison à la bibliographie existante	147
4.7.2	Conclusion	151

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à la relaxation des polaritons de basse énergie lorsque ceux-ci sont créés par un laser continu et non résonnant. Comme l'ont montré les articles décrits dans le chapitre 2, lorsque la relaxation est dominée par l'émission de phonons, il se crée un goulet d'étranglement de la relaxation. Le taux de relaxation est en effet trop faible pour que les polaritons relaxent efficacement vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$. En conséquence, la population n'est pas thermalisée, avec une accumulation dans les états de grand vecteur d'onde k_{\parallel} . L'objectif de ce chapitre est de caractériser la distribution de population atteinte pour divers mécanismes de relaxation : relaxation par *émission de phonons*, relaxation par *collisions polariton-polariton* et relaxation par *collisions polariton-électron*. Ces deux derniers mécanismes sont également comparés l'un à l'autre.

La partie 4.2 de ce chapitre décrit le dispositif expérimental de photoluminescence résolue en angle, ainsi que la manière dont nous pouvons mesurer les facteurs d'occupation.

Au chapitre 3, nous avons vu que les forces d'oscillateur du trion et de l'exciton sont modifiées en présence d'un gaz d'électrons. Dans la partie 4.3, nous montrons comment les relations de dispersion sont modifiées en présence d'un gaz d'électrons. Nous montrons notamment que le réservoir excitonique devient un réservoir *trionique* à forte densité d'électrons, puis que le système passe en régime de couplage *faible* à partir d'une densité d'électrons de $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$.

La suite du chapitre s'intéresse à la distribution de population obtenue sous excitation continue. Deux grandeurs clé nous permettent de caractériser la distribution de population : *l'amplitude du goulet d'étranglement* et *l'énergie de piège* dans l'espace des k_{\parallel} . Ces deux grandeurs sont introduites dans la partie 4.4, qui est par ailleurs dédiée à la distribution de population atteinte *en l'absence* d'électrons. Les observations expérimentales sont similaires à ce qui a été rapporté au début des années 2000 : l'amplitude du goulet d'étranglement augmente avec le désaccord et diminue, grâce aux collisions polariton-polariton, lorsque l'on augmente la puissance d'excitation ou la température.

Les collisions polaritons-électrons sont étudiées dans la partie 4.5, en fonction de l'énergie de piège et de la densité d'électrons : leur effet est d'autant plus marqué que l'énergie de piège est importante et nous observons une augmentation d'un facteur 5 des facteurs d'occupation des états proches de $k_{\parallel} = 0$. Puis dans la partie 4.6, nous comparons l'efficacité des collisions polariton-électron à celle des collisions polariton-polariton.

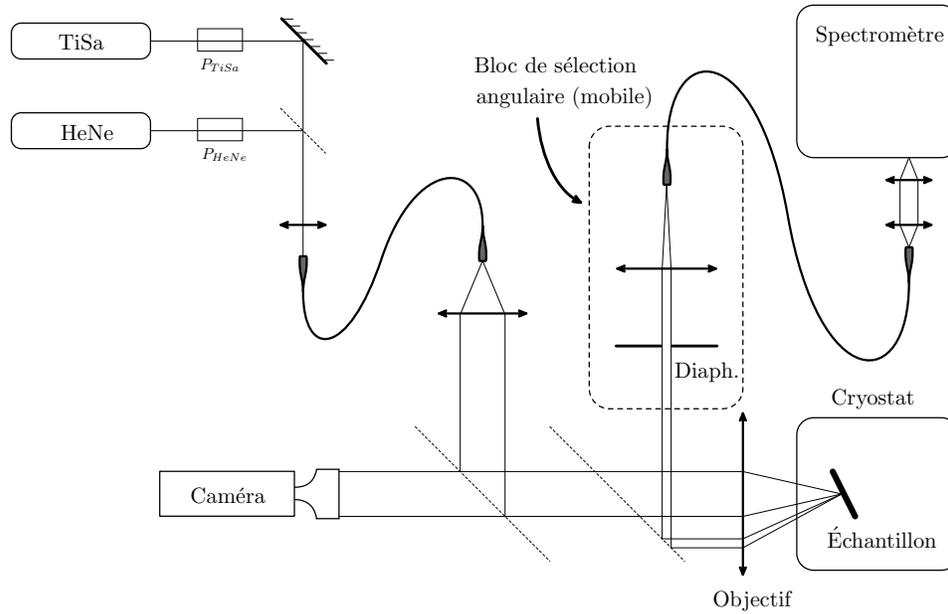


FIG. 4.1 – Schéma du dispositif expérimental de photoluminescence résolue en angle.

4.2 Dispositif expérimental

4.2.1 Schéma du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est représenté schématiquement sur la figure 4.1. La puissance des deux faisceaux lasers est réglée à l'aide de deux densités tournantes indépendantes. Les deux faisceaux sont ensuite superposés et injectés dans une même fibre optique dont le cœur a un diamètre de $200 \mu\text{m}$. De cette manière, et grâce à l'achromaticité du dispositif expérimental, nous sommes sûrs qu'ils seront focalisés sur un même point de l'échantillon. À la sortie de la fibre, le faisceau est divergent et forme un cône d'angle au sommet égal à 30° environ. Ce faisceau est rendu parallèle avant d'être focalisé sur l'échantillon, maintenu à basse température dans un cryostat à doigt froid et à température variable. La lentille de focalisation utilisée est un objectif d'appareil photographique de grande ouverture numérique : sa focale est de 50 mm et son diamètre de 40 mm , donnant ainsi accès à une plage angulaire de 43° d'un bord à l'autre de l'objectif.

La photoluminescence des polaritons a été expliquée en détail à la fin du paragraphe 1.4.3 : l'énergie absorbée par l'échantillon relaxe sous la forme de polaritons, lesquels déclinent radiativement en émettant des photons. Les polaritons de vecteur d'onde dans le plan k_{\parallel} sont couplés uniquement aux photons de même énergie et de même vecteur d'onde dans le plan, la compo-

sante k_z du photon émis étant une variable supplémentaire permettant que l'énergie et le vecteur d'onde dans le plan soient simultanément conservés. La lumière émise à l'énergie E et à l'angle θ provient donc des polaritons de vecteur d'onde $k_{\parallel} = (E/\hbar c) \sin \theta$.

Un diaphragme de sélection angulaire de diamètre $\delta x = 2$ mm, correspondant à un angle d'environ $\delta\theta = 2^\circ$ nous permet d'extraire un pinceau lumineux dans une direction précise. Ce pinceau lumineux est ensuite injecté dans une fibre, dispersé par un réseau de 1200 traits/mm dans un spectromètre de 1 m de focale et détecté par une caméra CCD refroidie à l'azote liquide. L'ensemble marqué "bloc de sélection angulaire" sur la figure 4.1 est solidaire et peut être déplacé afin de sélectionner un autre angle et donc un autre état de polariton. La situation représentée correspond à la détection de l'état $k_{\parallel} = 0$.

4.2.2 Mesure des facteurs d'occupation

À partir des intensités de photoluminescence mesurées par le dispositif expérimental, nous pouvons en déduire les facteurs d'occupation des états de polariton sélectionnés. Le passage des intensités de photoluminescence aux facteurs d'occupation mérite que l'on prenne le temps de l'analyser soigneusement. Supposons que les facteurs d'occupation en régime stationnaire soient donnés par la distribution $f(k_{\parallel})$ à déterminer. Un polariton dans l'état $|k_{\parallel}\rangle$ peut se recombinaison en émettant un photon dans le mode $|k_{\parallel}, k_z\rangle$, où

$$k_z = \sqrt{\left(\frac{E}{\hbar c}\right)^2 - k_{\parallel}^2}. \quad (4.1)$$

Connaissant les facteurs de transmission respectif de chacun des miroirs, nous avons estimé qu'une proportion $P_{\text{sup}} = 80\%$ de la lumière émise par l'échantillon était émise en direction de l'air, les 20% restants étant absorbés dans le substrat.

Les photons émis dans le mode $|k_{\parallel}, k_z\rangle$ sont alors soumis à une double sélection : une sélection angulaire imposée par le diaphragme et une sélection spatiale imposée par la taille du cœur de la fibre optique. Si l'on voulait décrire ce processus de sélection de manière rigoureuse en mécanique quantique, il nous faudrait déterminer les modes propres $|\phi_i\rangle$ sélectionnés par notre dispositif expérimental et calculer les amplitudes de probabilité $\langle\phi_i|k_{\parallel}, k_z\rangle$ pour qu'un photon émis dans le mode $|k_{\parallel}, k_z\rangle$ soit sélectionné par notre dispositif. Dans cette approche, la sélection angulaire est représentée par l'opérateur de projection $\sum |\phi_i\rangle\langle\phi_i|$.

Une approche plus simple consiste à considérer le nombre d'états de polaritons sélectionnés par le dispositif :

$$n_{\text{états sél.}} = 2 \frac{S}{(2\pi)^2} \delta^2 k. \quad (4.2)$$

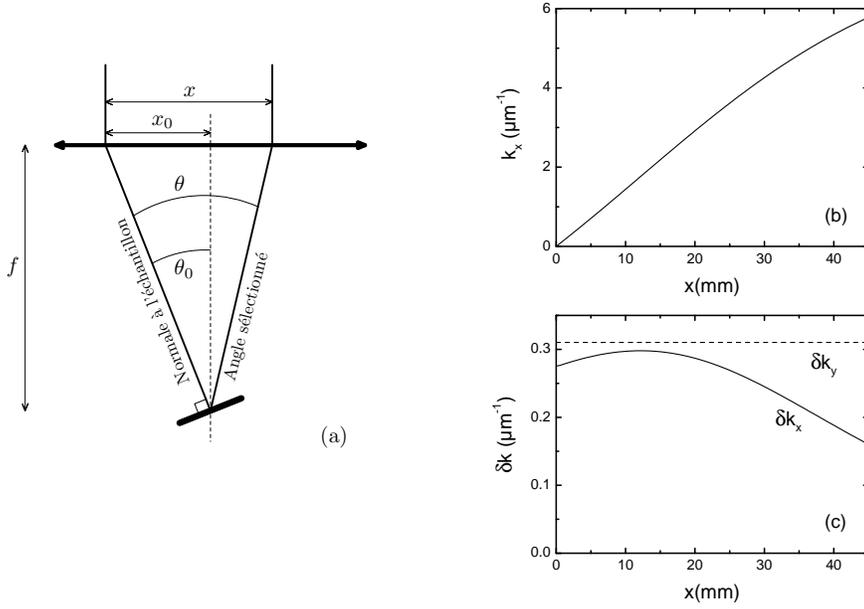


FIG. 4.2 – (a) Schéma de la lentille et de l'échantillon. (b) Vecteur d'onde k_x sélectionné en fonction de la position x du diaphragme sur la lentille. (c) Précision de la sélection dans l'espace réciproque.

Ici, S désigne la surface de l'échantillon sélectionnée par la fibre optique et $\delta^2 k$ représente la zone de l'espace réciproque sélectionnée par le diaphragme autour de l'état k_{\parallel} . Sur la figure 4.2(a), nous avons représenté la géométrie de la lentille et de l'échantillon. L'échantillon a été tourné d'un angle θ_0 afin qu'une plus grande plage angulaire soit accessible. L'état k_{\parallel} sélectionné est donné par :

$$k_x = \frac{E_{\text{pol}}}{\hbar c} \sin \theta = \frac{E_{\text{pol}}}{\hbar c} \frac{f x}{\sqrt{(f^2 + x_0^2)[f^2 + (x - x_0)^2]}}, \quad (4.3)$$

$$k_y = 0. \quad (4.4)$$

À partir de cette expression, nous pouvons déterminer la surface sélectionnée dans l'espace réciproque. Le diaphragme a une forme circulaire et un diamètre $\delta x = 2$ mm. Il sélectionne donc dans l'espace réciproque une ellipse d'aire $\delta^2 k = (\pi/4)\delta k_x \delta k_y$, où δk_x et δk_y sont donnés par :

$$\delta k_x = \left[\frac{dk_x}{dx} \right] \delta x, \quad \delta k_y = \frac{E_{\text{pol}}}{\hbar c} \frac{\delta x}{f} = 0.31 \mu\text{m}^{-1}. \quad (4.5)$$

De même, la surface sélectionnée sur l'échantillon est une ellipse d'aire $S = (\pi/4)(g^2 L_0^2 / \cos \theta_0)$, où L_0 désigne le diamètre du cœur de la fibre optique et $g = 0.36$ est le grandissement du système d'imagerie.

La variation de k_x , δk_x et δk_y avec la position du diaphragme est représentée sur les figure 4.2(b) et (c). Nous pouvons remarquer que δk_x varie avec x . En pratique, nous restons à des valeurs x inférieures à 30 mm et le nombre d'états sélectionné varie entre $n_{\text{états sél.}} = 13$ au minimum et $n_{\text{états sél.}} = 16$ au maximum.

Les états ainsi sélectionnés ont un facteur d'occupation égal à $f(k_{\parallel})$. Le nombre total de polaritons contenu dans ces états est donc :

$$N_{\text{pol. sél.}} = f(k_{\parallel}) n_{\text{états sél.}} , \quad (4.6)$$

et l'intensité recueillie sur la caméra CCD sera :

$$I_{\text{CCD}} = \eta P_{\text{sup}} N_{\text{pol. sél.}} \frac{|\alpha(k_{\parallel})|^2}{\tau_{\text{cav}}} E_{\text{pol}} , \quad (4.7)$$

où η est l'efficacité de détection de l'expérience, $|\alpha(k_{\parallel})|^2$ est le poids photon de l'état k_{\parallel} et τ_{cav} est le temps de vie de la cavité Fabry-Pérot. Les coefficients α sont déterminés à partir des relations de dispersion des polaritons, et le temps de vie de la cavité est déterminé par la largeur de raie mesurée en $k_{\parallel} = 0$ à un désaccord négatif $\delta = -8 \text{ meV}$. Nous trouvons une largeur de raie de 0.3 meV , en accord avec les simulations de la cavité par matrice de transfert et correspondant à $\tau_{\text{cav}} = 2 \text{ ps}$. Finalement, en inversant la relation 4.7, nous sommes capables de mesurer les facteurs d'occupation le long de la branche de polaritons de basse énergie.

4.3 Effet des électrons sur les relations de dispersion

4.3.1 Relations de dispersion en l'absence d'électrons

Le dispositif expérimental de photoluminescence résolue en angle détaillé ci-dessus nous permet de sonder l'émission provenant de polaritons dans un état $|k_{\parallel}\rangle$ bien déterminé. En faisant varier la valeur de k_{\parallel} sélectionnée, nous parcourons la relation de dispersion des polaritons et nous observons la luminescence émise par chaque état individuel. La Figure 4.3 (a) montre les spectres de luminescence observés en désaccord négatif et en l'absence du laser HeNe, lorsque k_{\parallel} varie de 0 à $4.6 \mu\text{m}^{-1}$. Ces spectres sont montrés en échelle logarithmique afin de suivre l'évolution des raies avec le vecteur d'onde. On observe trois raies correspondant aux trois branches de polaritons, provenant de l'anticroisement du mode de cavité avec l'exciton de trou lourd et l'exciton de trou léger.

Les énergies de ces raies sont reportées sur la Figure 4.3 (b) et forment la relation de dispersion de la cavité en l'absence du gaz d'électrons. Nous pouvons ajuster cette relation de dispersion en considérant un modèle de

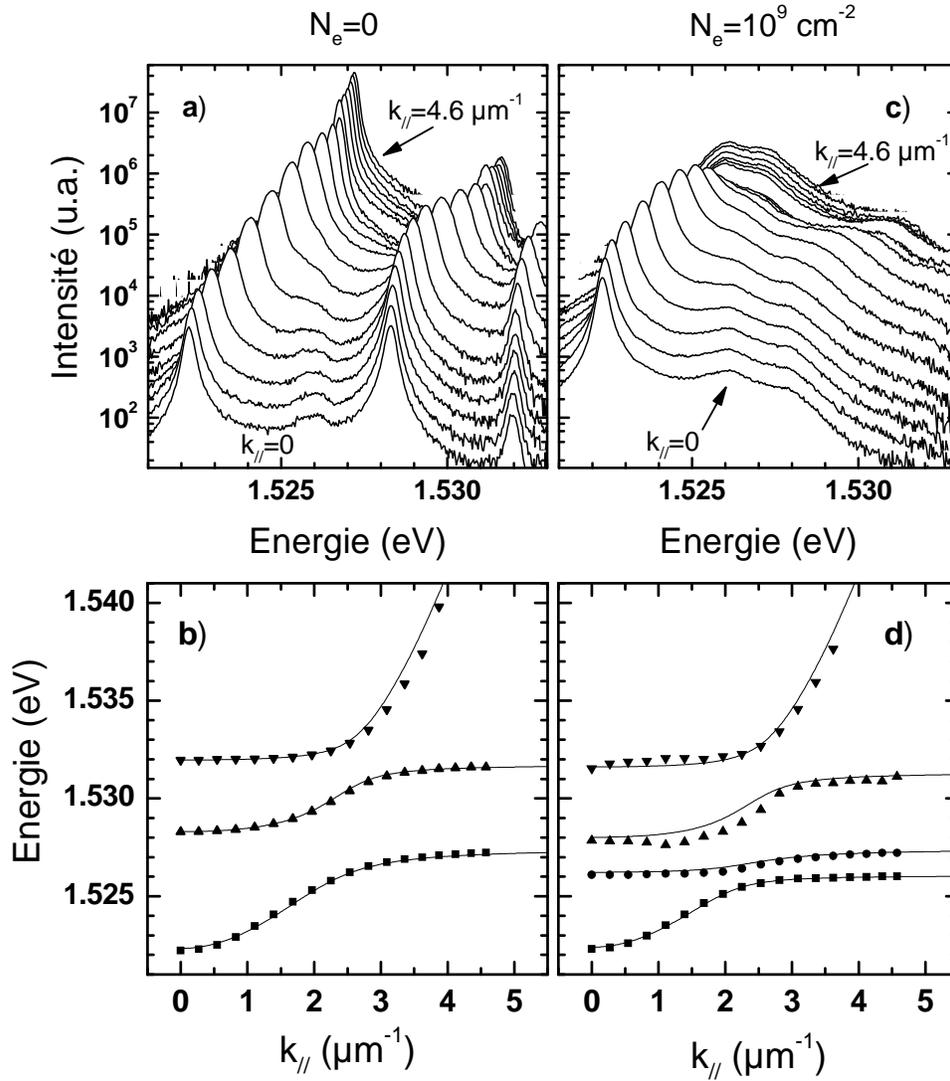


FIG. 4.3 – Spectres de luminescence mesurés en l’absence (a) et en présence (c) du gaz d’électron ($n_e = 10^9 \text{ cm}^{-2}$), pour k_{\parallel} variant de 0 à $4.6 \mu\text{m}^{-1}$. Ces spectres sont décalés verticalement pour la clarté. (b) et (d) : relations de dispersion déduites de ces mesures (points) et ajustements par un modèle à 3 et 4 oscillateurs couplés (droites). $\delta = -4 \text{ meV}$, $T = 15 \text{ K}$ et $P_{TiSa} = 1.5 \text{ W.cm}^{-2}$.

trois oscillateurs couplés. Les énergies des états de polariton sont les énergies propres du hamiltonien suivant :

$$H = \begin{pmatrix} E_{X_{hh}} & 0 & V_{X_{hh}} \\ 0 & E_{X_{lh}} & V_{X_{lh}} \\ V_{X_{hh}} & V_{X_{lh}} & E_{cav} \end{pmatrix} \quad (4.8)$$

où $E_{X_{hh}}$, $E_{X_{lh}}$ et E_{cav} désignent l'énergie de l'exciton de trou lourd, de l'exciton de trou léger et de la cavité respectivement, et $V_{X_{hh}}$ et $V_{X_{lh}}$ sont les couplages exciton-cavité. Dans ce hamiltonien, E_{cav} est la seule quantité variant avec le vecteur d'onde :

$$E_{cav} = \sqrt{(E_{cav}^0)^2 + \left(\frac{\hbar c k_{\parallel}}{n_{cav}}\right)^2} \quad (4.9)$$

où $n_{cav} = 3.4$ est l'indice effectif de la cavité et E_{cav}^0 est l'énergie du mode de cavité en $k_{\parallel} = 0$, reliée au désaccord par $\delta = E_{cav}^0 - E_{X_{hh}}$.

Le meilleur ajustement est montré sur la Figure 4.3 (b). Il reproduit correctement les données expérimentales et donne les résultats suivants pour les dédoublements de Rabi : $\Omega_{hh} = 2V_{X_{hh}} = 4.3 \text{ meV}$, et $\Omega_{lh} = 2V_{X_{lh}} = 2.8 \text{ meV}$. Ces mesures sont en bon accord avec les valeurs mesurées par d'autres groupes sur des cavités contenant des puits quantiques GaAs [86]. Nous retrouvons par ailleurs le rapport des forces d'oscillateur de l'exciton de trou lourd et de l'exciton de trou léger attendu théoriquement [3] : $(f_{hh}/f_{lh}) = (V_{X_{hh}}/V_{X_{lh}})^2 = 2.5$. Ce modèle décrit donc correctement le couplage des excitons avec le mode de la cavité.

4.3.2 Relations de dispersion en présence d'électrons

La relation de dispersion est en revanche très différente lorsqu'un gaz d'électrons de faible densité est injecté dans la cavité. La Figure 4.3 (c) montre les spectres résolus en k_{\parallel} , et la Figure 4.3 (d) reprend les énergies des raies, lorsqu'un gaz d'électrons de densité $n_e = 10^9 \text{ cm}^{-2}$ est injecté dans le puits quantique. Le passage en couplage fort du trion, que nous avons décrit au § 3.5.1, introduit une quatrième branche de polariton, dont nous tenons compte en introduisant un quatrième terme, noté V_{X^-} , dans le hamiltonien H . Nous supposons que la force d'oscillateur totale des transitions excitoniques et trioniques se conserve, de sorte que l'on garde $V_{X_{hh}}^2 + V_{X^-}^2$ constant. Ainsi, l'ajustement de la relation de dispersion de la Figure 4.3 (d) correspond à un dédoublement de Rabi du trion $\Omega_{X^-} = 2V_{X^-} = 2 \text{ meV}$, mais également à un couplage réduit de l'exciton de trou lourd avec la cavité : $\Omega_{hh} = 3.6 \text{ meV}$ seulement. Les autres paramètres sont inchangés par rapport au cas où $n_e = 0$.

Ainsi que nous l'avons observé au chapitre 3, le couplage du trion avec la cavité augmente comme la racine de la densité d'électrons, et les relations

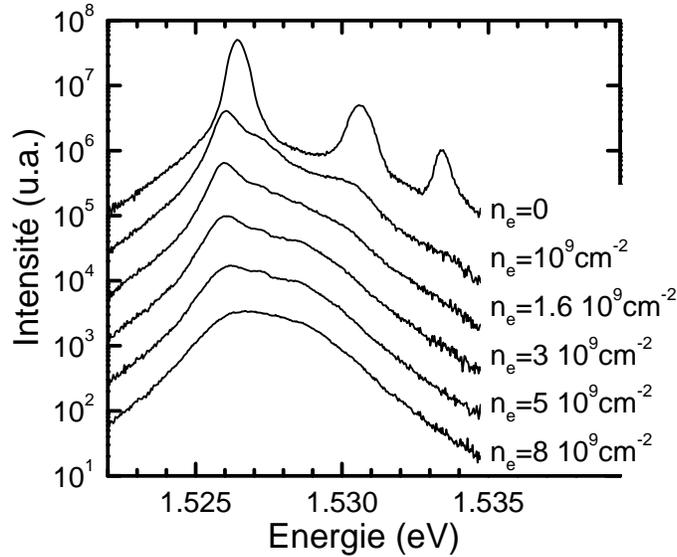


FIG. 4.4 – Écrantage du couplage fort par le gaz d'électrons. $\delta = -4.5$ meV, $k_{\parallel} = 2.5 \mu\text{m}^{-1}$ (l'exciton est alors en résonance avec le mode de la cavité), $T = 15$ K et $P_{T_{iSa}} = 3 \text{ W.cm}^{-2}$.

de dispersion des différentes branches changent continûment avec cette densité. On peut toutefois noter les caractéristiques suivantes pour la branche basse de polariton : les états proches de $k_{\parallel} = 0$ ne changent presque pas en énergie lorsque l'on injecte le gaz d'électrons, alors que les états de grand vecteur d'onde k_{\parallel} changent à la fois d'énergie et de nature : ils deviennent brusquement trioniques lorsque le trion est en couplage fort avec la cavité. Leur énergie devient donc celle du trion, soit 1.4 meV plus faible que celle de l'exciton. Nous reviendrons sur cette propriété lorsque nous discuterons du rôle de ces états dans la relaxation.

4.3.3 Écrantage du couplage fort par les électrons

Voyons maintenant comment évoluent les spectres de luminescence à des densités d'électrons de plus en plus importantes. Sur la Figure 4.4, nous avons représenté les spectres de luminescence à un désaccord $\delta(k_{\parallel}) = 0$ pour différentes valeurs de n_e . Lorsque $n_e = 0$, nous observons trois raies de polaritons. Comme nous l'avons décrit ci-dessus, une quatrième raie est observée lorsque $n_e = 10^9 \text{ cm}^{-2}$, en raison du couplage fort du trion. Si l'on continue à augmenter la densité d'électrons, les raies de polaritons s'élargissent, se rapprochent puis finissent par fusionner à une densité de l'ordre de $n_e = 5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$.

Ceci correspond à la perte progressive du régime de couplage fort :

lorsque la densité d'électrons augmente, les transitions du puits quantique s'élargissent fortement à cause des collisions polariton-électron. Simultanément, les mécanismes d'écrantage coulombien et de remplissage de l'espace des phases diminuent la force d'oscillateur des transitions excitoniques, et lorsque la largeur de raie est plus grande que le couplage exciton-photon l'exciton entre en couplage faible avec le mode de la cavité. La densité maximale d'électrons que nous pouvons injecter tout en restant en couplage fort est donc de l'ordre de $n_e = 5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$.

4.4 Relaxation en l'absence d'électrons : goulet d'étranglement et collisions polaritons-polaritons

Dans cette partie, nous analysons la distribution de population sous excitation continue, en l'absence du gaz d'électron. La problématique du goulet d'étranglement de la relaxation et de sa disparition partielle grâce aux collisions polaritons-polaritons a été intensivement étudié au cours des dix dernières années. Pour les microcavités de semiconducteurs III-V, on peut citer notamment les travaux expérimentaux du groupe de A.I. TARTAKOVSKII [122, 120, 121, 15], ou les études théoriques conduites par F. TASSONE [124, 125] qui a le premier prédit un goulet d'étranglement de la relaxation. Enfin, ce travail de thèse s'inscrit dans la continuité de la thèse de P. SENELLART [105, 106, 107] effectuée au sein du laboratoire de photonique et de nanostructures sur les collisions polariton-polariton. Cette partie reprend les études réalisées dans les travaux cités ci-dessus dans le cas de la microcavité 32A21 que nous étudions.

4.4.1 Observations expérimentales : distribution de population pour différents désaccords

Dans la partie 4.2, nous avons décrit comment nous pouvons mesurer les facteurs d'occupation des états de la branche basse de polariton. La Figure 4.5 montre la distribution de population le long de la branche basse pour différents désaccords. Pour toutes ces courbes, la puissance du laser TiSa reste constante : $P_{TiSa} = 3 \text{ W.cm}^{-2}$ et le laser HeNe est éteint. En désaccord positif $\delta = +1.9 \text{ meV}$, le facteur d'occupation f_{PB} ne dépend pas du vecteur d'onde k_{\parallel} et reste égal à 10^{-3} polaritons par état. À ce désaccord, les polaritons de basse énergie sont très semblables à des excitons : leur poids excitonique est important et leur dispersion est plate. En conséquence, le facteur d'occupation constant que nous observons correspond à une population thermalisée.

Pour des désaccords négatifs, les observations sont différentes. Le facteur d'occupation n'est en effet plus indépendant de k_{\parallel} et l'on distingue deux ensembles d'états. Les états de grands vecteurs d'onde restent fortement

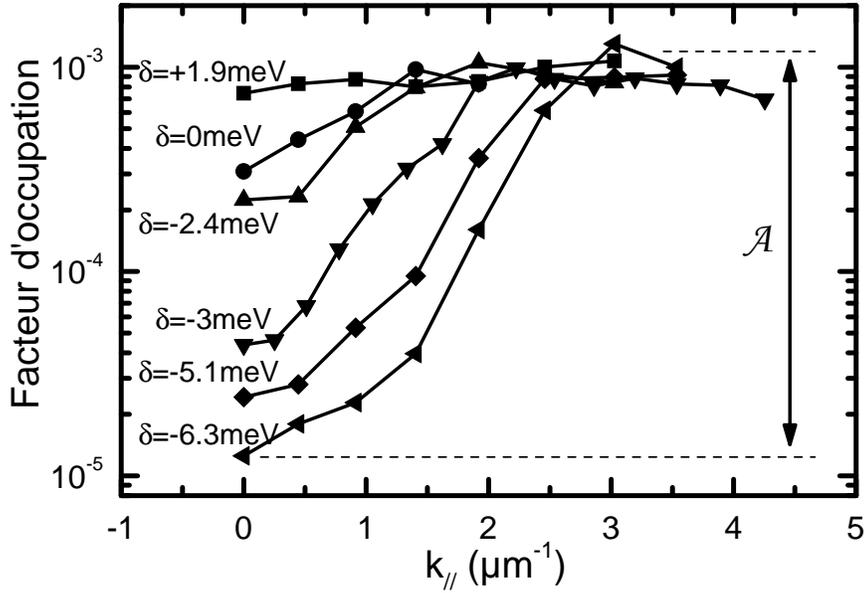


FIG. 4.5 – Distribution de population le long de la branche basse de polariton pour différents désaccords. $T=15\text{K}$, $P_{TiSa} = 3\text{W.cm}^{-2}$, $E_{TiSa} = 1.64\text{ eV}$ et $n_e = 0$.

peuplés, avec un facteur d'occupation égal à 10^{-3} quel que soit le désaccord. En raison de leur facteur d'occupation plus important, cette zone de l'espace des $k_{||}$ forme donc ce que l'on appelle le réservoir excitonique. A l'inverse, dans les états de faible vecteur d'onde, appelés par la suite "états proches de $k_{||} = 0$ ", on observe une baisse de la population. La population en $k_{||} = 0$ est d'autant plus faible que le désaccord est négatif.

La dispersion de la branche basse de polariton est montrée sur la Figure 4.6. En comparant les figures 4.5 et 4.6 l'une à l'autre, nous remarquons que le domaine de l'espace des $k_{||}$ où les facteurs d'occupations sont constants est également une zone où la relation de dispersion est relativement plate. A l'inverse, les facteurs d'occupation baissent lorsque la dispersion est plus marquée.

4.4.2 Analyse : goulet d'étranglement de la relaxation

Il a été montré [74] que la population dans l'état $k_{||}$ de polariton dépend en fait de l'écart en énergie entre cet état et l'exciton : $\Delta E(k_{||}) = E_{X_{hh}} - E_{PB}(k_{||})$ où $E_{PB}(k_{||})$ est la dispersion de la branche basse de polariton. Pour illustrer cela, nous reprenons sur la Figure 4.7 les facteurs d'occupation de la Figure 4.5 correspondant à différentes valeurs de δ et de $k_{||}$, et nous les traçons en fonction de ce paramètre unique $\Delta E(k_{||})$. Nous trouvons alors

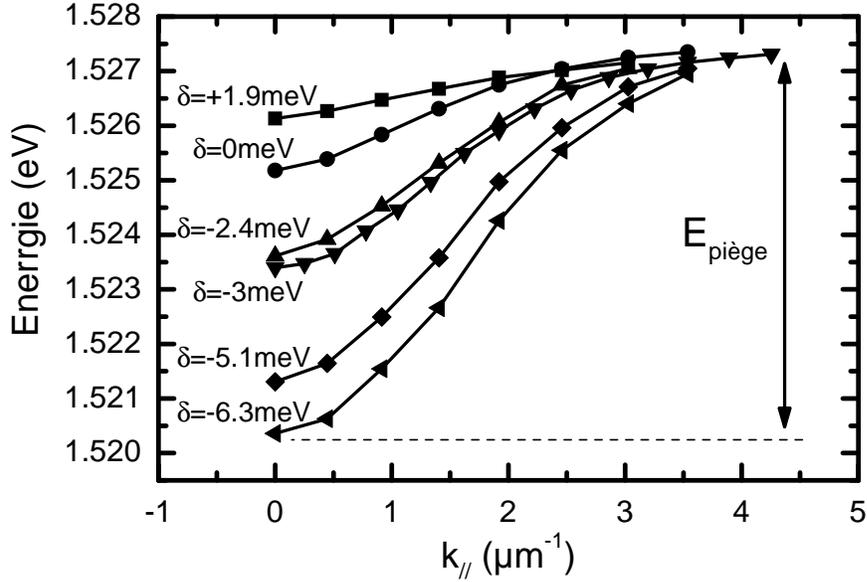


FIG. 4.6 – Dispersion de la branche basse de polaritons mesurée aux mêmes points de l'échantillon que sur la Figure 4.5.

effectivement que ΔE est le paramètre clé de ce système. Par ailleurs, à partir de $\Delta E \approx 1.5 \text{ meV}$, les facteurs d'occupation baissent exponentiellement avec ΔE , au lieu d'augmenter exponentiellement comme ce devrait être le cas si la population était thermalisée.

Afin de caractériser la distribution de population, nous introduisons deux nouvelles grandeurs : la profondeur du piège $E_{\text{piège}} = \Delta E(k_{\parallel} = 0) = E_{X_{\text{hh}}} - E_{PB}(k_{\parallel} = 0)$ et l'amplitude du goulet d'étranglement de la relaxation : $\mathcal{A} = \widetilde{f_{PB}(\text{reservoir})} / f_{PB}(k_{\parallel} = 0)$, où $\widetilde{f_{PB}(\text{reservoir})}$ désigne le facteur d'occupation moyen des états du réservoir. Ces deux grandeurs sont illustrées sur les Figures 4.5 et 4.6. Notons par ailleurs que si la population de polaritons suit une distribution de Boltzmann de température T , on doit avoir

$$\mathcal{A} = \mathcal{A}_{eq} = \exp\left(-\frac{E_{\text{piège}}}{k_B T}\right) \quad (4.10)$$

La Figure 4.8 montre la variation de \mathcal{A} avec le désaccord δ et avec $E_{\text{piège}}$. On voit alors que les valeurs obtenues expérimentalement sont de plusieurs ordres de grandeur différentes des valeurs correspondant à l'équilibre thermique.

TASSONE [124] a modélisé la relaxation et la photoluminescence des microcavités en tenant compte des phénomènes suivants :

- la formation d'excitons chauds et de polaritons par émission de phonons acoustiques et optiques,

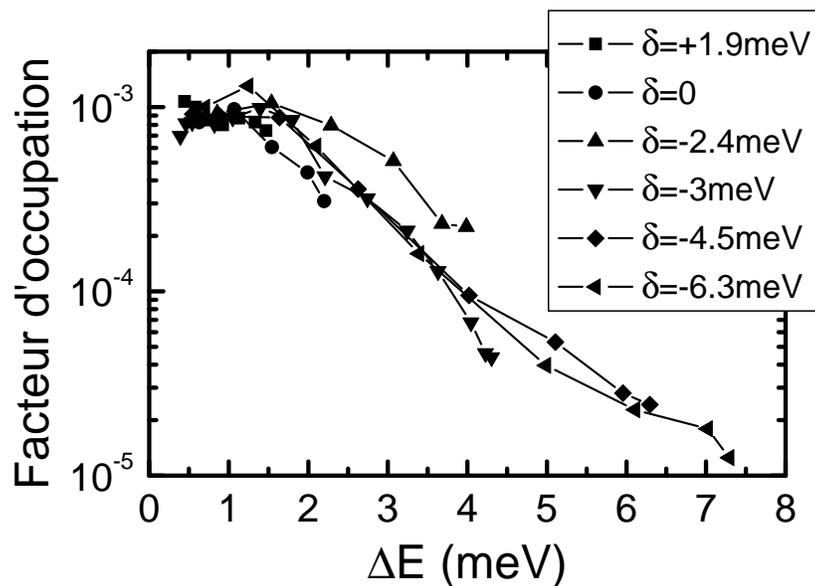


FIG. 4.7 – Distribution de population représentée en fonction de ΔE , l'écart en énergie entre l'exciton et la branche basse de polariton. Les mesures sont les mêmes que pour la Figure 4.5.

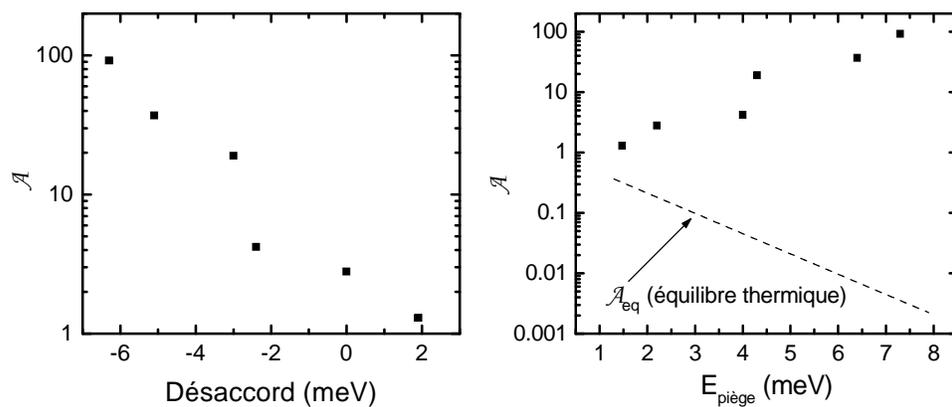


FIG. 4.8 – Variation du coefficient \mathcal{A} avec le désaccord et avec l'énergie de piège. La droite tiretée représente la valeur attendue pour une distribution Boltzmanienne de la population

- la relaxation des polaritons à l’intérieur des branches de polariton,
- et la recombinaison radiative de ces polaritons.

Sous excitation continue, tous ces phénomènes se déroulent simultanément et un régime permanent est atteint.

Ses travaux nous permettent d’interpréter nos observations de la manière suivante : les états proches de $k_{\parallel} = 0$ sont principalement peuplés suite à l’émission de phonons acoustiques par les polaritons du réservoir et sont dépeuplés par le couplage entre le mode de la cavité et les modes propagatifs du champ électromagnétique extérieurs à la cavité. L’élément de matrice d’interaction exciton-phonon n’est important que lorsque le vecteur d’onde $\mathbf{q} = (\mathbf{q}_{\parallel}, q_z)$ du phonon est tel que

$$|\mathbf{q}_{\parallel}| < \frac{1}{a_B}, \quad \text{et} \quad q_z < \frac{1}{L_{PQ}}, \quad (4.11)$$

où a_B est le rayon de Bohr de l’exciton, et L_{PQ} est l’épaisseur du puits quantique [78]. Au delà de ces valeurs de coupure, l’élément de matrice d’interaction décroît exponentiellement. A cause de ces limites sur le vecteur d’onde, l’énergie typique des phonons émis est de l’ordre de 1 meV et le taux d’émission spontanée de phonons décroît exponentiellement au delà de cette valeur [124]. La relaxation devient donc de moins en moins efficace au fur et à mesure que l’énergie de piège augmente. Parallèlement, lorsque l’énergie de piège augmente le temps de vie radiatif de l’état $k_{\parallel} = 0$ se raccourcit fortement et se rapproche du temps de vie de la cavité : 2.2 ps. A cause de la compétition entre la relaxation d’une part et l’émission lumineuse d’autre part, peu de polaritons s’accumulent dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$ en régime stationnaire, et les facteurs d’occupations restent faibles comparés à ceux du réservoir.

Quant aux états du réservoir, il existe deux mécanismes tendant à diminuer leur population : d’une part la **relaxation** vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$ suivie de la sortie radiative hors de la cavité, et d’autre part **l’émission radiative directe** via les modes de fuite de la cavité, en couplage faible avec les excitons. Bien que le premier mécanisme prenne de plus en plus d’importance lorsque l’on augmente l’énergie de piège, le nombre d’états proches de $k_{\parallel} = 0$ reste toujours faible devant le nombre total d’états radiants. En conséquence, l’émission radiative directe l’emporte toujours. À titre d’exemple, calculons le rapport r du nombre total d’états radiants sur le nombre d’états proches de $k_{\parallel} = 0$ pour la plus grande énergie de piège présentée sur nos données, $E_{\text{piège}} = 7.3 \text{ meV}$. Nous pouvons voir sur la courbe de dispersion de la Figure 4.6 que la zone fortement dispersive s’arrête vers $k_{\parallel} = k_1 \approx 4 \mu\text{m}^{-1}$, valeur au delà de laquelle les états font partie du réservoir. Par ailleurs, il existe des états radiants jusqu’à $k_{\parallel} = k_0 = n_{\text{cav}} E_{X_{\text{hh}}} / \hbar c \approx 26 \mu\text{m}^{-1}$ avec les paramètres de notre cavité. Ainsi, même pour la plus grande énergie de piège présentée ici, il y a $r = (k_0/k_1)^2 \approx 45$ fois plus d’états radiants que d’états proches de $k_{\parallel} = 0$.

La relaxation des polaritons du réservoir vers $k_{\parallel} = 0$ reste donc négligeable devant la recombinaison radiative directe. Ceci permet d'expliquer pourquoi les facteurs d'occupations dans le réservoir restent constants quelle que soit la valeur de l'énergie de piège.

4.4.3 Diminution du goulet d'étranglement de la relaxation par les collisions polaritons-polaritons

Nous cherchons à présent à observer l'effet d'une augmentation de la densité de polaritons, ce qui demande de connaître le rapport entre la densité de puissance P_{TiSa} et la densité de polaritons injectée n_{pol} . Comme $\frac{\partial n_{pol}}{\partial t} = 0$ en régime stationnaire, le flux de photons absorbés dans le puits quantique est égal au flux de photons émis, soit :

$$n_{pol} = \frac{t a P_{TiSa}}{E_{TiSa}} \tau_{rad}, \quad (4.12)$$

où E_{TiSa} est l'énergie du laser, $t = 44\%$ est la transmission de la cavité à l'énergie du laser, $a = 2\%$ représente l'absorption du puits quantique à cette énergie, et $\tau_{rad} = 700$ ps est le temps de vie radiatif moyen du réservoir, mesuré avec la caméra à balayage de fente à $T = 15$ K.

Avec ces valeurs, la densité de polaritons dans les expériences présentées dans la section 4.4.1 ci-dessus, et faites à 3 W.cm^{-2} est $n_{pol} = 7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$. Étant donné que nous avons mesuré les facteurs d'occupation du réservoir excitonique : $f_{res} = \widetilde{f}_{PB}(\text{réservoir}) = 8 \times 10^{-4}$, nous disposons d'une méthode indépendante de mesurer la densité de polaritons de manière. Pour cela, nous supposons une dispersion parabolique des excitons, avec une masse effective $m_X = 0.3 m_0$. Les états du réservoir dont nous avons mesuré le facteur d'occupation correspondent donc au bas du réservoir excitonique. La densité d'états de ce réservoir est constante : $D(E) = 2m_X/\pi\hbar^2$ si l'on tient compte des états excitoniques $J_z = \pm 1, \pm 2$. En supposant que le réservoir est à l'équilibre thermique, les facteurs d'occupation sont donnés par $f(E) = f_{res} \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right)$, et la densité de polaritons est :

$$n_{pol} = \int_0^{\infty} D(E) f(E) dE = \frac{2m_X}{\pi\hbar^2} k_B T f_{res}. \quad (4.13)$$

Ce calcul donne $n_{pol} = 2.6 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$, soit seulement un facteur 4 de différence avec l'autre méthode basée sur le temps de vie des excitons. Étant donné le côté nécessairement indirect de ces deux méthodes de mesure, il n'est pas surprenant de trouver une différence entre les deux. La comparaison que nous venons de faire indique cependant que les *ordres de grandeur* des facteurs d'occupation et des densités de polaritons sont cohérents entre eux. Dorénavant, nous reportons les valeurs de n_{pol} estimées à partir des temps

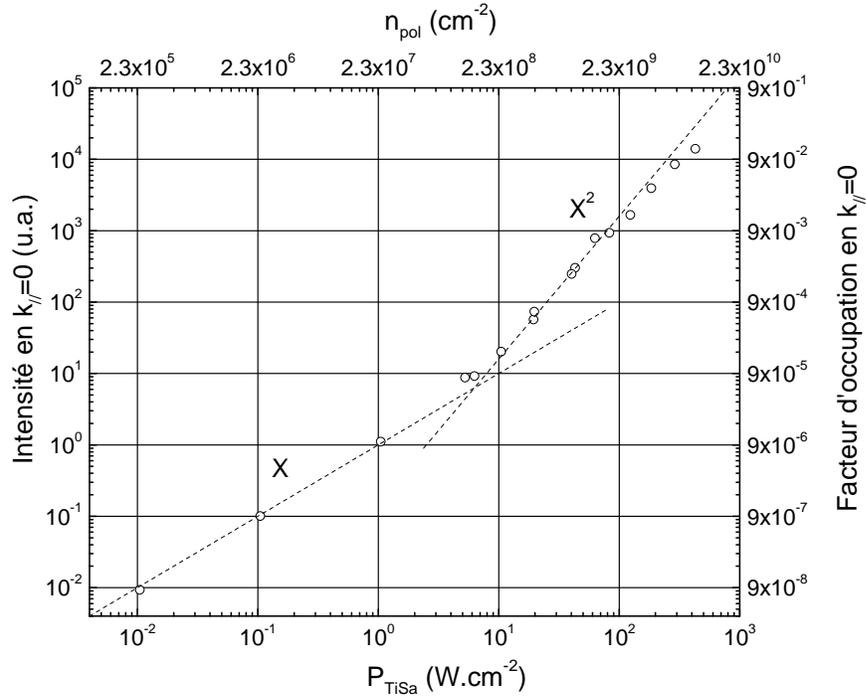


FIG. 4.9 – Intensité de luminescence de l'état $k_{\parallel} = 0$ en fonction de la puissance du laser TiSa. $T=15\text{K}$ et $\delta = -4 \text{ meV}$.

de vie, ce qui est la méthode habituellement employée en physique des semi-conducteurs et qui ne fait pas d'hypothèse sur la relation de dispersion des excitons ou sur leur distribution de population.

Lorsque l'on augmente la puissance du laser TiSa, on observe une non linéarité de l'intensité de luminescence provenant de l'état $k_{\parallel} = 0$ [122, 105, 106, 15], alors que la luminescence provenant de la branche haute ou du réservoir reste linéaire. Une étude en puissance de l'intensité de luminescence de l'état $k_{\parallel} = 0$ est reprise sur la Figure 4.9. L'intensité augmente linéairement jusqu'à une puissance d'environ 6 W.cm^{-2} , correspondant à $n_{pol} = 1.4 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$, à partir de laquelle elle devient quadratique.

Comme on peut le voir sur la Figure 4.10, l'état $k_{\parallel} = 0$ n'est pas le seul à avoir une évolution non linéaire. En fait, la distribution de population évolue dans son ensemble pour se rapprocher de l'équilibre thermique. A basse puissance, lorsque $n_{pol} = 7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$, on retrouve le coefficient \mathcal{A} obtenu en faisant varier l'énergie de piège : $\mathcal{A} = 53$. En revanche, pour $n_{pol} = 1.8 \times 10^9$ et $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, on trouve que la population a été redistribuée en faveur des états proches de $k_{\parallel} = 0$, et \mathcal{A} ne vaut plus que 7.6 et 3.6 respectivement. La non linéarité que nous observons permet donc de réduire le goulet d'étranglement de la relaxation de plus d'un ordre de grandeur.

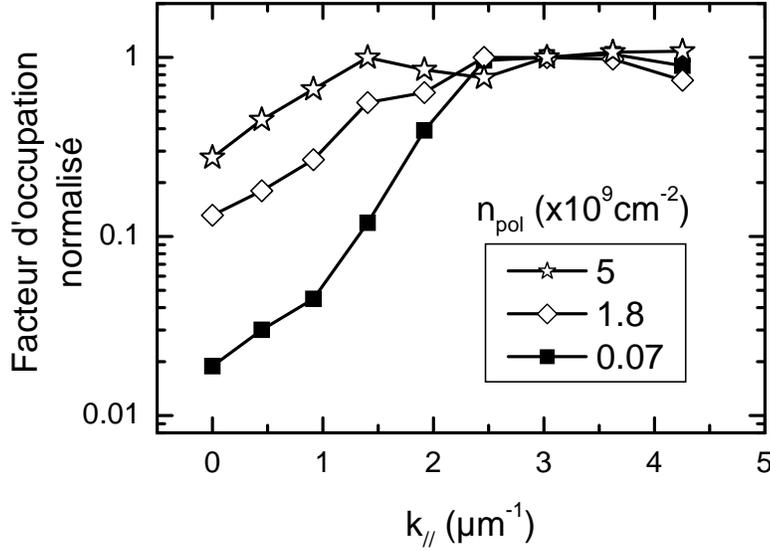


FIG. 4.10 – Redistribution de la population sous l'effet des collisions polaritons-polaritons. Les facteurs d'occupation ont été normalisés à celui du réservoir pour plus de clarté. $T=15\text{K}$ et $\delta = -4.5 \text{ meV}$.

Cette non-linéarité et la redistribution de population qui y est associée sont dues à l'importance croissante des collisions polaritons-polaritons [125]. Ce mécanisme peut en effet peupler les états proches de $k_{||} = 0$ lorsque deux polaritons du réservoir entrent en collision. A l'issue de cette collision, l'un est dans un état proche de $k_{||} = 0$ et l'autre se retrouve dans un état excitonique de haute énergie de telle sorte que l'énergie et le vecteur d'onde soient conservés. Son énergie cinétique est ultérieurement cédée au réseau par émission de phonons.

Il existe donc deux mécanismes concurrents de relaxation des polaritons depuis le réservoir vers $k_{||} = 0$, schématisés par les équations suivantes :

$$\text{Pol.}(\mathbf{k}_1) \rightarrow \text{Pol.}(0) + \text{Phon.}(\mathbf{k}_1 + k_z \mathbf{e}_z) \quad (4.14)$$

$$\text{Pol.}(\mathbf{k}_1) + \text{Pol.}(\mathbf{k}_2) \rightarrow \text{Pol.}(0) + \text{Pol.}(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2), \quad (4.15)$$

où $\text{Pol.}(\mathbf{k})$ et $\text{Phon.}(\mathbf{k})$ désignent respectivement un polariton et un phonon dans l'état \mathbf{k} . Le premier de ces mécanismes correspond à l'émission d'un phonon, et sauf effet de stimulation, le nombre d'émissions par unité de temps est proportionnelle à la population de polaritons dans les états \mathbf{k}_1 , autrement dit à n_{pol} . Le deuxième mécanisme fait en revanche intervenir deux particules et sa probabilité d'occurrence sera en conséquence proportionnelle à $(n_{pol})^2$. Cette différence de comportement permet donc d'expliquer les deux régimes distincts que nous observons : le régime linéaire dans

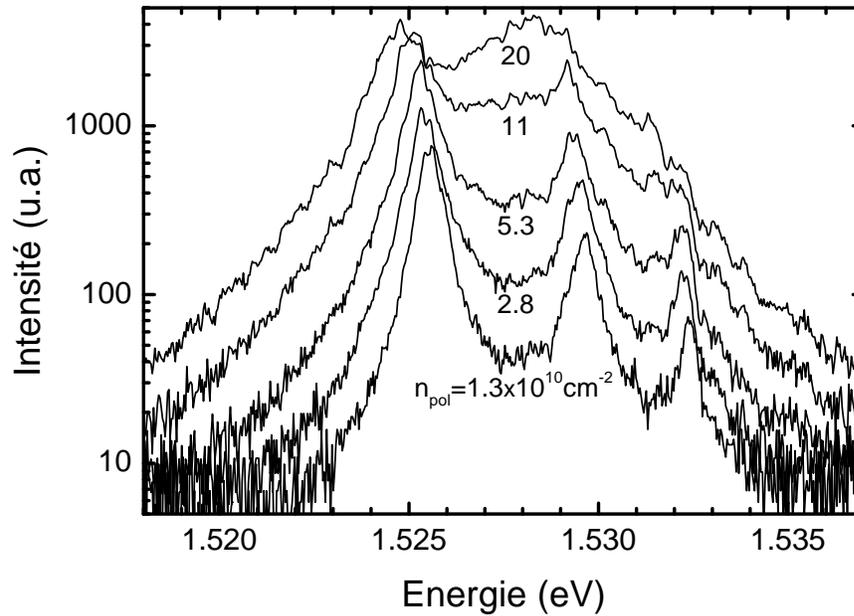


FIG. 4.11 – Écrantage du couplage fort par augmentation de la densité de polaritons. Ces spectres de luminescence sont pris à $T = 30\text{ K}$, $\delta = 0$ et aux puissances suivantes du laser TiSa : 0.55, 1.2, 2.3, 4.8 et $8.4\text{ kW}\cdot\text{cm}^{-2}$. Les densités de polaritons correspondantes sont reportées sur la figure.

lequel la distribution de population ne change pas correspond à une relaxation par émission de phonons et le deuxième correspond à une relaxation par collisions polaritons-polaritons.

L'efficacité de ce deuxième mécanisme de relaxation augmente avec la puissance, et permet de se rapprocher de l'équilibre thermique. Il ne permet toutefois pas d'atteindre l'équilibre thermique en désaccord négatif, car il est limité vers les hautes densités par la saturation de la transition excitonique. La Figure 4.11 montre les spectres obtenus en désaccord nul lorsque la densité de polaritons atteint 10^{10} cm^{-2} . On peut voir que les raies s'élargissent beaucoup avec la puissance, et finissent par se recouvrir. Simultanément, de nombreuses structures dues à différents modes transverses apparaissent dans le spectre. Ces phénomènes sont dus à la disparition du couplage fort lorsque la transition excitonique s'élargit. Nous pouvons estimer que le couplage fort subsiste jusqu'à une densité de l'ordre de $n_{pol} = 5 \times 10^{10}\text{ cm}^{-2}$, identique à celle trouvée par d'autres auteurs [49, 53, 15]. Sous excitation impulsionnelle, des densités encore plus élevées peuvent être atteintes, auquel cas on observe une émission laser en couplage faible.

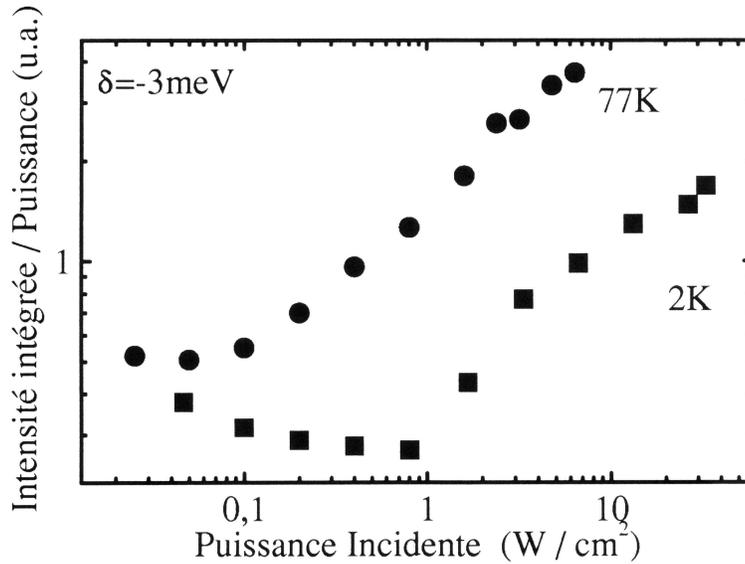


FIG. 4.12 – Intensité de luminescence en $k_{\parallel} = 0$, normalisée à la puissance d’excitation, en fonction de la puissance. Le seuil des collisions polariton-polariton est de 1 W.cm^{-2} à 2 K, et de 0.1 W.cm^{-2} à 77 K. Figure extraite de [107].

4.4.4 Rôle de la température sur les collisions polariton-polariton

La non-linéarité que nous observons à $T = 15 \text{ K}$ existe également aux autres températures. L’étude détaillée du comportement en température a été réalisée par P. SENELLART lors de sa thèse. La Figure 4.12 reprend les résultats clés de cette étude. Sur cette figure, l’intensité de luminescence provenant de l’état $k_{\parallel} = 0$ est normalisée à la puissance incidente. Le seuil de la non-linéarité correspond donc à des valeurs croissantes de $I(k_{\parallel} = 0)/P_{Tisa}$. On voit que le seuil de la non linéarité est réduit d’un facteur 10 lorsqu’on passe de 2 K à 77 K. Ainsi, en restant à une même puissance du laser et en augmentant la température, on passe d’une relaxation dominée par l’émission de phonons à une relaxation dominée par les collisions polariton-polariton. Ainsi, les collisions polaritons-polaritons sont activées thermiquement.

TASSONE et YAMAMOTO [125] ont montré que la température avait peu d’effet sur la relaxation par émission de phonons. En revanche, elle a un effet triple sur la relaxation par collisions polariton-polariton. Tout d’abord, les états de haute énergie du réservoir excitonique sont de plus en plus peuplés lorsque la température augmente. Ces états ne sont pas couplés au champ électromagnétique. En conséquence, le temps de vie radiatif moyen du résér-

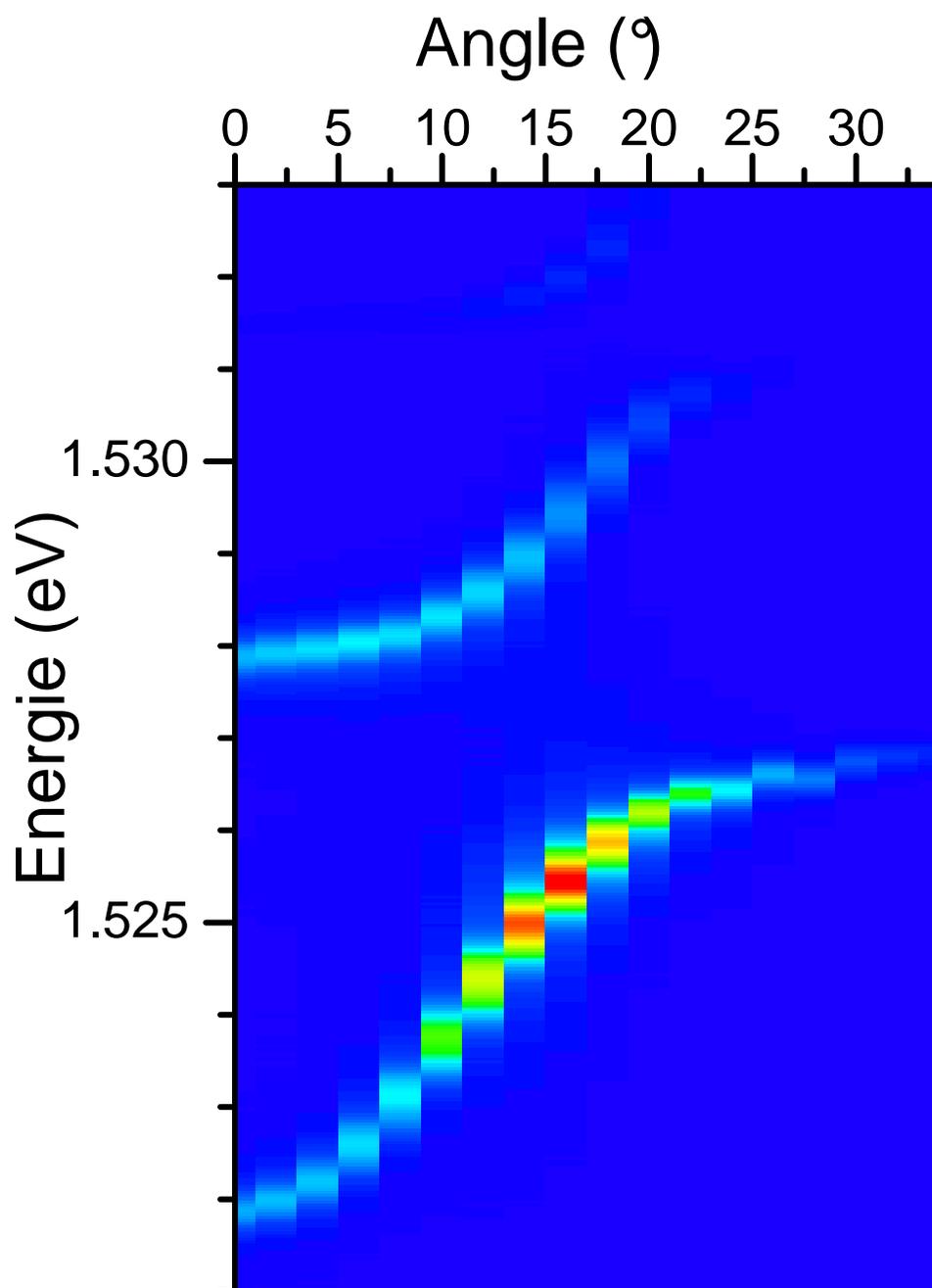


FIG. 4.13 – Spectres de luminescence résolus angulairement pour $\delta = -4$ meV, $T = 15$ K et $P_{TiSa} = 1.5$ W.cm $^{-2}$ ($n_{pol} = 3.5 \times 10^7$ cm $^{-2}$ et $n_e = 0$).

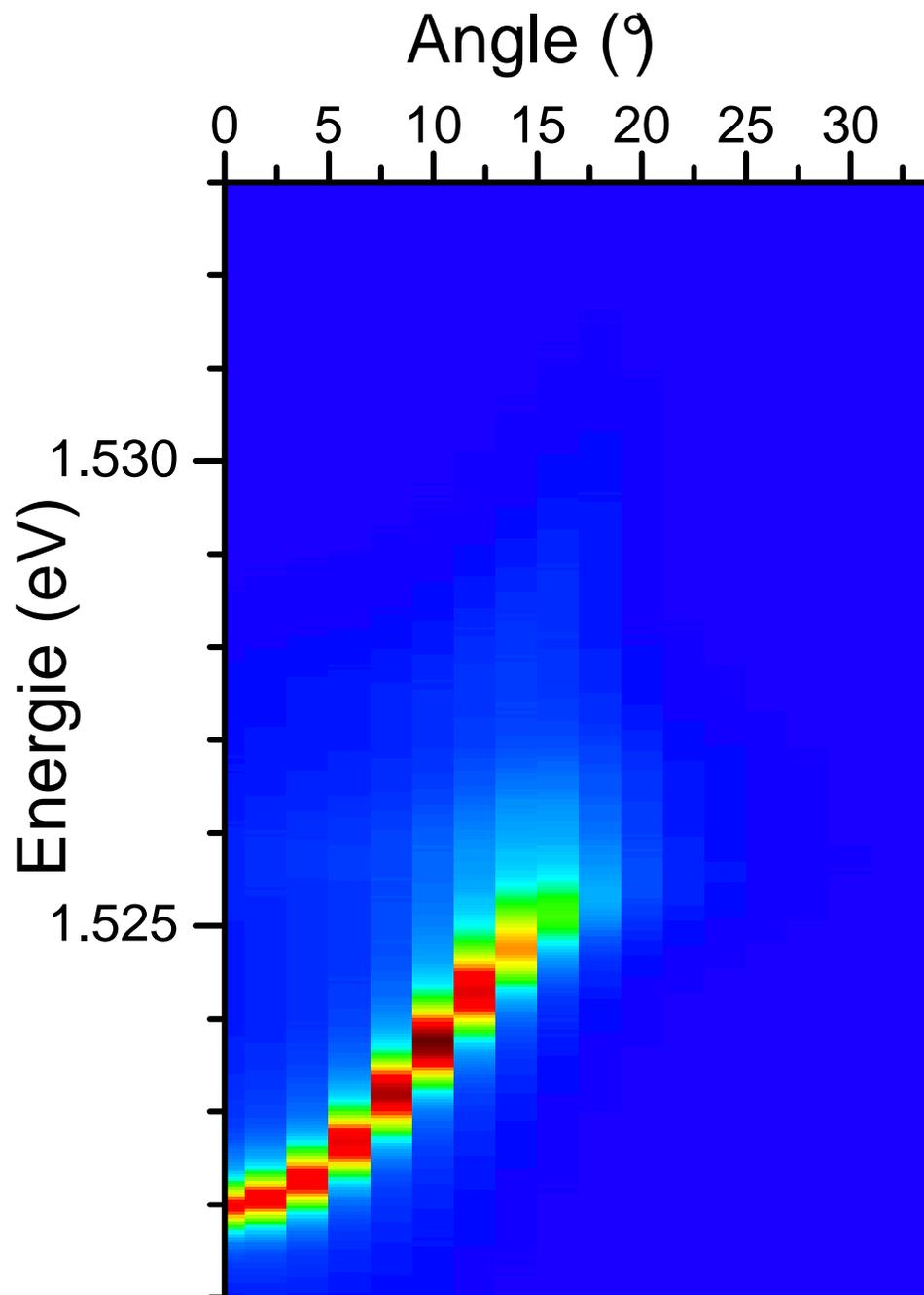


FIG. 4.14 – Spectres de luminescence résolus angulairement dans les mêmes conditions que la figure précédente, excepté que le laser HeNe est présent. $P_{\text{HeNe}} = 0.2 \text{ W.cm}^{-2}$ ($n_{\text{pol}} = 3.5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$ et $n_e = 10^9 \text{ cm}^{-2}$). L'échelle de couleurs est la même que sur la Figure 4.13.

voir est plus long à haute température, et une même puissance du laser TiSa crée une plus forte densité de polaritons. L'observation d'un seuil à plus faible puissance ne signifie donc pas nécessairement que la densité soit plus faible. Parallèlement, les collisions polaritons-polaritons ne sont possibles que lorsqu'il y a conservation de l'énergie et du vecteur d'onde entre les états initiaux et finaux de la collision. Comme la dispersion de la branche basse de polaritons est très forte, les collisions amenant un polariton en $k_{\parallel} = 0$ ne peuvent se faire qu'avec un polariton présentant la même pente dans la relation de dispersion. Autrement dit, les collisions polaritons-polaritons font intervenir les états de haute énergie du réservoir, qui sont peuplés thermiquement. Ces collisions seront donc activées thermiquement. Enfin, en augmentant la température, les états polaritoniques s'élargissent et la contrainte de conservation de l'énergie s'assouplit fortement. Bien que leur importance relative n'ait pas été clairement étudiée, ces trois effets vont dans le sens commun d'une activation des collisions polaritons-polaritons avec la température.

4.5 Étude de la relaxation en présence d'un gaz d'électrons

Nous étudions maintenant le rôle des collisions polariton-électron. Sur la Figure 4.13, les spectres de photoluminescence résolue angulairement ont été juxtaposés sur une même image, l'échelle de couleur étant proportionnelle à l'intensité de photoluminescence. Pour réaliser ces spectres, le puits quantique ne contient pas de gaz d'électrons et la densité de polaritons est relativement basse, de sorte que la relaxation est due à l'émission de phonons. En conséquence, l'intensité de luminescence est maximale pour un angle de 16° , et elle est plus faible d'un ordre de grandeur en $k_{\parallel} = 0$. Sur la Figure 4.14, nous avons juxtaposé des spectres réalisés dans les mêmes conditions expérimentales, mis à part qu'un gaz d'électrons de densité $n_e = 10^9 \text{ cm}^{-2}$ est injecté dans le puits quantique. En comparant ces deux images l'une à l'autre, on remarque de fortes modifications d'intensité pour tous les états de polaritons. D'une part, l'intensité provenant des états proches de $k_{\parallel} = 0$ augmentent fortement en présence du gaz d'électrons, d'un facteur 10 dans le cas particulier de l'état $k_{\parallel} = 0$. D'autre part, l'intensité de la branche de polariton de haute énergie ainsi que celle du réservoir diminuent. Notons que la population de polaritons créée par l'absorption du faisceau laser HeNe dans le puits quantique large est très faible. En effet, lorsque le système est excité par le faisceau HeNe seul, nous avons vérifié que l'intensité de luminescence est au minimum 20 fois plus faible que lorsque le système est excité par le faisceau TiSa seul. Les modifications observées sur l'intensité de luminescence proviennent donc de la présence du gaz d'électrons.

Avant de discuter de l'efficacité des collisions polariton-électron, il est important de rappeler que le réservoir devient trionique à forte densité d'élec-

trons (voir le § 4.3). En effet, lorsque le trion entre en régime de couplage fort, l'énergie du réservoir diminue d'environ 1.4 meV, qui est l'énergie de liaison du trion, alors que les états proches de $k_{\parallel} = 0$ ne changent pas en énergie. En conséquence, si l'on reste sur un même point de l'échantillon, l'énergie de piège $E_{\text{piège}}$ diminue avec n_e . Ainsi, comme nous l'avons vu au § 4.4, même si les collisions polaritons-électrons n'intervenaient pas, l'amplitude du goulet d'étranglement \mathcal{A} serait diminuée par le seul effet des modifications des niveaux d'énergie. Afin de clairement distinguer l'effet des collisions, nous avons choisi de changer le désaccord entre l'exciton et la cavité lorsque n_e est variée, de manière à garder une *énergie de piège* $E_{\text{piège}}$ constante et non un *désaccord* constant.

Sur la Figure 4.15, nous montrons l'évolution de la distribution de population avec la densité d'électrons, pour deux énergies de piège : $E_{\text{piège}} = 2.2$ meV, correspondant à $\delta = 0$ en l'absence d'électrons, et $E_{\text{piège}} = 5.4$ meV, correspondant à $\delta = -4.5$ meV en l'absence d'électrons. Dans ces deux cas, les facteurs d'occupation dans le réservoir évoluent peu avec la densité d'électrons : ils augmentent d'un facteur 1.5 à 2 pour les plus fortes densités d'électrons. Ainsi, la caractéristique principale montrée sur ces figures concerne la distribution de population dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$, qui s'aplatit de plus en plus lorsque la densité d'électrons augmente. Les collisions polariton-électrons ont donc tendance à rapprocher le système de l'équilibre thermique.

A partir de ces mesures, nous pouvons quantifier l'écart du système à l'équilibre thermique grâce au coefficient \mathcal{A} défini précédemment. La variation de \mathcal{A} avec la densité d'électrons est montrée sur la Figure 4.16 pour 4 valeurs de l'énergie de piège. Les valeurs de \mathcal{A}_{eq} , correspondant à une distribution de Boltzmann de la population, sont indiquées sur la droite de la figure.

Grâce aux collisions polariton-électron, l'amplitude du goulet d'étranglement \mathcal{A} peut être divisée par un facteur 5 pour les plus grandes énergies de piège — par exemple pour $E_{\text{piège}} = 5.4$ meV —, et par 2.5 pour la plus faible énergie de piège présentée ici : $E_{\text{piège}} = 2.2$ meV. Comme pour les collisions polariton-polariton, la redistribution de population induite par les collisions polariton-électron est donc d'autant plus importante que l'énergie de piège est importante. Les expériences ont été réalisées jusqu'à des densités d'électrons $n_e = 5 \times 10^9$ cm⁻³ correspondant à la densité d'écrantage du couplage fort. Cependant, même dans ces conditions, le système reste loin de l'équilibre thermique, et nous n'observons pas d'effet de stimulation de la relaxation.

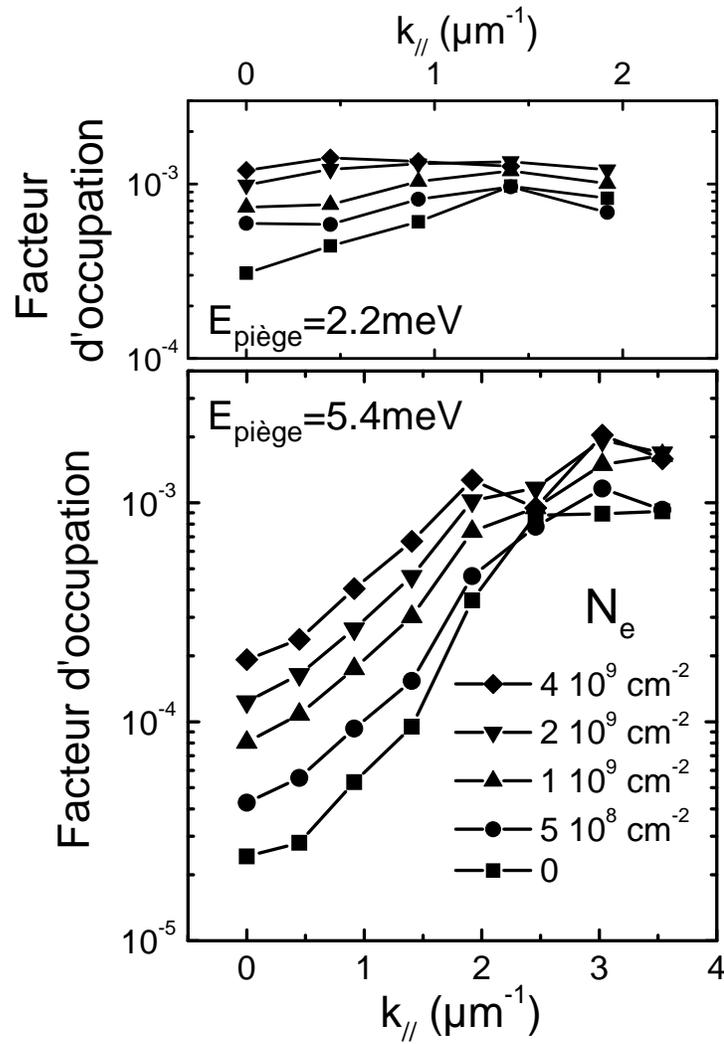


FIG. 4.15 – Redistribution de la population due aux collisions polaritons-électrons pour deux énergies de piège. $T=15\text{K}$ et $P_{TiSa} = 3 \text{ W.cm}^{-2}$ ($n_{pol} = 7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$).

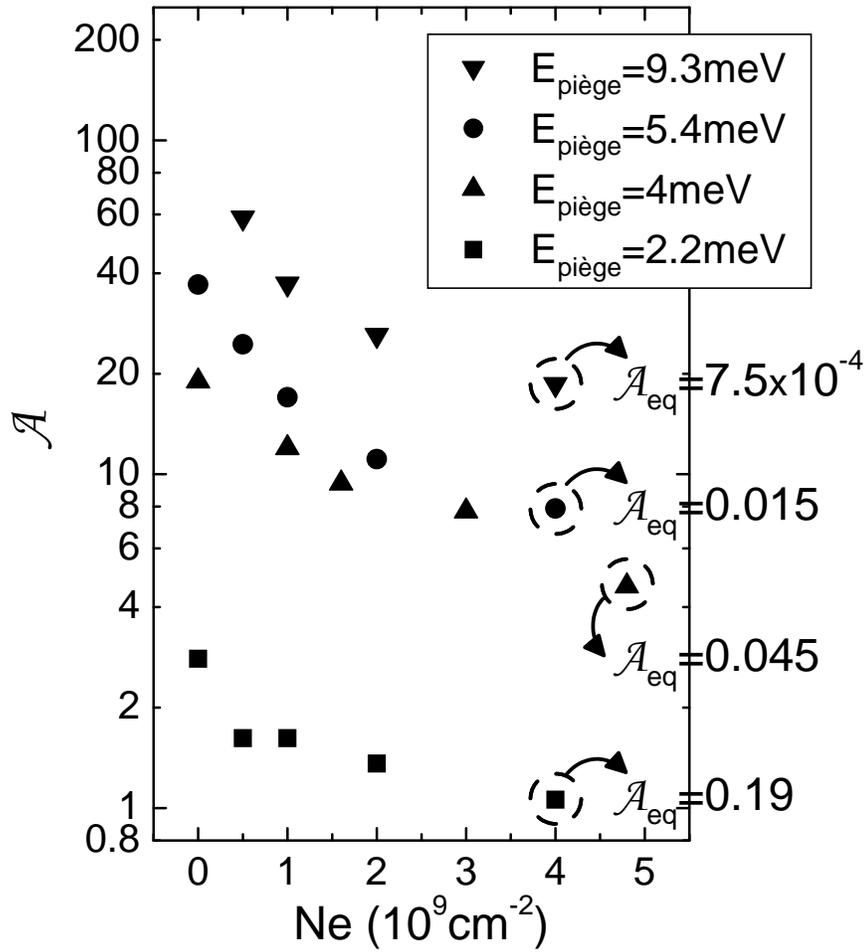


FIG. 4.16 – Amplitude du goulet d'étranglement de la relaxation en fonction de la densité d'électrons injectés dans le puits quantique, pour quatre valeurs de l'énergie de piège. Les valeurs de \mathcal{A}_{eq} correspondant à ces énergies de piège sont reportées sur la droite de la figure.

4.6 Comparaison entre les collisions polariton-polariton et les collisions polariton-électron

Nous comparons maintenant les deux mécanismes de collision permettant d'avoir une forte redistribution de la population, à savoir les collisions polaritons-polaritons et les collisions polaritons-électrons.

4.6.1 Variation simultanée de la densité d'électrons et de la densité de polaritons

La Figure 4.17 montre l'évolution des facteurs d'occupation dans l'état $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir lorsque l'on augmente la densité de polaritons. En l'absence d'électrons, nous retrouvons le comportement déjà mis en évidence, c'est à dire une augmentation quadratique avec n_{pol} des facteurs d'occupation dans l'état $k_{\parallel} = 0$ alors que dans le réservoir, l'augmentation des facteurs d'occupation est linéaire (dans ces expériences, n_{pol} est toujours suffisamment élevée de telle sorte que les collisions polaritons-polaritons l'emportent sur l'émission de phonons).

Lorsque l'on injecte un gaz d'électrons, la population dans le réservoir dépend toujours linéairement de la puissance d'excitation [figure 4.17(b)]. Quand à l'état $k_{\parallel} = 0$, son facteur d'occupation est initialement plus élevé qu'en l'absence du gaz d'électrons, mais il augmente linéairement avec la puissance d'excitation. En conséquence, à forte densité de polaritons, lorsque $n_{pol} \approx n_e$, les courbes de la Figure 4.17(a) finissent par se rejoindre et que pour des densités de polaritons supérieures à n_e , les facteurs d'occupation en $k_{\parallel} = 0$ augmentent quadratiquement, indépendamment de la présence du gaz d'électrons. Nous observons donc le passage progressif d'une relaxation dominée par les collisions polaritons-électrons à une relaxation dominée par les collisions polaritons-polaritons.

Notons que les facteurs d'occupations restent toujours inférieurs à 1 et qu'en conséquence, nous ne voyons pas d'effets de stimulation de la relaxation. De même, nos tentatives d'optimiser les divers paramètres expérimentaux (température, désaccord, densité d'électrons et densité de polaritons) autour des conditions a priori les plus favorables ($\delta \approx 0$ et n_{pol} proche de l'écrantage) n'ont pas mis en évidence de stimulation de la relaxation.

Nous pouvons décrire l'évolution des populations par des équations de bilan en régime stationnaire. Le taux de relaxation des polaritons du réservoir vers $k_{\parallel} \simeq 0$ est donné par $\Gamma = An_e + Bn_{pol}$, où A et B sont les coefficients d'interaction polaritons-électrons et polaritons-polaritons respectivement, incluant une moyenne de l'élément de matrice d'interaction sur l'ensemble des états du réservoir. En régime stationnaire, la population dans l'état $k_{\parallel} = 0$ sera proportionnelle à $\Gamma \times n_{pol} = An_en_{pol} + B(n_{pol})^2$. Ce modèle simple permet de reproduire les observations expérimentales de la Figure 4.17 à condition de prendre $A = B$. En l'absence d'électrons

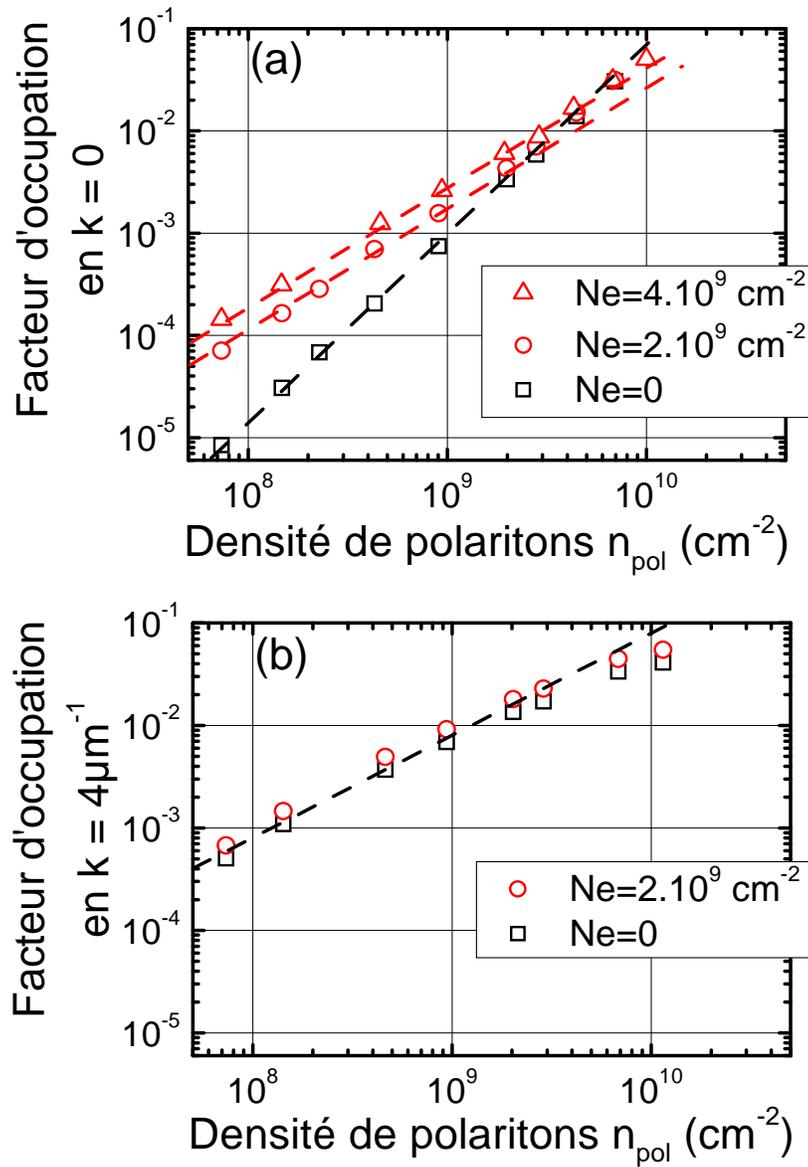


FIG. 4.17 – Évolution des facteurs d'occupation en $k_{\parallel} = 0$ (a) et dans le réservoir (b) en fonction de la densité de polaritons. $T = 15 \text{ K}$ et $\delta = -4.5 \text{ meV}$. Les lignes tiretées sont un guide pour les yeux.

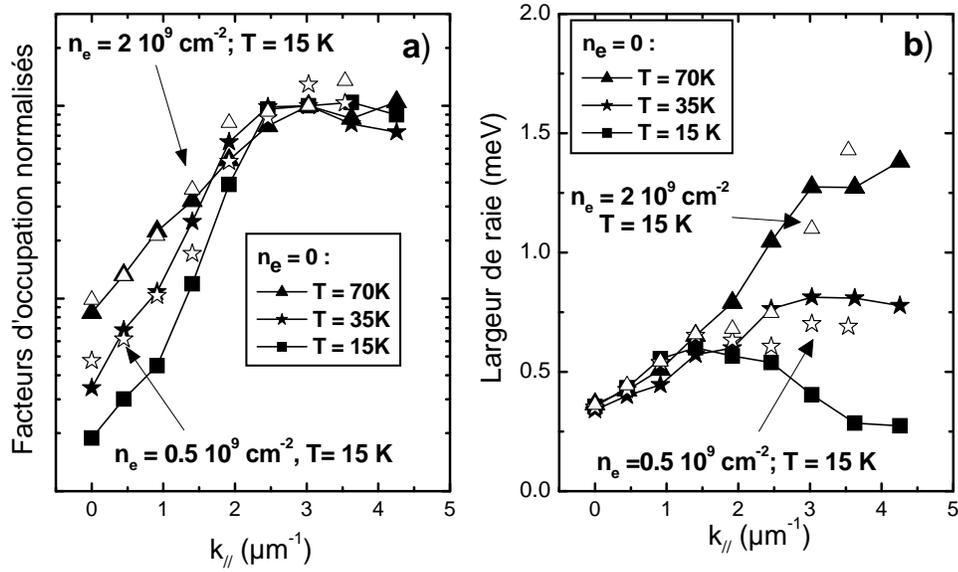


FIG. 4.18 – Comparaison de l'effet des collisions polariton-électron et des collisions polariton-polariton. Les facteurs d'occupations ont été normalisés à celui du réservoir. $P_{TISa} = 3 \text{ W.cm}^{-2}$ ($n_{pol} = 7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$) et $E_{piège} = 5.4 \text{ meV}$.

($n_e \ll n_{pol}$), la relaxation est dominée par les collisions polariton-polariton et la population augmente quadratiquement. Lorsque $n_e \gg n_{pol}$, les collisions polariton-électron l'emportent et la population augmente linéairement. Enfin, le fait de choisir $A = B$ permet de rendre compte du fait que les deux courbes se croisent pour $n_e \approx n_{pol}$. Mais par ailleurs, ce résultat signifie que les collisions polaritons-polaritons ont *la même efficacité intrinsèque* que les collisions polaritons-électrons, c'est à dire qu'une collision polariton-polariton a la même probabilité d'amener un polariton en $k_{\parallel} = 0$ qu'une collision polariton-électron.

4.6.2 La largeur de raie dans le réservoir : un paramètre clé de la relaxation

Voyons à présent ce qui se passe lorsque la température est augmentée. En raison de la forte variation de la densité d'électrons avec la température (cf. chapitre 3), nous ne présentons pas d'expérience réalisée simultanément en présence d'un gaz d'électrons et à haute température. La Figure 4.18 compare les distributions de population et les largeurs de raies obtenues en faisant varier indépendamment la température et la densité d'électrons. Les facteurs d'occupation absolus baissant avec la température, nous avons normalisé les facteurs d'occupation à ceux du réservoir afin d'effectuer la

comparaison. Nous trouvons que la population est redistribuée vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$ lorsque la température augmente, ce qui est dû aux collisions polariton-polariton : en effet, à 35 K comme à 70 K, le signal en $k_{\parallel} = 0$ est quadratique avec la puissance d'excitation. En restant à $T = 15$ K nous pouvons, pour des valeurs de n_e bien choisies, obtenir la même distribution de population que lorsque la température est variée. Ceci permet de comparer les deux mécanismes de relaxation : les données à 35 K se comparent à celles obtenues à $T = 15$ K avec $n_e = 0.5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ et celles à 70 K se comparent à celles obtenues avec $n_e = 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ [Figure 4.18(a)].

La Figure 4.18(b) nous permet également de comparer les largeurs de raies correspondant à ces deux séries de données. A $T = 15$ K, la largeur de raie présente un maximum aux alentours de $k_{\parallel} = 2 \mu\text{m}^{-1}$, lequel a une origine extrinsèque : à ce point de la branche de polariton, la dispersion de l'énergie avec le vecteur d'onde est la plus forte et la résolution limitée de notre sélection angulaire (2°) a pour effet d'élargir les raies de façon inhomogène. Cet effet disparaît dans le réservoir lorsque la dispersion redevient plate au-delà de $k_{\parallel} = 3.5 \mu\text{m}^{-1}$ et l'on obtient alors la largeur de raie de l'exciton $\approx 0.2 \text{ meV}$. Nous pouvons remarquer que la température comme la présence du gaz d'électrons élargit les raies dans le réservoir à cause des deux mécanismes de relaxation : les collisions polaritons-polaritons lorsque l'on augmente la température et les collisions polaritons-électrons lorsque l'on augmente n_e . Par ailleurs, les données donnant la *même* largeur de raie dans le réservoir donnent la *même* distribution de population. À cause du changement de désaccord nous permettant de garder une énergie de piège constante, l'augmentation de la largeur de raie a lieu pour des valeurs plus grandes de k_{\parallel} dans le cas des collisions polaritons électrons. Toutefois, la largeur de raie obtenue dans le réservoir est effectivement la même et nos mesures montrent que cette largeur de raie est le paramètre clé conditionnant la distribution de population que nous obtenons.

4.7 Discussion et conclusion

4.7.1 Comparaison à la bibliographie existante

Les expériences concernant les collisions polaritons-électrons réalisées lors de ce travail de thèse poursuivent les autres recherches conduites dans ce domaine [67, 85, 83, 63]. Sa particularité est notamment de s'intéresser à la luminescence résolue en angle pour toute la branche de polariton de basse énergie, et de comparer les collisions polariton-électron aux collisions polariton-polariton. Ainsi, bien que A. QARRY et ses collaborateurs [83] collectent la luminescence provenant de toute la zone en couplage fort (soit de -2 à $+2 \mu\text{m}^{-1}$), ils utilisent pour cela un dispositif expérimental ne comportant pas de sélection angulaire. Ils ne peuvent donc pas différencier les états et distinguer l'augmentation de population à l'intérieur de chacun

d'entre eux, ou encore étudier le comportement du réservoir excitonique. De plus, dans cette publication qui est l'une des premières sur le sujet, l'augmentation de la luminescence ($\times 2$ pour $\delta = 0$ et $\times 10$ pour $\delta = -4.7$ meV, soit environ la même que celle que nous observons lorsque nous laissons le désaccord constant) n'est étudiée que pour de faibles densités de polaritons. Cette étude a contribué à forger l'idée selon laquelle les collisions polaritons-électrons permettent une relaxation très efficace des polaritons vers $k_{\parallel} = 0$. La comparaison que nous avons faite avec les collisions polariton-polariton affaiblit cette idée : en effet les collisions polariton-électron ne jouent un rôle important que lorsque la densité de polaritons est faible et leur effet disparaît lorsque les collisions polariton-polariton deviennent prépondérantes.

Quant au travail publié par P. G. LAGOUDAKIS et ses collaborateurs [63], il lui manque probablement une mesure précise de la densité d'électrons telle que celle présentée au chapitre précédent sur l'échantillon gravé. En effet, le passage d'un réservoir excitonique à un réservoir trionique tend à diminuer l'énergie de l'exciton, ce qui se traduit en désaccord négatif par un rapprochement entre les raies de polaritons (au désaccord très négatif de -15 meV étudié par P. G. LAGOUDAKIS, le polariton de basse énergie correspond au mode de la cavité, dont l'énergie ne change pas avec la densité d'électrons, alors que le polariton de haute énergie de l'exciton et celle de la cavité. Les auteurs ont sans doute confondu ce phénomène avec l'écrantage du couplage fort, qui se traduit également par un rapprochement des raies de polaritons. En conséquence, ils se sont limités à de faibles densités d'électrons et n'observent qu'une augmentation d'un facteur 1.5 de la luminescence en $k_{\parallel} = 0$ (contre un facteur 10 dans notre cas). D'autre part, leur structure est très similaire à la nôtre, or le chapitre précédent montre que la densité d'électrons injectée par une puissance donnée du laser HeNe dépend très fortement de la température. Ceci permettrait d'expliquer le rétrécissement des raies avec la luminescence par une diminution de la densité d'électrons, et non par une baisse de l'efficacité des collisions polariton-électron.

Nous présentons sur la Figure 4.19 une comparaison entre nos mesures expérimentales et les prévisions théoriques de MALPUECH et ses collaborateurs [67]. L'efficacité radiative de l'échantillon est définie comme la puissance émise dans un cône de 1° autour de la normale à l'échantillon, divisée par la puissance absorbée. Notons que le coefficient d'absorption αL du puits quantique est un paramètre important permettant de comparer théorie et expérience, puisque nous mesurons la puissance *incidente* et que sur ce graphique, la puissance *absorbée* intervient à la fois sur l'axe des abscisses et sur celui des ordonnées à travers la définition de l'efficacité radiative. Nous avons considéré $\alpha L = 0.5\%$ de façon à ce que le seuil du couplage faible soit le même en théorie et expérimentalement.

L'efficacité radiative obtenue en l'absence d'électrons ($n_e = 0$) présente les mêmes caractéristiques dans les expériences et dans la théorie. En particulier, elle augmente linéairement avec la puissance absorbée et est de

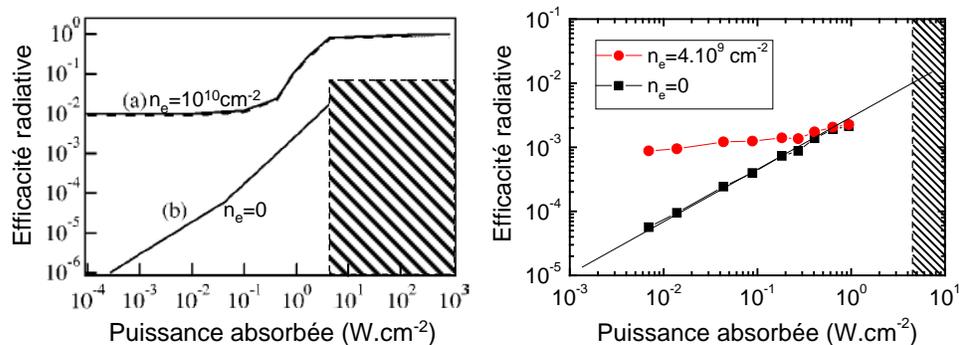


FIG. 4.19 – Comparaison entre théorie et expérience. La figure de gauche est extraite de [67], alors que celle de droite est obtenue à partir des données de la Figure 4.17. Les parties hachurées correspondent au régime de couplage faible.

l'ordre de 1% lorsque nous approchons du couplage faible. Nous retrouvons également le fait qu'en présence de collisions polaritons-électrons, l'efficacité radiative reste quasiment constante. La brusque augmentation de l'efficacité radiative sur la courbe (a) est liée à la formation d'un condensat en $k_{\parallel} = 0$ [67], qui n'est pas observée expérimentalement. En revanche, nous pouvons remarquer que l'efficacité radiative est environ 10 fois plus faible expérimentalement qu'en théorie.

Plusieurs facteurs peuvent expliquer ce désaccord. Tout d'abord, les densités d'électrons que nous mesurons sont environ deux fois plus faibles que celles utilisées lors du calcul théorique. En effet, l'injection d'une plus grande densité d'électrons conduit à un écrantage du couplage fort et nous ne pouvons dès lors pas parler de polaritons. La bibliographie existante [53, 15] s'accorde à dire que le couplage fort disparaît plutôt à cause d'un élargissement de la transition excitonique que de la baisse de la force d'oscillateur de l'exciton. Nous pensons que le passage en couplage fort du trion peut être assimilé à une forte augmentation de la largeur de raie de l'exciton : en effet, les raies X et X⁻ sont séparées par seulement 1.4 meV et à forte densité d'électrons elles se fondent en une seule raie dont la largeur est la somme des largeurs de raies initiales. Ainsi, la présence d'une raie trionique peut être tenue pour responsable de la faible densité d'écrantage $n_e^{\text{sat}} \approx 5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ que nous observons (à comparer à $n_{\text{pol}}^{\text{sat}} \approx 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$).

Nous pouvons également noter que les calculs présentés dans [67] reposent sur la règle d'or de Fermi, c'est à dire que lors des calculs des taux de diffusion, la largeur homogène des niveaux est négligée. Les largeurs homogènes importantes que nous obtenons (de l'ordre de 2 meV dans le réservoir pour les densités d'électrons qui nous intéressent) nécessitent probablement une prise en compte théorique plus élaborée.

Mais le problème principal vient de ce qu'il est difficile expérimentalement de créer un gaz d'électron de basse densité dans lequel les électrons soient réellement libres. Ainsi dans notre cas, les trous sont situés à 100 Å seulement du puits quantique large et sont donc liés aux électrons sous la forme d'excitons indirects. Afin de calculer l'énergie de liaison des excitons indirects, nous décrivons le mouvement relatif des électrons confinés dans le puits quantique large (d'épaisseur $L_1 = 200$ Å) et des trous confinés dans le puits quantique étroit ($L_2 = 26$ Å) dans l'approximation de la fonction enveloppe. Une approche variationnelle à l'aide de la fonction d'essai suivante :

$$\phi_\lambda(\mathbf{r}, z_e, z_h) = \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{\pi L_1 L_2}} \cos\left(\frac{\pi}{L_1} z_e\right) \cos\left(\frac{\pi}{L_2} (z_h - D)\right) \frac{1}{\lambda} e^{-\frac{|\mathbf{r}|}{\lambda}}, \quad (4.16)$$

nous permet alors de calculer l'énergie de liaison. Dans cette expression, D est la distance entre les centres des deux puits quantiques et le rayon de Bohr λ est notre paramètre variationnel. En choisissant une fonction d'essai séparable en \mathbf{r} , z_e et z_h , le problème variationnel se ramène à trouver la valeur de λ minimisant l'énergie de liaison $g(\lambda) = \langle \phi_\lambda | H_B | \phi_\lambda \rangle$, où H_B est le hamiltonien de liaison de la paire électron-trou :

$$H_B = -\frac{\hbar^2}{2\mu} (\nabla_{\mathbf{r}})^2 - \frac{e^2}{\varepsilon_r \sqrt{\mathbf{r}^2 + (z_e - z_h)^2}}, \quad (4.17)$$

où μ est la masse réduite du système électron-trou, e est la charge de l'électron en unités électrostatiques et ε_r est la constante diélectrique du semi-conducteur. Dans notre cas, on trouve que $g(\lambda)$ est minimale pour un rayon de Bohr λ égal à 300 Å, ce qui donne une énergie de liaison des excitons indirects égale à $-g(\lambda) = 2.7$ meV. Les électrons et les trous sont donc fortement liés en excitons. A titre de comparaison, la température d'ionisation de ces excitons en paires électrons-trous est de 30 K et la densité de Mott est $n_{\text{Mott}} = 1/\lambda^2 = 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Dans les conditions expérimentales étudiées, les excitons indirects ne sont donc pas écrantés.

Des arguments qualitatifs permettent de comprendre que les collisions entre les polaritons et ces excitons indirects doivent être intermédiaire entre les collisions polariton-polariton et des collisions polariton-électron libres. Puisque les électrons et les trous sont situés dans deux puits quantiques différents, un dipôle permanent est associé aux excitons indirects. Les interactions électrostatiques (de type dipôle permanent-dipôle induit) sont donc moins fortes que si l'on avait un électron libre (dans ce cas, les interactions sont de type charge-dipôle induit), mais elles sont cependant plus fortes que celles créées par un exciton direct, non dipolaire (les interactions sont alors de type dipôle induit-dipôle induit). Par ailleurs, la masse effective des excitons indirects est nécessairement plus importante que celle des électrons. Comme souligné par [67], ceci vient donc également diminuer l'efficacité des collisions polaritons-excitons indirects par rapport aux collisions polariton-électron

libres. Bien que qualitatifs (une étude théorique plus détaillée n'étant pas disponible à notre connaissance), ces arguments permettent de comprendre que la présence du gaz de trous affaiblit les collisions polaritons-électrons.

Comprenant l'enjeu qu'il y a à éloigner les deux puits quantiques l'un de l'autre, nous avons réalisé une dizaine d'échantillons avec différentes tailles de barrières. Dans les conditions de nos expériences, l'écrantage des interactions coulombiennes entre les électrons et les trous nécessite des épaisseurs de barrières du même ordre de grandeur que la taille de la cavité. Ainsi, pour une barrière de 190 nm (les puits quantiques étroits sont alors au bord d'une cavité $3\lambda/2$), le rayon de Bohr des excitons indirects est de l'ordre de 1100 Å, correspondant à $n_{\text{Mott}} = 8 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, et leur énergie de liaison est de 0.42 meV, correspondant à une température d'ionisation des excitons indirects de l'ordre de 5 K. Une barrière de 190 nm permettrait donc de disposer d'électrons réellement libres dans les conditions expérimentales utilisées ($T = 15 \text{ K}$ et $n_e \sim 10^9 \text{ cm}^{-2}$). Les échantillons réalisés n'ont malheureusement pas montré de preuve indiscutable du transfert d'électrons dans des échantillons avec une barrière aussi épaisse, c'est à dire que nous n'avons pas observé la dégénérescence du gaz d'électrons nous permettant de mesurer sa densité. Toutefois, étant donné que différents échantillons ayant la même structure nominale montrent des comportements différents, il n'est pas à exclure qu'une compréhension plus fine du transfert des électrons d'un puits quantique à l'autre ainsi qu'une amélioration des conditions de croissance permette d'utiliser des barrières de cette taille là et ainsi de disposer d'un gaz d'électrons réellement libres.

4.7.2 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons montré et expliqué l'effet des différents paramètres expérimentaux sur la distribution de polaritons atteinte en régime permanent. Le comportement du gaz de polaritons est résumé sur la Figure 4.20. En l'absence d'électrons et en désaccord négatif, il existe un goulet d'étranglement de la relaxation. Celui-ci se manifeste par des facteurs d'occupation plus importants dans le réservoir que dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$. Lorsque l'on élève la température ou la densité de polaritons, les collisions polaritons-polaritons prennent de plus en plus d'importance, deviennent plus efficaces que l'émission de phonons et redistribuent la population en faveur des états proches de $k_{\parallel} = 0$. Ces collisions permettent d'augmenter la fraction de polaritons en $k_{\parallel} = 0$ de plus d'un ordre de grandeur. De plus, elles ne changent pas la forme des relations de dispersion jusqu'à $n_{\text{pol}} = 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Au delà de cette densité, l'élargissement de la transition excitonique est responsable de la perte du couplage fort exciton-photon.

L'injection d'un gaz d'électrons permet elle aussi, grâce aux collisions polariton-électron, de redistribuer la population en faveur des états proches

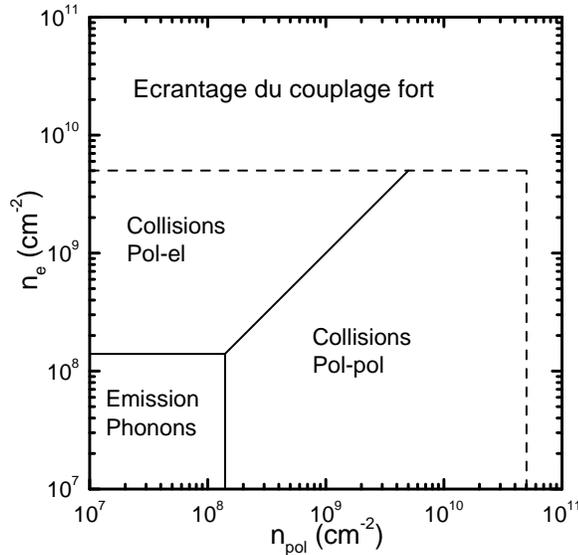


FIG. 4.20 – Domaines de prédominance des mécanismes de relaxation pour $T = 15$ K.

de $k_{\parallel} = 0$. En désaccord négatif, le facteur d'occupation de l'état $k_{\parallel} = 0$ est multiplié par un facteur supérieur à 10 en présence d'une densité d'électrons de l'ordre de $n_e = 5 \times 10^9$ cm $^{-2}$. Cependant, une partie de cette augmentation de la population provient de la diminution de $E_{piège}$ avec n_e , et lorsque l'on garde $E_{piège}$ constante, l'augmentation atteint un facteur 5.

Par ailleurs, la comparaison avec les collisions polaritons-polaritons montre que celles-ci peuvent devenir plus efficaces que les collisions polaritons-électrons lorsque n_{pol} dépasse n_e . Autrement dit, les processus élémentaires des deux mécanismes de collisions sont aussi efficaces à amener des polaritons dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$, et les valeurs respectives de n_e et de n_{pol} déterminent quel sera le mécanisme de relaxation prédominant. A cause de la proximité entre le gaz d'électrons et le gaz de trous, les électrons sont en fait liés sous la forme d'excitons indirects, ce qui peut expliquer que les collisions polariton-électron soient moins efficaces que ce qui est attendu pour des électrons réellement libres. Tester les collisions des polaritons avec un gaz d'électrons réellement libres reste un défi expérimental difficile qui n'a à notre connaissance pas encore été relevé. En effet, il faut pour cela que les charges positives (trous dans notre cas, ou donneurs ionisés dans le cas d'un dopage chimique) soient situées à plus de 1000 Å du gaz d'électrons, ce qui rend sa densité difficile à contrôler.

Afin de confirmer les observations faites sous excitation stationnaire, nous avons effectué des expériences de photoluminescence résolues en temps sur cette microcavité. En partant du principe que le réservoir alimente les

états proches de $k_{\parallel} = 0$, nous nous attendions à voir un raccourcissement du temps de montée en présence du gaz d'électrons (à cause de l'accélération des processus de relaxation). Cependant, comme nous allons le voir dans le prochain chapitre, les processus de collision interviennent peu dans la dynamique de la photoluminescence, qui est dans une large mesure contrôlée par des effets excitoniques dans le réservoir.

Chapitre 5

Étude de la dynamique de relaxation

Sommaire

5.1	Introduction	155
5.2	Dynamique de relaxation des excitons	156
5.2.1	Accélération de la dynamique due à une augmentation de la densité d'excitons	156
5.2.2	Accélération de la dynamique due à une augmentation de la densité d'électrons	165
5.3	Dynamique de relaxation des polaritons	170
5.3.1	Désaccord négatif	170
5.3.2	Désaccord nul	178
5.3.3	Modèle à trois ensembles	180
5.4	Conclusion	183

5.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous étudions la relaxation des polaritons à l'aide de la photoluminescence résolue en temps. Cette technique permet de mesurer l'intensité lumineuse émise par l'échantillon avec une résolution temporelle pouvant atteindre 2 ps, et nous permet, par une modélisation appropriée, de comprendre la physique de la relaxation des porteurs dans le système étudié. Décrivons schématiquement ce qui se passe lors d'une expérience de photoluminescence résolue en temps. Lorsque le faisceau laser est absorbé par l'échantillon — nous envisageons ici le cas d'un faisceau pulsé et non résonnant — la lumière absorbée crée des paires électrons-trous, lesquels relaxent rapidement vers le bas de leurs bandes d'énergie respectives : la bande de conduction pour les électrons et la bande de valence pour les trous. Au cours d'une deuxième étape, des excitons sont formés à partir de ces paires

électrons-trous. Enfin, les excitons eux-même relaxent vers des états excitoniques radiants (de vecteur d'onde $k_{\parallel} < k_0 = n_{cav} E_X / \hbar c \approx 26 \mu m^{-1}$), que nous détectons. Ce schéma est évidemment simplifié par rapport à la réalité : il est en effet impossible d'extraire une paire électron-trou individualisée et de la suivre étape par étape au cours de sa relaxation. Ce schéma doit plutôt être compris comme une description statistique, moyennée, de l'évolution des populations.

Ce chapitre a pour but d'étudier la dynamique de relaxation des polaritons sous excitation non résonnante et de comprendre comment cette dynamique est modifiée en présence d'un gaz d'électrons. Les idées développées dans le chapitre précédent sur les collisions polaritons-polaritons et polaritons-électrons seront ainsi étendues au régime transitoire où une population de porteurs est créée instantanément et relaxe au cours du temps. Dans une première partie de ce chapitre, nous étudierons la dynamique de la zone active en l'absence de cavité. Nous verrons que l'injection d'électrons accélère fortement la formation des excitons et, à plus forte densité, conduit à la formation de trions dont le temps de vie radiatif est différent de celui des excitons. Cette première partie nous permettra donc d'isoler les modifications de la dynamique de la zone active seule. Dans la deuxième partie, nous étudierons la dynamique des polaritons dans la microcavité complète. Nous verrons notamment que la dynamique dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$ s'adapte instantanément aux variations de population dans le réservoir.

5.2 Dynamique de relaxation des excitons

5.2.1 Accélération de la dynamique due à une augmentation de la densité d'excitons

Ce paragraphe étudie l'échantillon gravé en l'absence d'électrons. Ainsi, nous nous focalisons dans un premier temps sur le système le plus simple possible.

Observations expérimentales

Les données expérimentales présentées dans ce chapitre ont toutes été obtenues sur un dispositif expérimental de photoluminescence résolue en temps. Sur ce dispositif, le laser TiSa est pulsé, et les deux faisceaux laser (TiSa et HeNe) se propagent dans l'espace libre, sans être injectés dans des fibres optiques. La luminescence de l'échantillon est analysée à l'aide d'une caméra à balayage de fente. L'image obtenue par la caméra donne accès à l'intensité de luminescence en fonction de deux paramètres simultanément : l'énergie et le temps (résolution spectrale et temporelle). En intégrant sur une raie spectrale, nous obtenons alors une trace temporelle proportionnelle à la densité de porteurs $n(t)$ présente dans cet état au cours du temps.

Avant de continuer, notons que lorsque le faisceau laser est pulsé, la relation entre la densité de porteurs injectés n_0 et la puissance moyenne du laser P_{TiSa} est différente de celle utilisée précédemment sous excitation continue. La densité de porteurs est alors la suivante :

$$n_0 = \frac{a t P_{TiSa} \tau_L}{E_{TiSa} S_L}, \quad (5.1)$$

$$\implies n_0(\text{cm}^{-2}) = 4.3 \times 10^7 P_{TiSa}(\mu W), \quad (5.2)$$

où E_{TiSa} est l'énergie du laser, $t = 0.85 \times 0.6$ et $a = 2.5\%$ sont la transmission du système optique et l'absorption de l'échantillon, S_L est la surface du spot laser (correspondant ici à un diamètre de $42 \mu m$) et $\tau_L = 12.2$ ns est le temps séparant deux impulsions du laser. Quant à la densité d'électrons, nous avons mesuré

$$n_e(\text{cm}^{-2}) = 1.0 \times 10^7 P_{HeNe}(\text{nW}) \quad (5.3)$$

pour l'échantillon gravé. En tenant compte de l'absorption dans le miroir supérieur, nous obtenons donc

$$n_e(\text{cm}^{-2}) = 1.0 \times 10^5 P_{HeNe}(\text{nW}) \quad (5.4)$$

sur la microcavité complète.

La Figure 5.1 présente l'intensité de luminescence émise par la raie d'exciton du puits quantique au cours du temps, pour différentes puissances du laser TiSa. Lorsque la puissance d'excitation augmente, la forme de la trace temporelle change, ce qui correspond à un changement des mécanismes physiques de la relaxation. Ici, la dynamique est plus rapide lorsque la puissance d'excitation est forte : le maximum de luminescence a lieu à un temps de plus en plus court et le temps de déclin de la photoluminescence est lui aussi de plus en plus court. Afin de quantifier cette accélération de la dynamique, nous avons ajusté les traces temporelles par un déclin exponentiel, correspondant aux droites montrées sur la Figure 5.1. Les temps de déclin déduits sont montrés sur la Figure 5.2. Nous voyons que le temps de déclin, initialement long (près de 3 ns) se raccourcit jusqu'à atteindre une valeur de 700 ps, correspondant à la valeur asymptotique dans la limite des grandes densités.

Afin de mieux comprendre ces expériences, nous avons étudié la dynamique de la luminescence sous excitation *résonnante*. Dans cette expérience, une impulsion laser accordée à l'énergie de la transition excitonique crée quasi instantanément une population d'excitons. Les porteurs ne subissent donc pas les processus de relaxation des paires électron-trous ni de formation des excitons, mais seulement ceux associés à la thermalisation et au déclin radiatif des excitons. La trace temporelle ainsi obtenue (Figure 5.3) montre une dynamique beaucoup plus rapide que dans le cas de l'excitation non résonnante. Le temps de montée est fixé par l'absorption du laser TiSa ; il est

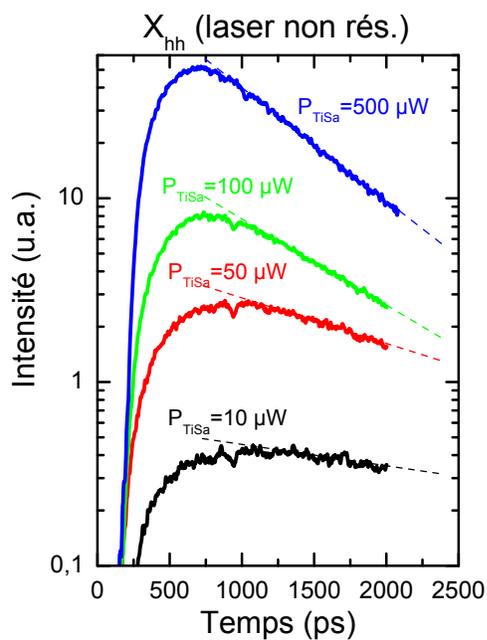


FIG. 5.1 – Intensité de luminescence de la raie excitonique au cours du temps. La puissance du laser TiSa est variée d’une courbe à l’autre. $T = 12$ K, $E_{TiSa} = 1.64$ eV.

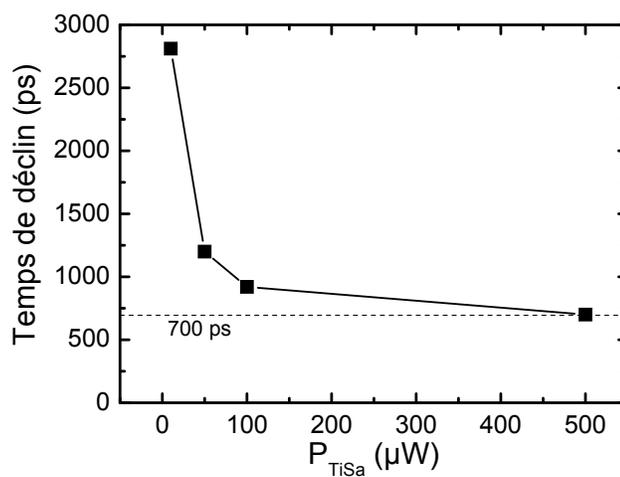


FIG. 5.2 – Temps de déclin de la photoluminescence en fonction de n_0 . Les conditions expérimentales sont celles de la Figure 5.1.

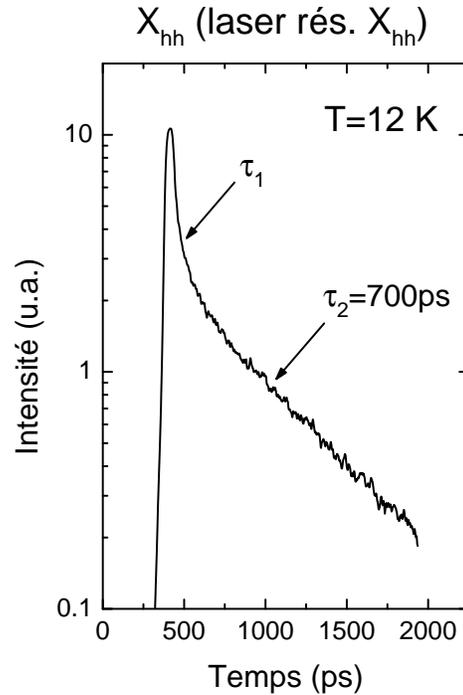


FIG. 5.3 – Trace temporelle de la photoluminescence lorsque l’excitation *et* la détection sont résonnantes à l’énergie de l’exciton. $T = 12$ K.

donc trop rapide pour être résolu par le dispositif expérimental. La première partie du déclin de la luminescence, notée τ_1 sur la Figure 5.3, a fait l’objet d’une étude détaillée dans la littérature [27, 42, 7]. Plusieurs phénomènes se mêlent pour donner lieu à ce déclin initial, à savoir : la diffusion Rayleigh résonnante du faisceau laser par la surface et par les excitons, le temps de vie radiatif des excitons brillants et le temps de diffusion des excitons depuis les états brillants vers les états sombres.

Nous ne sommes cependant pas intéressés par cette partie complexe de la dynamique des excitons, mais plutôt par le deuxième temps de déclin τ_2 . Dans cette phase de la dynamique, la population d’excitons est thermalisée le long de la branche excitonique, une faible partie des excitons (jusqu’à $E = E_{X_{hh}} + E_{rad}$ avec $E_{rad} \approx 0.2$ meV) est couplée au champ électromagnétique, et le reste de la population est non radiante [72, 78]. L’ensemble de la population décroît alors avec un temps de vie moyen, τ_2 , déterminé par la proportion d’excitons située dans les états brillants. Lorsque l’on augmente la température, $k_B T$ devient grand devant E_{rad} et la proportion des excitons radiants dans la population totale devient de plus en plus faible ; τ_2 est alors proportionnel à la température [29, 1], comme le montre la figure 5.4. À $T = 12$ K, nous obtenons $\tau_2 = 700$ ps, ce qui est identique au

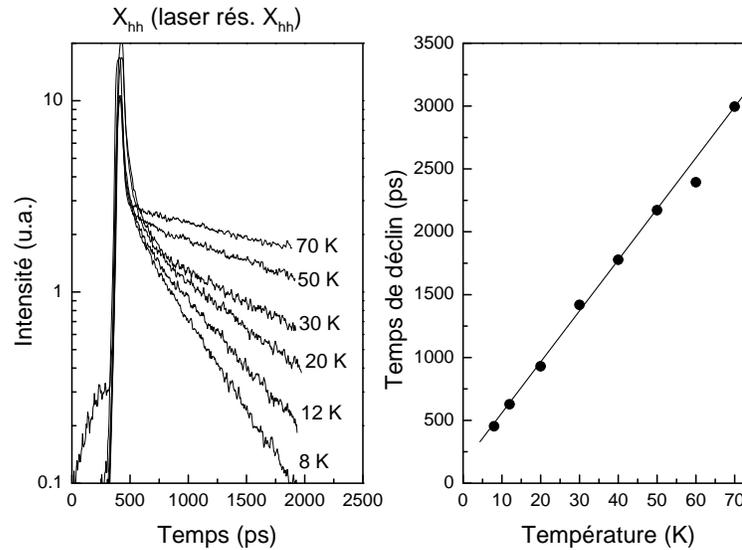


FIG. 5.4 – Temps de vie radiatif (mesuré sous excitation résonnante) en fonction de la température.

temps de déclin obtenu à forte puissance sous excitation non résonnante. Ainsi, lorsque l'on crée une forte densité de porteurs par excitation non résonnante, la relaxation vers une population thermalisée est très rapide et la dynamique ultérieure est limitée par le temps de vie radiatif des excitons. Il reste cependant à décrire le comportement à basse densité d'excitons, où d'autres mécanismes limitent la dynamique.

Modélisation de la dynamique grâce à un taux de formation bimoléculaire des excitons

Comme nous l'avons vu précédemment, à basse densité et sous excitation non résonnante, le temps de déclin de la photoluminescence est très long, de l'ordre de 4 fois le temps de vie radiatif. Le temps de déclin n'est égal au temps de vie radiatif moyen (700 ps) que lorsque la densité de porteurs injectés est suffisamment forte. Ce comportement provient de la formation bimoléculaire des excitons, qui est quadratique et donc lente à basse puissance. L'idée que la formation des excitons à partir des paires électron-trou était un mécanisme bimoléculaire a été avancée dès 1991 par STROBEL et ses collaborateurs [117], mais a été immédiatement confrontée à une autre interprétation selon laquelle les excitons se forment rapidement, puis se refroidissent plus lentement jusqu'à la température du réseau [22, 94, 104, 41]. Cette seconde interprétation est envisagée page 163, alors que nous nous concentrons ici sur la dynamique de formation des excitons [78, 75, 118].

Selon les calculs de PIERMAROCCHI [78], jusqu'à des températures de

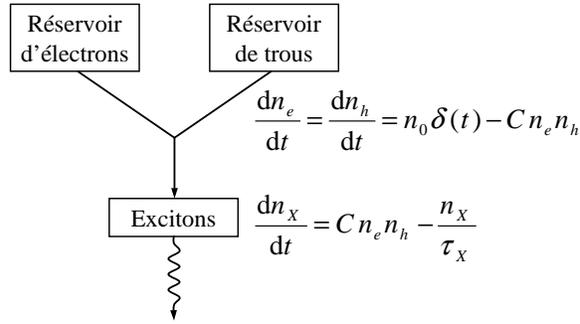


FIG. 5.5 – Représentation schématique de la formation bimoléculaire des excitons. Les équations de notre modèle sont également représentées.

porteurs de 40 K, les excitons se forment à la suite de l'émission d'un phonon acoustique à partir des paires électron-trou libres. C'est pourquoi nous considérons l'expression suivante pour le nombre d'excitons formés par unité de temps :

$$\left(\frac{\partial n_x}{\partial t} \right)_{\text{form}} = C n_e(t) n_h(t), \quad (5.5)$$

où la constante C ne dépend pas de la température des porteurs, et n_e et n_h représentent la densité totale d'électrons et de trous [78]. Il n'y a donc pas à proprement parler de temps de formation de l'exciton [118], car le "temps de formation" varie au cours du temps au fur et à mesure que les porteurs libres disparaissent. Les excitons sont alors formés dans des états excitoniques de haute énergie, l'énergie des phonons émis et absorbés lors de leur création étant de l'ordre de 2 à 3 meV [78]. Nous supposons également que l'équilibre thermique des excitons avec le réseau est atteint instantanément à l'échelle du temps de déclin, de sorte que le temps de vie radiatif reste constant au cours de la dynamique. Ce modèle et les équations de la dynamique du système sont représentées sur la Figure 5.5.

Sur la Figure 5.6, les résultats expérimentaux sont comparés à notre modèle pour $C = 1 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ et $\tau_X = 680 \text{ ps}$. Nous voyons qu'un seul paramètre ajustable (τ_X étant déterminé par la mesure en excitation résonnante) permet de rendre compte des quatre traces temporelles. Notons que la résolution temporelle n'est pas suffisante pour résoudre la montée de la luminescence. C'est pourquoi nous avons réalisé des mesures avec une meilleure résolution temporelle qui s'accordent mieux à notre modèle. Alternativement, il est possible que notre hypothèse d'équilibre thermique instantané ne soit valable qu'après un certain temps, et donc que la dynamique de thermalisation intervienne dans le temps de montée de la luminescence. En revanche, le temps de déclin de la luminescence est parfaitement déterminé par notre coefficient C . La valeur trouvée $C = 1 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ est égale à la valeur calcu-

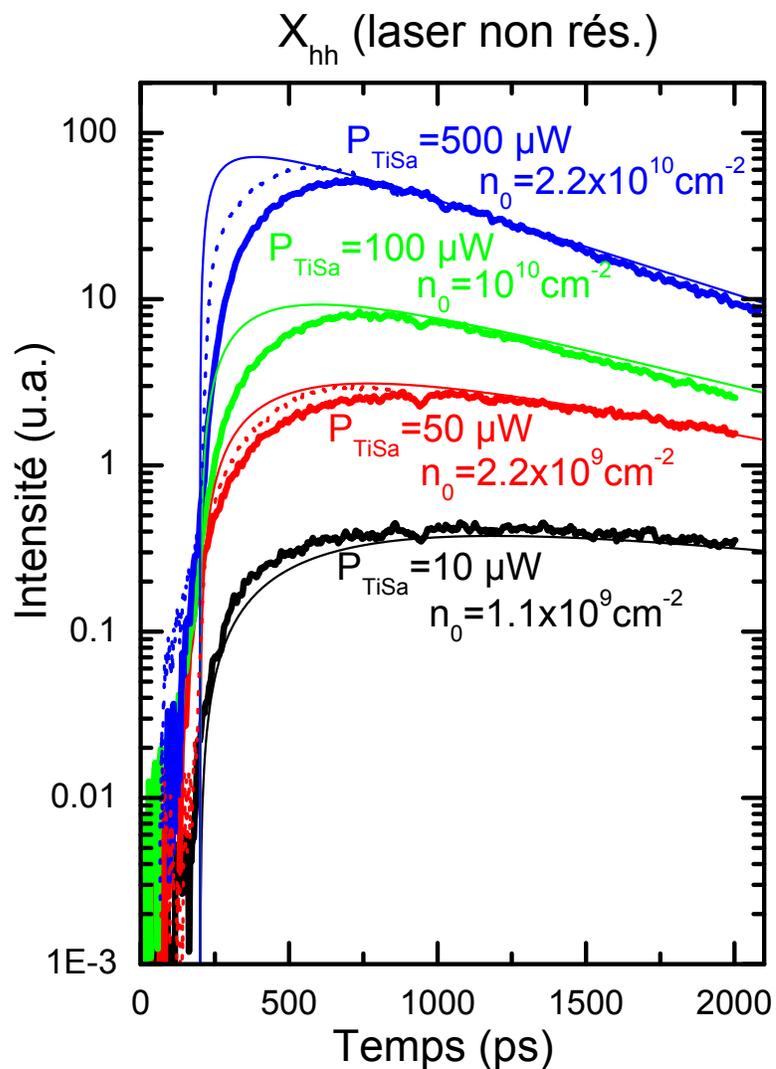


FIG. 5.6 – Comparaison entre les courbes expérimentales et le modèle de formation bimoléculaire des excitons. Les courbes en traits fins sont issues du modèle de la Figure 5.5, les autres courbes sont issues de deux séries de mesures, les courbes en pointillés ayant une meilleure résolution temporelle.

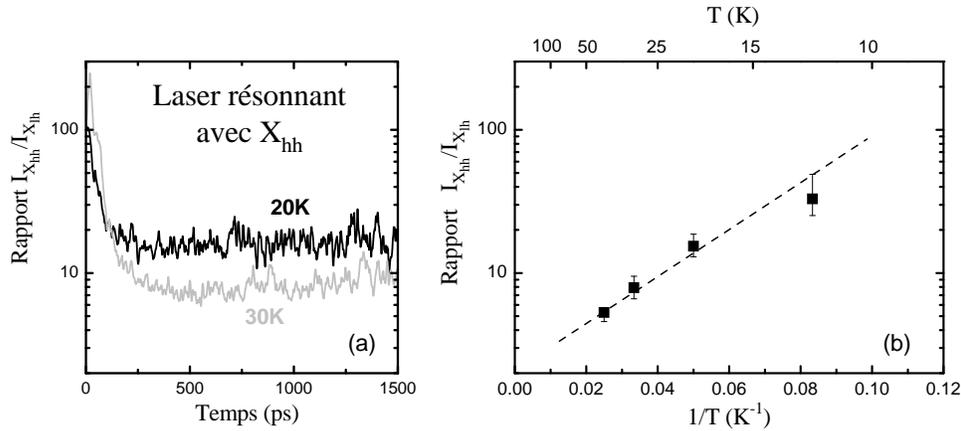


FIG. 5.7 – (a) Évolution au cours du temps du rapport de l’intensité de la raie d’exciton de trou lourd sur la raie d’exciton de trou léger. Le rapport s’établit à une valeur constante au bout de 200 ps environ. (b) Rapport $I_{X_{hh}}/I_{X_{lh}}$ en fonction de $1/T$.

lée par PIERMAROCCHI lorsque la température des porteurs est inférieure à 40K [78], et proche des valeurs déterminées expérimentalement par d’autres groupes ($1 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ pour la référence [118], $6 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ pour la référence [117] et plus de $14 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ pour la référence [93]). Ce modèle simple permet donc de rendre compte de la variation de la dynamique avec la puissance d’excitation.

Autres effets susceptibles de jouer un rôle sur la dynamique

Une autre explication a été envisagée pour rendre compte de la variation de la dynamique avec la puissance d’excitation [22, 94, 104, 41]. Selon cette interprétation, les excitons sont formés directement à l’énergie du laser (formation “gémée” des excitons [79]), et le facteur limitant n’est pas la dynamique de formation, mais plutôt la thermalisation des excitons avec le réseau. Une population d’excitons plus chaude que le réseau présente en effet un temps de vie plus long qu’une population thermalisée. Le long temps de déclin observé à basse puissance peut donc également s’expliquer si l’on suppose que la population n’est pas thermalisée avec le réseau à basse puissance d’excitation. Pour tester cette hypothèse, il est nécessaire d’étudier la dynamique de thermalisation des excitons.

La température des excitons peut être mesurée à l’aide du rapport des intensités $I_{X_{hh}}/I_{X_{lh}}$, où $I_{X_{hh}}$ désigne l’intensité de luminescence de l’exciton de trou lourd et $I_{X_{lh}}$ celle de l’exciton de trou léger. Sur la figure 5.7(a), nous montrons l’évolution de ce rapport au cours du temps lors d’une excitation en résonance avec l’exciton de trou lourd. À l’instant initial, la population

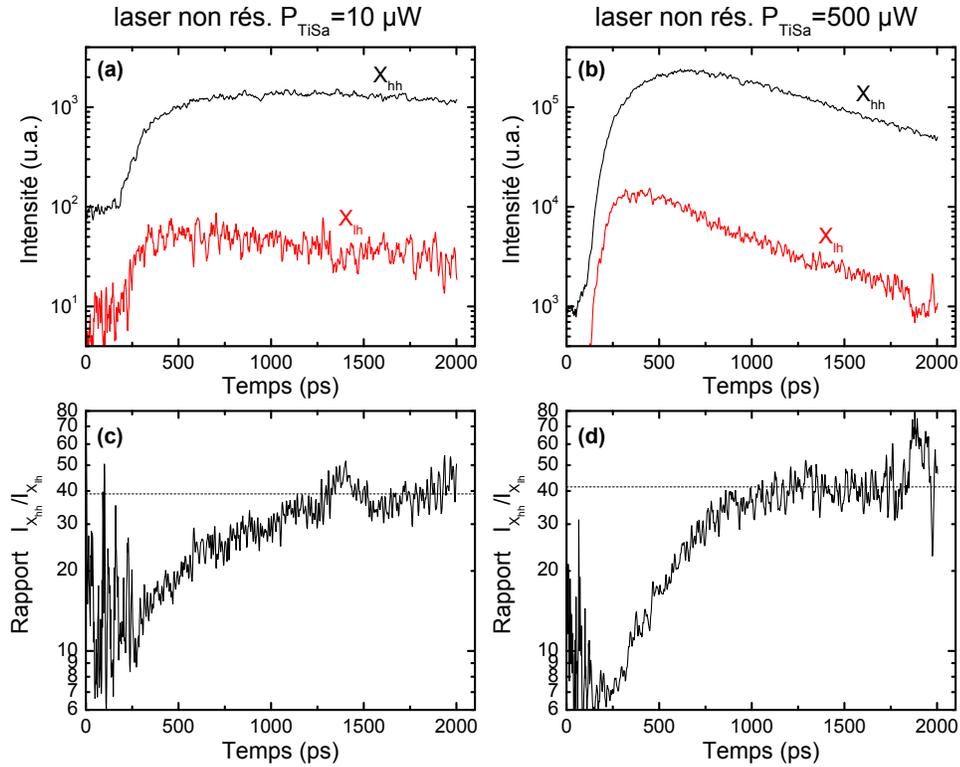


FIG. 5.8 – Thermalisation des excitons sous excitation non résonnante : (a) et (b) montrent l'intensité de luminescence résolue en temps de l'exciton de trou lourd et de l'exciton de trou léger pour deux valeurs de n_0 . (c) et (d) montrent le rapport de ces deux intensités pour les deux puissances d'excitation.

est constituée uniquement par des excitons de trou lourd de vecteur d'onde $k_{\parallel} \approx 0$, et la température excitonique est nulle. À partir de 200 ps environ, le rapport $I_{X_{hh}}/I_{X_{lh}}$ atteint une valeur constante. Ainsi, bien que les populations d'excitons de trou lourd et de trou léger décroissent au cours du temps, le rapport des deux populations reste constant : l'interaction avec les phonons maintient un équilibre thermique entre les deux populations d'excitons, même si les temps de vie radiatif des excitons de trou lourd et de trou léger sont différents. Enfin, le rapport $I_{X_{hh}}/I_{X_{lh}}$ change avec la température. Sur la figure 5.7(b), nous reportons les valeurs de $I_{X_{hh}}/I_{X_{lh}}$ obtenues aux différentes températures. Ce rapport évolue comme $\exp(E_a/k_B T)$, avec une énergie d'activation $E_a = 3.5 \text{ meV}$ très proche de la différence d'énergie entre les deux excitons : $\Delta E = 4.5 \text{ meV}$. Ainsi, le rapport $I_{X_{hh}}/I_{X_{lh}}$ nous permet de connaître avec fiabilité la température des excitons.

Sur la figure 5.8(a) et (b), nous montrons les traces temporelles des ex-

citons de trou lourd et de trou léger lors d'une excitation non-résonnante du système pour deux puissances d'excitation : $10 \mu W$ et $500 \mu W$. Les rapports $I_{X_{hh}}/I_{X_{lh}}$ correspondant à ces deux puissances sont tracés sur les figures 5.8(c) et (d). Nous voyons que ce rapport atteint une valeur constante au bout d'environ 1 ns, montrant que la population d'excitons a atteint un équilibre thermique. D'autre part, même si la trace temporelle de $I_{X_{hh}}$ et celle de $I_{X_{lh}}$ changent avec la puissance d'excitation, le rapport entre les deux intensités ne change presque pas, et la valeur $I_{X_{hh}}/I_{X_{lh}}$ atteinte aux temps longs est la même quelle que soit n_0 . Enfin, cette valeur est également la même que sous excitation résonnante (cf. Figure 5.7), ce qui indique que les excitons sont thermalisés entre eux et avec le réseau en un temps inférieur à 1 ns. La thermalisation des excitons n'est donc pas le mécanisme limitant la dynamique.

Mentionnons une dernière interprétation envisageable : il est possible que les excitons noirs $J = 2$ formés à partir des paires électrons-trous libres agissent comme un réservoir, qui ne puisse se vider qu'après passage par un état brillant. L'importance de ce mécanisme dépend du temps de retournement de spin de $J = 2$ vers $J = 1$. S'il est plus long que le temps de vie radiatif, les états brillants seront continuellement alimentés par les états $J = 2$ et le temps de déclin de la luminescence correspondra au temps de retournement de spin. S'il est plus court, les deux niveaux de spin sont à l'équilibre thermodynamique et se vident ensemble. Des mesures effectuées par excitation à deux photons [112] sur un puits de 30 \AA à $T = 1.6 \text{ K}$ montrent que le retournement des spins est très rapide : $\approx 60 \text{ ps}$. Même si notre puits quantique est plus large (200 \AA), le temps de retournement de spin doit être du même ordre de grandeur, de sorte que les excitons de spin $J = 2$ n'expliquent pas les changements de dynamique observés. Le seul effet des excitons noirs $J = 2$ sera donc de doubler le temps de vie radiatif moyen des excitons.

En conclusion, la dynamique d'émission du puits quantique à basse puissance est lente et limitée par la formation bi-moléculaire des excitons. Lorsque la densité de porteurs est augmentée, le temps de déclin se raccourcit jusqu'à atteindre le temps de vie radiatif des excitons thermalisés à la température du réseau.

5.2.2 Accélération de la dynamique due à une augmentation de la densité d'électrons

Faible densité d'électrons

Comme nous allons le voir, la présence du gaz d'électrons modifie beaucoup la dynamique d'émission du puits quantique. Deux régimes différents peuvent être distingués en fonction de la densité d'électrons. Le régime basse

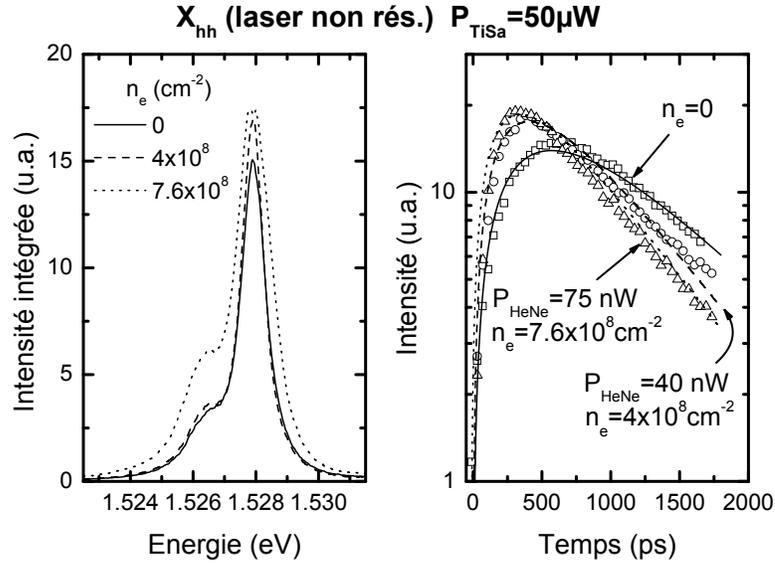


FIG. 5.9 – Évolution des spectres de photoluminescence et des traces temporelles avec la densité d'électrons. $T = 12$ K, $P_{TiSa} = 50 \mu W$ et n_e reste inférieur à 10^9 cm^{-2} .

densité ($n_e < 10^9$ cm^{-2}), correspond à une formation négligeable de trions, et l'on peut reprendre sans changement notre analyse précédente concernant la formation des excitons. Dans un régime de plus forte densité, les trions gouvernent la dynamique de l'émission. Intéressons nous tout d'abord au régime basse densité et reprenons le modèle décrit dans la Figure 5.5. Le coefficient C décrivant la formation des excitons ainsi que le temps de vie radiatif de l'exciton restent les mêmes et seules les conditions initiales sont différentes : nous considérons qu'une densité constante d'électrons n_e est présente dans le système avant l'arrivée de l'impulsion laser. La densité d'excitons formés par unité de temps est donnée par $C n_e(t) n_h(t)$, où $n_e(t)$ provient à la fois des paires électrons trous photoinjectées et du gaz d'électrons. Ainsi la formation bimoléculaire est accéléré par la présence du gaz d'électrons. La Figure 5.9 présente des courbes de déclin mesurée pour une puissance d'excitation constante $P_{TiSa} = 50 \mu W$ (correspondant à une densité de porteurs $n_0 = 2.2 \times 10^9$ cm^{-2}) et pour des valeurs croissantes de la densité d'électrons. Nous observons que les temps de montée et de déclin de la luminescence se raccourcissent continûment lorsque la densité d'électrons augmente. Sur la même figure sont reportés les résultats de notre modèle. L'accord avec l'expérience est très bon en utilisant le même paramètre C déduit des mesures en l'absence d'électrons. Ainsi l'accélération de la dynamique observée à basse densité d'électrons est due à l'accélération de la formation bimoléculaire des excitons.

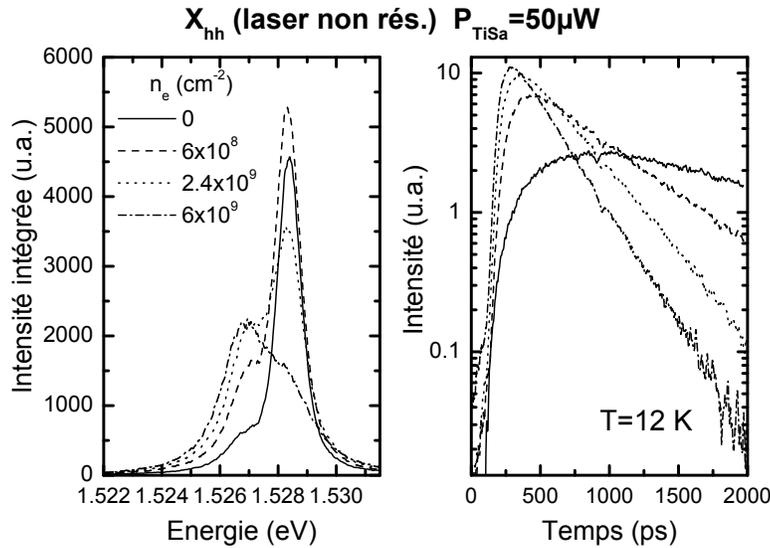


FIG. 5.10 – Évolution des spectres de photoluminescence et des traces temporelles avec la densité d'électrons. $T = 12$ K, $P_{TiSa} = 50 \mu W$ et n_e varie jusqu'à $6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$.

Forte densité d'électrons

Lorsque la densité d'électrons dépasse les 10^9 cm^{-2} , l'accélération de la dynamique devient encore plus importante. La Figure 5.10 montre l'évolution des traces temporelles et des spectres intégrés dans le temps. Nous voyons que lorsque l'intensité de la raie X^- est importante, le temps de montée devient très court et le temps de déclin diminue fortement pour devenir inférieur à 700 ps, c'est à dire inférieur au temps de vie radiatif de l'exciton. Parallèlement, nous observons sur les spectres de la figure 5.10 que la raie de trion devient progressivement de plus en plus intense. Cette évolution due à la densité d'électrons n'est accompagnée d'aucun changement dans l'intensité intégrée, démontrant de faibles pertes non radiatives.

La mesure du temps de déclin de la luminescence est présentée sur la Figure 5.11 pour une forte densité de paires électron-trou $n_0 = 6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ injectée par le laser TiSa et des densités variables d'électrons n_e injectés par le laser HeNe. Puisque n_0 est élevée, la formation d'excitons est quasi instantanée, de sorte que le temps de déclin est égal au temps de vie radiatif. Le temps de vie radiatif décroît jusqu'à une valeur limite d'environ 300 ps à forte densité d'électrons qui correspond au temps de déclin radiatif des trions.

Ceci a été vérifié en sondant la luminescence des trions sous excitation résonnante à forte densité d'électrons. La trace temporelle correspondante est montrée sur la figure 5.12 et montre effectivement un temps de vie radiatif

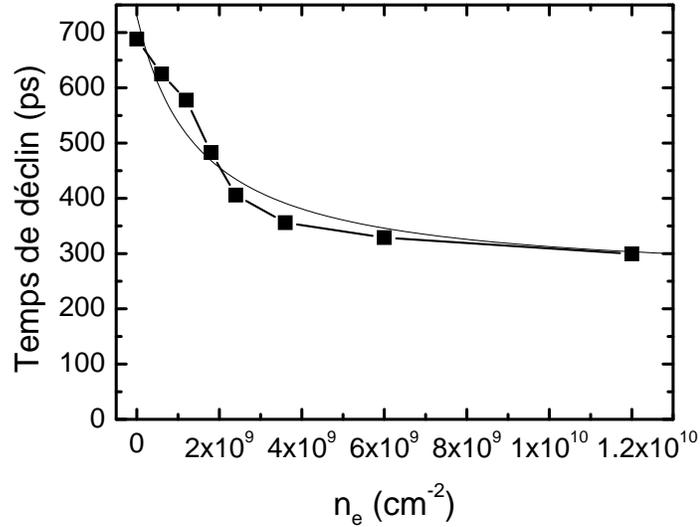


FIG. 5.11 – Temps de déclin en fonction de la densité d'électrons injectés. La puissance d'excitation est importante ($P_{Tisa} = 500 \mu W$), de sorte que le temps de formation des excitons est plus court que le temps de vie radiatif.

de 300 ps, comparable à la littérature [97]. Le temps de vie radiatif des trions est donc plus court que celui des excitons : ceci s'explique par le fait qu'il existe une différence fondamentale entre la recombinaison radiative de l'exciton et celle du trion. Ainsi, alors que les états excitoniques $k_{\parallel} > k_0 = \frac{nE}{hc}$ sont sombres, tous les états trioniques sont couplés au champ électromagnétique [97, 29, 30] car l'électron qui reste après la recombinaison peut acquérir la quantité de mouvement du trion.

Si l'on note τ_{X^-} le temps de vie radiatif du trion et τ_X celui de l'exciton, et si l'on suppose que les deux espèces sont quasi-instantanément thermalisées, le temps de vie radiatif moyen du système sera :

$$\tau = \left(\frac{1}{\tau_X} \cdot \frac{n_X}{n_X + n_{X^-}} + \frac{1}{\tau_{X^-}} \cdot \frac{n_{X^-}}{n_X + n_{X^-}} \right)^{-1} \quad (5.6)$$

$$\tau = \left(\frac{1}{\tau_X} \cdot \frac{1}{1 + n_{X^-}/n_X} + \frac{1}{\tau_{X^-}} \cdot \frac{n_{X^-}/n_X}{1 + n_{X^-}/n_X} \right)^{-1}, \quad (5.7)$$

et n_{X^-}/n_X est proportionnel à n_e (cf. Chapitre 3).

La courbe en trait fin de la Figure 5.11 représente le meilleur ajustement des données selon ce modèle, correspondant à $\tau_X = 730$ ps et $\tau_{X^-} = 270$ ps, des valeurs proches de celles mesurées. Ainsi ce modèle qui suppose un équilibre quasi-instantané entre excitons et trions semble raisonnable.

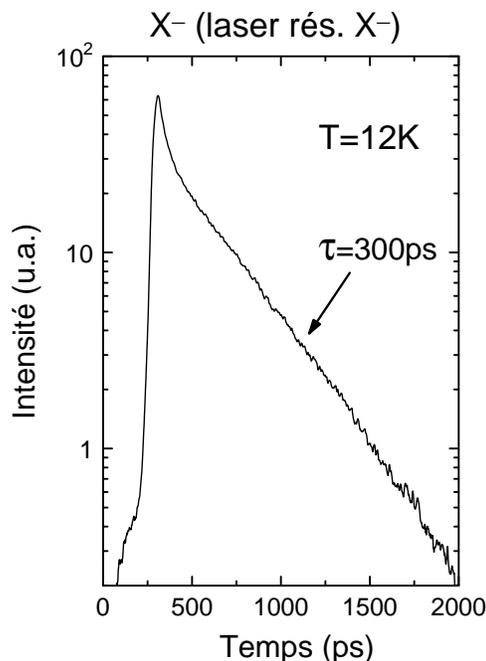


FIG. 5.12 – Déclin de la luminescence lors d’une excitation résonnante du trion. La température est $T = 12 \text{ K}$ et la densité d’électrons est $n_e = 6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$.

Bilan

Finalement, nous reprenons sur la Figure 5.13 les temps de déclin mesurés pour différentes valeurs de n_0 et de n_e , et nous l’analysons à la lumière des différents effets identifiés. A faible densité d’électrons et d’excitons, la formation des excitons est très longue comparée au temps de vie radiatif. Ainsi, les populations d’électrons et de trous agissent comme un réservoir à partir duquel les niveaux excitoniques sont alimentés continûment. La formation des excitons est bimoléculaire et peut être accélérée en augmentant la densité de porteurs, soit de façon symétrique lorsque n_0 est augmenté (points à $n_e = 0$ de la figure), soit en augmentant spécifiquement la densité d’électrons (points correspondant à des valeurs constantes de n_0). A cet effet lié à la formation des excitons s’ajoute un autre effet lié à l’apparition des *trions* : à forte densité d’électrons, le temps de vie radiatif se raccourcit pour atteindre celui du trion.

Il est enfin intéressant de remarquer que les diverses courbes de la figure 5.13, correspondant à diverses valeurs de n_0 , tendent vers la même limite de 300 ps. A une forte densité d’électrons, les deux effets sont en effet présents simultanément : les paires électron-trou forment rapidement des états liés, quelque soit la valeur de n_0 , et ces états liés sont presque unique-

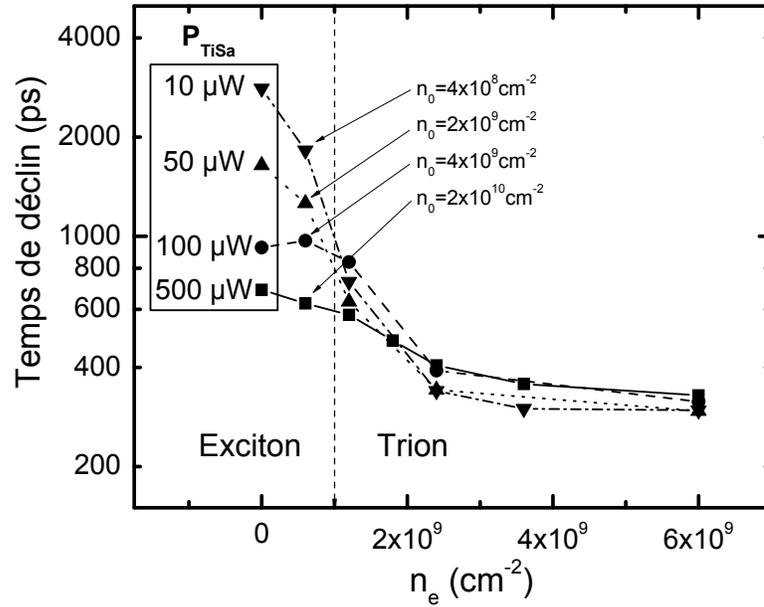


FIG. 5.13 – Temps de déclin de la luminescence en excitation non résonnante en fonction de n_e . Les différentes courbes correspondent à différentes valeurs de n_0 .

ment des trions, qui se recombinent avec un temps de vie de 300 ps.

En nous appuyant sur cette étude de la dynamique du puits quantique, nous pouvons maintenant aborder les phénomènes propres à la relaxation des polaritons dans la structure complète.

5.3 Dynamique de relaxation des polaritons

5.3.1 Désaccord négatif

Dans cette section, nous présentons les résultats concernant la dynamique de relaxation des polaritons de cavité. Les expériences présentées ici concernent les désaccords négatifs pour lesquels un goulet d'étranglement de la relaxations est observé. Des résultats qualitativement similaires ont été observés pour différents désaccords négatifs. Nous avons choisi dans cette section de discuter un jeu de données expérimentales complet correspondant à $\delta = -8$ meV. Afin de bien comprendre la dynamique globale du système, nous avons choisi d'étudier la dynamique de deux ensembles d'états représentatifs du système. Le premier ensemble correspond aux états proches de $k_{\parallel} = 0$, au fond du piège dans l'espace des k ; le deuxième correspond à des états proches de $k_{\parallel} = 3.5 \mu m^{-1}$ représentatifs du réservoir excitonique

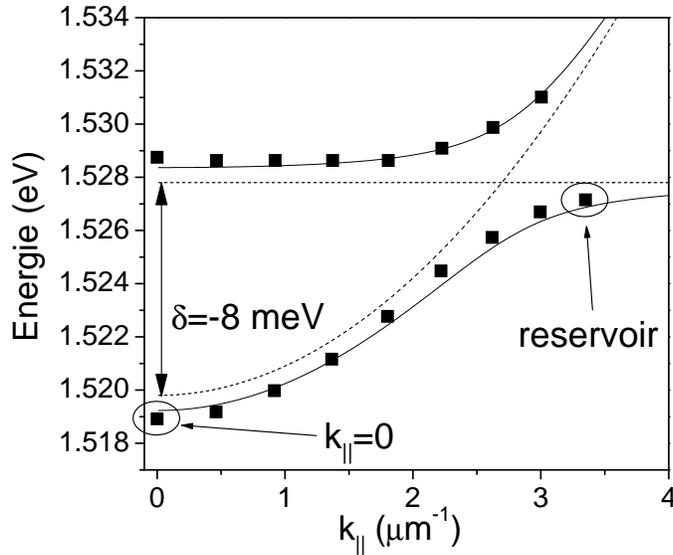


FIG. 5.14 – Relation de dispersion mesurée sur la microcavité à $T = 12 \text{ K}$ et $\delta = -8 \text{ meV}$. Nous comparons la dynamique de l'état $k_{\parallel} = 0$ avec celle de l'état $k_{\parallel} = 3.5 \mu\text{m}^{-1}$, représentatif du réservoir excitonique.

comme le montre la figure 5.14.

Évolution de la dynamique lors d'une variation de n_e

Nous montrons sur la Figure 5.15 les courbes de déclin en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir pour différentes densités d'électrons. Considérons dans un premier temps l'évolution de la dynamique du réservoir excitonique. En l'absence d'électrons, le temps de montée et le temps de déclin de la luminescence sont très longs. Comme dans le puits quantique de référence, ces temps se raccourcissent très fortement lorsque l'on injecte des électrons. Comme nous pourrions le vérifier par la suite, le réservoir excitonique présente la même dynamique que le puits quantique gravé et peut être modélisé par les mêmes équations. Ainsi, l'accélération de la dynamique que nous observons est due à l'augmentation du taux de formation des excitons. A forte densité d'électrons, le temps de déclin mesuré dans le réservoir correspond donc au temps de vie radiatif du trion. Notons que dans la cavité, celui-ci est égal à 400 ps et non pas à 300 ps comme nous l'avons mesuré dans l'échantillon gravé. Deux explications peuvent être envisagées pour interpréter cette différence. D'une part, puisque 99% de la puissance du faisceau laser HeNe est absorbée dans les miroirs de la microcavité, il est nécessaire d'utiliser une puissance 100 fois plus importante sur la microcavité que sur l'échantillon gravé pour injecter une même densité d'électrons. En raison de la puissance utilisée,

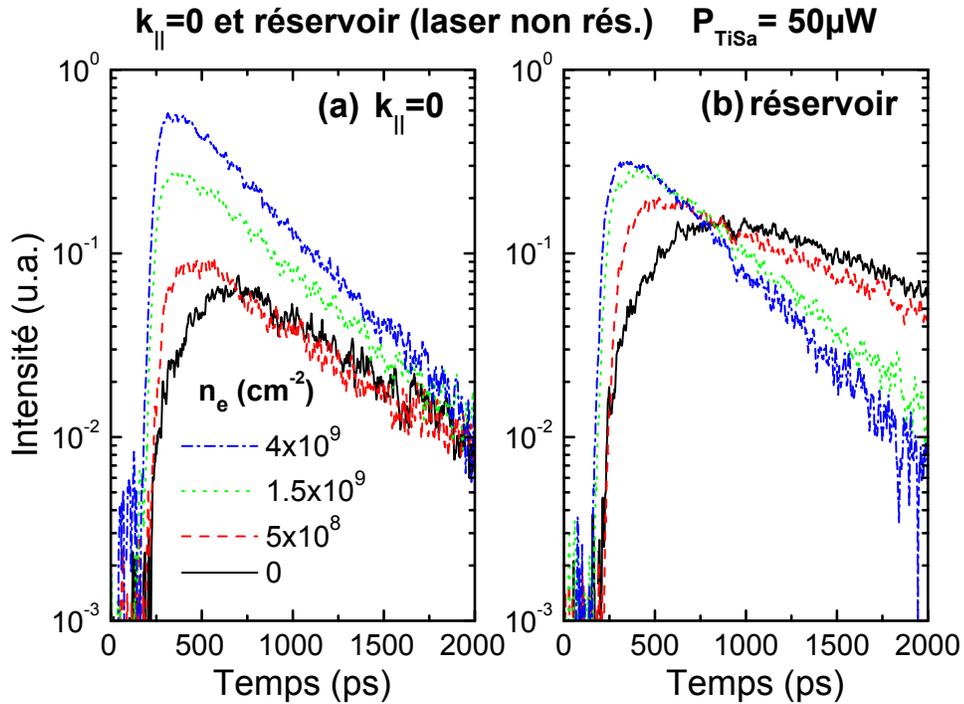


FIG. 5.15 – Traces temporelles de la branche basse de polaritons en $k_{\parallel} = 0$ (a) et dans le réservoir (b) pour différentes densités d'électrons. L'excitation est non résonnante ($n_0 = 6 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$), $T = 12 \text{ K}$ et $\delta = -8 \text{ meV}$.

il est possible que l'échantillon chauffé localement, ce qui aurait pour effet d'augmenter le temps de vie des trions. D'autre part, dans la microcavité, les trions sont couplés aux modes de fuite de la cavité dont la densité d'états est différente des modes de l'espace libre. Bien que le calcul complet du taux d'émission spontanée des trions dans une microcavité n'ait pas été effectué, il est envisageable que le temps de vie radiatif moyen des trions soit plus long lorsque le puits quantique est inséré dans une microcavité que lorsqu'il est inséré dans une matrice de semiconducteur homogène.

Considérons maintenant les courbes de déclin en $k_{\parallel} = 0$. Comme dans le réservoir, le temps de montée comme le temps de déclin sont accélérés lorsque l'on injecte le gaz d'électrons. L'accélération de la dynamique est cependant moins marquée en $k_{\parallel} = 0$ que dans le réservoir. La figure 5.16(a) présente les temps de déclin mesurés en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir en fonction de n_e . Pour $n_e = 0$, le temps de déclin en $k_{\parallel} = 0$ est 2 fois plus court que dans le réservoir, alors que pour les fortes densités d'électrons, les deux temps de déclin sont identiques. Nous verrons dans la prochaine section que ce passage d'une dynamique deux fois plus rapide en $k_{\parallel} = 0$ à une dynamique identique à celle du réservoir s'explique par la compétition entre les mécanismes de

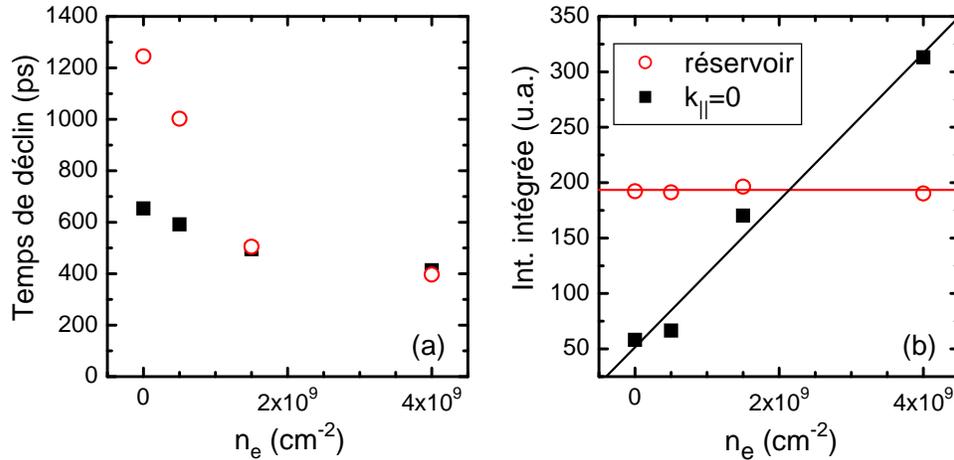


FIG. 5.16 – (a) Temps de déclin dans le réservoir et en $k_{\parallel} = 0$. (b) Intensités intégrées dans le temps dans le réservoir et en $k_{\parallel} = 0$. Les conditions expérimentales sont celles de la Figure 5.15.

diffusion polariton-polariton et polariton-électron.

Enfin, nous voyons sur les courbes de déclin de la figure 5.15 que l'intensité de luminescence évolue différemment en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir. Nous avons reporté l'intensité de luminescence intégrée dans le temps pour ces deux ensembles d'états sur la figure 5.16(b) en fonction de la densité d'électrons. Dans le réservoir, l'intensité de luminescence reste constante, ce qui prouve que le raccourcissement du temps de déclin n'est pas associé à des processus non radiatifs. En revanche, l'intensité en $k_{\parallel} = 0$ augmente fortement avec la densité d'électrons. À la plus forte densité étudiée ici, l'intensité de luminescence est augmentée d'un facteur 6 par rapport à ce que l'on observe pour $n_e = 0$. Comme dans les expériences sous excitation continue, les collisions polariton-électron permettent une redistribution des populations le long de la branche de polariton. Nous retrouvons qu'en raison de la grande densité d'états du réservoir, ce transfert de polaritons vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$ ne dépeuple pas significativement le réservoir.

Compétition entre les différents mécanismes de relaxation

Afin de bien mettre en évidence la compétition entre les différents mécanismes de relaxation, nous allons maintenant étudier la dynamique du système en faisant varier la densité de polaritons.

Considérons tout d'abord la dynamique du système en l'absence d'électrons. La Figure 5.17 montre la variation de l'intensité intégrée en $k_{\parallel} = 0$ avec la puissance d'excitation. En l'absence d'électrons, la relaxation des polaritons est dominée par les collisions polariton-polariton comme le montre

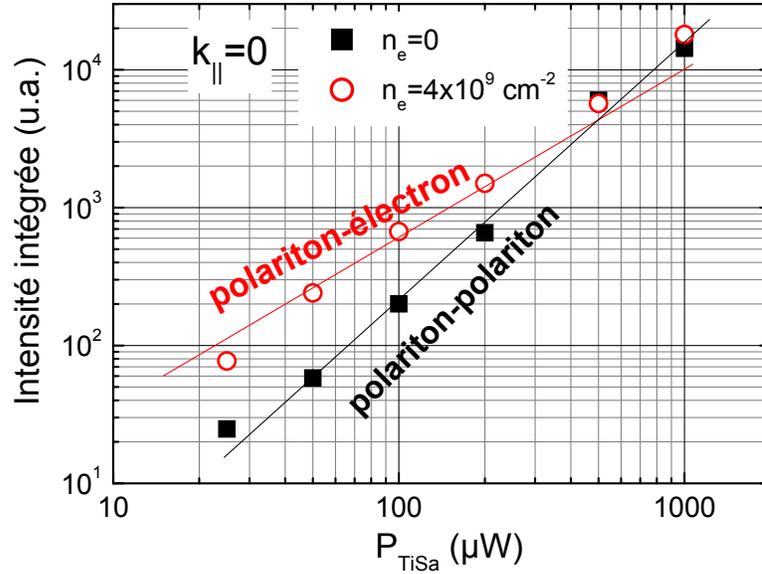


FIG. 5.17 – Intensité intégrée en $k_{\parallel} = 0$ en fonction de la densité de paires électron-trou n_0 injectées par le laser TiSa. $T=12K$ et $\delta = -8$ meV.

la variation quadratique de l'intensité en $k_{\parallel} = 0$ avec P_{TiSa} .

Afin de comparer simultanément la dynamique dans le réservoir et en $k_{\parallel} = 0$, la Figure 5.18 présente une superposition pour chaque puissance d'excitation des traces temporelles de ces deux états. Les traces ont été normalisées à leur maximum. La dynamique du réservoir est similaire à celle du puits quantique hors de la cavité : le temps de formation des excitons est long lorsque P_{TiSa} est faible, conduisant à un temps de déclin de la luminescence supérieur à la nanoseconde. Lorsque P_{TiSa} dépasse $\approx 200 \mu W$, la formation des excitons devient plus rapide que leur temps de vie radiatif. Le temps de déclin de la luminescence du réservoir tend alors vers 700 ps, le temps de vie radiatif des excitons thermalisés.

Si l'on compare les traces temporelles correspondant à l'état $k_{\parallel} = 0$ à celles correspondant au réservoir, on remarque que la luminescence dans l'état $k_{\parallel} = 0$ décline toujours plus rapidement que dans le réservoir. La mesure du temps de déclin de la luminescence permet de montrer que le temps de déclin en $k_{\parallel} = 0$ est toujours 2 fois plus court que dans le réservoir.

Nous allons montrer par un modèle simple que ce facteur 2 reflète directement d'une part la nature quadratique de la relaxation depuis le réservoir vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$ et d'autre part le fait que le temps de vie radiatif de l'état $k_{\parallel} = 0$ est très court devant celui du réservoir. Considérons

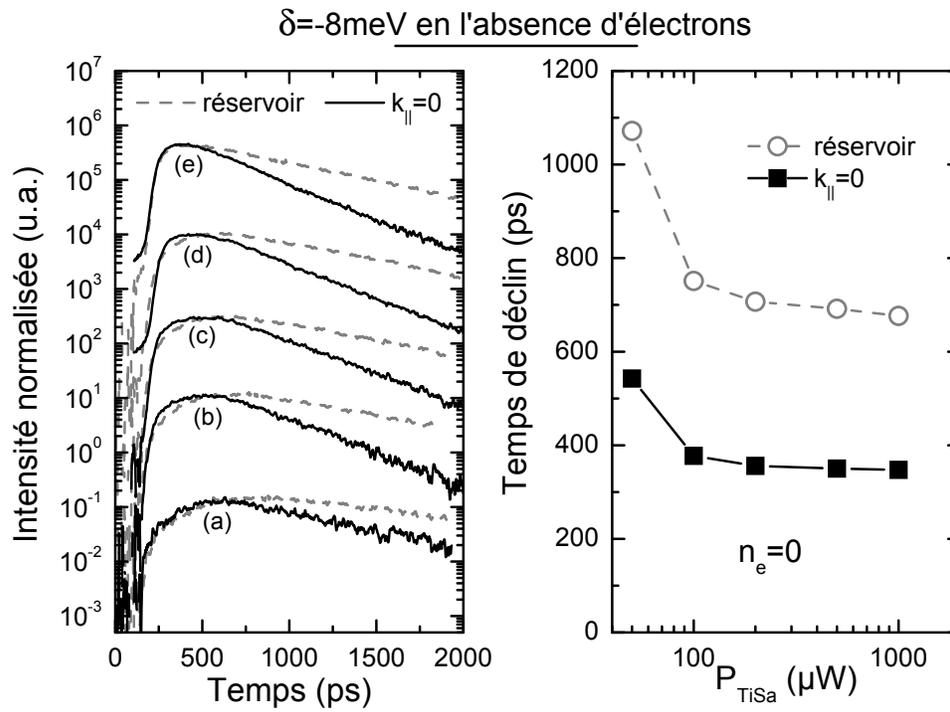


FIG. 5.18 – Comparaison de la dynamique en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir. Les expériences sont faites **en l'absence d'électrons** et pour les puissances d'excitation P_{TiSa} suivantes : (a) $50 \mu W$, (b) $100 \mu W$, (c) $200 \mu W$, (d) $500 \mu W$, (e) $1000 \mu W$. Les courbes de déclin ont été normalisées à leur maximum. Sur la partie de droite de la figure sont tracés les temps de déclin de la luminescence en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir.

l'équation d'évolution de l'état $k_{\parallel} = 0$:

$$\frac{dn_{k=0}}{dt} = -\frac{n_{k=0}}{\tau_0} + B \cdot n_X(t)^2. \quad (5.8)$$

Cette équation peut être formellement intégrée :

$$n_{k=0}(t) = \int_0^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_0}} B \cdot n_X(t')^2 dt'. \quad (5.9)$$

Nous utilisons alors le fait que les variations de n_X se font sur un temps caractéristique plus long que $\tau_0 \approx 2.2$ ps. $n_X(t')$ peut donc être considéré comme une constante lorsque t' varie de moins de 2.2 ps. À cause de la présence de l'exponentielle dans l'équation précédente, seules les valeurs de t' proches de t vont contribuer à l'intégrale, et nous avons :

$$n_{k=0}(t) \approx B \cdot n_X(t)^2 \int_0^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_0}} dt' \quad (5.10)$$

$$= B \cdot n_X(t)^2 (1 - e^{-\frac{t}{\tau_0}}) \tau_0 \quad (5.11)$$

$$\approx B \cdot n_X(t)^2 \tau_0. \quad (5.12)$$

Ainsi, tout se passe physiquement comme si l'équation initiale 5.8 était en régime stationnaire ($\frac{dn}{dt} = 0$). Autrement dit, les états proches de $k_{\parallel} = 0$ s'adaptent instantanément aux variations de la population dans le réservoir qui les alimente. Dès lors, le facteur 2 entre les deux temps de vie se comprend aisément : si le réservoir décroît comme $n_X \propto \exp(-t/\tau)$, l'équation 5.12 montre que l'état $k_{\parallel} = 0$ décroît comme $n_{k=0} \propto \exp(-2t/\tau)$, c'est à dire avec un temps de vie deux fois plus court.

Intéressons-nous maintenant à la dynamique du système en présence d'une densité constante d'électrons $n_e = 4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. La figure 5.19 montre les traces temporelles et les temps de déclin pour différentes densités de polaritons. À cette densité d'électrons, la luminescence du réservoir est dominée par les trions et le temps de déclin est constant et égal à 400 ps quelle que soit la densité d'excitation.

Si l'on regarde l'intensité intégrée en $k_{\parallel} = 0$ reportée sur la figure 5.17 en fonction de n_0 , nous retrouvons que l'on passe progressivement d'une relaxation dominée par les collisions polariton-électron à basse puissance à une relaxation dominée par les collisions polariton-polariton.

Nous avons montré précédemment que lorsque les collisions polariton-polariton sont dominantes l'état $k_{\parallel} = 0$ décline deux fois plus rapidement que le réservoir. Le même raisonnement montre que lorsque les collisions polariton-électron, linéaires vis à vis de n_X , dominant, l'état $k_{\parallel} = 0$ décline avec la même dynamique que le réservoir. Ce comportement est très bien vérifié sur la partie de droite de la figure 5.19, où sont reportés les temps de déclin aux temps courts en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir. A basse puissance, les

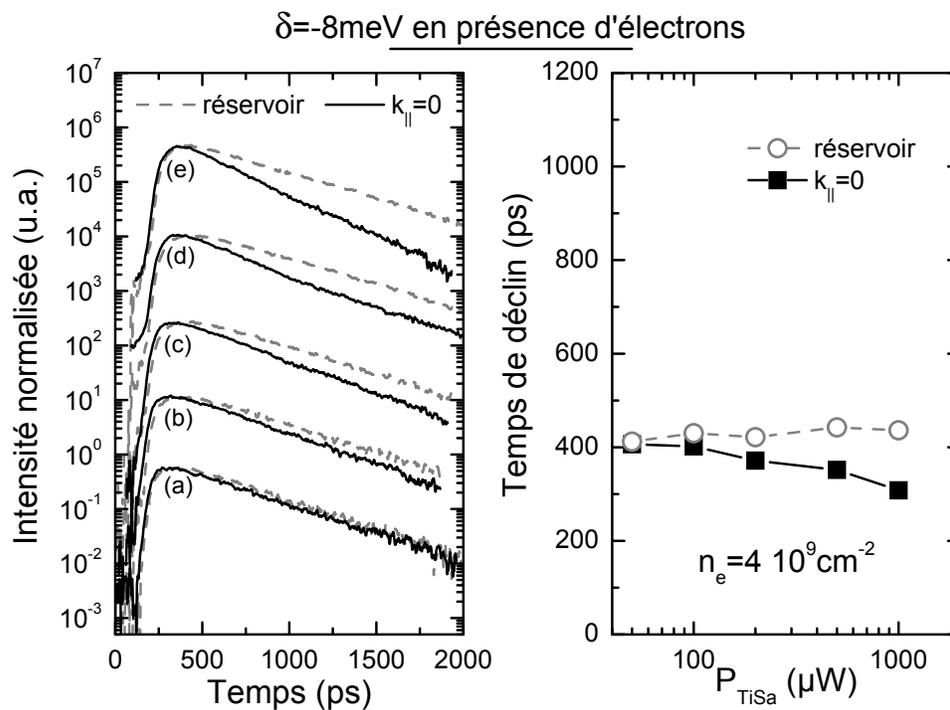


FIG. 5.19 – Comparaison de la dynamique en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir. Les expériences sont faites **en présence d'une densité d'électrons** $n_e = 4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ et pour les puissances d'excitation P_{TiSa} suivantes : (a) $50 \mu\text{W}$, (b) $100 \mu\text{W}$, (c) $200 \mu\text{W}$, (d) $500 \mu\text{W}$, (e) $1000 \mu\text{W}$. Les courbes de déclin ont été normalisées à leur maximum. Sur la partie de droite de la figure sont tracés les temps de déclin de la luminescence en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir.

collisions polariton-électron dominant et la dynamique en $k_{\parallel} = 0$ est la même que dans le réservoir. Lorsque la puissance est augmentée, le temps de déclin en $k_{\parallel} = 0$ diminue progressivement et tend vers la moitié de celui du réservoir. Le passage d'un régime à l'autre est d'ailleurs visible sur les courbes expérimentales (b), (c), (d). En observant ces courbes attentivement, nous remarquons que le déclin de la luminescence dans l'état $k_{\parallel} = 0$ n'est pas monoexponentiel : le déclin est initialement plus rapide que dans le réservoir, puis dans un second temps les courbes en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir deviennent parallèles et décroissent avec le même temps caractéristique. Pour ces puissances, la relaxation est dominée par les collisions polariton-polariton aux temps courts puis par les collisions polariton-électron aux temps longs.

En conclusion, nous trouvons que les états proches de $k_{\parallel} = 0$ s'adaptent instantanément à la population présente dans le réservoir, et que la différence entre les deux mécanismes de relaxation (les collisions polariton-polariton sont quadratiques et les collisions polariton-électron sont linéaires) se traduit en une différence sur la dynamique de la luminescence : les collisions polariton-polariton conduisent à un temps de déclin 2 fois plus court en $k_{\parallel} = 0$ que dans le réservoir, et les collisions polariton-électron conduisent au même temps de déclin dans les deux états.

5.3.2 Désaccord nul

Décrivons maintenant brièvement la dynamique en désaccord nul. La Figure 5.20 compare les traces temporelles à $\delta = 0$ en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir. Le panneau (a) de la figure montre les traces temporelles en l'absence d'électrons ($n_e = 0$), pour différentes puissances d'excitation n_0 , et le panneau (b) montre les traces temporelles en présence d'une densité $n_e = 4 \times 10^9$ d'électrons, pour différentes valeurs de n_0 . Le comportement du réservoir est le même que celui décrit pour le désaccord -8 meV, à savoir que sa dynamique s'accélère fortement lorsque l'on augmente la densité de polaritons ou d'électrons. En ce qui concerne la dynamique dans l'état $k_{\parallel} = 0$, nous voyons que les courbes de déclin sont identiques à celles du réservoir, à l'exception des deux courbes à forte puissance $n_0 = 3 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ et $n_0 = 6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. La situation est donc différente de ce que l'on observe en désaccord négatif. En effet, pour $\delta = 0$, la différence d'énergie entre le réservoir et l'état $k_{\parallel} = 0$ est de 2.2 meV seulement, de sorte que la relaxation par émission de phonons est beaucoup plus efficace qu'en désaccord négatif. Pour cette raison, nous pensons que l'effet des collisions polariton-polariton n'est visible qu'à plus forte puissance, lorsque celles-ci deviennent plus importantes que l'émission de phonons.

Nous avons d'autre part mesuré la dépendance de l'intensité en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir avec n_0 (voir Figure 5.21). L'intensité de photoluminescence en $k_{\parallel} = 0$ est alors proportionnelle à la densité n_0 , indiquant que

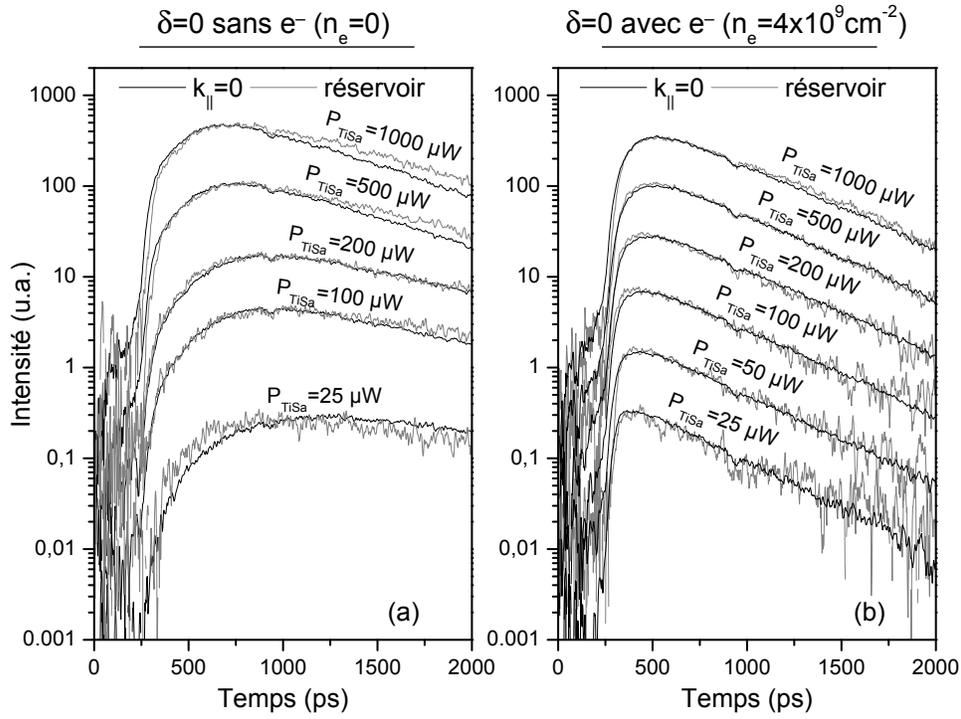


FIG. 5.20 – Courbes de déclin de la luminescence en désaccord nul. Les courbes de déclin en $k_{\parallel} = 0$ sont identiques aux courbes de déclin dans le réservoir, quelle que soit la densité d'électrons [figure de gauche : $n_e = 0$, droite : $n_e = 4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$], ou la densité de polaritons [de $n_0 = 1.1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ à $n_0 = 4.3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$]. Les traces temporelles ont été normalisées à leur maximum.

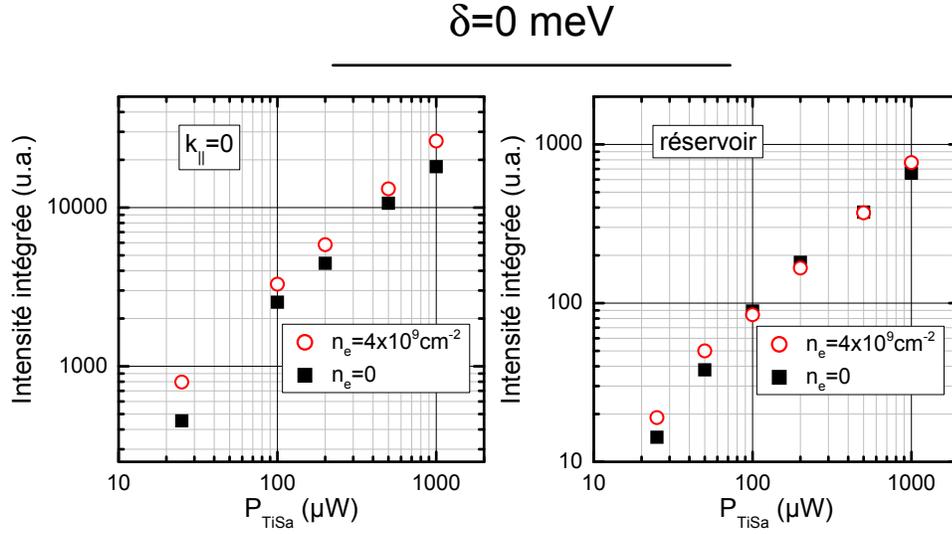


FIG. 5.21 – Intensité de photoluminescence intégrée dans le temps en fonction de la densité de polaritons pour un désaccord nul. La figure de gauche montre l'état $k_{\parallel} = 0$ et la figure de droite montre les états du réservoir. L'effet de la présence du gaz d'électrons est montré pour chacun de ces deux états.

les collisions polariton-polariton jouent un faible rôle et n'entraînent pas de redistribution de la population. De même, l'intensité intégrée dans l'état $k_{\parallel} = 0$ est multipliée par 1.5 au maximum en présence du gaz d'électrons, ce que l'on attribue au fait que le réservoir est principalement trionique. Ces résultats indiquent qu'à désaccord nul, la relaxation par émission de phonons est le mécanisme de relaxation prédominant, et que la distribution de population n'est pas modifiée lorsque l'on augmente la densité de polaritons ou d'électrons. Les populations de polaritons en $k_{\parallel} = 0$ et dans le réservoir ont alors la même dynamique, et l'influence des mécanismes supplémentaires de relaxation sur la dynamique reste faible.

5.3.3 Modèle à trois ensembles

Dans ce chapitre, nous avons analysé en détail les processus ayant un effet sur la dynamique de la luminescence, depuis la formation des excitons jusqu'à la relaxation entre le réservoir et les états proches de $k_{\parallel} = 0$. Les équations de notre modèle sont présentées sur la Figure 5.22. Une densité d'électrons n_e injectée par le laser HeNe est présente dans le système avant l'arrivée de l'impulsion provenant du laser TiSa. L'impulsion laser crée instantanément une densité additionnelle n_0 d'électrons et de trous. Nous négligeons la dynamique de thermalisation des électrons, des trous et des

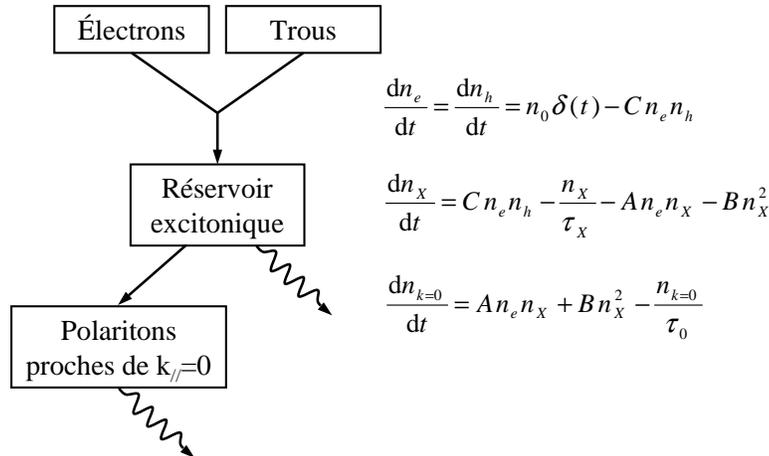


FIG. 5.22 – Schématisation de la formation des excitons à partir des paires électron-trou ainsi et de la relaxation des polaritons. Les équations sont utilisées pour modéliser la photoluminescence résolue en temps des polaritons.

excitons, que nous supposons être instantanément à la température du réseau. Ceci nous permet de ne retenir dans les équations que les densités totales, et d'utiliser des constantes effectives, moyennées sur la distribution de population, pour la formation des excitons, leur temps de vie radiatif et les processus de collision. Nous avons repris la constante $C = 1 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ et le temps de vie radiatif $\tau_x = 700 \text{ ps}$ mesurés lors de l'étude de l'échantillon gravé, et considéré un temps de vie du réservoir $\tau_{x-} = 400 \text{ ps}$ lorsque le réservoir est trionique en présence du gaz d'électrons. Le temps de vie τ_0 des états proches de $k_{||} = 0$ est égal à 2.2 ps . Les paramètres A et B sont gardés ajustables et permettent de rendre compte des collisions polariton-électron et polariton-polariton respectivement.

Malgré sa simplicité, ce modèle permet de rendre compte des expériences que nous avons faites en désaccord négatif. La Figure 5.23 compare les mesures expérimentales et les ajustements issus de ce modèle. Nous regardons simultanément la dynamique du réservoir et de l'état $k_{||} = 0$ pour différentes valeurs de n_0 et de n_e . Ces différentes conditions expérimentales sont correctement rendues par notre modèle lorsque l'on considère $A/B = 1.4$. Notons que l'on ne peut pas donner les valeurs absolues des constantes A et B . En effet, celles-ci n'interviennent que sur les facteurs d'occupation de l'état $k_{||} = 0$, qui ne sont pas mesurés de manière absolue sur ce dispositif expérimental. En conséquence, seul le rapport A/B a un sens physique. Nous retrouvons donc grâce aux mesures résolues en temps que les deux mécanismes de collision ont la même efficacité, aux incertitudes expérimentales près.

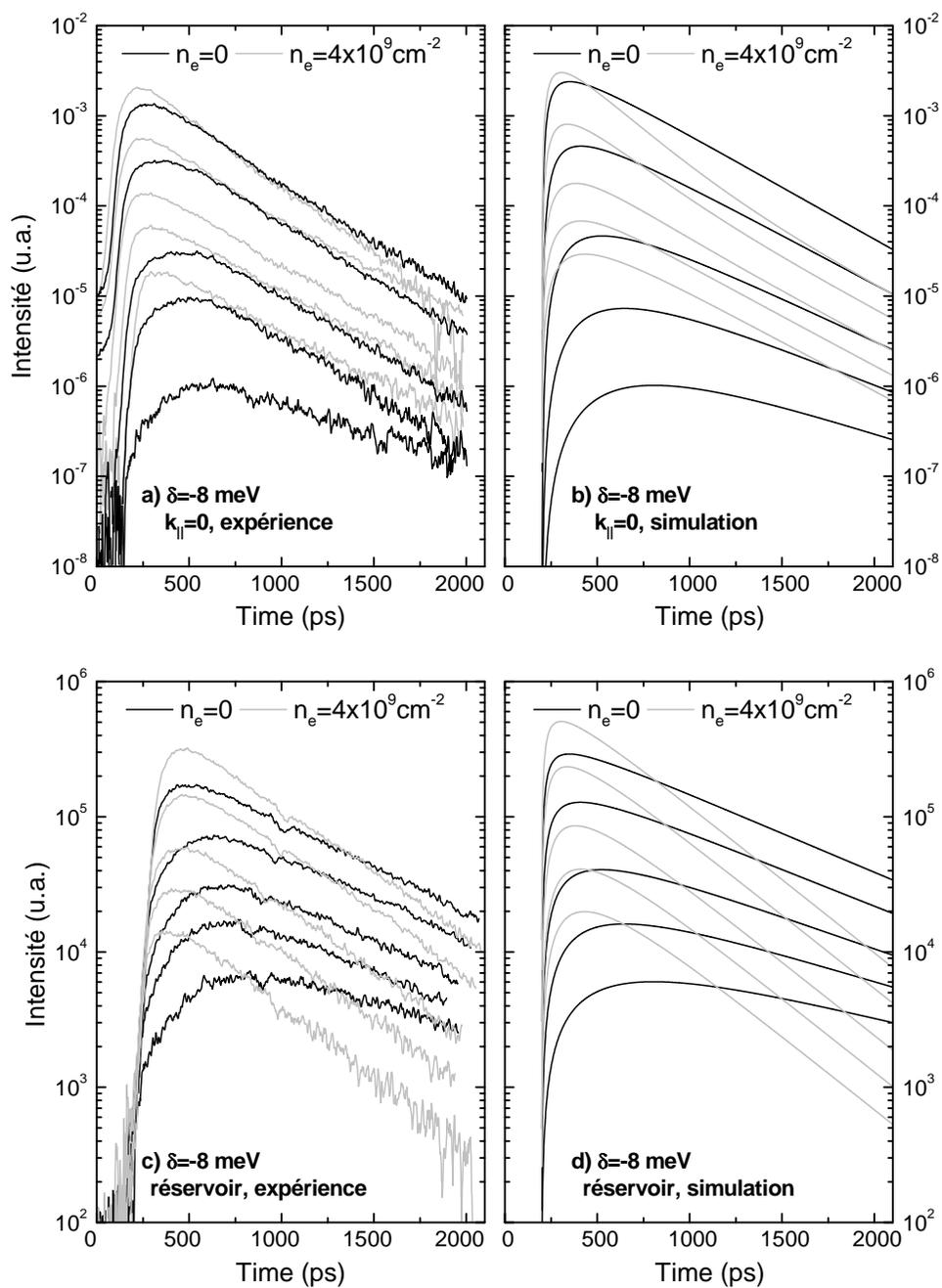


FIG. 5.23 – Comparaison entre les courbes de déclin expérimentales et les ajustements issus du modèle de la figure 5.22. Les spectres expérimentaux sont ceux des figure 5.18 et 5.19 à $\delta = -8$ meV.

5.4 Conclusion

On trouve dans la littérature assez peu d'études de la photoluminescence résolue en temps des polaritons sous excitation non résonnante. La plupart des articles se consacre en effet soit à la dynamique sous excitation résonnante [108, 9, 32, 109], soit à la dynamique de relaxation du spin [59, 89], de sorte que seuls MÜLLER et ses collaborateurs ont réalisé un travail proche de celui qui a été présenté ici [74]. Dans cet article, MÜLLER étudie la dynamique de relaxation d'une microcavité de semiconducteurs II-VI dans le régime linéaire, où l'émission de phonons gouverne la relaxation. À l'inverse des résultats présentés dans ce chapitre, il trouve que le temps de déclin de la photoluminescence *augmente* dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$. Il explique ce résultat contre-intuitif par la présence d'un réservoir d'excitons localisés, situé à 3.5 meV sous l'énergie de l'exciton, ayant un temps de vie plus long que les excitons libres et alimentant les états proches de $k_{\parallel} = 0$ pendant toute sa durée de vie. Grâce à la bonne qualité de notre échantillon, nous avons pu mettre directement en évidence que les états proches de $k_{\parallel} = 0$ s'adaptent instantanément aux variations de population du réservoir.

Dans ce chapitre, nous avons étudié la dynamique de relaxation des polaritons en présence d'un gaz d'électrons à l'aide de mesures de photoluminescence résolue en temps. Ces mesures montrent que le gaz d'électrons accélère fortement la dynamique d'émission des états du réservoir. Ce comportement n'est pas spécifique à la présence de la microcavité, puisqu'il a également été observé dans un puits quantique de référence non couplé à une microcavité. Il peut être expliqué par une formation plus rapide des excitons et, en présence d'électrons, par des effets trioniques. De plus, les expériences montrent clairement que la dynamique du réservoir n'est pas affectée par la diffusion des polaritons vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$.

Puisque le temps de vie global de la population de polaritons est plus long que le temps de vie radiatif des polaritons en $k_{\parallel} = 0$, nous avons également montré que la population dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$ suivait instantanément la population dans le réservoir. En conséquence, la dynamique des états proches de $k_{\parallel} = 0$ reflète directement celle du réservoir. Lorsque les collisions polariton-polariton sont le mécanisme de relaxation dominant, la luminescence en $k_{\parallel} = 0$ décline en un temps deux fois plus court que celui du réservoir. Lorsque les collisions polariton-électron sont le mécanisme dominant, la dynamique observée en $k_{\parallel} = 0$ est identique à celle du réservoir.

En conclusion, en étudiant la dynamique du puits quantique seul puis celle de la microcavité complète, nous avons expliqué que la modification de la dynamique d'émission provient simultanément de la physique des excitons dans le réservoir et de la physique de la relaxation des polaritons.

Chapitre 6

Conclusion

Dans ce dernier chapitre, nous rappelons dans un premier temps les motivations de ce travail de thèse ainsi que les principaux résultats obtenus. Nous proposons également des études qu'il serait intéressant de réaliser pour compléter les données présentées dans ce manuscrit. Enfin, des perspectives de recherches envisageables sont présentées à la fin de ce chapitre.

6.1 Bilan

Les microcavités en régime de couplage fort présentent une relation de dispersion fortement modifiée par rapport à celle de l'exciton, et il a été proposé de tirer partie de la faible densité d'états des polaritons dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$ afin de réaliser un laser d'un genre nouveau : le laser à polaritons. Ce laser fonctionne sur le principe d'une relaxation stimulée des polaritons dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$, et de nombreuses expériences indiquent qu'il a déjà été réalisé dans les semiconducteurs II-VI [90, 10].

Dans les microcavités de semiconducteurs III-V, les expériences réalisées dans les années 1999 à 2001 ont montré que quel que soit le mécanisme de relaxation (relaxation par émission de phonons ou par collisions polariton-polariton), une accumulation des polaritons dans les états de grand k_{\parallel} est observée et le régime de relaxation stimulée n'est pas atteint [124, 106]. Au début de cette thèse, une proposition théorique suggère que les collisions polariton-*électron* sont plus efficaces que les collisions polariton-polariton, et permettent d'obtenir une stimulation de la relaxation. Au cours de cette thèse, nous nous sommes attachés à tester expérimentalement cette proposition théorique. Ainsi, ce manuscrit présente des mesures spectroscopiques réalisées sur une microcavité où une densité d'électrons peut être injectée optiquement.

Pour réaliser un contrôle optique de la densité d'électrons, nous avons utilisé un puits quantique de type mixte, dans lequel deux puits quantiques

étroits sont placés de part et d'autre d'un puits quantique large. Nous avons montré que la densité d'électrons et la densité d'excitons présentes dans le puits quantique large peuvent être contrôlées de manière indépendantes en utilisant deux faisceaux lasers d'énergies différentes.

En étudiant la zone active seule, sur une partie gravée de l'échantillon (Chapitre 3), nous nous sommes attachés à mesurer précisément la densité d'électrons injectée dans le puits quantique large de façon à obtenir une mesure quantitative de l'efficacité des collisions polariton-électron. Pour cela, nous avons combiné plusieurs méthodes. À basse densité d'électrons, nous avons exploité l'équilibre thermodynamique entre les excitons et les trions : $X + e^- \rightleftharpoons X^-$. À plus forte densité d'électrons, nous avons mesuré le niveau de Fermi du gaz d'électrons dégénéré. Nous avons enfin mesuré la force d'oscillateur du trion en régime de couplage fort afin de raccorder les mesures à faible et forte densité. De cette manière, nous avons obtenu une mesure quantitative de la densité d'électrons de 0 à 10^{11} cm^{-2} avec un facteur d'incertitude de l'ordre de 2.5.

Nous avons ensuite étudié en détail l'effet du gaz d'électrons sur la luminescence des polaritons de cavité. Comme dans les travaux réalisés dans les groupes d'E. COHEN et de J. J. BAUMBERG [63, 83], nous avons observé une augmentation de la luminescence de plus d'un ordre de grandeur en $k_{\parallel} = 0$. Cependant, pour extraire quantitativement l'effet des électrons sur la relaxation des polaritons, nous avons montré qu'il faut tenir compte de la présence des trions dans la cavité. Nous avons en particulier montré que le réservoir devient trionique ; une partie de l'augmentation de la luminescence provient donc de la diminution de l'énergie de piège avec la densité d'électrons.

Pour observer la modification de la relaxation des polaritons en présence d'un gaz d'électrons, nous avons donc réalisé des mesures de photoluminescence résolue en angle pour une énergie de piège constante. Comme dans les études précédentes, un goulet d'étranglement de la relaxation est observé à basse densité de polaritons, puis disparaît partiellement à forte densité lorsque les collisions polariton-polariton deviennent prédominantes. L'injection d'un gaz d'électrons permet elle aussi, grâce aux collisions polaritons-électrons, de diminuer le goulet d'étranglement de la relaxation. En désaccord négatif, nous avons obtenu une réduction d'un facteur 5 du goulet d'étranglement.

Nous avons enfin comparé l'efficacité des collisions polariton-électron à celle des collisions polariton-polariton. À faible densité de polaritons, les collisions polariton-électron l'emportent sur les collisions polariton-polariton. À forte densité de polaritons, nous avons montré que les collisions polariton-polariton étaient le mécanisme de relaxation prédominant quelle que soit la densité d'électrons. Finalement, les deux mécanismes ont la même efficacité intrinsèque et les valeurs respectives de la densité d'électrons et de

la densité de polaritons déterminent quel sera le mécanisme de relaxation prédominant.

Nous avons également calibré notre dispositif expérimental de manière à mesurer les facteurs d'occupation absolus des états de polariton. Nous avons montré que les facteurs d'occupation restent inférieurs à 1 quelles que soient les conditions expérimentales (désaccord, température, densité d'électrons et densité de polaritons). Contrairement aux prévisions théoriques, les collisions polariton-électron n'ont pas permis d'obtenir une stimulation de la relaxation en régime de couplage fort et nous n'avons pas observé de relaxation stimulée.

Nous avons enfin étudié la dynamique de relaxation des polaritons à l'aide d'expériences de photoluminescence résolue en temps sous excitation impulsionnelle. Ces mesures montrent que le gaz d'électrons accélère fortement la dynamique d'émission des états du réservoir. Ce comportement n'est pas spécifique à la présence de la microcavité, puisqu'il a également été observé dans un puits quantique de référence non couplé à une microcavité. Il peut être expliqué par une formation plus rapide des excitons et, à forte densité d'électrons, par des effets trioniques. De plus, les expériences montrent clairement que la dynamique du réservoir n'est pas affectée par la diffusion des polaritons vers les états proches de $k_{\parallel} = 0$.

Nous avons également montré que la population dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$ suivait instantanément la population dans le réservoir. En conséquence, la dynamique des états proches de $k_{\parallel} = 0$ reflète directement celle du réservoir. Lorsque les collisions polariton-polariton sont le mécanisme de relaxation dominant, la luminescence en $k_{\parallel} = 0$ décline en un temps deux fois plus court que celui du réservoir. Lorsque les collisions polariton-électron sont le mécanisme dominant, la dynamique observée en $k_{\parallel} = 0$ est identique à celle du réservoir.

6.2 Perspectives

Nous avons montré qu'il n'est pas possible d'obtenir un laser à polaritons dans une structure où l'injection optique des électrons est réalisée par un puits quantique de type mixte où les électrons et les trous ne sont séparés que de 100 Å. À cause de cette proximité entre le gaz d'électrons et le gaz de trous, le calcul montre que les électrons sont en fait liés sous la forme d'excitons indirects. La proximité entre les électrons et les charges positives peut donc expliquer que les collisions polaritons-électrons soient moins efficaces que ce qui est attendu pour un gaz d'électrons réellement libres. Comprenant l'enjeu qu'il y a à éloigner les deux puits quantiques l'un de l'autre, nous avons réalisé une dizaine d'échantillons avec différentes tailles

de barrières. Les échantillons réalisés n'ont malheureusement pas montré de preuve indiscutable du transfert d'électrons lorsque l'épaisseur de la barrière dépasse les 1 000 Å (épaisseur nécessaire pour avoir un gaz d'électrons libres). Toutefois, étant donné que différents échantillons ayant la même structure nominale montrent des comportements différents, il n'est pas à exclure qu'une compréhension plus fine du transfert des électrons d'un puits quantique à l'autre ainsi qu'une amélioration des conditions de croissance permette d'utiliser des barrières de cette taille là et ainsi de disposer d'un gaz d'électrons réellement libres.

Par ailleurs, pour tester les collisions des polaritons avec un gaz d'électrons réellement libres, il serait intéressant de reprendre notre étude sur un puits quantique à dopage chimique, dans lequel le gaz d'électrons soit situé à une distance de l'ordre de 1 000 Å du plan de dopage, afin d'éviter que les électrons ne soient liés à des impuretés. La difficulté sera alors d'obtenir des densités d'électrons suffisamment faible ($< 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) et à contrôler ce dopage pour isoler l'effet des électrons.

Pour obtenir un laser à polaritons, la proposition théorique sur laquelle reposait ce travail de thèse consistait à modifier les interactions de la composante excitonique des polaritons pour accélérer la relaxation. Le goulet d'étranglement de la relaxation est cependant déterminé non seulement par l'efficacité des processus de relaxation, mais également par les pertes radiatives des polaritons hors de la cavité. Cette considération suggère une autre approche possible : il s'agirait de travailler sur la composante photonique des polaritons pour ralentir les fuites radiatives des polaritons dans les états proches de $k_{\parallel} = 0$. De même, l'observation de gain intracavité en régime de couplage fort sous excitation non résonnante [106, 107] suggère qu'en diminuant les pertes de la cavité nous pourrions obtenir un seuil suffisamment bas pour observer la stimulation de la relaxation.

Deux pistes de recherches semblent intéressantes à suivre. La première serait d'utiliser des microcavités de grande taille. Sur la figure 6.1, nous montrons les temps de vie calculés pour des microcavités vides en GaAs avec des miroirs d'AlAs/Al_{0.1}Ga_{0.9}As. Sur la courbe (a), nous considérons un jeu de miroirs de 26.5 et 22 paires pour les miroirs du bas et du haut, et des tailles de cavités égales à $m \times \lambda/n$, où m est un entier, n est l'indice optique du GaAs et $\lambda = 843 \text{ nm}$. Selon ce calcul, le temps de vie de la cavité, égal à 15 ps pour une cavité λ , peut être augmenté de près d'un ordre de grandeur pour atteindre 130 ps dans une cavité 30λ . En augmentant le temps de vie des polaritons en $k_{\parallel} = 0$ d'un ordre de grandeur, on s'attend à obtenir des facteurs d'occupation dix fois supérieurs, toutes choses égales par ailleurs. Au regard des mesures réalisées durant cette thèse, nous pourrions alors obtenir des facteurs d'occupation supérieurs à 1, de manière à obtenir une stimulation de la relaxation. En réalité, il ne sera pas possible d'augmenter indéfiniment le temps de vie de la cavité, car celui-ci sera limité par l'ab-

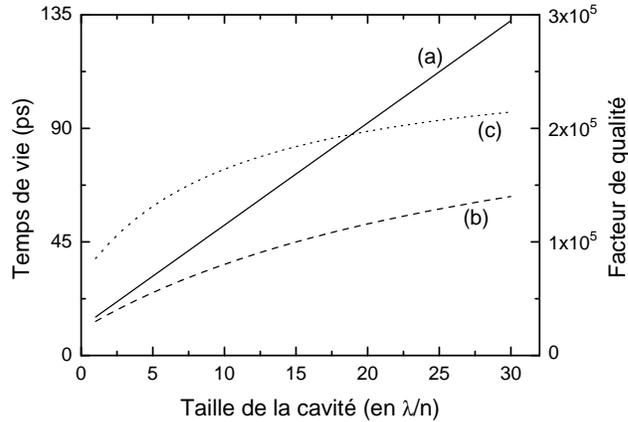


FIG. 6.1 – Calcul du temps de vie de cavité, pour une cavité centrée à $\lambda = 843$ nm ($E = 1470$ meV) en fonction de la taille de la cavité. Le nombre de paires dans les miroirs bas/haut est de 26.5/22 pour les courbes (a) et (b), et de 30.5/26 pour la courbe (c). Sur les courbes (b) et (c), une absorption résiduelle de 1 cm^{-1} est prise en compte.

sorption résiduelle du GaAs. En considérant une absorption raisonnable de 1 cm^{-1} , nous voyons que le temps de vie n'augmente plus indéfiniment, mais tend vers une valeur limite, en théorie égale à 120 ps [courbe (b)]. Enfin, la courbe (c) montre le temps de vie attendu lorsque les miroirs comportent un plus grand nombre de paires. Nous voyons qu'il existe néanmoins une marge de manœuvre importante, et que le temps de vie des photons intracavité peut théoriquement être augmenté de près d'un ordre de grandeur par rapport aux cavités actuelles.

Pour obtenir le régime de couplage fort, il faut alors placer un grand nombre de puits quantiques dans la microcavité. En effet, la valeur du champ électromagnétique à la position des puits quantiques sera moins importante que sur une microcavité λ , mais il est connu que les puits quantiques sont alors mis en cohérence les uns avec les autres par l'intermédiaire de leur couplage commun au mode de la microcavité. Un seul état excitonique, délocalisé sur l'ensemble des puits quantiques, emporte alors la force d'oscillateur totale des excitons, les autres états étant non radiants [8]. La figure 6.2 montre des résultats préliminaires obtenus sur une microcavité 15λ , contenant 29 puits quantiques d' $\text{In}_{0.06}\text{Ga}_{0.94}\text{As}$ (un puits quantique à chaque ventre du mode de la microcavité) et réalisée au laboratoire par A. LEMAÎTRE grâce à l'épitaxie par jets moléculaires. En raison de la taille de la microcavité, plusieurs modes longitudinaux entrent en régime de couplage fort avec l'exciton. Sur la figure 6.2(b), nous montrons les spectres de photoluminescence correspondant à l'anticroisement avec le troisième mode, autour de la position $x = 10.5$ mm sur l'échantillon. Le régime de couplage

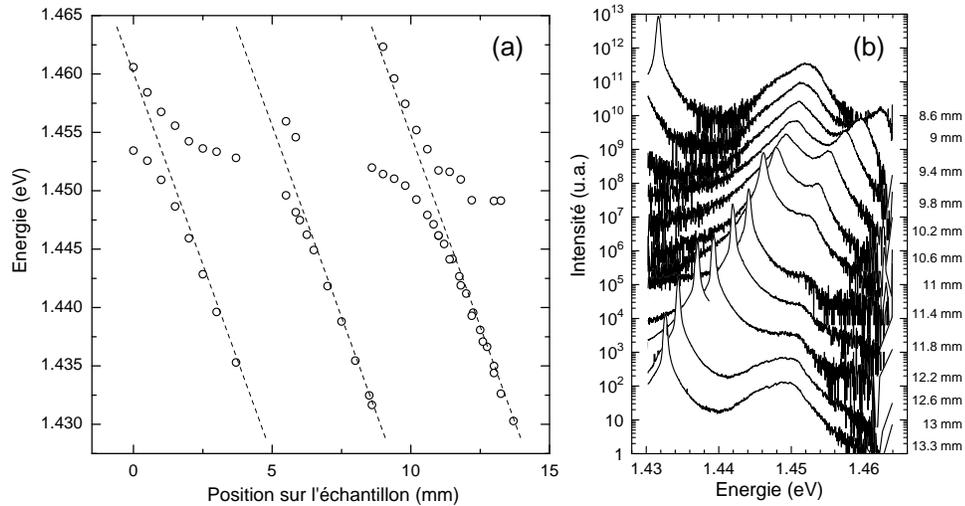


FIG. 6.2 – (a) Anticroisement sur une microcavité 15λ . Plusieurs modes sont en régime de couplage fort avec l'exciton. (b) Spectres de photoluminescence en échelle logarithmique pour le troisième anticroisement. Le régime de couplage fort est clairement observé.

fort est clairement observé et donne un dédoublement de Rabi de 6.6 meV.

Pour ce premier essai, l'objectif était de montrer que le régime de couplage fort pouvait être observé dans une microcavité de cette taille, aussi les miroirs du bas et du haut comportent un nombre de paires raisonnables (24.5 paires en bas et 20 paires en haut), de manière à garder un temps de croissance raisonnable. Le temps de vie attendu est de l'ordre de 30 ps, et permettrait peut-être d'obtenir une stimulation de la relaxation sous excitation non résonnante. Des études théoriques et expérimentales sont encore nécessaires pour comprendre le couplage fort dans des microcavités de grande taille, mais cette piste pourrait s'avérer intéressante pour obtenir le laser à polaritons dans les matériaux III-V.

Une autre voie possible serait d'utiliser des puits quantiques couplés à des modes de cristaux photoniques sur membrane, comme suggéré par GERACE, AGIO et ANDREANI [35, 2]. Ces structures présentent en effet une grande versatilité, et permettent dans une certaine mesure de contrôler la partie réelle et imaginaire de l'énergie des modes optiques. À l'heure actuelle, les cristaux photoniques sont envisagés principalement pour le couplage fort des boîtes quantiques, mais ils pourraient également présenter un intérêt pour la physique des polaritons si l'on arrivait à trouver une structure adaptée. S'il n'est pas question ici d'explicitier une structure précise de cristal photonique, nous pouvons cependant énoncer les caractéristiques que devrait présenter une structure idéale en vue de réaliser un laser à polaritons : un minimum

d'énergie en $k_{\parallel} = 0$, un grand temps de vie en $k_{\parallel} = 0$ et un temps de vie plus court pour les états de grand vecteur d'onde, de manière à diminuer la fraction de la population contenue dans les états du réservoir et à augmenter celle contenue dans les états "utiles" proches de $k_{\parallel} = 0$.

Annexe A

Structure et caractérisation de l'échantillon

A.1 Structure de l'échantillon

Dans cette annexe, nous décrivons l'échantillon utilisé au cours de la thèse et réalisé au laboratoire par A. LEMAÎTRE par épitaxie à jets moléculaires (code de nomenclature : 32A21). Nous montrons sa structure sur le tableau A.1. L'échantillon 32A21 est fortement inspiré de l'échantillon étudié par QARRY et LAGOUDAKIS [83, 63]. La principale différence provient

	Structure nominale		Rotation de l'échantillon	Répétition du motif
	Matériau	Épaisseur		
Miroir supérieur	AlAs	675 Å	Non	15.5×
	Al _{0.15} Ga _{0.85} As	572 Å		
Zone active	AlAs	400 Å	Oui	1×
	GaAs	26 Å		
	AlAs	100 Å		
	GaAs	200 Å		
	AlAs	100 Å		
	GaAs	26 Å		
	AlAs	400 Å		
Miroir inférieur	Al _{0.15} Ga _{0.85} As	572 Å	Non	24×
	AlAs	675 Å		
Substrat	GaAs	–	–	–

TAB. A.1 – Structure de l'échantillon 32A21 étudié dans ce manuscrit.

de l'épaisseur de la cavité, qui est ici une cavité $\lambda/2$, alors que QARRY et LAGOUDAKIS ont utilisé une cavité λ . La zone active est constituée de trois puits quantiques de GaAs : deux puits quantiques étroits d'épaisseur 26 Å et un puits quantique large d'épaisseur 200 Å. Seul ce dernier est en régime de couplage fort avec le mode de la microcavité, les puits quantiques étroits servant à injecter un gaz d'électrons dans le puits quantique large selon un principe décrit au chapitre 3.

Les deux miroirs de Bragg de la microcavité sont constitués d'une alternance entre des couches en AlAs d'indice 2.96 à basse température et des couches en $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$, d'indice 3.48. Pour avoir un contraste d'indice le plus fort possible entre la couche de faible indice et la couche de fort indice, il aurait été préférable d'utiliser du GaAs plutôt que de l' $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$. Ce dernier a néanmoins été utilisé en raison de sa bande interdite plus grande, afin que les miroirs n'absorbent pas la lumière à la longueur d'onde $\lambda = 811$ nm du puits quantique de 200 Å. Le miroir situé du côté du substrat comporte 24 paires, tandis que celui situé du côté de l'air comporte 15.5 paires seulement. La différence entre les deux miroirs permet d'une part de compenser la forte réflectivité de l'air et d'autre part d'augmenter la luminescence dans la direction de l'air par rapport à la luminescence émise en direction du substrat. À l'aide de la théorie présentée en 1.3.2, nous trouvons les coefficients de réflectivité en énergie $R_{\text{sup}} = 99.3\%$ et $R_{\text{inf}} = 99.85\%$, d'où nous déduisons qu'en incidence normale, 80 % de la lumière émise par l'échantillon est émise dans l'air et 20 % est émise dans le substrat.

Les deux couches de 400 Å d'AlAs entourant la zone active sont calculées de façon à définir une cavité $\lambda/2$ à la longueur d'onde d'émission du puits quantique large de 200 Å de GaAs. D'autre part, la rotation du porte échantillon a été arrêtée lors de la croissance de ces couches. En conséquence, alors que la zone active a une épaisseur homogène sur toute la surface de l'échantillon, il existe un gradient d'épaisseur pour les deux couches formant la cavité. La longueur d'onde de résonance de la cavité et le désaccord exciton-photon δ peuvent donc être variés en se déplaçant sur l'échantillon.

A.2 Caractérisation à température ambiante

Nous montrons sur la figure A.1(a) les spectres de réflectivité à température ambiante obtenus à l'aide d'un interféromètre à transformée de Fourier en différents points le long de l'échantillon. Les spectres obtenus sont très similaires à ceux qui ont été calculés au chapitre 1 dans le cas d'une microcavité vide : nous voyons une zone de réflectivité maximale correspondant à la bande interdite des miroirs de Bragg, ainsi que le mode de la cavité au centre de cette bande interdite. En se déplaçant le long de l'échantillon, le mode ainsi que la bande interdite du miroir de Bragg sont translatés en énergie en raison du gradient d'épaisseur des couches épitaxiées.

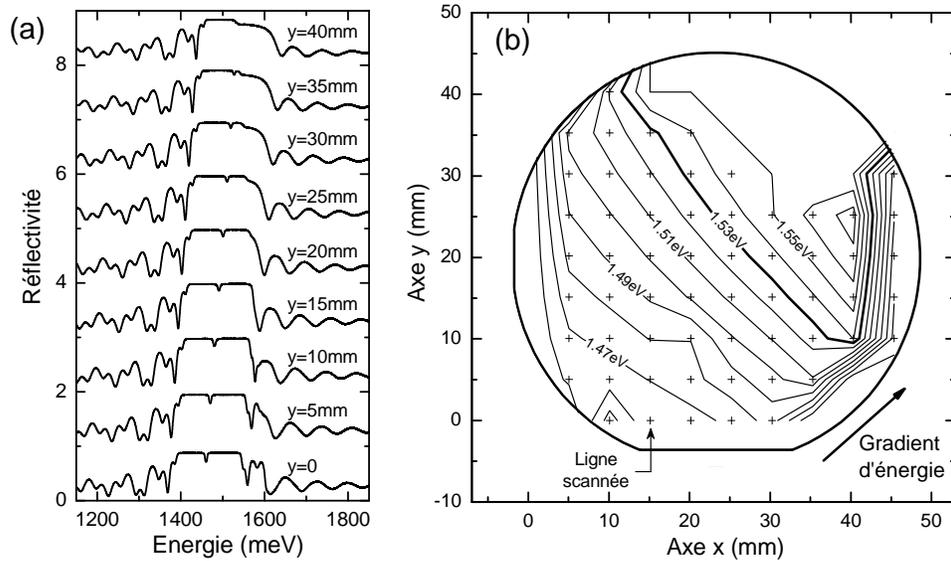


FIG. A.1 – (a) Spectres de réflectivité mesurés le long d’une droite sur l’échantillon ($x = 15$ mm). (b) Cartographie du mode de la cavité à température ambiante. Les croix montrent les points où une détermination de l’énergie a effectivement été possible, et les lignes de niveau indiquent l’énergie mesurée du mode de la cavité. La ligne correspondant à $E_{\text{cav}} = E_X = 1.53$ eV a été marquée en gras, et une flèche indique la ligne qui a été scannée pour réaliser le panneau (a).

Notons que l’énergie du puits quantique varie fortement avec la température, passant d’une valeur de $E_X \approx 1.43$ eV à $T = 300$ K, à $E_X = 1.53$ eV à basse température : $T = 15$ K. L’exciton est d’autre part fortement élargi à cause de l’interaction avec les phonons, et n’est donc pas observable sur ces spectres de réflectivité à température ambiante.

Les interférences présentes sur la partie haute énergie des spectres de réflectivité présentent des caractéristiques moins marquées que celles observées sur la partie basse énergie des spectres. Cette différence entre les deux parties du spectre, normalement symétriques l’une de l’autre, est attribuée à l’absorption des couches d’AlGaAs présentes dans les miroirs de Bragg. Il existe un gradient de la concentration en aluminium dans l’alliage AlGaAs, et l’on peut voir que l’énergie au delà de laquelle ce matériau absorbe varie de 1.54 eV à 1.6 eV selon la position sur l’échantillon. Sur le spectre correspondant à $y = 45$ mm, le mode de la cavité a d’ailleurs disparu : les deux miroirs ne sont pas assez réfléchissants pour pouvoir former une cavité.

À la sortie du bâti d’épithaxie, l’échantillon se présente sous la forme d’une plaque de 2 pouces de diamètre, trop grande pour rentrer dans un cryostat. Afin de savoir où cliver l’échantillon, nous avons réalisé une carto-

graphie de l'énergie du mode dont les résultats sont présentés sous la forme de lignes de niveaux sur la figure A.1(b). Si l'on exclut les bords de l'échantillon, le gradient d'énergie est relativement uniforme. Il est orienté à 45° des axes cristallographiques et vaut environ 3 meV/mm. La ligne correspondant à $E_{\text{cav}} = E_X$ a été tracée en gras. La caractérisation présentée ici a été réalisée à température ambiante. Pour connaître l'énergie du mode à basse température, il est nécessaire de tenir compte d'un décalage en énergie d'environ +20 meV du mode entre la température ambiante et les basses températures.

Liste des publications

- *Interferometric correlation spectroscopy in single quantum dots.* C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, **M. Perrin**, C. Delalande, Ph. Roussignol and J. M. Gérard. *Appl. Phys. Lett.*, **81** :2737 (2002)
- *Monitoring the dynamics of a coherent polariton population.* J. Bloch, B. Sermage, **M. Perrin**, P. Senellart, R. André and Le Si Dang. *Phys. Rev. B*, **71** :155311 (2005)
- *Polariton relaxation in semiconductor microcavities : Efficiency of electron-polariton scattering.* **M. Perrin**, P. Senellart, A. Lemaître and J. Bloch. *Phys. Rev. B*, **72** :075340 (2005)
- *Dynamics of microcavity polaritons in the presence of an electron gas.* D. Bajoni, **M. Perrin**, P. Senellart, A. Lemaître, B. Sermage, and J. Bloch. *Phys. Rev. B*, **73** :205344 (2006)

Bibliographie

- [1] L. C. Andreani. *Optical transitions, excitons and polaritons in bulk and low-dimensional semiconductor structures*. In E. Burstein and C. Weisbuch (editors): *Confined Excitons and Photons*, pages 57–112, New York, 1995. Plenum Press.
- [2] Lucio Claudio Andreani, Dario Gerace, and Mario Agio. *Exciton-polaritons and nanoscale cavities in photonic crystal slabs*. *Phys. Stat. Sol. (b)*, **242**:2197, 2005.
- [3] Lucio Claudio Andreani and Alfredo Pasquarello. *Accurate theory of excitons in GaAs-Ga_{1-x}Al_xAs quantum wells*. *Phys. Rev. B*, **42**:8928, 1990.
- [4] G. V. Astakhov, V. P. Kochereshko, D. R. Yakovlev, W. Ossau, J. Nürnberger, W. Faschinger, G. Landwehr, T. Wojtowicz, G. Karczewski, and J. Kossut. *Optical method for the determination of carrier density in modulation-doped quantum wells*. *Phys. Rev. B*, **65**:115310, 2002.
- [5] G. Bastard. *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*. Les éditions de minuit, Les Ulis, 1988.
- [6] F. Bernardot, P. Nussenzveig, M. Brune, J. M. Raimond, and S. Haroche. *Vacuum rabi splitting observed on a microscopic atomic sample in a microwave cavity*. *Europhysics Letters*, **17**:33, 1992.
- [7] D. Birkedal and J. Shah. *Femtosecond spectral interferometry of resonant secondary emission from quantum wells: Resonance rayleigh scattering in the nonergodic regime*. *Phys. Rev. Lett.*, **81**:2372, 1998.
- [8] J. Bloch, T. Freixanet, J. Y. Marzin, V. Thierry-Mieg, and R. Planel. *Giant rabi splitting in a microcavity containing distributed quantum wells*. *Appl. Phys. Lett.*, **73**:1694, 1998.
- [9] J. Bloch and J. Y. Marzin. *Photoluminescence dynamics of cavity polaritons under resonant excitation in the picosecond range*. *Phys. Rev. B*, **56**:2103, 1997.
- [10] J. Bloch, B. Sermage, M. Perrin, P. Senellart, R. André, and Le Si Dang. *Monitoring the dynamics of a coherent cavity polariton population*. *Phys. Rev. B*, **71**:155311, 2005.

- [11] F. Bœuf, R. André, R. Romestain, Le Si Dang, E. Péronne, J. F. Lampin, D. Hulin, and A. Alexandrou. *Evidence of polariton stimulation in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B, **62**:R2279, 2000.
- [12] Max Born and Emil Wolf. *Principles of Optics, 7th Edition*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.
- [13] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, J. R. Jensen, and J. M. Hvam. *Microcavity polariton linewidths in the weak-disorder regime*. Phys. Rev. B, **63**:035307, 2001.
- [14] M. Brune, F. Schmidt-Kaler, A. Maali, J. Dreyer, E. Hagley, J. M. Raimond, and S. Haroche. *Quantum Rabi oscillation: A direct test of field quantization in a cavity*. Phys. Rev. Lett., **76**:1800, 1996.
- [15] R. Butté, G. Delalleau, A. I. Tartakovskii, M. S. Skolnick, V. N. Astratov, J. J. Baumberg, G. Malpuech, A. Di Carlo, A. V. Kavokin, and J. S. Roberts. *Transition from strong to weak coupling and the onset of lasing in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B, **65**:205310, 2002.
- [16] Iacopo Carusotto and Cristiano Ciuti. *Probing microcavity polariton superfluidity through resonant Rayleigh scattering*. Phys. Rev. Lett., **93**:166401, 2004.
- [17] J. Christen and D. Bimberg. *Line shapes of intersubband and excitonic recombination in quantum wells: influence of final-state interaction, statistical broadening, and momentum conservation*. Phys. Rev. B, **42**:7213, 1990.
- [18] C. Ciuti, V. Savona, C. Piermarocchi, A. Quattropani, and P. Schwendimann. *Role of the exchange of carriers in elastic exciton-exciton scattering in quantum wells*. Phys. Rev. B, **58**:7926, 1998.
- [19] Claude Cohen-Tannoudji, Jacques Dupont-Roc et Gilbert Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. EDP Sciences, Les Ulis, 2001.
- [20] M. Combescot and C. Tanguy. *New criteria for bosonic behavior of excitons*. Europhys. Lett., **55**:390, 2001.
- [21] O. El Daïf, A. Baas, T. Guillet, J. P. Brantut, R. Idrissi Kaitouni, J. L. Staehli, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud. *Polariton quantum boxes in semiconductor microcavities*. Appl. Phys. Lett., **88**:061105, 2006.
- [22] T. C. Damen, Jagdeep Shah, D. Y. Oberli, D. S. Chemla, J. E. Cunningham, and J. M. Kuo. *Dynamics of exciton formation and relaxation in GaAs quantum wells*. Phys. Rev. B, **42**:7434, 1990.
- [23] Le Si Dang, D. Heger, R. André, F. Bœuf, and R. Romestain. *Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity*. Phys. Rev. Lett., **81**:3920, 1998.
- [24] P. Dawson, I. Galbraith, A. I. Kucharska, and C. T. Foxon. *Low power, all optical nonlinear absorption in asymmetric double quantum wells*. Appl. Phys. Lett., **58**:2889, 1991.

- [25] P. Dawson and M. J. Godfrey. *Recombination dynamics of spatially separated electron-hole plasmas in GaAs/AlAs mixed type-I/type-II quantum well structures*. Phys. Rev. B, **68**:115326, 2003.
- [26] Hui Deng, Gregor Weihs, Charles Santori, Jacqueline Bloch, and Yoshihisa Yamamoto. *Condensation of semiconductor microcavity exciton polaritons*. Science, **298**:199, 2002.
- [27] B. Deveaud, F. Clérot, K. Satzke N. Roy, B. Sermage, and D. S. Katzer. *Enhanced radiative recombination of free excitons in GaAs quantum wells*. Phys. Rev. Lett., **67**:2355, 1991.
- [28] A. Esser, R. Zimmermann, and E. Runge. *Theory of trion spectra in semiconductor nanostructures*. Phys. Stat. Sol. (b), **227**:317, 2001.
- [29] Axel Esser, Erich Runge, Roland Zimmermann, and Wolfgang Langbein. *Photoluminescence and radiative lifetime of trions in GaAs quantum wells*. Phys. Rev. B, **62**:8232, 2000.
- [30] Axel Esser, Erich Runge, Roland Zimmermann, and Wolfgang Langbein. *Trions in GaAs quantum wells: Photoluminescence lineshape analysis*. Phys. Stat. Sol. (a), **178**:489, 2000.
- [31] J. Feldmann, M. Preis, E. O. Göbel, P. Dawson, C. T. Foxon, and I. Galbraith. Γ -X- Γ *electron transfer in mixed type I-type II GaAs/AlAs quantum well*. Solid State Commun., **83**:245, 1992.
- [32] T. Freixanet, B. Sermage, A. Tiberj, and R. Planel. *In-plane propagation of excitonic cavity polaritons*. Phys. Rev. B, **61**:7233, 2000.
- [33] D. Fröhlich, E. Mohler, and P. Wiesner. *Observation of exciton polariton dispersion in CuCl*. Phys. Rev. Lett., **26**:554, 1970.
- [34] I. Galbraith, P. Dawson, and C. T. Foxon. *Optical nonlinearities in mixed type I - type II GaAs/AlAs multiple quantum wells*. Phys. Rev. B, **45**:13499, 1992.
- [35] Dario Gerace, Mario Agio, and Lucio Claudio Andreani. *Quantum theory of photonic crystal polaritons*. Phys. Stat. Sol. (c), **1**:446, 2003.
- [36] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg. *Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity*. Phys. Rev. Lett., **81**:1110, 1998.
- [37] Shmuel Glasberg, Gleb Finkelstein, Hadas Shtrikman, and Israel Bar-Joseph. *Comparative study of the negatively and positively charged excitons in GaAs quantum wells*. Phys. Rev. B, **59**:R10425, 1998.
- [38] P. Goy, J. M. Raimond, M. Gross, and S. Haroche. *Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission*. Phys. Rev. Lett., **50**:1903, 1983.
- [39] Gilbert Grynberg. *Cours d'optique quantique*. École Polytechnique, Palaiseau, 2000.

- [40] R. Guliamov, E. Lifshitz, E. Cohen, Arza Ron, and L.N. Pfeiffer. *Indirect barrier electron-hole gas transitions in mixed type-I type-II GaAs-AlAs multiple quantum wells*. Phys. Rev. B, **64**:035314, 2001.
- [41] M. Gurioli, P. Borri, M. Colocci, M. Gulia, F. Rossi, E. Molinari, P. E. Selbmann, and P. Lugli. *Exciton formation and relaxation in GaAs epilayers*. Phys. Rev. B, **58**:R13403, 1998.
- [42] S. Haacke, R. A. Taylor, R. Zimmermann, I. Bar-Joseph, and B. Deveaud. *Resonant femtosecond emission from quantum well excitons: The role of Rayleigh scattering and luminescence*. Phys. Rev. Lett., **78**:2228, 1997.
- [43] E. Hanamura and H. Haug. *Condensation effects of excitons*. Physics Reports, **33**:209–284, 1977.
- [44] U. Heim and P. Wiesner. *Direct evidence for a bottleneck of exciton-polariton relaxation in CdS*. Phys. Rev. Lett., **30**:1205, 1973.
- [45] C. H. Henry and J. J. Hopfield. *Raman scattering by polaritons*. Phys. Rev. Lett., **15**:964, 1965.
- [46] C. J. Hood, T. W. Lynn, M. S. Chapman, H. Mabuchi, J. Ye, and H. J. Kimble. *Cavity QED - where's the Q?* In H. Benisty, J. M. Gérard, R. Houdré, J. Rarity, and C. Weisbuch (editors): *Confined Photon Systems*, pages 298–309, Berlin, 1999. Springer.
- [47] J. J. Hopfield. *Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals*. Phys. Rev., **112**:1555, 1958.
- [48] J. J. Hopfield and D. G. Thomas. *Polariton absorption lines*. Phys. Rev. Lett., **15**:22, 1965.
- [49] R. Houdré, J. L. Gibernon, P. Pellandini, R. P. Stanley, U. Oesterle, C. Weisbuch, J. O’Gorman, B. Roycroft, and M. Ilegems. *Saturation of the strong-coupling regime in a semiconductor microcavity: Free-carrier bleaching of cavity polaritons*. Phys. Rev. B, **52**:7810, 1995.
- [50] R. Houdré, C. Weisbuch, R. P. Stanley, U. Oesterle, P. Pellandini, and M. Ilegems. *Measurement of cavity-polariton dispersion curve from angle-resolved photoluminescence experiments*. Phys. Rev. Lett., **73**:2043, 1994.
- [51] Randall G. Hulet, Eric S. Hilfer, and Daniel Kleppner. *Inhibited spontaneous emission by a Rydberg atom*. Phys. Rev. Lett., **55**:2137, 1985.
- [52] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau, and Y. Yamamoto. *Nonequilibrium condensates and lasers without inversion: Exciton-polariton lasers*. Phys. Rev. B, **53**:4250, 1996.
- [53] F. Jahnke, M. Kira, S. W. Koch, G. Khitrova, E. K. Lindmark, T. R. Nelson Jr., D. V. Wick, J. D. Berger, O. Lyngnes, H. M. Gibbs, and K. Tai. *Excitonic nonlinearities of semiconductor microcavities in the nonperturbative regime*. Phys. Rev. Lett., **77**:5257, 1996.

- [54] J. R. Jensen, P. Borri, W. Langbein, and J. M. Hvam. *Ultrannarrow polaritons in a semiconductor microcavity*. Appl. Phys. Lett., **76**:3262, 2000.
- [55] Y. Kaluzny, P. Goy, M. Gross, J. M. Raimond, and S. Haroche. *Observation of self-induced Rabi oscillations in two-level atoms excited inside a resonant cavity: The ringing regime of superradiance*. Phys. Rev. Lett., **51**:1175, 1983.
- [56] Alexey Kavokin, Guillaume Malpuech, and Fabrice P. Laussy. *Polariton laser and polariton superfluidity in microcavities*. Phys. Lett. A, **306**:187, 2003.
- [57] Jonathan Keeling, P. R. Eastham, M. H. Szymanska, and P. B. Littlewood. *Polariton condensation with localized excitons and propagating photons*. Phys. Rev. Lett., **93**:226403, 2004.
- [58] Jonathan Keeling, P. R. Eastham, M. H. Szymanska, and P. B. Littlewood. *BCS-BEC crossover in a system of microcavity polaritons*. Phys. Rev. B, **72**:115320, 2005.
- [59] L. Kłopotowski, L. Viña, A. Kavokin, L.S. Dang, and R. André. *Time-resolved emission from semiconductor microcavities*. Acta Physica Polonica A, **106**:435, 2004.
- [60] E. Knill, R. Laflamme, and G. J. Milburn. *A scheme for efficient quantum computation with linear optics*. Nature, **409**:46, 2001.
- [61] R. S. Knox. *Theory of Excitons*. Academic Press, New York, 1963.
- [62] E. S. Koteles and G. Winterling. *Resonant scattering of exciton polaritons by LO and acoustic phonons*. Phys. Rev. B, **20**:628, 1979.
- [63] P. G. Lagoudakis, M. D. Martin, J. J. Baumberg, A. Qarry, E. Cohen, and L. N. Pfeiffer. *Electron-polariton scattering in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. Lett., **90**:206401, 2003.
- [64] Fabrice P. Laussy, G. Malpuech, A. Kavokin, and P. Bigenwald. *Spontaneous coherence buildup in a polariton laser*. Phys. Rev. Lett., **93**:016402, 2004.
- [65] Fabrice P. Laussy, Ivan A. Shelykh, Guillaume Malpuech, and Alexey Kavokin. *Effects of bose-einstein condensation of exciton polaritons in microcavities on the polarization of emitted light*. Phys. Rev. B, **73**:035315, 2006.
- [66] A. M. Malik, M. J. Godfrey, and P. Dawson. *Tunneling of heavy holes in semiconductor microstructures*. Phys. Rev. B, **59**:2861, 1999.
- [67] G. Malpuech, A. Kavokin, A. Di Carlo, and J. J. Baumberg. *Polariton lasing by exciton-electron scattering in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B, **65**:153310, 2002.

- [68] G. Malpuech, Y. G. Rubo, F. P. Laussy, P. Bigenwald, and A. V. Kavokin. *Polariton laser: Thermodynamics and quantum kinetic theory*. *Semicond. Sci. Technol.*, **18**:S395, 2003.
- [69] Guillaume Malpuech, Aldo Di Carlo, Alexey Kavokin, Jeremy J. Baumberg, Marian Zamfirescu, and Paolo Lugli. *Room-temperature polariton lasers based on GaN microcavities*. *Appl. Phys. Lett.*, **81**:412, 2002.
- [70] A. Manassen, E. Cohen, Arza Ron, E. Linder, and L.N. Pfeiffer. *Exciton and trion spectral line shape in the presence of an electron gas in GaAs-AlAs quantum wells*. *Phys. Rev. B*, **54**:10609, 1996.
- [71] F. M. Marchetti, J. Keeling, M. H. Szymanska, and P. B. Littlewood. *Thermodynamics and excitations of condensed polaritons in disordered microcavities*. *Phys. Rev. Lett.*, **96**:066405, 2006.
- [72] J. Martinez-Pastor, A. Vinattieri, L. Carraresi, M. Colocci, Ph. Rousignol, and G. Weimann. *Temperature dependence of exciton lifetimes in GaAs/Al_xGa_{1-x}As single quantum wells*. *Phys. Rev. B*, **47**:10456, 1993.
- [73] H. A. McLeod. *Thin-Film Optical Filters, 3rd. Edition*. Taylor and Francis, London, 2001.
- [74] Markus Müller, Joël Bleuse, and Régis André. *Dynamics of the cavity polariton in CdTe-based semiconductor microcavities: Evidence for a relaxation edge*. *Phys. Rev. B*, **62**:16886, 2000.
- [75] I. K. Oh, Jai Singh, A. Thilagam, and A. S. Vengurlekar. *Exciton formation assisted by LO phonons in quantum wells*. *Phys. Rev. B*, **62**:2045, 2000.
- [76] J. L. Oudar, R. Kuszelewicz, B. Sfez, J. C. Michel, and R. Planel. *Prospects for further threshold reduction in bistable microresonators*. *Opt. and Quant. Elec.*, **24**:S193, 1992.
- [77] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard, and J. Bloch. *Exciton-photon strong-coupling regime for a single quantum dot embedded in a microcavity*. *Phys. Rev. Lett.*, **95**:067401, 2005.
- [78] C. Piermarocchi, F. Tassone, V. Savona, A. Quattropani, and P. Schwendimann. *Nonequilibrium dynamics of free quantum-well excitons in time-resolved photoluminescence*. *Phys. Rev. B*, **53**:15834, 1996.
- [79] C. Piermarocchi, F. Tassone, V. Savona, A. Quattropani, and P. Schwendimann. *Exciton formation rates in GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells*. *Phys. Rev. B*, **55**:1333, 1997.
- [80] D. Porras, C. Ciuti, J. J. Baumberg, and C. Tejedor. *Polariton dynamics and bose-einstein condensation in semiconductor microcavities*. *Phys. Rev. B*, **66**:085304, 2002.

- [81] D. Porras and C. Tejedor. *Linewidth of a polariton laser: Theoretical analysis of self-interaction effects*. Phys. Rev. B, **67**:161310(R), 2003.
- [82] E. M. Purcell. *Spontaneous emission probabilities at radio frequencies*. Phys. Rev., **69**:681, 1946.
- [83] A. Qarry, G. Ramon, R. Rapaport, E. Cohen, Arza Ron, A. Mann, E. Linder, and L. N. Pfeiffer. *Nonlinear emission due to electron-polariton scattering in a semiconductor microcavity*. Phys. Rev. B, **67**:115320, 2003.
- [84] M. G. Raizen, R. J. Thompson, R. J. Brecha, H. J. Kimble, and H. J. Carmichael. *Normal-mode splitting and linewidth averaging for two-state atoms in an optical cavity*. Phys. Rev. Lett., **63**:240, 1989.
- [85] G. Ramon, R. Rapaport, A. Qarry, E. Cohen, A. Mann, Arza Ron, and L. N. Pfeiffer. *Scattering of polaritons by a two-dimensional electron gas in a semiconductor microcavity*. Phys. Rev. B, **65**:085323, 2002.
- [86] R. Rapaport, R. Harel, E. Cohen, Arza Ron, E. Linder, and L. N. Pfeiffer. *Negatively charged quantum well polaritons in a GaAs/AlAs microcavity: An analog of atoms in a cavity*. Phys. Rev. Lett., **84**:1607, 2000.
- [87] Ronen Rapaport, E. Cohen, Arza Ron, Evgeny Linder, and L. N. Pfeiffer. *Negatively charged polaritons in a semiconductor microcavity*. Phys. Rev. B, **63**:235310, 2001.
- [88] J. P. Reithmaier, G. Şek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel. *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*. Nature, **432**:197, 2004.
- [89] P. Renucci, T. Amand, X. Marie, and E. Vanelle. *Spin quantum beats in semiconductor microcavities in the strong coupling regime*. Phys. Stat. Sol. (a), **190**:369, 2002.
- [90] M. Richard, J. Kasprzak, R. André, R. Romestain, Le Si Dang, G. Malpuech, and A. Kavokin. *Experimental evidence for nonequilibrium bose condensation of exciton polaritons*. Phys. Rev. B, **72**:201301, 2005.
- [91] Maxime Richard, Jacek Kasprzak, Robert Romestain, Régis André, and Le Si Dang. *Spontaneous coherent phase transition of polaritons in CdTe microcavities*. Phys. Rev. Lett., **94**:187401, 2005.
- [92] Maxime Richard, Robert Romestain, Régis André, and Le Si Dang. *Consequences of strong coupling between excitons and microcavity leaky modes*. Appl. Phys. Lett., **86**:071916, 2005.
- [93] D. Robart, X. Marie, B. Baylac, T. Amand, M. Brousseau, G. Bacquet, G. Debart, R. Planel, and J. M. Gerard. *Dynamical equilibrium between excitons and free carriers in quantum wells*. Solid State Commun., **95**:287, 1995.

- [94] Ph. Roussignol, C. Delalande, A. Vinattieri, L. Carraresi, and M. Colocci. *Dynamics of exciton relaxation in GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells*. Phys. Rev. B, **45**:6965, 1992.
- [95] Yuri G. Rubo, F. P. Laussy, G. Malpuech, A. Kavokin, and P. Bingenwald. *Dynamical theory of polariton amplifiers*. Phys. Rev. Lett., **91**:156403, 2003.
- [96] D. Sanvitto, A. Daraei, A. Tahraoui, M. Hopkinson, P. W. Fry, D. M. Whittaker, and M. S. Skolnick. *Observation of ultrahigh quality factor in a semiconductor microcavity*. Appl. Phys. Lett., **86**:191109, 2005.
- [97] D. Sanvitto, R. A. Hogg, A. J. Shields, D. M. Whittaker, M. Y. Simmons, D. A. Ritchie, and M. Pepper. *Rapid radiative decay of charged excitons*. Phys. Rev. B, **62**:R13294, 2000.
- [98] V. Savona, Z. Hradil, A. Quattropani, and P. Schwendimann. *Quantum theory of quantum-well polaritons in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B, **49**:8774, 1994.
- [99] V. Savona, A. Quattropani, L.C. Andreani, and Schwendimann P. *Quantum well excitons in semiconductor microcavities: Unified treatment of weak and strong coupling regimes*. Solid State Commun., **93**:733, 1995.
- [100] V. Savona, F. Tassone, C. Piermarocchi, A. Quattropani, and P. Schwendimann. *Theory of polariton photoluminescence in arbitrary semiconductor microcavity structures*. Phys. Rev. B, **53**:13051, 1996.
- [101] Vincenzo Savona. *Linear optical properties of semiconductor microcavities with embedded quantum wells*. In H. Benisty, J. M. Gérard, R. Houdré, J. Rarity, and C. Weisbuch (editors): *Confined Photon Systems, Fundamentals and Applications*, pages 173–242, Berlin, 1999. Springer.
- [102] P. G. Savvidis, J. J. Baumberg, R. M. Stevenson, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker, and J. S. Roberts. *Angle-resonant stimulated polariton amplifier*. Phys. Rev. Lett., **84**:1547, 2000.
- [103] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, and D. A. B. Miller. *Theory of transient excitonic optical nonlinearities in semiconductor quantum-well structures*. Phys. Rev. B, **32**:6601, 1985.
- [104] Peter E. Selbmann, Mario Gulia, Fausto Rossi, Elisa Molinari, and Paolo Lugli. *Coupled free-carrier and exciton relaxation in optically excited semiconductors*. Phys. Rev. B, **54**:4660, 1996.
- [105] P. Senellart and J. Bloch. *Nonlinear emission of microcavity polaritons in the low density regime*. Phys. Rev. Lett., **82**:1233, 1999.
- [106] P. Senellart, J. Bloch, B. Sermage, and J. Y. Marzin. *Microcavity polariton depopulation as evidence for stimulated scattering*. Phys. Rev. B, **62**:R16263, 2000.

- [107] Pascale Senellart. *Étude de l'émission non linéaire de microcavités à base de semi-conducteurs III-V en régime de couplage fort*. Thèse de doctorat, Université Paris 6, 2001. Publiée en tant que Vol. 28 des Annales de Physique.
- [108] B. Sermage, S. Long, I. Abram, J. Y. Marzin, J. Bloch, R. Planel, and V. Thierry-Mieg. *Time-resolved spontaneous emission of excitons in a microcavity: Behavior of the individual exciton-photon mixed states*. Phys. Rev. B, **53**:16516, 1996.
- [109] B. Sermage, G. Malpuech, A. V. Kavokin, and V. Thierry-Mieg. *Polariton acceleration in a microcavity wedge*. Phys. Rev. B, **64**:081303, 2001.
- [110] Bernard Sermage and Guy Fishman. *Excitons and polaritons in ZnSe*. Phys. Rev. B, **23**:5107, 1981.
- [111] J. Siviniant, D. Scalbert, A.V. Kavokin, D. Coquillat, and J. P. Lascaray. *Chemical equilibrium between excitons, electrons, and negatively charged excitons in semiconductor quantum wells*. Phys. Rev. B, **59**:1602, 1999.
- [112] D. W. Snoke, W. W. Rühle, K. Köhler, and K. Ploog. *Spin flip of excitons in GaAs quantum wells*. Phys. Rev. B, **55**:13789, 1997.
- [113] G. S. Solomon, M. Pelton, and Y. Yamamoto. *Single-mode spontaneous emission from a single quantum dot in a three-dimensional microcavity*. Phys. Rev. Lett., **86**:3903, 2001.
- [114] Bong Shik Song, Susumu Noda, Takashi Asano, and Yoshihiro Aka-hane. *Ultra-high-Q photonic double-heterostructure nanocavity*. Nature Mater., **4**:207, 2005.
- [115] R. P. Stanley, R. Houdré, U. Oesterle, M. Gailhanou, and M. Ilegems. *Ultrahigh finesse microcavity with distributed bragg reflectors*. Appl. Phys. Lett., **65**:1883, 1994.
- [116] R. M. Stevenson, V. N. Astratov, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker, M. Emam-Ismaïl, A. I. Tartakovskii, P. G. Savvidis, J. J. Baumberg, and J. S. Roberts. *Continuous wave observation of massive polariton redistribution by stimulated scattering in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. Lett., **85**:3680, 2000.
- [117] R. Strobel, R. Eccleston, J. Kuhl, and K. Köhler. *Measurement of the exciton-formation time and the electron- and hole-tunneling times in a double-quantum-well structure*. Phys. Rev. B, **43**:12564, 1991.
- [118] J. Szczytko, L. Kappei, J. Berney, F. Morier-Genoud, M. T. Portella-Oberli, and B. Deveaud. *Determination of the exciton formation in quantum wells from time-resolved interband luminescence*. Phys. Rev. Lett., **93**:137401, 2004.

- [119] Christian Tanguy. *Bosonic behavior of excitons and screening: A consistent calculation*. Phys. Lett. A, **292**:285, 2002.
- [120] A. I. Tartakovskii, M. Emam-Ismaïl, R. M. Stevenson, M. S. Skolnick, V. N. Astratov, D. M. Whittaker, J. J. Baumberg, and J. S. Roberts. *Relaxation bottleneck and its suppression in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B, **62**:R2283, 2000.
- [121] A. I. Tartakovskii, D. N. Krizhanovskii, G. Malpuech, M. Emam-Ismaïl, A. V. Chernenko, A. V. Kavokin, V. D. Kulakovskii, M. S. Skolnick, and J. S. Roberts. *Giant enhancement of polariton relaxation in semiconductor microcavities by polariton-free carrier interaction: Experimental evidence and theory*. Phys. Rev. B, **67**:165302, 2003.
- [122] A.I. Tartakovskii, V. D. Kulakovskii, D. N. Krizhanovskii, M. S. Skolnick, V. N. Astratov, A. Armitage, and J. S. Roberts. *Nonlinearities in emission from the lower polariton branch of semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B, **60**:R11293, 1999.
- [123] F. Tassone, C. Piermarocchi, V. Savona, A. Quattropani, and P. Schwendimann. *Photoluminescence decay times in strong-coupling semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B, **53**:R7642, 1996.
- [124] F. Tassone, C. Piermarocchi, V. Savone, A. Quattropani, and P. Schwendimann. *Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons*. Phys. Rev. B, **56**:7554, 1997.
- [125] F. Tassone and Y. Yamamoto. *Exciton-exciton scattering dynamics in a semiconductor microcavity and stimulated scattering into polaritons*. Phys. Rev. B, **59**:10830, 1999.
- [126] F. Tassone and Y. Yamamoto. *Lasing and squeezing of composite bosons in a semiconductor microcavity*. Phys. Rev. A, **62**:063809, 2000.
- [127] R. J. Thompson, G. Rempe, and H. J. Kimble. *Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity*. Phys. Rev. Lett., **68**:1132, 1992.
- [128] Y. Toyozawa. *On the dynamical behavior of an exciton*. Prog. Theor. Phys. Suppl., **12**:111–140, 1959.
- [129] Rainer G. Ulbrich and Claude Weisbuch. *Resonant Brillouin scattering of excitonic polaritons in gallium arsenide*. Phys. Rev. Lett., **38**:865, 1977.
- [130] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemaître, I. Sagnes, I. Robert-Philip, and I. Abram. *Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot*. Phys. Rev. B, **72**:041303, 2005.
- [131] Gregor Weihs, Hui Deng, Robin Huang, Mitsuro Sugita, Francesco Tassone, and Yoshihisa Yamamoto. *Exciton-polariton lasing in a microcavity*. Semiconductor Science and Technology, **18**:S386, 2003.

-
- [132] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa. *Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity*. Phys. Rev. Lett., **69**:3314, 1992.
- [133] P. Yeh. *Optical Waves in Layered Media*. John Wiley and Sons, New York, 1988.
- [134] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe. *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*. Nature, **432**:200, 2004.
- [135] Yifu Zhu, Daniel J. Gauthier, S. E. Morin, Qilin Wu, H. J. Carmichael, and T. W. Mossberg. *Vacuum Rabi splitting as a feature of linear-dispersion theory: Analysis and experimental observations*. Phys. Rev. Lett., **64**:2499, 1990.