



HAL
open science

Interaction lumière-matière dans les microcavités massives à base de ZnO : du couplage fort à température ambiante vers le laser à polariton.

Stéphane Faure

► **To cite this version:**

Stéphane Faure. Interaction lumière-matière dans les microcavités massives à base de ZnO : du couplage fort à température ambiante vers le laser à polariton.. Matière Condensée [cond-mat]. Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, 2009. Français. NNT: . tel-00583517

HAL Id: tel-00583517

<https://theses.hal.science/tel-00583517>

Submitted on 5 Apr 2011

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.



UNIVERSITE MONTPELLIER 2
SCIENCES ET TECHNIQUES DU LANGUEDOC

THÈSE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Montpellier 2

Discipline : **Physique**

Ecole Doctorale : **Information, Systèmes et Structures (I2S)**

présentée et soutenue publiquement par

Stéphane FAURE

le 9 Novembre 2009

**Interaction lumière-matière
dans les microcavités massives à base de ZnO :
*du couplage fort à température ambiante
vers le laser à polariton.***

Jury :

M	Brahim	GUIZAL	Président
Mme	Emmanuelle	DELEPORTE	Rapporteur
M	Nicolas	GRANDJEAN	Rapporteur
M	Jesús	ZÚÑIGA-PÉREZ	Examinateur
M	Pierre	GILLIOT	Examinateur
M	Bernard	GIL	Directeur de thèse
M	Thierry	GUILLET	Co-directeur de thèse
M	Alexey	KAVOKIN	Invité

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du Groupe d'Etude des Semiconducteurs de L'Université Montpellier 2 dans l'équipe Nanostructures Quantiques et Propriétés Optiques.

Je tiens tout d'abord à remercier Bernard Gil pour m'avoir accueilli et permis de travailler au GES durant ces trois années. Il a gardé un oeil attentif à ma formation et a su user de son autorité à bon escient pour me rappeler à mes priorités dans mon travail. Je lui dois également mes nombreux séjours à l'étranger qui m'ont énormément apporté sur les plans scientifique, humain, et personnel, me donnant une plus grande ouverture d'esprit et de concrétiser un rêve d'enfance.

Mes remerciements vont également à tous les membres du jury, Emmanuelle Deleporte, Nicolas Grandjean, Pierre Gilliot et Jesús Zúñiga-Pérez, pour avoir examiné et évalué avec attention mon travail. Merci à Brahim Guizal d'avoir accepté de présider mon jury de thèse.

Ma gratitude la plus profonde va à mon codirecteur de thèse, Thierry Guillet, pour m'avoir formé à la recherche durant ces trois années. Il m'apparaît ici nécessaire de louer ses grandes qualités tant professionnelle que humaine, en particulier sa patience, sa gentillesse et sa pédagogie. J'ignore à quel point ma formation s'est avérée difficile en ce qui le concerne, mais je m'enorgueillis d'avoir été son deuxième étudiant en thèse.

Mes années au GES n'auraient pas été les mêmes sans Thierry Taliercio et Pierre Lefebvre qui faisaient partie de l'équipe Nanostructures Quantiques et Propriétés Optiques lorsque je suis arrivé. Malgré les difficultés qui agitaient alors l'équipe, ils ont toujours fait en sorte de conserver à mon égard un climat de vie accueillant et convivial. Je remercie en particulier Thierry pour ses précieux conseils de programmation. Nos conversations musicales étaient toujours passionnantes et c'est avec joie que je constate que la culture hard rock possède son représentant dans tous les laboratoires. Je remercie Pierre pour les cours particuliers, de parfois plusieurs heures, qu'il m'a dispensés. J'ai énormément appris en science mais également sur les missions du chercheur et la communication. J'ai pu revisiter grâce à toi l'image que je me fais du mentor. Je te souhaite de mener une douce et agréable nouvelle vie à Madrid.

Je me dois également de remercier Thierry Bretagnon avec qui j'ai partagé de longues discussions passionnantes sur l'histoire, l'économie, la religion et bien sûr la science. Ses lumières sur les puits quantiques et les composants m'ont été très utiles. J'ai également développé à ses côtés mes talents administratifs, non souhaités au départ mais fort utiles dans le monde actuel.

Mes résultats expérimentaux n'existeraient probablement pas sans l'aide précieuse de Pierre Valvin et Sébastien Rousset, les gardiens des salles de manips et de l'Annexe. Je leur suis reconnaissant pour la formation personnelle que j'ai reçue sur la sécurité laser et la manipulation de faisceau laser dangereux. Je pense que cette méthode de travail va être intéressante à comparer avec celle existante dans mon futur laboratoire japonais. Un merci particulier à Pierre pour ses cours d'optiques et pour avoir ravivé ma passion pour l'astronomie et un merci à Sébastien pour son aide sur le dispositif de micro-photoluminescence.

Toute ma gratitude va également à Christian l'Hénoret de l'atelier mécanique pour avoir passé de longues heures sur le goniomètre. C'était toujours un plaisir de venir te voir.

Je remercie Jean-Roch Huntzinger, auprès de qui j'ai beaucoup appris, notamment lors des projets tutorés en salle de TPs. Tes notes avisées sur la réflectivité et la transmission de multicouches diélectriques m'ont été très utiles, même si j'ai manqué de temps pour finir ce travail rigoureusement. Je te remercie pour nos discussions philosophiques, parfois tardives, qui se sont toujours révélées très instructives et qui me tiennent à coeur. Merci pour le temps que tu m'as consacré.

L'ambiance de travail doit également beaucoup à la présence des autres thésards, dont Teddy, compagnon de galère en micro-photoluminescence, Georgios (j'attends toujours ton cd et je l'aurai), et Sun, en post-doc, avec qui j'ai passé d'excellentes soirées.

Mes remerciements sincères vont à Christelle Brimont pour m'avoir permis de finir ma thèse dans les temps en sacrifiant énormément de son temps. Bien que présente que depuis un an, elle a apporté un souffle nouveau à l'équipe. Je garderai longtemps en mémoire notre voyage à Cambridge et surtout notre course contre la montre (joyeuse) pour prendre l'avion à Londres. Ta bonne humeur est salutaire.

Mes pensées vont également à mon successeur, Luc "L'Elu" Beaur, avec qui je partage le bureau. Tes connaissances d'expert, reconnues, en matière de café ont bouleversé ma vision de ce que je croyais être une simple boisson. Tu as désormais à ta charge le lourd héritage du bureau des thésards, transmis de génération en génération, en particulier, la serrure qui ne fonctionne pas et la fenêtre qui coince. Bonne chance pour la suite de ta thèse.

De manière générale, je tiens à remercier l'ensemble des membres du laboratoire qui contribue à maintenir une ambiance conviviale de travail : Boris, pour ses conseils avisés sur le Japon et pour avoir contribué à répandre la mémoire cathare ; Hugues,

dont la culture générale est impressionnante, est une des rares personnes avec qui j'ai pu discuter de l'Antiquité et du pays cathare ; L'équipe administrative du GES, si peu souvent citée, dont Christelle Rodrigo-Eve et Patrick Ejarque. A ce propos Patrick, je pense que ton initiative de quizz est l'une des meilleures jamais prises dans un bureau administratif ; Félicitations.

Mes sentiments les plus nobles vont à ma famille qui m'a soutenue depuis que je me suis engagé sur cette voie qui leur est si peu familière.

Finalement, je salue mes amis qui m'ont permis d'avoir une vie en dehors du laboratoire, en particulier mes anciens amis Damien alias Ambrosius Sextus Scipio, Guillaume alias Aurelius Laberius et Florant ('Sarg') alias Kalderash. J'espère que vous serez fiers de voir vos noms attachés à ce travail.

Table des matières

Remerciements	1
Table des matières	4
Introduction	9
1 La physique des polaritons en microcavités	13
1.1 Excitation élémentaire dans un semiconducteur : l'exciton	13
1.1.1 Modèle bande à bande	13
1.1.2 L'exciton de Wannier-Mott	16
1.2 Confinement du photon dans les microcavités planaires	22
1.2.1 Cavité Fabry-Perot	22
1.2.2 Miroir métallique	24
1.2.3 Miroir de Bragg	24
1.2.4 Microcavité à miroir de Bragg	26
1.3 Couplage fort exciton-photon : les polaritons de cavité	29
1.3.1 Des matrices de transfert au modèle d'oscillateurs couplés	30
1.3.2 Les états propres polaritoniques	31
1.3.3 Les limites du couplage fort	32
2 De la physique des bosons au laser à polaritons	35
2.1 Statistique bosonique et condensation de Bose-Einstein	36
2.1.1 Le principe d'indiscernabilité	36
2.1.2 Interférences quantiques et stimulation bosonique	37
2.1.3 La condensation de Bose-Einstein	37
2.1.4 Dimensionnalité réduite et transition superfluide	39
2.2 Propriétés collectives des excitons et des polaritons excitoniques	40
2.2.1 Propriétés des bosons dans les solides	41
2.2.2 Spécificités des bosons dans les solides	43
2.2.3 Limite de validité de la nature bosonique des excitons	44
2.2.4 Transition de phase et décohérence	45
2.3 Expériences sur les excitons	46
2.4 Expériences sur les polaritons	47
2.4.1 Processus paramétriques optiques	47

2.4.2	Observation d'une quasi-condensation des polaritons	48
2.5	Le laser à polaritons	51
2.5.1	Définition	51
2.5.2	Régime de fonctionnement	52
2.5.3	Vers le laser à polaritons à température ambiante	53
2.5.3.1	Nécessité des matériaux à grande bande interdite	53
2.5.3.2	Diagramme de phase des polaritons	55
2.5.3.3	Etat de l'art expérimental	57
2.5.3.4	Prévisions théoriques pour les microcavités ZnO	57
2.6	Conclusion	57
3	Optique linéaire dans les microcavités ZnO	61
3.1	Spécificités des microcavités ZnO	62
3.1.1	Comparaison entre microcavités à base de GaAs, GaN et ZnO	63
3.1.2	Composition des états propres	67
3.1.3	Estimation du couplage exciton-photon	72
3.1.4	Rôle de l'élargissement inhomogène	73
3.2	Conception et fabrication des microcavités ZnO	73
3.2.1	Les différentes voies envisagées dans le projet ZOOM	75
3.2.2	Revue des travaux et publications récentes	77
3.2.2.1	La croissance par PLD	77
3.2.2.2	La croissance par MBE	78
3.2.2.3	Comparaison entre MBE et PLD	79
3.2.3	Les miroirs de nos cavités	80
3.2.4	La couche active de ZnO de nos cavités	83
3.3	Microcavité à miroir métallique (Z507)	87
3.3.1	Premiers spectres de réflectivité et de photoluminescence	87
3.3.2	Mesure d'anti-croisement en réflectivité en fonction de l'épaisseur	88
3.3.3	Photoluminescence en fonction de l'épaisseur	90
3.3.4	Réflectivité en angle - Influence de l'absorption excitonique	92
3.3.5	Conclusion sur la microcavité Z507	92
3.4	Microcavité "semi-hybride", à miroir supérieur diélectrique	94
3.4.1	Réflectivité et photoluminescence en fonction du désaccord	94
3.4.1.1	Identification des modes de polaritons	97
3.4.1.2	Désaccords accessibles	97
3.4.1.3	Photoluminescence	98
3.4.2	Couplage fort avec le mode de cavité et le mode de Bragg	98
3.4.3	Comparaison au modèle d'oscillateurs couplés	99
3.4.4	Couplage fort avec le mode de Bragg seul	102
3.4.5	Conclusion sur la microcavité Z536	104
3.5	Comparaison avec d'autres résultats sur les microcavités planaires ZnO	104
3.6	Comparaison avec d'autres systèmes existants à base de ZnO	108
3.7	Conclusion	108

4	Influence du désordre sur la réponse optique des microcavités	111
4.1	Rôle du désordre	111
4.1.1	Influence sur les propriétés optiques de la microcavité	111
4.1.2	Influence du désordre sur la dynamique des polaritons	112
4.2	Caractérisation du désordre	113
4.2.1	Cartographie 1D de la microcavité "métallique" Z507	113
4.2.2	Cartographie 2D de la microcavité "semi-hybride" Z536	114
4.3	Conclusion	122
5	Relaxation des polaritons sous forte excitation.	125
5.1	Relaxation et émission des modes de polariton sous forte excitation.	126
5.1.1	Relaxation à faible puissance d'excitation	127
5.1.2	Relaxation sous forte excitation	127
5.1.3	Mécanismes de relaxation	127
5.1.4	Calcul de la densité d'excitons	131
5.1.5	L'effet "bottleneck"	131
5.1.6	Evolution en puissance des spectres	134
5.1.7	Comparaison avec un système connu : GaN	135
5.2	Etude détaillée en fonction du désaccord et de la température	135
5.2.1	Relaxation des polaritons en fonction du désaccord	136
5.2.2	Influence de la puissance sur l'énergie des modes	140
5.2.3	Equilibre thermique	142
5.2.4	Conclusion intermédiaire	144
5.3	Effets non linéaires sous excitation résonante	144
5.4	Excitation en micro-photoluminescence	145
5.5	Comparaison avec les prévisions théoriques	146
5.6	Conclusion	148
	Conclusion	151
A	Les dispositifs expérimentaux	155
A.1	Micro-photoluminescence et micro-réflexivité	155
A.2	Réflexivité et photoluminescence résolues en angle	159
B	Mesure du seuil de détérioration	163
	Bibliographie	166
	Table des figures	181

Introduction

Les développements récents des méthodes de croissance d'hétérostructures semi-conductrices ont permis de manipuler la matière à l'échelle de l'atome, offrant ainsi la possibilité de l'organiser et de la structurer afin de lui conférer des propriétés physiques spécifiques. Il est désormais possible de créer des états propres artificiels de la matière qui n'existent pas dans la nature. L'idée maîtresse sous-jacente est de confiner le mouvement des électrons suivant une, deux ou trois directions de l'espace, créant respectivement un puits, un fil ou une boîte quantique. De la même façon, il est possible de confiner les photons grâce à des résonateurs optiques de taille micro- voire nano-métrique dont les plus répandus sont les micro-cavités planaires, les micro-piliers, les micro-disques, les micro-sphères (ou toroïdes) et les cristaux photoniques. Le confinement des électrons et des photons permet non seulement d'augmenter la force de l'interaction rayonnement-matière, mais aussi d'en modifier les caractéristiques. En effet, à l'échelle macroscopique, la matière résulte de la superposition d'une multitude d'états discrets qui, par un effet de moyenne statistique, permet d'appréhender seulement les aspects classiques de la physique. Grâce au confinement, il est possible d'isoler certains états et de les coupler entre eux, ce qui permet alors de mettre en évidence leur nature quantique.

Le polariton excitonique est l'un de ces états, qui résulte du couplage fort entre la matière et la lumière. Le couplage fort dans une microcavité à puits quantiques à base de semi-conducteurs *GaAs/AlAs* fut observé pour la première fois en 1992 par Claude Weisbuch *et al.* [Wei92]. Une microcavité peut être considérée comme un système à deux niveaux : d'une part, les porteurs (électrons et trous), liés par l'interaction de Coulomb, créent un état d'exciton ; d'autre part, le confinement du champ électromagnétique dû à la microcavité fait apparaître un unique mode de photon, appelé mode de cavité. L'invariance par translation du système implique des règles de sélection permettant de l'assimiler à un système modèle à deux niveaux, couplés entre eux. Le régime de couplage fort apparaît lorsque l'interaction entre les deux états d'exciton et de photon est plus grande que leurs élargissements homogènes respectifs, i.e., lorsque le temps caractéristique de cette interaction est plus court que les temps de cohérence des états. Les nouveaux états propres du système, les polaritons de cavité, sont une superposition linéaire de l'état d'exciton et de l'état de photon.

Quelques années après la première démonstration du couplage fort en microcavité, Imamoglu *et al.* [Ima96] proposèrent l'idée de profiter du caractère bosonique des po-

laritons pour réaliser une relaxation stimulée par l'occupation de l'état final. En effet, les excitons, et donc les polaritons sont des bosons composites. 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, huit ordres de grandeur plus petite que celle des atomes et quatre à cinq ordres de grandeur inférieure à celle des excitons. De plus, la dispersion des polaritons est fortement modifiée par rapport à celle de l'exciton nu, donnant lieu à une densité d'états beaucoup plus faible pour le polariton en centre de zone de Brillouin. Il est ainsi possible d'obtenir un nombre d'occupation de ces états supérieur à l'unité et d'observer des effets bosoniques collectifs, comme la stimulation de la relaxation ou une condensation de Bose-Einstein. Ces effets physiques spectaculaires furent observés auparavant dans le cas des atomes froids [And95a, Bra95, Ens96, Cla09]. Le grand avantage des polaritons est que, associée à leur nature bosonique, leur très faible masse effective permet de réaliser une condensation de polaritons à des températures beaucoup plus élevées de l'ordre de la dizaine de Kelvin au lieu de $0.2 \mu K$ pour l'atome de rubidium. Enfin, la très courte durée de vie des polaritons (de l'ordre de la ps) en fait de bons candidats pour la réalisation de dispositifs opto-électroniques ultra-rapides.

Depuis lors, d'intenses recherches furent menées afin de déterminer le temps de vie des polaritons, leur dispersion et les différents processus permettant leur relaxation [Hou94, Ima96, Pau96, Tas96, Sta96, Blo97, Tas97, Cao97, Kir97, Mü100]. En 1998, Dang *et al.* mesurent un comportement non-linéaire de l'émission dans une microcavité II-VI, tout en conservant le régime de couplage fort même sous forte excitation [Dan98]. Les expériences en excitation résonante avec le polariton de basse énergie ont permis une meilleure compréhension du phénomène. Savvidis *et al.* montrent que lorsque ce polariton est excité à un angle d'incidence particulier, "l'angle magique", la relaxation des polaritons créés à cet angle vers l'état de plus basse énergie est stimulée par l'occupation de l'état final [Sav00]. L'amplification paramétrique et l'oscillation paramétrique des polaritons ont été observées en 2000 [Sav00, Ste00], démontrant que les polaritons se comportent effectivement comme des bosons à basse densité. De nombreuses expériences de pompe-sonde [Sav00, Hua00, Sab01] ou d'émission [Tar00, Sav00, Ste00, Bau00, Das00, Sen00, Mes01, Kri06] ont depuis mis en évidence la stimulation de la diffusion polariton-polariton par occupation de l'état final.

L'enjeu fut ensuite de démontrer une transition de phase des polaritons. Sous excitation non résonante, on s'attend à observer soit la condensation de Bose-Einstein [Ima96, Mal07, Ast09], dans le cas où l'équilibre thermodynamique du système est atteint, soit la stimulation de la relaxation des polaritons vers l'état final donnant lieu à une émission laser à très bas seuil [Bau00, Kav03a], dénommée effet laser à polaritons en raison de certaines analogies avec l'effet laser conventionnel. Des mesures dans les microcavités III-V sous excitation quasi-résonante de la branche basse de polaritons aux grands angles par Deng *et al.* [Den02] ont montré les différences qui pouvaient exister entre l'émission d'un laser à polaritons et celle d'un laser à photons. La condensation de Bose-Einstein de pola-

ritons a, quant à elle, été démontrée par Kasprzak *et al.* [Kas06] en 2006 dans une microcavité CdTe jusqu'à une température de 40 K. Une telle transition de phase fait toutefois encore aujourd'hui l'objet de débats car les polaritons de microcavité sont fondamentalement hors d'équilibre thermodynamique. Ainsi de nombreux phénomènes s'apparentant à des transitions de phase superfluide [Ono00, AS01, Lai07, Lag08, Amo09a], ou de condensation de Bose-Einstein [Eis04, Sno08, Bau08, Baa08, Kas08] sont rapportés en fonction des différents échantillons étudiés et des conditions d'excitation du système.

Malgré les récents progrès qui ont permis de mettre en évidence une émission depuis les états de polaritons jusqu'à 235 K dans une microcavité GaAs [Tsi09], tous les phénomènes précédents sont limités aux basses températures. D'autres études sont menées en parallèle sur des matériaux semi-conducteurs à grande bande interdite, tels que GaN et ZnO, afin de pouvoir réaliser des dispositifs fonctionnant à partir de la physique des polaritons à température ambiante. En effet, les excitons dans ces matériaux possèdent d'une part une grande énergie de liaison qui les rend plus robustes face à l'énergie thermique qui tend à les ioniser et d'autre part une grande force d'oscillateur. Cette dernière propriété permet d'augmenter l'intensité du couplage fort de telle sorte qu'il est observable à température ambiante. Ces propriétés sont exacerbées dans le ZnO, avec une énergie de liaison des excitons de 60 meV, supérieure à celle des excitons dans GaN, et des dédoublements de Rabi prédits de l'ordre de 80 meV, les plus importants de toutes les microcavités inorganiques. Ainsi le ZnO est rapidement apparu comme un très bon candidat [Gil01, Zam02]. On peut raisonnablement espérer réaliser dans ces systèmes tous les phénomènes de condensation de polaritons et de laser à polaritons décrits plus haut.

Cette démarche d'aller vers la température ambiante est récente et commence avec le GaN. Le couplage fort dans les microcavités massives à base de GaN a été démontré à 300 K en 2003 [AV03] et le laser à polariton en 2007 [Chr07]. Les premières microcavités à base de ZnO ont été développées encore plus récemment, autour de 2007, coïncidant avec le début de cette thèse. Nos travaux sont ainsi réalisés dans le cadre d'une collaboration initiée en 2006 avec deux laboratoires français, le Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications (CRHEA) et le Laboratoire des Sciences et Matériaux pour l'Électronique et d'Automatique (LASMEA). Fort de l'expérience acquise dans les microcavités GaAs, CdTe et GaN, les progrès accomplis dans les microcavités massives ZnO sont très rapides. Les premières démonstrations du couplage fort ont ainsi été publiées durant le temps de cette thèse [Shi08, Nak08, SG08]. Nous avons mis en évidence les spécificités du couplage fort dans ZnO [Fau08] et les microcavités que nous avons étudiées se sont avérées à l'état de l'art dans le domaine [Méd09b].

L'objectif de cette thèse est d'évaluer le potentiel du ZnO pour les applications optoélectroniques dans l'ultra-violet et le visible ainsi que la réalisation de dispositifs fonctionnant à température ambiante. La première étape est en particulier de démontrer le régime de couplage fort à 300 K, puis par la suite, d'étudier les mécanismes permettant la relaxation des polaritons vers l'état de plus basse énergie et l'obtention

d'un condensat.

Le premier chapitre est une introduction aux polaritons de cavité. Les propriétés cristallines du ZnO et de ses excitons y sont développées. Sont ensuite exposées les notions essentielles sur les microcavités et le confinement des modes du champ électromagnétique. Enfin les caractéristiques du régime de couplage fort et ses limitations sont données, ainsi que les spécificités des polaritons de cavité.

Dans le second chapitre, nous présentons la physique des bosons depuis la théorie de la condensation de Bose-Einstein jusqu'à la physique des polaritons 2D. Ces notions sont essentielles pour comprendre les enjeux, les objectifs et les expériences actuelles menées sur les polaritons. Un historique détaille les progrès faits depuis la découverte du couplage fort. Le fonctionnement du laser à polaritons et son diagramme de phase sont ensuite décrits dans le cas d'une microcavité ZnO.

Le troisième chapitre se divise en trois sections. La première propose une comparaison théorique du couplage fort dans des microcavités GaAs, GaN et ZnO, et met en évidence les spécificités d'un tel régime dans ZnO, avec notamment le rôle primordial du continuum d'absorption. La seconde section présente les échantillons étudiés et les méthodes d'élaboration utilisées. Nous expliquons les choix technologiques qui ont été faits et les comparons avec les autres microcavités à base de ZnO existant dans le monde. La dernière section présente la caractérisation optique des échantillons grâce à des expériences de réflectivité et de photoluminescence et la mise en évidence du couplage fort à température ambiante. Nous montrons de plus le rôle des modes de Bragg dans le couplage fort.

Le quatrième chapitre est consacré à une étude sur la nature du désordre à partir de mesures de micro-photoluminescence. Ce désordre, engendré par les fissures qui apparaissent lors de la croissance, peut jouer un rôle important sur les propriétés optiques de la microcavité et sur la condensation des polaritons. Nous déterminons ici la nature du désordre et son influence sur les élargissements des modes polaritoniques dans nos échantillons.

Le cinquième chapitre présente les travaux que nous avons réalisés sous forte excitation. Nous avons étudié la relaxation des polaritons dans les différentes branches polaritoniques, et sa forte dépendance avec la température et la densité d'excitons créés. Nous avons également recherché un seuil d'émission laser et comparé nos résultats aux prévisions théoriques.

Chapitre 1

La physique des polaritons en microcavités

Ce chapitre est une introduction aux polaritons de microcavité. Ces particules résultent de la réalisation des conditions du couplage fort entre excitons et photons. Nous présenterons quelles sont ces conditions, comment elles sont obtenues et les paramètres clés mis en jeu.

La première partie de ce chapitre reprend les fondements des propriétés de l'exciton dans les semiconducteurs, et en particulier les spécificités de l'oxyde de zinc. La partie suivante décrit les propriétés des microcavités et leur rôle essentiel dans le confinement du photon. Enfin, la dernière partie est consacrée au couplage fort exciton-photon et aux propriétés des polaritons.

1.1 Excitation élémentaire dans un semiconducteur : l'exciton

1.1.1 Modèle bande à bande

Tout semiconducteur pur est décrit par un cristal parfait où les noyaux atomiques sont arrangés en un réseau périodique. Le Hamiltonien à N corps prenant en compte l'interaction mutuelle des électrons avec les ions et les autres électrons du cristal reste très compliqué. Afin de se ramener à un problème que l'on peut résoudre, trois approximations sont faites. En premier lieu, dans l'approximation de Born-Oppenheimer, il s'agit de décorrélérer le mouvement des électrons de celui des noyaux afin de séparer le problème en deux problèmes distincts mais interdépendants. Ensuite on effectue l'approximation à un électron qui consiste à décrire l'état du cristal à N électrons par N états à un électron. Les électrons étant des fermions, l'état fondamental du système est décrit par le déterminant de Slater des fonctions d'onde à un électron. Enfin l'approximation de bande consiste à résoudre l'équation de Schrödinger pour un potentiel donné du cristal.

Le calcul des états électroniques reste toutefois laborieux et on utilise souvent des ap-

proches semi-empiriques afin d'y parvenir. Parmi toutes les méthodes existantes, le modèle $\vec{k}\cdot\vec{p}$, introduit par Bardeen[Bar38] (1937) et Seitz [Sei40] (1940), permet de calculer de manière efficace les fonctions d'onde du cristal et les masses effectives près d'un point de haute symétrie dans l'espace des \vec{k} , généralement en $\vec{k} = \vec{0}$. Cette méthode fut améliorée au cours du temps afin d'y inclure la dégénérescence de bandes [Sho50] et le couplage spin-orbite [Kan56].

Etats à 1 électron Un électron du cristal subit un potentiel effectif périodique $V(\vec{r})$ des ions du réseau. Dans ces conditions les fonctions d'onde électroniques Φ_n correspondant à un vecteur d'onde \vec{k} sont données par le théorème de Bloch :

$$\Phi_n(\vec{k}, \vec{r}) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_n(\vec{k}, \vec{r}), \quad (1.1)$$

où \vec{k} appartient au réseau réciproque et $u_n(\vec{r})$ est une fonction périodique ayant la périodicité \vec{a} du réseau, i.e. $u_n(\vec{r}) = u_n(\vec{r} + \vec{a})$. L'indice n spécifie un état propre donné, i.e. une bande donnée.

On obtient ainsi la dispersion des énergies électroniques $E_n(\vec{k})$, lorsque \vec{k} varie sur l'ensemble de la zone de Brillouin, au sein de chaque bande du cristal. Pour certaines valeurs du vecteur d'onde, aucune solution stationnaire n'existe pour la propagation de l'électron dans le cristal. Cela correspond à l'ouverture entre deux bandes d'énergie d'une bande interdite ou *gap* en anglais, de largeur E_g .

Dans un modèle à deux bandes, pour un matériau semi-conducteur, les électrons étant des fermions, les états électroniques de la bande de valence (BV), d'énergie inférieure à l'énergie de Fermi, sont tous occupés à température nulle, ceux de la bande de conduction (BC), d'énergie supérieure, étant tous vides.

Structure de bandes du ZnO L'oxyde de zinc (ZnO) est un semiconducteur de type II-VI qui croît suivant la structure cristalline hexagonale (type wurtzite) dont le groupe de symétrie est C_{6v} . Il appartient aux groupes des semiconducteurs dits à gap direct, c'est-à-dire que le maximum de la bande de valence la plus haute et le minimum de la bande de conduction la plus basse sont confondus en un même point du réseau réciproque, en l'occurrence au point Γ . Le point Γ correspond au vecteur d'onde $\vec{k}_0 = \vec{0}$ et est le point de plus haute symétrie de la première zone de Brillouin. Les paramètres tels que les masses effectives et les relations de dispersion sont calculés au voisinage de ce point. La structure de bandes de ZnO est présentée sur la Figure 1.1.

Masse effective On choisit l'origine des énergies au sommet de la bande de valence au point Γ . L'approximation de la masse effective [Kit98] consiste à décrire l'énergie $E_c(\vec{k}_e)$ d'un électron de vecteur d'onde \vec{k}_e dans la bande de conduction par :

$$E_c(\vec{k}_e) = E_g + \frac{\hbar^2 k_e^2}{2m_e^*}, \quad (1.2)$$

et sa fonction d'onde par :

$$\Phi_c(\vec{k}_{e,r}) = e^{i\vec{k}_e\cdot\vec{r}} u_c(\vec{k} = \vec{0}, \vec{r}). \quad (1.3)$$

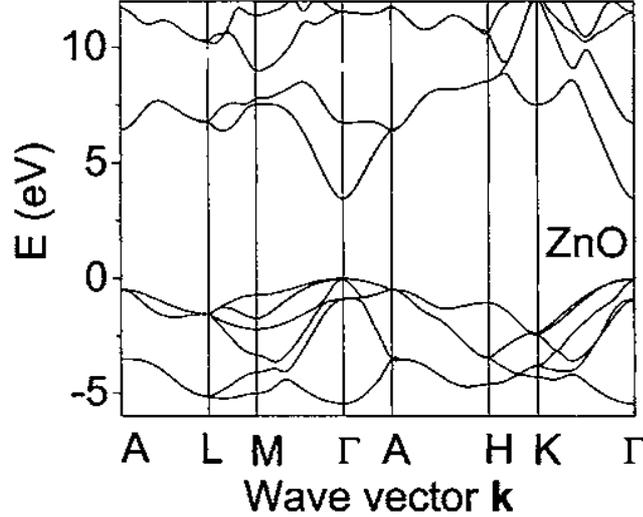


FIGURE 1.1 – Structure des bandes électroniques de ZnO calculée par la méthode empirique des pseudopotentiels (EPM) [Fan06].

De même, l'énergie $E_v(\vec{k}_h)$ d'un trou de vecteur d'onde \vec{k}_h dans un cristal ne comportant qu'une seule bande de valence vaut, en première approximation :

$$E_v(\vec{k}_h) = 0 - \frac{\hbar^2 k_h^2}{2m_h^*}. \quad (1.4)$$

Dans ces expressions, les termes m_e^* et m_h^* désignent respectivement les masses effectives de l'électron et du trou.

La masse effective est un paramètre important qui caractérise la courbure de chacune des bandes. Le cristal étant en général anisotrope, l'énergie des états dépend de la direction du vecteur \vec{k} et par conséquent les masses effectives sont des grandeurs tensorielles

$$m_{ij}^* = \hbar^2 \left[\frac{\partial^2 E}{\partial k_i \partial k_j} \right]^{-1}, \quad (1.5)$$

où i, j varient selon les directions x, y, z du référentiel du cristal.

Symétrie des bandes Dans ZnO, les bandes de valence (BV) supérieures sont formées par l'hybridation des orbitales $2p$ de l'oxygène, de moment orbital $l = 1$, avec les orbitales $3d$ du zinc. Les bandes de conduction sont principalement de type s , de moment orbital $l = 0$, et sont formées à partir des orbitales $4s$ du zinc.

Les levées de dégénérescence des bandes de valence sont présentées sur la figure 1.2. Du fait de l'anisotropie, un champ cristallin apparaît dans le cristal. Il a pour effet de diviser la bande de valence en deux sous-bandes : l'une, de symétrie essentiellement p_z

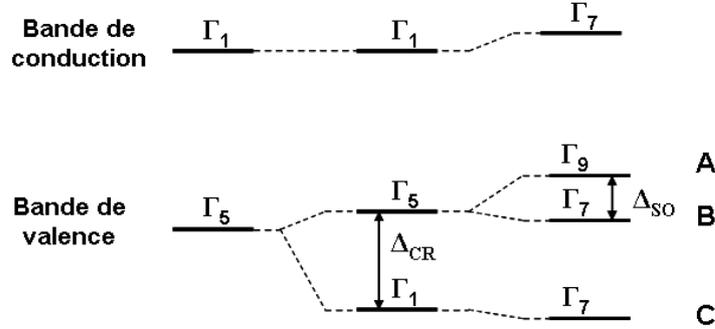


FIGURE 1.2 – Structure et symétrie de bandes du ZnO au point Γ . Les séparations en énergie dues au champ cristallin (Δ_{CR}) et au couplage spin-orbite (Δ_{SO}) suivant les directions parallèles et perpendiculaires à l'axe c valent respectivement $\Delta_{cr} = 30.5 \text{ meV}$, $\Delta_2 = 4.2 \text{ meV}$ et $\Delta_3 = 11.5 \text{ meV}$ dans ZnO [Gil01].

(état singulet Γ_1 de moment angulaire total $J = 1/2$), et l'autre de symétrie (p_x, p_y) (état doublet Γ_5 de moment angulaire total $J = 3/2$). Elles sont séparées d'une énergie dite de champ cristallin Δ_{cr} . La bande $J = 1/2$ a une énergie plus basse que la bande $J = 3/2$. On la désigne par le nom de bande 'split-off'. Le couplage spin-orbite lève quant à lui la dégénérescence entre les états de moment angulaire total $J = 3/2$, et fait apparaître deux sous-bandes de moments $J_z = \pm 3/2$ et $J_z = \pm 1/2$ qui ont leur extremum à $\vec{k}_0 = \vec{0}$ mais n'ont pas la même dispersion $E(\vec{k})$. Leurs courbures de bandes (masses effectives) étant différentes, la bande constituée d'états $J_z = \pm 3/2$ est appelée bande de trous lourds et la bande constituée d'états $J_z = \pm 1/2$ la bande de trous légers. La proximité en énergie des orbitales $3d$ peut modifier le terme de couplage spin-orbite. L'estimation de celui-ci dépend donc de la méthode utilisée pour le calcul des bandes. L'ordre en énergie des bandes de valence a longtemps été sujet à controverses [Kuh81, Rey99, Gil01, Lam02] mais nous ne nous y attarderons pas ici.

Les différentes transitions optiques bande à bande permises par la symétrie des états de valence et de conduction sont schématisées sur la figure 1.3. Les transitions dépendent de la polarisation de la lumière, ce qui traduit la conservation du moment total.

1.1.2 L'exciton de Wannier-Mott

La description bande à bande est une approximation qui rend mal compte de la réalité expérimentale, et en particulier des spectres d'absorption des semiconducteurs à gap direct. En effet, l'interaction de Coulomb entre électrons et trous joue un rôle majeur. La figure 1.4 présente le spectre d'absorption à basse température de ZnO, qui présente deux types de transitions électroniques : pour des énergies plus grandes que le gap E_g , le semiconducteur absorbe sur un continuum d'énergie. Pour des énergies inférieures à E_g , des pics fins d'absorption apparaissent dans le spectre à des énergies discrètes, ce que le modèle bande à bande ne peut expliquer. Ces pics correspondent en fait à des états liés de paires électron-trou à l'intérieur de la bande interdite. Ce type

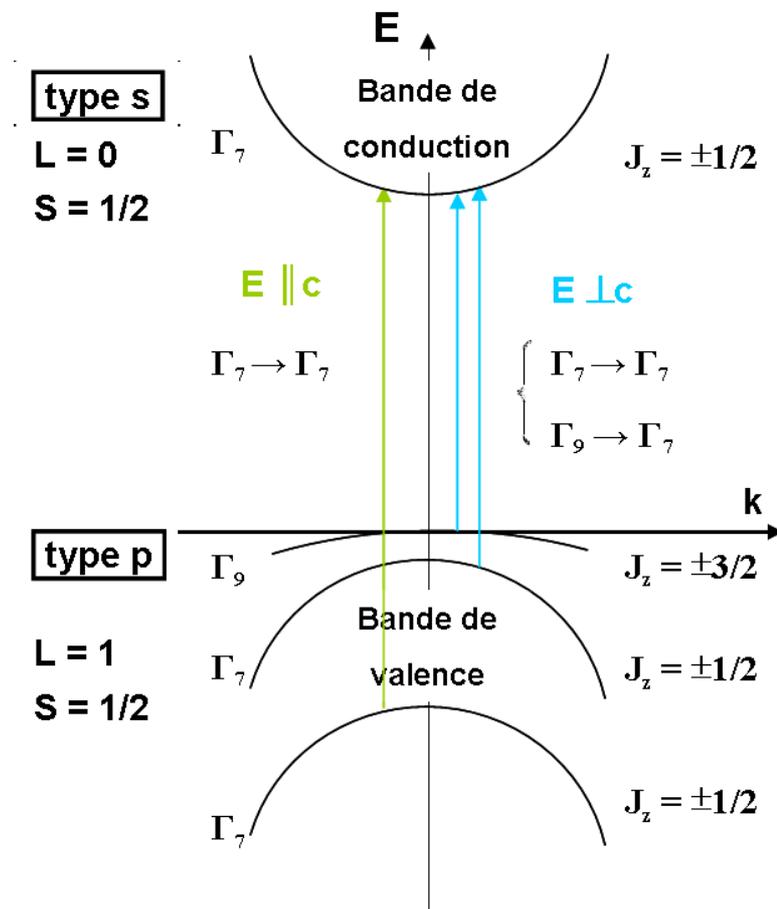


FIGURE 1.3 – Schéma des transitions optiques bande à bande dans ZnO en centre de zone de Brillouin.

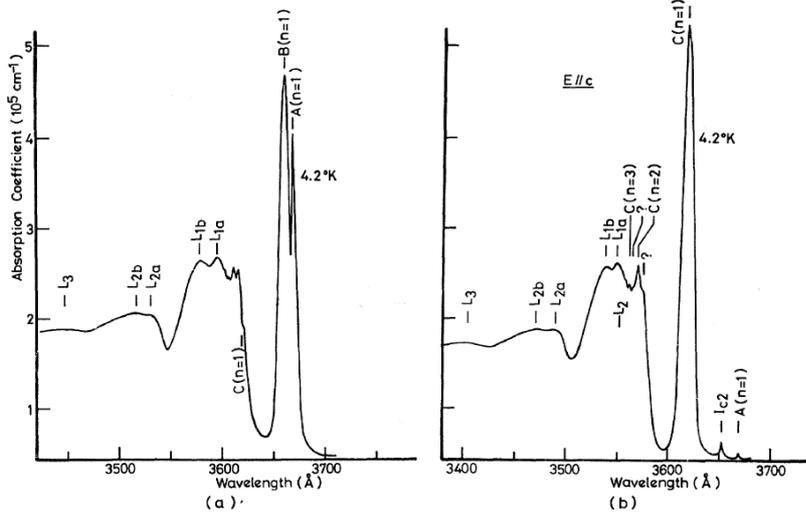


FIGURE 1.4 – Spectre d’absorption d’une fine couche de ZnO à 4.2K pour une lumière polarisée a) $\vec{E} \perp \vec{c}$ et b) $\vec{E} // \vec{c}$. Les différentes transitions excitoniques sont notées A, B et C et le nombre quantique principal n est noté entre parenthèses. I_{c2} désigne la transition d’un exciton lié sur une impureté. Les différentes transitions assistées par phonons optiques sont désignées par la lettre L. [Lia68]

d’état est appelé un exciton [Bas92].

Pour pouvoir calculer les états propres de la paire électron-trou, il faut inclure l’interaction coulombienne dans le Hamiltonien à deux particules. Une étude détaillée des excitons, dans le cas notamment d’un cristal anisotrope, est donnée dans la référence [Bas75]. Dans le cas d’excitons de Wannier-Mott, ou excitons faiblement liés, le problème se ramène à celui d’un système hydrogénoïde dans lequel la masse effective μ et la masse totale M s’écrivent en fonction des masses effectives de l’électron et du trou :

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}; \quad M = m_e^* + m_h^*. \quad (1.6)$$

L’exciton a pour nombres quantiques le couple (n, l) ($(n, l) = 1s, 2s, 2p, \dots$) et la quantité de mouvement du centre de masse $\hbar\vec{K}$. Sa fonction d’onde $\Psi_X(\vec{K})$ est une combinaison linéaire des états fermioniques $\Phi_{c,v}(k_{e,h})$ donnés par l’équation (1.1). Chaque bande de valence donne lieu à une série d’excitons. Explicitement ces états s’écrivent :

$$\Psi_X(\vec{K}) = \sum_{\vec{k}_h} a(\vec{k}_h) \Phi_c(\vec{k}_h - \vec{K}) \Phi_v(\vec{k}_h) \quad \text{avec} \quad \sum_{\vec{k}_h} |a(\vec{k}_h)|^2 = 1, \quad (1.7)$$

où le coefficient $a(\vec{k})$ est la transformée de Fourier de la fonction d’onde du mouvement relatif de l’exciton. Le nombre d’états composant $\Psi_X(\vec{K})$ étant très grand, $a(\vec{k})$ est très petit devant 1. Par conséquent l’état d’exciton va occuper les états fermioniques de

manière infime et c'est cette distribution qui va lui permettre de suivre une statistique bosonique à faible densité, contrairement à l'électron et au trou qui suivent une statistique fermionique.

Les énergies de liaison E_n^l d'un tel système hydrogénoïde sont bien connues et la relation de dispersion de l'exciton s'écrit :

$$E_X(\vec{K}) = E_g - E_n^l + \frac{\hbar^2 K^2}{2M} \quad \text{avec} \quad E_n^l = \frac{E_{Ry}}{n^2} \frac{\mu}{m_0 \epsilon^2}, \quad (1.8)$$

où $E_{Ry} = 13.6eV$ est l'énergie de liaison de l'atome d'hydrogène et ϵ est la constante diélectrique statique du milieu.

La taille caractéristique de l'exciton est donnée par son rayon de Bohr :

$$a_B^* = \frac{\hbar^2 \epsilon}{\mu e^2}. \quad (1.9)$$

Ces deux paramètres sont extrêmement importants dans la détermination des caractéristiques du couplage fort exciton-photon et des effets collectifs de bosons.

Les excitons de Wannier-Mott possèdent une énergie de liaison faible devant E_g et un rayon de Bohr grand devant le paramètre de maille a du cristal, par opposition aux excitons de Frenkel qui ont un petit rayon de Bohr et une grande énergie de liaison. Les excitons de Frenkel se retrouvent surtout dans les matériaux organiques. Ces deux cas diffèrent essentiellement par la manière dont sont calculées les fonctions d'onde et les propriétés électriques et optiques.

Excitons dans ZnO Ils ont une grande énergie de liaison $E_{1s} = Ry^* = 60 meV$ et un rayon de Bohr $a_B^* = 1.4 nm$. La table 1.1 compare les excitons de différents matériaux utilisés dans les microcavités. Il est à noter que comparativement aux autres semiconducteurs inorganiques, le rapport entre rayon de Bohr et paramètre de maille ($a = 0.3250 nm$) est peu élevé dans ZnO. Les excitons dans ZnO sont par conséquent un cas limite des excitons de Wannier.

	GaAs	CdTe	GaN	ZnO
a_B^* (nm)	13.6	7	2.8	1.4
Ry^* (meV)	4.8	10.8	25	60

TABLE 1.1 – Paramètres des excitons dans différents semiconducteurs massifs.

Il est important de retenir que la levée de dégénérescence de la bande de valence sous l'effet du champ cristallin et de l'interaction spin-orbite conduit à considérer trois transitions excitoniques notées traditionnellement A (exciton-trou lourd), B (exciton-trou léger) et C (exciton "split-off"). Elles ont pour énergies respectives, à basse température dans un matériau non contraint, 3.374 eV, 3.380 eV et 3.445 eV (cf. table 1.2).

Ces trois transitions ayant des symétries différentes ((p_x, p_y)) pour les excitons A et B et

p_z pour l'exciton C), leur polarisation permet de les distinguer dans des expériences de spectroscopie [Lia68, Tho60, Mut97, Tek04] (cf. figure 1.3). Ainsi la transition optique correspondant à l'exciton C de symétrie principalement p_z ne sera visible qu'en polarisation π (ou TM ; champ magnétique perpendiculaire à l'axe c), lorsque les états électroniques sont couplés au champ électrique suivant l'axe c du cristal (axe de croissance z). Les transitions optiques correspondant aux excitons A et B de symétrie principalement (p_x, p_y) seront visibles en polarisation σ (ou TE ; champ électrique perpendiculaire à l'axe c). Ces règles de sélection ne sont pas strictes car les états ne sont pas purs en raison du mélange de bandes de valence (cf. figure 1.4).

Force d'oscillateur Chaque exciton peut être décrit classiquement [Hau93] comme un oscillateur de Lorentz ayant une fréquence de résonance ω_0 correspondant à l'énergie de la transition excitonique et un élargissement homogène γ qui traduit l'absorption du matériau. L'interaction avec le champ électromagnétique fait apparaître dans le matériau une onde de polarisation qui est reliée au champ électrique :

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \vec{E}(\omega), \quad (1.10)$$

où ϵ_0 est la constante diélectrique du vide et χ est la susceptibilité diélectrique du matériau.

L'exciton possède une dispersion $\hbar\omega_0(\vec{k})$ donc la polarisation $\vec{P}(\omega)$ dépend aussi du vecteur d'onde \vec{k} ([Hau93]) et est proportionnelle à l'amplitude de l'oscillateur :

$$\vec{P}(\omega, \vec{k}) = \frac{\epsilon_b \omega_p^2}{\omega_0^2(\vec{k}) - \omega^2 - i\omega\gamma} \vec{E}(\omega) \quad (1.11)$$

avec ϵ_b la constante diélectrique de "fond" (background en anglais) en l'absence des résonances excitoniques et ω_p la pulsation propre à l'oscillation collective de charges (pulsation plasma). Au voisinage de la fréquence de résonance, la constante diélectrique $\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi)$ s'écrit [Hau93] :

$$\epsilon(\omega, \vec{k}) = \epsilon_b + \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2(\vec{k}) - \omega^2 - i\gamma\omega} = \epsilon_b + \frac{B}{E_0^2(\vec{k}) - E^2 - i\hbar\gamma E}, \quad (1.12)$$

où $B = (\hbar\omega_p)^2 = \epsilon_b \hbar\omega_0 \hbar\omega_{LT}$. Le dédoublement longitudinal-transverse $\hbar\omega_{LT}$ est la différence d'énergie entre les modes optiques de polarisation transverse et longitudinal au vecteur d'onde de la lumière. Il caractérise la force du couplage lumière-matière. Sa valeur pour les excitons A, B, C de ZnO est présentée dans la table 1.2 et comparée à celle de GaN et GaAs.

La constante diélectrique $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ est un nombre complexe puisque le matériau possède une absorption non nulle. Cette absorption α trouve son origine dans l'élargissement homogène des oscillateurs : en effet le matériau n'absorbe plus lorsque γ tend vers zéro. Dans le cas où $\epsilon_2 \ll \epsilon_1$, elle peut être approximée par

$$\alpha = \frac{\omega}{n c} \epsilon_2, \quad (1.13)$$

	E_X (meV)(n=1)	M^*	$\hbar\omega_{LT}(meV)$
GaAs [Law71, Sel73]	1515	0.1975	0.08
GaN [Gil97a, Gil97b]	$X_A = 3487$	1.3	2.9
	$X_B = 3496$	0.5	1.8
ZnO [Zam02, Syr04]	$X_A = 3374$	0.95	2.8
	$X_B = 3380$	0.98	3.5
	$X_C = 3445$	0.78	7

TABLE 1.2 – Energie, masse effective et dédoublement longitudinal-transverse des excitons dans différents matériaux semiconducteurs.

et est directement proportionnelle à ϵ_2 .

L'approche du couplage exciton-photon par la mécanique quantique est complémentaire à l'approche classique en terme d'oscillateur. Le formalisme semi-classique décrit ce couplage par la force d'oscillateur de l'exciton f_{osc} , obtenue en calculant par la règle d'or de Fermi la probabilité de transition d'un état initial d'exciton vers le continuum d'états de photons [And95b]. Elle est reliée à ω_{LT} ([Kav07], éq. 4.50) :

$$f_{osc} = \frac{4\pi\epsilon_0\sqrt{\epsilon_b} m_0 c}{\pi e^2} \omega_{LT} \quad (1.14)$$

Modèle d'Elliott Au-delà de l'expression classique en termes d'oscillateurs, l'expression analytique de l'absorption excitonique a été démontrée par Elliott [Ell57, Chr94]. Il donne la formule pour ϵ_2 qui tient compte des différents états liés de l'exciton mais également des états de diffusion (continuum d'absorption). Ce calcul est basé sur une description quantique des transitions interbandes dans le semiconducteur et donne un résultat analytique quoique lourd à programmer. Ainsi, pour des commodités de temps de calcul, nous avons intégré les spécificités des excitons issues du modèle d'Elliott dans le modèle de Lorentz. En effet, dans le cas du ZnO wurtzite, nous avons besoin de modéliser trois résonances excitoniques correspondant à la sommation des états $1s$ des excitons A, B, C. La sommation peut être étendue à l'ensemble de la série de Balmer, c'est-à-dire aux états excités ns ($n=1, 2, \dots$) ayant une force d'oscillateur non négligeable. La constante diélectrique s'écrit alors :

$$\epsilon(\omega, \vec{k}) = \epsilon_b + \sum_j \left(\sum_n \frac{B_{j,n}}{(E_{0(j,n)}^2(\vec{k}) - E^2 - i\hbar\gamma_j E} + iH_j\Theta(E - E_{g_j})) \right), \quad (1.15)$$

où l'indice j désigne les résonances excitoniques A, B, C d'énergies $E_{0(j,n)}$. La force d'oscillateur dépend évidemment de la transition considérée et varie en n^{-3} pour les états excités [Ell57]. Enfin le terme imaginaire de droite dans l'équation 1.15 est introduit phénoménologiquement afin de tenir compte de l'absorption due au continuum de chaque exciton à l'énergie E_g . L'amplitude du continuum est déterminée à partir de l'ajustement de spectres d'absorption expérimentaux (Figure 1.4, [Lia68]).

Sources d'élargissement des transitions Expérimentalement, les raies correspondant aux transitions excitoniques présentent une largeur finie qui traduit l'existence d'un désordre et d'une dynamique temporelle dans le système étudié. On peut définir les deux types d'élargissement des raies excitoniques, l'élargissement homogène et l'élargissement inhomogène.

L'élargissement homogène est lié à tous les processus amenant un déphasage de l'exciton. Il induit un profil lorentzien des transitions excitoniques. Outre l'interaction avec la lumière, il est la somme des contributions des interactions de l'exciton avec les phonons, les électrons et d'autres excitons. A faible densité de porteurs, il est dominé par le couplage au réseau via les phonons, et augmente avec la température.

L'élargissement inhomogène est lié au désordre dans la structure, qui induit des fluctuations spatiales de l'énergie des excitons. Ce désordre peut être dû à des défauts dans le cristal (dislocations, impuretés), à des variations de composition du matériau ou à des variations de contrainte, en particulier à proximité des fissures (cracks). Il est pris en compte par une distribution gaussienne de largeur σ des énergies de transition. Ce type d'élargissement est en général indépendant de la température et est dominé par l'élargissement homogène lorsque la température augmente.

1.2 Confinement du photon dans les microcavités planaires

Une microcavité est un résonateur de type Fabry-Perot comportant une couche active dont la dimension est un multiple de la demi-longueur d'onde d'émission. L'ordre d'interférence des modes optiques y est faible, d'où le nom de "micro"-cavité. Beaucoup de propriétés des microcavités (résonance, finesse, dispersion angulaire, ...) peuvent être comprises à partir de celles d'une cavité Fabry-Perot, dont les caractéristiques vont être brièvement rappelées. Cette section est consacrée exclusivement aux microcavités "passives", sans résonance excitonique dans la cavité. En outre, nous présenterons les différents types de miroirs qui peuvent constituer la microcavité : miroirs métalliques ou miroirs interférentiels (ou de Bragg), à base de matériaux diélectriques. Nous insisterons ici sur les miroirs de Bragg, qui sont utilisés dans la majorité des échantillons étudiés.

1.2.1 Cavité Fabry-Perot

Une cavité Fabry-Perot est une structure planaire composée de deux miroirs parallèles M_1 et M_2 séparés par un milieu diélectrique d'indice n_c (figure 1.5). Le champ électromagnétique est confiné à l'intérieur de la cavité dans le plan (x, y) des miroirs. Le vecteur d'onde du photon est quantifié selon l'axe z , normal au plan de la cavité. Le Fabry-Perot sélectionne des modes du champ pour lesquels la phase reste identique lors d'un aller-retour de la lumière dans la cavité selon la relation :

$$k_z L_c = p\pi, \quad (1.16)$$

où p est l'ordre d'interférence et L_c est la longueur de la cavité. Ces modes correspondent à des interférences constructives du champ dans la cavité et vont donner lieu à des

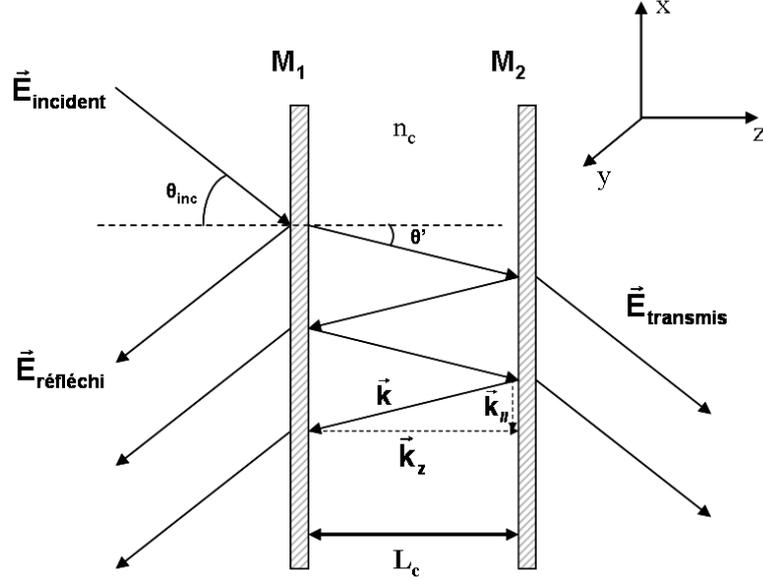


FIGURE 1.5 – Schéma d'un résonateur Fabry-Perot.

minima en réflectivité (maxima en transmission). La relation de dispersion de ces modes dépend directement de la donnée du couple (p, \vec{k}_{\parallel}) et peut facilement se déduire de la relation 1.16 :

$$\left(\frac{\omega^2}{c^2} n_c^2 - k_{\parallel}^2 \right)^{1/2} L_c = p\pi. \quad (1.17)$$

Chaque mode a une largeur spectrale γ_c donnée par [Sav99] :

$$2\gamma_c = \frac{1 - |r_1 r_2|}{\sqrt{|r_1 r_2|}} \frac{c}{n_c L_c}, \quad (1.18)$$

où r_1, r_2 sont les coefficients de réflexion des deux miroirs. On associe à un résonateur Fabry-Perot le facteur de finesse défini comme étant le rapport entre la séparation spectrale entre deux pics ΔE et la largeur spectrale des pics δE :

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta E}{\delta E} = \frac{\pi c}{2n_c \gamma_c L_c} = \pi \frac{\sqrt{|r_1 r_2|}}{1 - |r_1 r_2|}. \quad (1.19)$$

Ce facteur caractérise la sélectivité de la cavité. Il correspond au nombre moyen de réflexions d'un photon avant sa sortie de la cavité. Il est uniquement lié aux caractéristiques des miroirs. On y associe généralement le facteur de qualité Q de la cavité défini comme le rapport de l'énergie du mode à sa largeur :

$$Q = \frac{E}{\delta E} = p\mathcal{F} = p\pi \frac{\sqrt{|r_1 r_2|}}{1 - |r_1 r_2|}. \quad (1.20)$$

Le facteur de qualité Q est lié au temps d'échappement du photon hors de la cavité, autrement appelé temps de vie du photon et noté τ_c :

$$\tau_c = \frac{\hbar Q}{E}. \quad (1.21)$$

Le temps de vie du photon est un paramètre important pour l'obtention du couplage fort et influe directement sur le temps de vie des polaritons.

1.2.2 Miroir métallique

Les miroirs métalliques sont réfléchissants en raison de la forte partie imaginaire de leur indice de réfraction, qui est infinie dans le cas d'un métal parfait. Le choix du matériau, en fonction de sa réponse diélectrique, dicte le coefficient maximal de réflexion et la longueur de pénétration du champ électromagnétique. C'est l'aluminium qui est le mieux adapté à la plage spectrale du proche ultra-violet. Les miroirs de microcavités doivent transmettre partiellement la lumière, ce qui détermine l'épaisseur maximale de métal.

1.2.3 Miroir de Bragg

Bande interdite Un miroir de Bragg (Distributed Bragg Reflector, DBR) est un empilement périodique de paires de couches diélectriques avec des indices de réfraction n_1 et n_2 . Les miroirs de Bragg sont des miroirs interférentiels pour le champ électromagnétique qui les traverse. Ces interférences sont destructives en transmission et constructives en réflexion et vérifient une relation de phase. Le coefficient de réflexion du miroir est maximal sur une bande spectrale donnée centrée autour de la longueur d'onde λ_0 (Figure 1.6). Cette bande photonique interdite (appelée "stop-band") est l'analogue du "gap" électronique dans les semiconducteurs. On peut évaluer analytiquement la valeur de la réflectivité [Yeh88] autour de λ_0 :

$$R = \left(\frac{1 - \frac{n_s}{n_0} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N}}{1 + \frac{n_s}{n_0} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N}} \right)^2 \quad (1.22)$$

où n_s est l'indice du substrat, n_0 l'indice du milieu d'incidence et N le nombre de paires. Plus le nombre de paires du miroir et le contraste d'indices $\Delta n = n_1 - n_2$ sont élevés, plus la stop-band montrera un coefficient de réflectivité proche de l'unité et un plateau large et abrupt.

Longueur de pénétration Lors de la réflexion sur un miroir de Bragg, l'onde électromagnétique pénètre dans les premières paires de couches diélectriques. La longueur de pénétration est donnée par la formule ([Sav99]) (valable à la condition de Bragg) :

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_0}{2} \frac{n_1 n_2}{n_0 (n_2 - n_1)} \quad (n_1 < n_2) \quad (1.23)$$

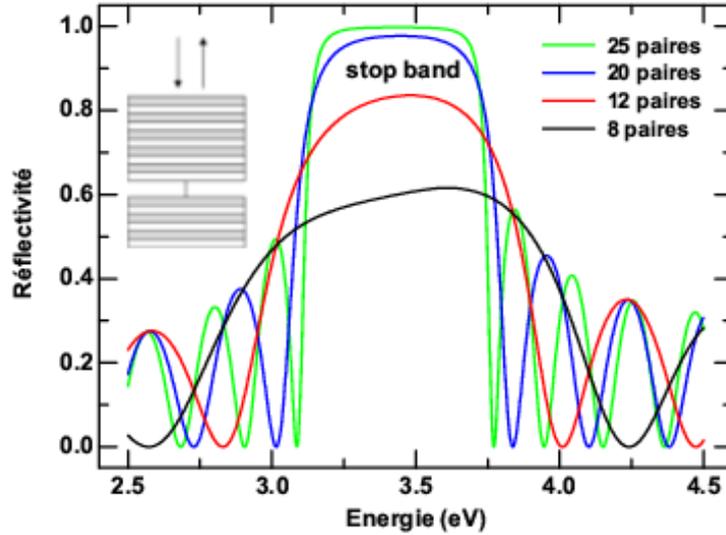


FIGURE 1.6 – Calcul de la réflectivité d'un miroir de Bragg contenant 8, 12, 20 et 25 paires de Si_3N_4 ($n_1 = 2.1$) et de SiO_2 ($n_2 = 1.47$). La structure du miroir est représentée schématiquement en haut à gauche.

où n_0 est l'indice du milieu ambiant. Dans le cas d'une microcavité, n_0 est l'indice n_c de la couche active. Cette longueur de pénétration est indépendante du nombre de paires mais dépend du contraste d'indice des couches.

Notons enfin qu'une variation de l'épaisseur Δd des couches autour de $\lambda_0/4$ aura pour effet de décaler la stop-band en énergie. Ainsi si les couches sont plus épaisses ($\Delta d > 0$), la stop-band se décalera vers les basses énergies et inversement pour des couches plus minces ($\Delta d < 0$) la stop-band se décalera vers les hautes énergies. Ceci peut avoir des conséquences sur le couplage au mode de cavité ou les conditions de désaccords. De plus si l'erreur d'épaisseur entre couches successives est importante, on pourra avoir une perte sur le maximum de réflectivité.

Calcul matriciel des propriétés optiques Afin de pouvoir analyser et simuler les propriétés optiques des miroirs de Bragg, et ensuite des microcavités complètes, nous avons utilisé l'approche des matrices de transfert [Sav99, Bor99, Kav03b]. Ce formalisme est très pratique pour les calculs des coefficients de réflectivité et de transmission de multicouches de diélectriques. L'idée-maîtresse est de ré-écrire les lois de Snell-Descartes pour des couches de diélectrique sous une forme matricielle. Dans ce travail, nous avons choisi de travailler sur le vecteur $(\vec{E}^+(z), \vec{E}^-(z))$ formé des amplitudes des champs

électriques se propageant dans les directions \vec{e}_z et $-\vec{e}_z$. Ce formalisme est celui présenté dans les articles de V. Savona [Bor99, Sav99] et ne sera pas détaillé ici.

1.2.4 Microcavité à miroir de Bragg

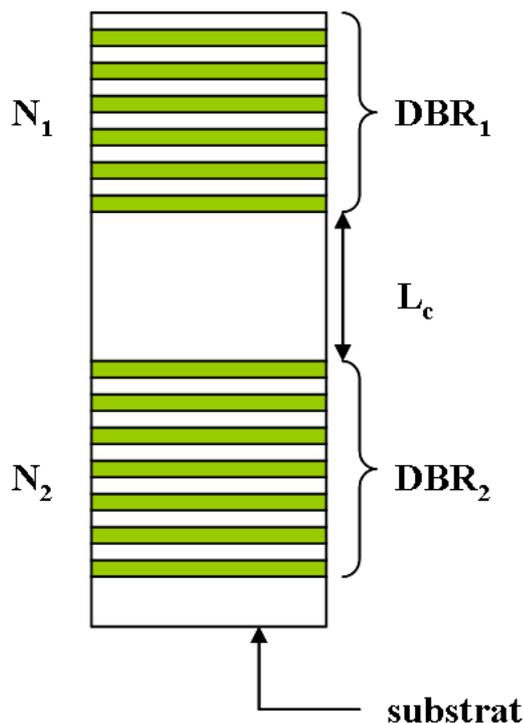


FIGURE 1.7 – Structure d’une microcavité Fabry-Perot.

La microcavité est constituée d’une couche active d’épaisseur L_c insérée entre deux miroirs de Bragg (cf. Figure 1.7). L’épaisseur des couches des miroirs de Bragg doit être adaptée à celle de la cavité afin que la longueur d’onde de résonance λ_0 des miroirs soit proche de celle de la cavité λ_c . Ainsi, sous incidence normale, les épaisseurs L_1 , L_2 et L_c sont données par (condition de Bragg) :

$$n_c L_c = p \frac{\lambda_0}{2}, \quad (1.24)$$

$$n_1 L_1 = n_2 L_2 = \frac{\lambda_0}{4}, \quad (1.25)$$

où p est l’ordre d’interférence de la cavité.

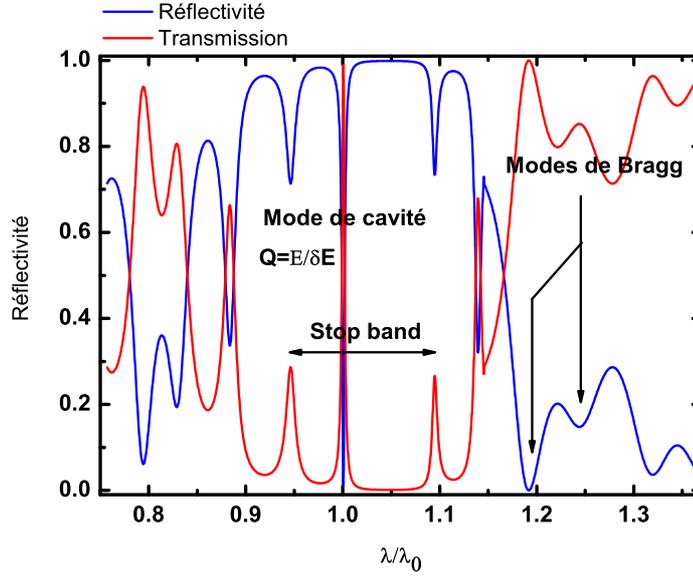


FIGURE 1.8 – Calcul de la réflectivité d’une microcavité $3\lambda/4$ centrée en λ_0 et constituée d’un miroir de Bragg supérieur (à l’interface avec l’air) Si_3N_4/SiO_2 (5 paires) et d’un miroir de Bragg inférieur $AlN/(Al,Ga)N$ (11 paires) sur substrat de Si. La microcavité est supposée passive.

Mode de cavité La Figure 1.8 montre la réflectivité calculée en incidence normale pour une microcavité, dont la structure est proche de l’échantillon Z536 (cf chapitre 3) et présentée sur la figure 1.9, mais dont la cavité est supposée passive, sans résonance excitonique. La fenêtre de réflectivité maximale autour de $\lambda = \lambda_0$ est formée à partir de la stop-band des deux miroirs de Bragg. Le mode de cavité apparaît comme un creux très fin dans la réflectivité de la stop-band, et comme un pic de transmission. Son énergie dans la stop-band peut être ajustée en faisant varier l’épaisseur L_c du milieu actif. Le mode de cavité a une largeur spectrale finie du fait de la réflectivité inférieure à l’unité des miroirs de Bragg qui laisse une probabilité non nulle au photon de cavité de pouvoir s’échapper. Son expression est similaire à l’équation 1.18, mais il faut tenir compte de la longueur de pénétration du champ dans les miroirs de Bragg [Sav99] :

$$2\gamma_c = \frac{1 - |r_1 r_2|}{\sqrt{|r_1 r_2|}} \frac{c}{n_c L_{eff}}, \quad (1.26)$$

où r_1, r_2 sont les coefficients de réflexion des deux miroirs.

La figure 1.9 montre la distribution du champ électrique à l’intérieur de la microcavité à la longueur d’onde λ_0 du mode de cavité. Il faut noter que le mode n’est ni $\lambda/2$, ni λ , mais $3\lambda/4$. Le miroir nitrure est de meilleure qualité (moins de fissures) lorsqu’il se termine par une couche (Al,Ga)N plutôt qu’AlN et nous avons en conséquence choisit de terminer le miroir de Bragg par la couche d’indice fort ((Al, Ga)N)). La cavité λ est constituée de la couche ZnO $3\lambda/4$ et de la couche (Al, Ga)N $\lambda/4$. Par ailleurs, nous

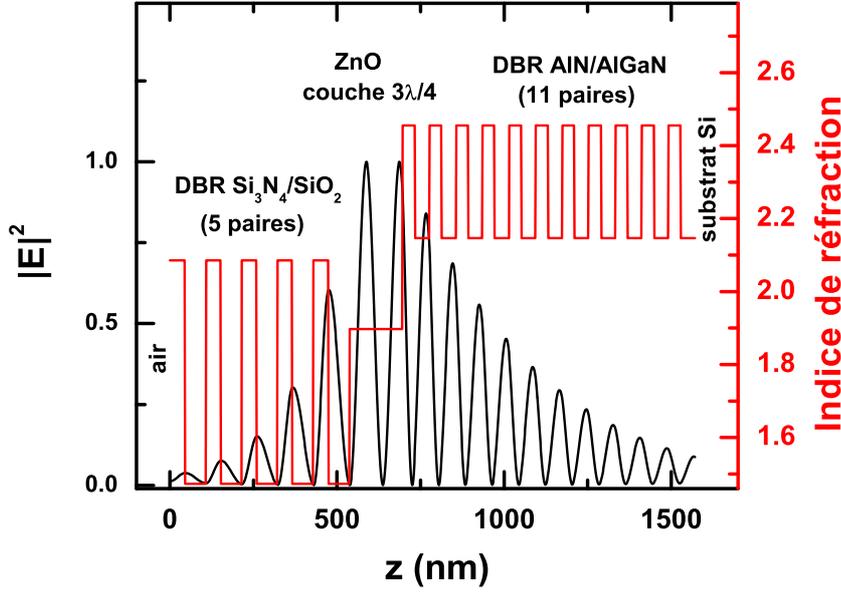


FIGURE 1.9 – Distribution du champ électromagnétique du mode de cavité dans la microcavité, dont la structure est représentée par son profil d'indice de réfraction.

observons que la longueur de pénétration du mode dans les miroirs de Bragg est plus importante dans le miroir nitrure que dans le miroir diélectrique, en raison de son plus faible contraste d'indice. Cela permet de réduire le nombre de paires dans le miroir diélectrique pour obtenir une cavité "équilibrée", i.e. des coefficients de réflexion similaires pour les deux miroirs.

Longueur effective de la cavité Du fait de la longueur de pénétration L_{DBR} du champ dans les miroirs de Bragg, on doit tenir compte du fait que le mode occupe selon l'axe z de croissance une longueur effective (cf. figure 1.9) :

$$L_{eff} = L_c + L_{DBR1} + L_{DBR2}. \quad (1.27)$$

Modes de Bragg En-dehors de la stop-band, la réflexion chute abruptement et présente un caractère oscillatoire. Les minima secondaires de réflectivité correspondent en fait à des modes dits de Bragg, hors de la condition de Bragg. Ils sont aussi appelés modes de fuite car le champ électromagnétique pénètre plus loin dans le miroir et les photons y sont moins bien confinés que dans le mode de cavité. Les résonances associées sont donc plus larges spectralement. Nous discuterons en détail le couplage des excitons avec ces modes de Bragg dans le Chapitre 5.

Relation de dispersion des modes On peut introduire pour le photon de cavité une relation de dispersion analogue à celle des excitons donnée par la relation 1.8. Comme détaillé en section 1.2.1, la cavité impose une condition de quantification sur la composante k_z (perpendiculaire au plan des couches) du vecteur d'onde telle que :

$$k_z = \frac{2\pi n_c}{\lambda_c}, \quad (1.28)$$

où λ_c est la longueur d'onde de résonance en incidence normale. Par contre la composante dans le plan des couches \vec{k}_{\parallel} (Figure 1.5) peut prendre des valeurs quelconques qui dépendent de l'angle θ' de propagation à l'intérieur des couches. Notons que l'angle θ' dépend de l'indice de chaque couche alors que k_{\parallel} est identique dans toutes les couches, et égal à celui du photon incident dans l'air, ce qui reflète l'invariance par translation dans le plan (x,y) de la microcavité. La relation de dispersion s'écrit alors en fonction de \vec{k}_{\parallel} :

$$E(\vec{k}_{\parallel}) = \frac{\hbar c}{n_c} k = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_{\parallel}^2 + \left(\frac{2\pi n_c}{\lambda_c}\right)^2}, \quad (1.29)$$

avec $E_c = \frac{\hbar c}{\lambda_c}$ l'énergie de résonance de la cavité à incidence normale. Ainsi il sera possible d'accorder le mode de cavité à la résonance excitonique grâce à des expériences résolues en angle.

De la même manière que pour l'exciton, on peut attribuer au photon une masse effective dans le plan des couches, définie comme la courbure de la relation de dispersion en $\vec{k}_{\parallel} = \vec{0}$:

$$\frac{1}{m_{\nu}} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k^2}(\vec{k}_{\parallel} = \vec{0}), \quad (1.30)$$

soit

$$m_{\nu} = \frac{n_c^2 E_c}{c^2} = \frac{p \hbar \pi n_c}{L_c c}. \quad (1.31)$$

Cette masse effective du photon dans la cavité est de l'ordre de 10^{-5} fois la masse de l'électron dans le vide, ou encore 10^{-4} fois celle de l'exciton. En d'autres termes la courbure de la dispersion du photon est de l'ordre de 10^4 fois celle de la dispersion de l'exciton. On pourra donc négliger la dispersion de l'exciton par rapport à celle du photon. De plus cette masse très petite est un paramètre très important pour pouvoir observer des phénomènes de nature bosonique comme il sera détaillé au Chapitre 2.

1.3 Couplage fort exciton-photon : les polaritons de cavité

Définition du couplage fort Dans le cas où seulement deux états discrets d'exciton et de photon sont couplés, la force de couplage étant plus grande que les termes d'amortissement, le système atteint un régime de couplage lumière-matière dit de couplage fort. La dégénérescence en énergie des deux états est levée d'une quantité $\hbar\Omega_R$ correspondant au dédoublement de Rabi, et les états propres du système ne sont plus les états d'exciton et de photon mais de nouveaux états mixtes exciton-photon, appelés

polaritons excitoniques.

Le régime de couplage fort en microcavité fut mis en évidence pour la première fois par Weisbuch et al. [Wei92]. Le couplage fort dans les microcavités peut être traité dans le cadre de la mécanique quantique ou bien par un modèle semi-classique de deux oscillateurs couplés [Sav95]. Nous présenterons ici le modèle semi-classique, qui est bien adapté à la compréhension de la spectroscopie linéaire des polaritons, en tenant compte de la complexité de notre système (multiplicité des résonances excitoniques et des modes photoniques mis en jeu). Le traitement quantique de l'interaction exciton-photon, en particulier en seconde quantification, est plus utile à l'étude des régimes non-linéaires, mais il nécessite en général de se ramener à un système modèle simple basé sur un seul mode photonique et une seule transition excitonique.

1.3.1 Des matrices de transfert au modèle d'oscillateurs couplés

Règle de sélection du couplage exciton-photon en cavité planaire. Le couplage exciton-photon satisfait des règles de sélection sur le vecteur d'onde et la polarisation du champ électromagnétique.

Les excitons radiatifs de moment total ($J = 1, m_j = \pm 1$) sont couplés avec les photons de polarisations circulaires droite et gauche. La force d'oscillateur des excitons dépend du vecteur-polarisation du champ électromagnétique (Figure 1.3). Dans le cas simple où nous considérons que les trois excitons (A, B, C) du ZnO sont indépendants, et où l'axe (c) est dans le plan d'incidence (x, z), les photons de polarisation TE et TM se couplent respectivement aux excitons de polarisation y et x, z [Hüm73].

Dans le cas des microcavités planaires, l'invariance par translation dans le plan (x, y) implique que le problème du couplage exciton-photon est séparable, et se ramène au couplage entre un exciton et un photon de même \vec{k}_{\parallel} .

Nous nous ramenons ainsi à des couplages "un pour un" entre un photon de polarisation TE ou TM et de vecteur d'onde \vec{k}_{\parallel} et un état excitonique.

Matrice de quasi-particules. Dans ce cadre, près de la résonance, le couplage de l'exciton et du photon peut être décrit par un système de deux oscillateurs harmoniques amortis couplés par un terme de couplage V . Les amortissements γ_{ν} et γ_X doivent être inclus afin de rendre compte du temps de vie finie du mode de cavité et du temps de cohérence de l'exciton. Dans le cas où la transition excitonique est en résonance avec le mode de cavité, au centre de la stop-band, et où la réflectivité des miroirs est proche de 1, le modèle des matrices de transferts se ramène à celui de deux oscillateurs couplés [Sav95, Kav07]. Les états stationnaires du système en couplage fort peuvent être trouvés en diagonalisant la matrice dite de quasi-particules, qui s'écrit dans la base des états exciton $|X\rangle$ et photon $|\nu\rangle$:

$$M_{QP}(\vec{k}_{\parallel}) = \begin{pmatrix} E_{\nu}(\vec{k}_{\parallel}) - i\gamma_{\nu} & V \\ V^* & E_X(\vec{k}_{\parallel}) - i\gamma_X \end{pmatrix} \quad (1.32)$$

où $E_X(\vec{k}_{\parallel})$ et $E_C(\vec{k}_{\parallel})$ sont respectivement les énergies de l'exciton (équation 1.8) et du photon (équation 1.29). Le terme de couplage s'écrit [Kav07] :

$$V = \sqrt{\frac{2E_c\omega_{LT}L_c}{\hbar(L_{DBR} + L_c)}}. \quad (1.33)$$

Analogie avec le traitement quantique Le hamiltonien obtenu dans une approche quantique est identique à la partie réelle de cette matrice de quasi-particules. On peut montrer [CT93] que la durée de vie finie des états peut être modélisée en mécanique quantique en rajoutant une partie imaginaire à l'énergie propre $E - i\gamma$. La probabilité qu'un état quasi-stationnaire reste dans l'état initial décroît alors exponentiellement avec le temps. Le terme γ correspond à un élargissement homogène des transitions. Cela correspond au terme d'amortissement de l'oscillateur harmonique. Il convient de souligner d'une part que ce modèle n'inclut pas les sources inhomogènes d'élargissement du photon et de l'exciton et d'autre part que la matrice considérée n'est pas hermitique et ne correspond donc pas à un Hamiltonien au sens strict du terme (une observable étant décrite par une matrice hermitique dont les valeurs propres sont réelles).

1.3.2 Les états propres polaritoniques

La matrice M_{QP} possède deux états propres appelés polariton du bas (LP) et polariton du haut (UP). Les deux énergies propres E_{LP} , E_{UP} de la matrice 1.32 s'écrivent alors

$$E_{\substack{UP \\ LP}}(\vec{k}_{\parallel}) = \frac{1}{2}(E_{\nu}(\vec{k}_{\parallel}) + E_X(\vec{k}_{\parallel})) - \frac{i}{2}(\gamma_{\nu} + \gamma_X) \pm \hbar\Omega_R \quad (1.34)$$

avec Ω_R la pulsation de Rabi amortie qui s'écrit

$$\Omega_R = \sqrt{4V^2 + (\delta - i(\gamma_{\nu} - \gamma_X))^2} \quad (1.35)$$

où $\delta(\vec{k}_{\parallel}) = E_{\nu}(\vec{k}_{\parallel}) - E_X(\vec{k}_{\parallel})$ est le désaccord entre l'énergie du mode de cavité et celui de l'exciton. Les énergies propres E_{LP} et E_{UP} sont des nombres complexes dont la partie réelle donne les énergies des modes propres alors que la partie imaginaire représente leur élargissement homogène.

Les limites du régime de couplage fort sont simples à définir dans le cas particulier où l'exciton et le photon sont résonants ($\delta = 0$). La pulsation Ω_R présente deux régimes distincts suivants que le radicande de l'équation 1.35 est positif ou négatif :

- Dans le cas où

$$4V^2 < |\gamma_X - \gamma_{\nu}|^2 \quad (1.36)$$

l'équation (1.34) admet deux solutions complexes qui ne diffèrent que par leurs parties imaginaires. Les deux modes propres ont donc même énergie (donnée par la partie réelle de l'énergie) mais des largeurs de raies différentes. Les deux états propres sont dégénérés, on n'observe pas de dédoublement de Rabi. C'est le régime de couplage faible.

– Dans le cas où

$$4V^2 > |\gamma_X - \gamma_\nu|^2 \quad (1.37)$$

le radicande est positif et Ω_R est un réel pur. La matrice 1.32 admet deux états propres qui sont les polaritons haut et bas.

Ces états propres sont une combinaison linéaire des états d'exciton $|X\rangle$ et de photon $|\nu\rangle$

$$|LP\rangle = X_{\vec{k}_\parallel} |X\rangle - C_{\vec{k}_\parallel} |\nu\rangle \quad (1.38)$$

$$|UP\rangle = C_{\vec{k}_\parallel} |X\rangle + X_{\vec{k}_\parallel} |\nu\rangle \quad (1.39)$$

où $X_{\vec{k}_\parallel}$ et $C_{\vec{k}_\parallel}$ sont les coefficients de Hopfield [Hop58] qui donnent les poids respectifs de l'exciton et du photon dans les polaritons :

$$X_{\vec{k}_\parallel} = \frac{2V}{\sqrt{4V^2 + (\delta(\vec{k}_\parallel) + \Omega_R(\vec{k}_\parallel))^2}} \quad (1.40)$$

$$C_{\vec{k}_\parallel} = \frac{\delta(\vec{k}_\parallel) + \Omega_R(\vec{k}_\parallel)}{\sqrt{4V^2 + (\delta(\vec{k}_\parallel) + \Omega_R(\vec{k}_\parallel))^2}} \quad (1.41)$$

Ainsi le poids exciton et photon des polaritons dépend du désaccord δ .

Exemple d'une microcavité ZnO La figure 1.10-a) présente l'exemple d'une microcavité ZnO d'énergie de Rabi $\hbar\Omega_R = 75 \text{ meV}$. Les dispersions des polaritons de basse et haute énergie sont présentées en fonction de \vec{k}_\parallel pour différents désaccords δ (figure 1.10-b-d-f)), ainsi que les fractions excitonique $|X_{\vec{k}_\parallel}|^2$ et photonique $|C_{\vec{k}_\parallel}|^2$ du polariton de basse énergie pour chacun de ces désaccords (figure 1.10-c-e-g)). A la résonance ($\delta = 0$), les polaritons sont moitié exciton, moitié photon :

$$|X_{\vec{k}_\parallel}|^2 = |C_{\vec{k}_\parallel}|^2 = 1/2. \quad (1.42)$$

La nature du polariton change le long de la courbe de dispersion. Aux grands \vec{k}_\parallel la courbe du polariton du bas tend vers celle de l'exciton, il s'apparente donc plus à l'exciton, alors que le polariton du haut est de nature photonique.

Expérimentalement, il est possible de sonder les dispersions $E_{LP,UP}(\vec{k}_\parallel)$ par des expériences de réflectivité ou de photoluminescence en faisant varier l'angle d'excitation ou de détection θ par rapport à la normale de l'échantillon. En effet nous avons vu que le vecteur d'onde dans le plan vérifie la relation $k_\parallel = \frac{\omega}{c} \sin\theta$.

1.3.3 Les limites du couplage fort

L'équation 1.37 ($2V > |\gamma_X - \gamma_\nu|$) définit clairement les conditions de couplage fort et de couplage faible. Il faut toutefois rester prudent sur la transition entre ces deux régimes, car c'est une condition nécessaire mais pas suffisante au couplage fort. En effet,

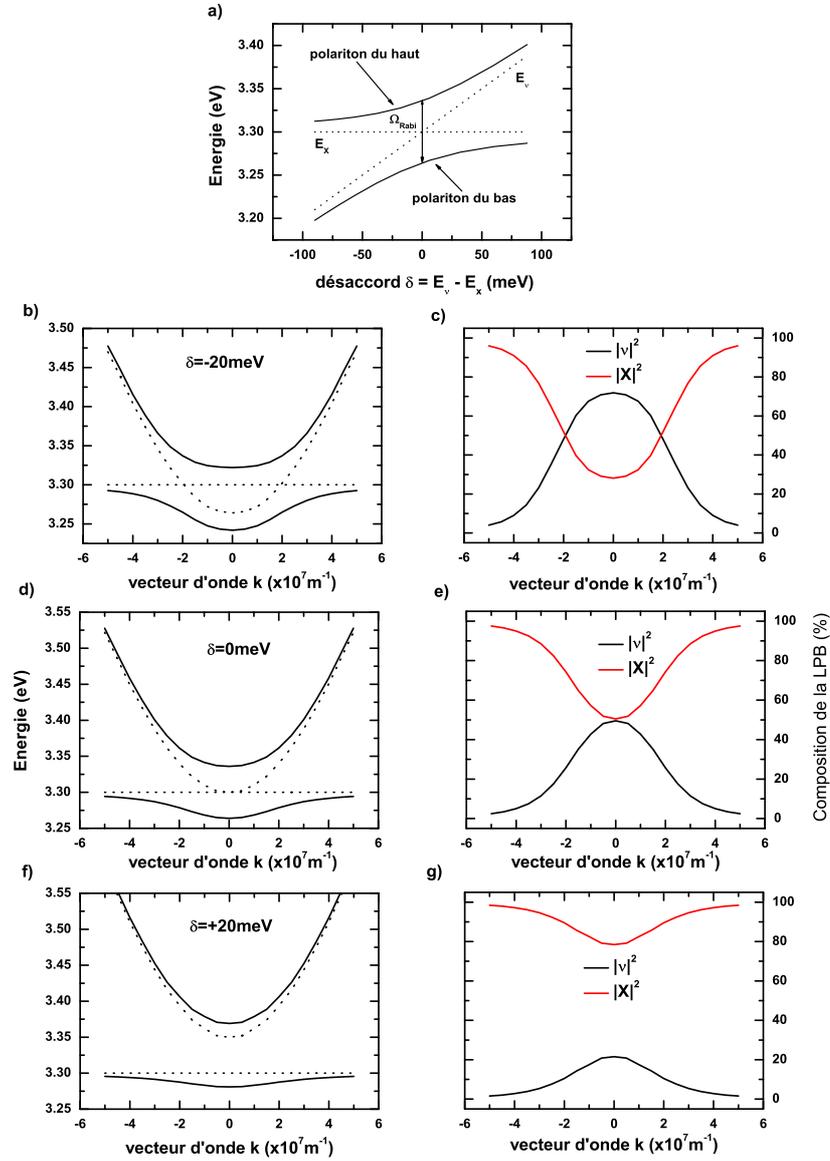


FIGURE 1.10 – (a) Calcul de l'énergie des modes de polaritons en fonction du désaccord. Les modes non couplés sont représentés par des lignes pointillées. Energies des modes de polaritons haut et bas en fonction du vecteur d'onde pour un désaccord b) négatif, (d) nul et (f) positif. (c, e, g) Composition excitonique ($|X|^2$) et photonique ($|V|^2$) de la branche basse de polaritons (LPB) pour les différents désaccords.

chacun des deux états mixtes peut être considéré comme résultant d'une oscillation du système entre $|X\rangle$ et $|\nu\rangle$ à la pulsation Ω_R qui est la pulsation de Rabi. Ce couplage fort exciton-photon ne peut s'établir que si les temps d'amortissement de l'exciton et du photon sont beaucoup plus longs que la période caractéristique des oscillations $2\pi/\Omega_R$. Dans le domaine spectral, cela revient à imposer que les largeurs de la transition excitonique et du mode de cavité soient plus petites que $\hbar\Omega_R$, soit

$$V > \gamma_\nu, \gamma_X. \quad (1.43)$$

Les facteurs limitants l'obtention du couplage fort dans les microcavités sont donc d'une part le facteur de qualité du mode de cavité, dont nous donnerons l'état de l'art dans ZnO dans la section 3.2.2, et d'autre part l'élargissement homogène de l'exciton, dont l'origine a été présentée à la section 1.1.2. La physique de l'élargissement inhomogène γ est différente et n'est pas traitée ici, mais il peut aussi être responsable d'une transition vers le couplage faible [Hou96, Chr08]. La condition associée est $V > \sigma$.

Le modèle d'oscillateurs couplés est présenté ici pour le système modèle basé sur une transition excitonique et un mode de photon en couplage "un pour un". Lorsque plusieurs excitons et plusieurs modes de photon sont couplés, le régime de couplage fort peut encore être modélisé par une matrice de quasi-particules. C'est par exemple le cas avec les excitons lourds et légers dans les puits quantiques [Fis95]. L'extension du modèle à plusieurs oscillateurs, nécessaire à la compréhension des microcavités ZnO, fera l'objet de la section 3.4.3.

Conclusion

Ce chapitre fournit les outils nécessaires à la compréhension des polaritons excitoniques en microcavité. Nous avons décrit la structure cristalline du ZnO et les résonances excitoniques construites à partir des différentes bandes électroniques. Les excitons sont caractérisés par leur masse effective, leur énergie de liaison et leur force d'oscillateur. Le ZnO possède trois résonances excitoniques optiquement permises qui dépendent de la polarisation de la lumière. Les excitons du ZnO ont pour particularité d'avoir une grande force d'oscillateur et une grande énergie de liaison qui en font de bons candidats pour l'étude du couplage fort à température ambiante.

Les propriétés optiques des microcavités à miroirs de Bragg ont été détaillées afin de décrire l'interaction entre l'exciton en cavité et le mode optique de cette dernière. Le facteur de qualité est un paramètre essentiel qui rend compte du temps de vie du photon de la microcavité. Le couplage fort qui peut en résulter, pourvu que les élargissements des modes soient plus petits que le terme de couplage, donne naissance à deux nouveaux états propres, les polaritons excitoniques de microcavité. La dispersion de ces polaritons est très différente de celle de l'exciton, et cela a pour conséquence de fortement modifier les masses effectives, et donc la densité d'états des nouveaux états propres du système. Différents facteurs, dont la température, peuvent empêcher d'atteindre ou de conserver le régime de couplage fort en élargissant les transitions excitoniques et/ou le mode de cavité.

Chapitre 2

De la physique des bosons au laser à polaritons

L'interaction lumière-matière dans les microcavités en régime de couplage fort fait apparaître de nouveaux états propres de la matière, les polaritons excitoniques. Ces quasi-particules, mélange d'un exciton et d'un photon, se comportent comme des bosons. La physique très riche qui en découle requiert d'expliquer au préalable l'origine et les conséquences du comportement bosonique des polaritons. En particulier, des travaux théoriques ont prédit la possibilité de réaliser un condensat de Bose-Einstein à partir des polaritons et de pouvoir en étudier les caractéristiques grâce au couplage des polaritons de la cavité avec le champ électromagnétique externe [Ima96, Mos62, Bla62, Kel68]. Dans ce but de très nombreuses expériences ont été faites afin de mettre en évidence dans un premier temps le comportement bosonique des polaritons, puis de comprendre la dynamique de formation d'un condensat. Les études les plus récentes cherchent à mettre en évidence les propriétés superfluides du condensat de polaritons. La complexité d'un tel problème fait appel à des modèles théoriques variés qui rendent compte de cette physique purement quantique. En cela elle fait se rejoindre des domaines à l'origine séparés que sont l'optique quantique, la physique atomique, la supraconductivité, la superfluidité et le domaine de la physique des microcavités.

Ces différentes notions vont apparaître tour à tour dans ce chapitre qui se veut une introduction aux notions clés de la physique des bosons, nécessaires à la compréhension des propriétés collectives des polaritons de cavité. Pour plus de détails nous encourageons le lecteur à se tourner vers les références mentionnées dans ce chapitre. La première partie est consacrée à la condensation de Bose-Einstein telle qu'elle fut formulée historiquement. Deux questions essentielles se posent dans le cas des microcavités : quel type de transition de phase peut-on observer dans des systèmes de dimensionnalité réduite ? Quelles sont les grandeurs qui les gouvernent ? Comme nous le verrons dans une deuxième partie, cette problématique fait apparaître les notions de longueur thermique de de Broglie, de masse effective, de densité, de température critique et de quasi-condensat. Les polaritons ont un temps de vie fini et constituent un système ou-

vert de particules en interaction, s'éloignant donc considérablement du système modèle du gaz de Bose faiblement interagissant à l'équilibre thermodynamique. Nous décrivons différents régimes collectifs des polaritons de microcavité et en définissons les limites. Nous étudierons l'évolution des propriétés (durée de vie, cohérence) d'un gaz de polaritons lorsqu'il subit une transition de phase. Ces notions peuvent apparaître assez éloignées des travaux expérimentaux rapportés dans cette thèse, mais elles sont présentées pour donner une perspective large à notre objet d'étude. Et nous verrons comment la nature bosonique des polaritons peut être mise en évidence expérimentalement. Les propriétés collectives des polaritons peuvent être préservées jusqu'à température ambiante, par l'utilisation de matériaux comme GaN et ZnO. Cette discussion fera l'objet de la dernière partie consacrée au laser à polaritons.

2.1 Statistique bosonique et condensation de Bose-Einstein

2.1.1 Le principe d'indiscernabilité

En mécanique quantique, lorsqu'on considère un système de plusieurs particules identiques, il est nécessaire d'introduire le postulat d'indiscernabilité [CT93]. Ce postulat implique que toutes les observables d'un système constitué par un ensemble de particules demeurent inchangées par permutation des particules entre elles. Il en découle la classification de toutes les particules en deux catégories : les *bosons* et les *fermions* dont les fonctions d'onde physiques sont respectivement symétriques et antisymétriques par rapport aux permutations des particules. Ces deux types de particules présentent des propriétés statistiques radicalement différentes. Ainsi, pour les fermions, la probabilité pour que deux particules soient dans le même état quantique est minimale (interférences quantiques destructives), donnant naissance au principe d'exclusion de Pauli. A l'opposé, cette probabilité est maximale pour deux bosons (interférences quantiques constructives) et est à l'origine de l'attraction bosonique et de la condensation de Bose-Einstein.

Cependant il y a certaines conditions à l'établissement de ces interférences :

- Les fonctions d'onde individuelles doivent se recouvrir l'une l'autre, sinon le terme d'interférence s'annule. En d'autres termes il faut que la distance moyenne entre particules soit plus petite que la longueur d'onde thermique de de Broglie, $\lambda_{DB} = \sqrt{\frac{2\pi \hbar^2}{mk_B T}}$, où m est la masse des particules et k_B la constante de Boltzmann. Par exemple la condensation d'atomes n'est réalisée qu'à des températures de l'ordre de la dizaine de nanoKelvin du fait de leur masse importante [And95a].
- Les fonctions d'onde individuelles doivent être cohérentes entre elles (comme en optique). Cette dernière condition est la plus difficile à atteindre : dans la réalité tout système est couplé à son environnement qui est source de décohérence. C'est la raison pour laquelle les propriétés attractives des bosons ne se manifestent qu'à très basse température.

En l'absence de cohérence, ou lorsque les fonctions d'onde ne se recouvrent pas, le terme d'interférence s'annule et il ne reste que la somme des probabilités telle qu'on l'obtient à l'aide d'un raisonnement classique. Les effets collectifs de bosons disparaissent alors.

2.1.2 Interférences quantiques et stimulation bosonique

Considérons un système de bosons ayant un continuum d'états propres, couplés de manière perturbative par un terme d'interaction V . Entre deux états $|1\rangle$ et $|0\rangle$ de ce continuum, dans un formalisme à une particule, la règle d'or de Fermi donne la probabilité par unité de temps de transition de $|1\rangle$ vers $|0\rangle$:

$$\Gamma_{10} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle 0|V|1\rangle|^2 \rho(E_0 = E_1) \quad (2.1)$$

Dans un formalisme à N particules, si les états $|1\rangle$ et $|0\rangle$ sont occupés de manière macroscopique, la transition entre les états de Fock $|n_1; n_0\rangle$ et $|n_1 - 1; n_0 + 1\rangle$ est plus rapide, avec une probabilité par unité de temps :

$$\Gamma_{n_1, n_0} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle n_1 - 1; n_0 + 1|V|n_1; n_0\rangle|^2 \rho(E_0 = E_1) \quad (2.2)$$

$$\Gamma_{n_1, n_0} = n_1(1 + n_0)\Gamma_{10} \quad (2.3)$$

Autrement dit, la probabilité de transition par particule de l'état initial ($\Gamma_{n_1, n_0}/n_1$) est proportionnelle à $(1 + n_0)$. De ce fait, si $|0\rangle$ est l'état fondamental du système, le phénomène de condensation vers $|0\rangle$ s'accélère avec l'augmentation du nombre de particules dans le condensat. C'est l'effet de stimulation bosonique.

2.1.3 La condensation de Bose-Einstein

Historique. Dans cette partie nous faisons un bref rappel historique sur la condensation de Bose-Einstein, en se concentrant sur les propriétés d'un gaz de Bose en faible interaction en 2D et 3D. Cette problématique ayant fait l'objet d'études poussées [Gri96, Dal99, Leg01, Zag01, Pit03], seuls les éléments essentiels à la compréhension de la condensation des polaritons seront développés ici et nous renvoyons le lecteur à ces articles pour une compréhension plus approfondie sur les études tant théoriques qu'expérimentales de la condensation de Bose-Einstein.

Ce fut en 1924 que S. N. Bose introduisit une nouvelle statistique permettant de décrire la distribution en énergie d'un quanta de lumière [Bos24]. La même année A. Einstein suggéra qu'une transition de phase pouvait se produire au sein d'un gaz de bosons identiques, i.e., de particules obéissant à la statistique de Bose [Ein24, Ein25]. Cette transition de phase aboutit à la formation d'un condensat, c'est-à-dire à l'occupation macroscopique de l'état fondamental du système de bosons. Afin de donner une image intuitive de ce phénomène, en analogie avec une transition de phase classique, Einstein

fit l'analogie avec la condensation d'un gaz. Cette image a pour avantage d'immédiatement suggérer que les populations condensées et non condensées ont des comportements très différents.

Gaz de Bose idéal On considère un système de N bosons sans interaction à une température T et compris dans un volume $V = L^d$, où L est la taille du système et d sa dimension. Dans le formalisme grand-canonique, les bosons sont distribués en énergie suivant la fonction de distribution de Bose-Einstein :

$$f_B(\vec{k}, T, \mu) = \frac{1}{e^{\beta(E_{\vec{k}} - \mu)} - 1}, \quad (2.4)$$

où $E_{\vec{k}} = \hbar^2 \vec{k}^2 / (2m)$ est la relation de dispersion de particules libres et de vecteur d'onde \vec{k} et $\beta = (k_B T)^{-1}$. Le nombre total de particules

$$N(T, \mu) = \sum_{\vec{k}} f_B(\vec{k}, T, \mu) \quad (2.5)$$

détermine le potentiel chimique μ dans l'équation (2.4). Notons que μ est toujours plus petit que la plus basse valeur de l'énergie propre E_0 afin de garantir que l'occupation de l'état fondamental reste finie. De plus si μ approche la valeur de E_0 , l'occupation N_0 de cet état devient grande devant 1. D'autre part l'occupation totale des états excités dépend de la densité d'états, qui à son tour dépend de la dimensionnalité du système. La densité volumique de particules s'obtient en intégrant dans l'espace réciproque sur la distribution bosonique :

$$n(T, \mu) = \frac{1}{(2\pi)^d} \int_{\vec{k}} f_B(\vec{k}, T, \mu) d\vec{k}. \quad (2.6)$$

Il est pratique de séparer l'état fondamental des autres états afin de définir une transition de phase :

$$n(T, \mu) = \frac{1}{e^{\frac{E_0 - \mu}{k_B T}} - 1} + \frac{1}{(2\pi)^d} \int_{\vec{k}, \vec{k} \neq \vec{0}} f_B(\vec{k}, T, \mu) d\vec{k} \quad (2.7)$$

Nous pouvons montrer [Diu96] que dans le cas d'un système 3D, l'intégrale de l'équation 2.7 reste finie pour $\mu = E_0$ à température finie. Cela signifie que, dans le cas tri-dimensionnel, la densité de particules dans les états excités ne peut excéder une valeur finie de saturation $n_c = n(T, \mu = E_0)$. La densité critique est le nombre maximal de particules qui peuvent être arrangées en suivant la distribution de Bose-Einstein :

$$n_c(T) = \lim_{\mu \rightarrow E_0} \frac{1}{(2\pi)^d} \int_{\vec{k}} f_B(\vec{k}, T) d\vec{k} \quad (2.8)$$

Ce n'est plus vrai pour les dimensions $d = 1, 2$, car dans ce cas la densité de particules dans les états excités de l'équation 2.8 croît indéfiniment lorsque $\mu \rightarrow E_0$. Le potentiel chimique n'est donc jamais égal à E_0 et il ne peut y avoir de transition de phase.

Cas tridimensionnel. On a donc, dans le cas tridimensionnel et pour une température fixée T , deux situations possibles. Si la densité totale n est plus petite que n_c , la condition de normalisation (2.5) est satisfaite pour $\mu < E_0$, ainsi que dans la limite thermodynamique ($N, V \rightarrow \infty$ avec $N/V = \text{constante}$). Par conséquent l'occupation de l'état de plus basse énergie N_0 est de l'ordre de l'unité et $N_0/V \rightarrow 0$ lorsque $V \rightarrow \infty$. Si par contre n est plus grand que n_c , la densité excédentaire occupe l'état de plus basse énergie afin de vérifier la condition de normalisation (2.5), et $\mu \rightarrow E_0$ dans la limite thermodynamique. Dans cette situation, la population dans l'état fondamental est une quantité extensive proportionnelle au volume du système et la densité N_0/V demeure finie même à la limite thermodynamique. Par conséquent le rapport N_0/N a une valeur finie, indépendante de V , qui est appelée la fraction condensée. En d'autres termes on assiste à une transition de phase caractérisée par l'accumulation macroscopique de particules dans l'état fondamental, dont le paramètre d'ordre est le potentiel chimique μ . Il est important de noter que, pour un volume fini V et un nombre fini de particules N , le potentiel chimique est strictement plus petit que E_0 même lorsque le système est condensé. C'est seulement dans la limite thermodynamique que $\mu = E_0$. Notons que $n_c = n_c(T) \sim T^{3/2}$ dépend de la température. Donc, pour une densité donnée, il existe une température critique T_c , telle que, si $T < T_c$ alors $n > n_c(T)$ et la condensation de Bose-Einstein a lieu. Pour un gaz de Bose idéal, la température critique est donnée par [Diu96] :

$$k_B T_c = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \left(\frac{n}{2.612} \right)^{2/3}. \quad (2.9)$$

Le concept de température critique est généralement plus utile que celui de densité critique car il peut être élargi au traitement de systèmes en interaction. Une description en terme de gaz en faible interaction s'applique uniquement à des systèmes très dilués, i.e., pour des densité $nl^3 \ll 1$, où l caractérise la longueur de diffusion. Ainsi le concept de densité critique peut être transposé aux systèmes en faible interaction uniquement si, pour une température donnée, $n_c l^3 \ll 1$. De plus, des particules avec des interactions répulsives ne peuvent probablement pas condenser à très haute densité, du fait de la trop forte répulsion.

Néanmoins, le concept de densité critique est adapté à l'interprétation des résultats expérimentaux pour traiter le problème de la condensation des polaritons car il est facile de faire varier la densité n à température constante.

2.1.4 Dimensionnalité réduite et transition superfluide

Afin de rendre compte de la physique d'un gaz de polaritons de microcavité, il est nécessaire d'étendre notre discussion aux systèmes de dimensionnalité réduite, en particulier les systèmes 2D. En une ou deux dimensions, pour un gaz idéal, la densité critique $n_c(T)$ donnée par l'équation 2.8 diverge pour toute température finie. Cela vient du fait que la BEC n'a lieu qu'à $T = 0K$ [Pit03]. Une condensation de Bose-Einstein n'est donc pas possible *stricto sensu* à 2D. Cependant, une autre transition de phase a été envisagée à 2D, entre un état normal et un état superfluide. Elle fut prédite indépendamment

par Berezinski [Ber72] en 1972 et Kosterlitz et Thouless [Kos73] un an plus tard. Une telle transition de phase est interdite pour un gaz de Bose idéal mais peut apparaître dans des systèmes de bosons en faible interaction, comme les excitons ou les polaritons. A deux dimensions, un fluide compressible peut former des vortex libres en dépensant une énergie finie. Pour des températures supérieures à une température critique T_{BKT} , une condensation locale peut apparaître. Des gouttelettes condensées, qui peuvent être relativement étendues, se forment. Elles sont caractérisées par une fonction de corrélation spatiale exponentiellement décroissante et ne sont pas connectées entre elles. La présence de vortex libres aboutit à l'apparition de frictions qui font disparaître le comportement superfluide.

Lorsque $T = T_{BKT}$, les vortex libres ne sont plus stables. Ils se lient entre eux en formant des paires ou des agrégats, permettant une soudaine percolation des gouttelettes du quasi-condensat qui se transforment en un liquide superfluide.

Finalement, pour $T < T_{BKT}$, les phases normale et superfluide coexistent.

La phase superfluide est intimement liée à la BEC et peut-être vue comme un cas particulier de ce qu'on pourrait appeler une "BEC généralisée". Elle possède ainsi de nombreuses propriétés caractéristique de la BEC, telles que l'existence d'un état occupé macroscopiquement avec une cohérence à longue portée. Par la suite, le terme de condensat sera utilisé en référence à un tel état.

2.2 Propriétés collectives des excitons et des polaritons excitoniques

Nous avons développé ici les propriétés génériques des bosons qui permettent d'aborder la physique complexe d'un gaz de polaritons dans une microcavité. Nous allons dans cette section décrire les propriétés collectives des polaritons et montrer en particulier les différences majeures entre les expériences réalisées sur les polaritons et la physique du gaz idéal de bosons en faible interaction.

L'intérêt des systèmes bosoniques formés à partir des excitons dans le solide est la faible masse effective des particules, comparable à celle de l'électron, soit 10^3 fois plus légère que celle des atomes. Une faible masse signifie une température critique de condensation plus élevée, cryogénique voire ambiante. De plus les échantillons solides, qu'il s'agisse de couches de matériau massif, de puits quantiques ou encore de microcavités, sont très facilement transportables, manipulables expérimentalement et peuvent être potentiellement intégrés dans des dispositifs électroniques ou opto-électroniques. Ce n'est pas du tout le cas des atomes froids qui demandent en général un dispositif expérimental lourd (piégeage laser, très basses températures, mesures par temps de vol, etc.).

Par contre, les études fondamentales sur les transitions de phase du type BEC ou superfluide sont plus avancées dans le cas des atomes froids car les systèmes étudiés sont plus proches des modèles théoriques. En effet, ce sont des systèmes isolés (les réseaux

laser permettent un grand contrôle des interactions entre particules et avec l'extérieur) qui possèdent une durée de vie très grande (de l'ordre de la ms) et proches de l'équilibre thermodynamique. Par opposition, les transitions de phase observables dans les systèmes solides comme les microcavités sont difficiles à définir car les polaritons interagissent avec leur environnement, possèdent une durée de vie courte (de l'ordre de la ps) et constituent un système ouvert. Une transition de phase dépendra donc drastiquement de paramètres des excitons : la densité critique associée, la température et toutes les sources de décohérence intrinsèques aux microcavités.

Dans un premier temps, nous allons voir les différents systèmes étudiés dans les solides : excitons 2D et 3D et polaritons 2D et 3D. Et nous verrons l'intérêt particulier des polaritons de microcavité sur les autres systèmes. La seconde partie de cette section sera consacrée à l'étude des transitions de phase attendues pour un gaz de polaritons en microcavité. La dernière partie sera consacrée au laser à polaritons, application utilisant les effets collectifs de bosons.

2.2.1 Propriétés des bosons dans les solides : masse effective et température critique

Cas des excitons Nous avons vu au chapitre précédent qu'un exciton est une paire électron-trou liée par interaction Coulombienne. Cette pseudo-particule de charge nulle possède un spin entier. Les excitons vont donc se comporter, à faible densité, comme des bosons interagissant faiblement, par interaction Coulombienne entre leurs constituants fermioniques. De la même manière le polariton excitonique, constitué de deux bosons, est un boson composite.

En outre les excitons possèdent une propriété majeure favorisant l'apparition éventuelle d'une BEC : ils ont une masse effective très légère, de l'ordre de la masse de l'électron libre, soit 10^3 fois plus petite que celle des atomes. Pour autant l'équilibre thermique peut être obtenu, selon l'équation 2.9, et cette masse effective implique une "haute" température critique de BEC, typiquement $T_c \simeq 1 \text{ K}$ pour des excitons massifs dans les cristaux Cu_2O [Sno02a, But01].

Autrement dit, nous avons vu qu'il est possible de décrire la BEC dans le cas d'un gaz de bosons sans interaction en comparant la longueur d'onde thermique de de Broglie, $\lambda_{DB} = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_B T}}$, à la distance moyenne entre particules, $l = n^{-1/3}$, où m est la masse des particules et n leur densité. Cela implique que pour une densité donnée, la transition sera observable à une température d'autant plus élevée que la particule est légère.

Cas des polaritons 3D Nous avons vu que lorsque les excitons sont en régime de couplage fort avec le champ électromagnétique, cela aboutit à la formation de nouveaux modes propres que sont les polaritons. Dans un matériau massif 3D la courbe de dispersion des polaritons $E(\vec{k})$ est montrée sur la Figure 2.1-a). Deux points importants sont à noter. D'une part, il n'existe pas, *stricto sensu*, de photon en $\vec{k} = \vec{0}$ et par conséquent l'état de polariton en $\vec{k} = \vec{0}$ n'existe pas. La dispersion des polaritons ne possède pas de minimum d'énergie autour de $k = E_X/\hbar c$. Tout vrai processus de condensation vers

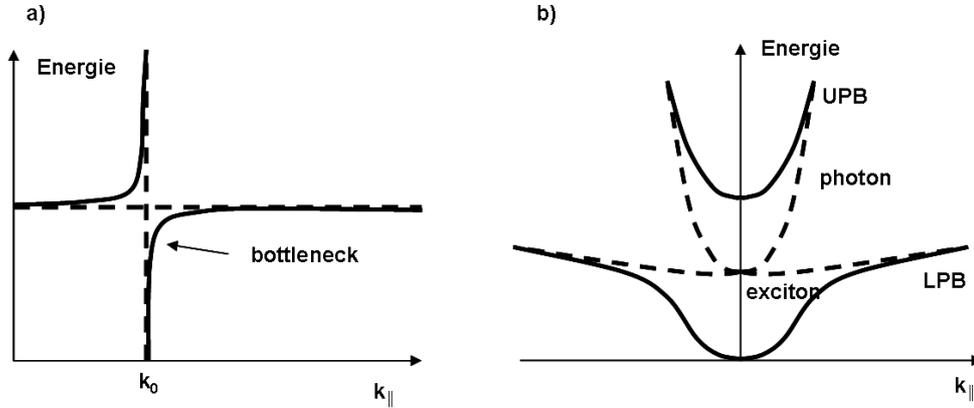


FIGURE 2.1 – Courbe de dispersion des polaritons (a) dans un matériau massif (3D) et (b) dans une cavité (2D). On peut voir que dans le cas du matériau massif, il n'existe aucun état fondamental pour la branche basse.

l'état fondamental du système est strictement interdit. D'autre part, la population de polaritons va s'accumuler dans la région dite du "bottleneck" (goulot d'étranglement en français), là où la photoluminescence est observée expérimentalement [And95b]. Cette problématique sera traitée en détail au chapitre 5. Plusieurs auteurs [Kel68, Han77] ont affirmé que l'accumulation d'excitons au bottleneck pourrait donner lieu à une BEC. À l'heure actuelle, cependant, aucune preuve expérimentale de la BEC de polaritons massifs n'existe. Les modèles théoriques de la dynamique et des interactions des polaritons semblent suggérer que la dépopulation du condensat se produit dans un temps trop court, empêchant ainsi la formation de la cohérence [Bel96].

De fait d'autres systèmes doivent être recherchés pour étudier la BEC et les microcavités sont une bonne alternative.

Cas des polaritons de cavité (2D) La situation est très différente dans les microcavités, pour deux raisons essentielles, comme suggéré au chapitre 1. Premièrement, la composante excitonique des états de polaritons de plus basse énergie (c'est-à-dire l'amplitude des coefficients de Hopfield X_k) est non nulle, même pour $\vec{k} \rightarrow \vec{0}$ et elle peut être ajustée en accordant l'énergie du mode de cavité. Deuxièmement, la durée de vie des photons peut être accrue en augmentant la qualité des miroirs. Ces deux caractéristiques favorisent ainsi la relaxation des polaritons jusqu'à l'état de polariton de plus basse énergie. De plus les polaritons de microcavité ont d'autres avantages par rapport aux excitons comme candidats possibles pour la BEC. En effet, les polaritons de la branche basse énergie ont une masse effective, proche de $\vec{k} = \vec{0}$, de l'ordre de 10^{-5} fois la masse de l'électron libre, c'est-à-dire beaucoup plus petite que la masse effective des excitons (Figure 2.1-b). En outre, les interactions entre polaritons sont plus faibles en raison de leur faible composante excitonique. C'est à partir de ces idées qu'en 1996, Imamoglu *et al.* [Ima96] ont les premiers suggéré qu'il serait possible de réaliser la BEC

de polaritons de microcavité.

2.2.2 Spécificités des bosons dans les solides : durée de vie et équilibre thermodynamique

La BEC d'excitons massifs est généralement traitée théoriquement dans l'esprit d'une théorie superfluide type BCS (du nom des trois chercheurs qui l'on établie : Bardeen, Cooper et Schrieffer) utilisée pour décrire la supraconductivité. Un point important de toutes ces théories est qu'elles supposent que les excitations du semiconducteur ont un temps de vie infini. En d'autres termes, ces théories cherchent les états stationnaires qui sont solutions de l'équation de Schrödinger pour des excitations en interaction. Dans la pratique, les excitons et les polaritons ont des temps de vie respectifs de l'ordre de la ns et de la ps , qui limitent a priori la formation d'un condensat.

Trois étapes peuvent être distinguées :

- **Formation du condensat.** Durant leur temps de vie, les excitons doivent relaxer jusqu'à l'état fondamental et s'y accumuler pour former un condensat. Le condensat doit être constamment rempli grâce à la relaxation d'excitations créées optiquement à haute énergie (cf figure 2.2). L'état stationnaire résulte alors d'un équilibre dynamique entre le pompage optique qui alimente le système et les pertes du condensat. La cinétique de relaxation des polaritons joue un rôle majeur dans cette situation. De ce point de vue, le condensat de polaritons partage quelques similarités avec un laser classique, mais une analogie directe est rendue impossible du fait de la forte non-linéarité due aux collisions polariton-polariton.
- **Etablissement des corrélations.** Si un condensat est formé, les excitons doivent de plus avoir un temps de vie radiatif suffisamment long pour que des corrélations à longue portée puissent se construire, comme observé dans le cas des atomes froids [Rit07].
- **Etablissement d'un équilibre thermodynamique.** La thermalisation complète du système (au-delà de la simple accumulation de particules dans le condensat) nécessite des interactions encore plus efficaces. C'est seulement dans ce cas que l'on peut approcher l'aspect thermodynamique de la BEC.

A ce point nous faisons remarquer que la compréhension moderne des phénomènes de condensation ne nécessite ni un équilibre thermique ni un état stable du système [Mal07]. Il est également admis que si on cherche une thermalisation, elle n'a pas besoin d'être un équilibre avec le système hôte mais plutôt un équilibre à l'intérieur du condensat de particules [Kas08]. C'est exactement ce qui se produit au sein d'une BEC d'atomes froids, dont le condensat est entièrement isolé de son environnement. Nous pouvons également aller plus loin et dire qu'il vaut mieux découpler les excitons du réseau et prévenir ainsi la décohérence provoquée par l'interaction avec les phonons. La cohérence spontanée est plus importante que l'équilibre thermique.

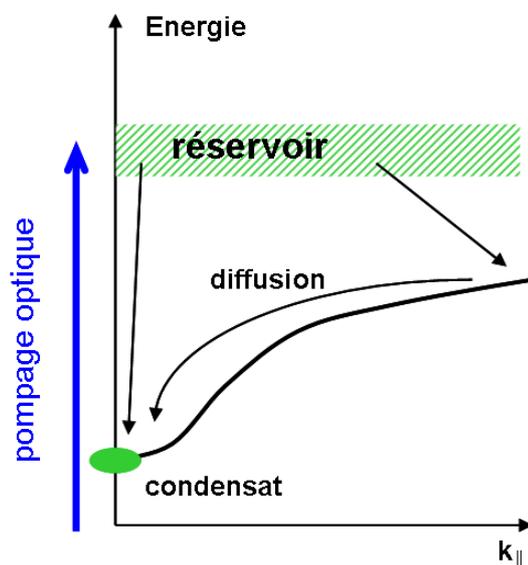


FIGURE 2.2 – Schéma de la formation d'un condensat de polaritons dans une microcavité sous pompage optique.

Les remarques ci-dessus montrent qu'un gaz d'excitons ou de polaritons est très éloigné d'un gaz idéal de Bose : c'est un système ouvert, et les particules subissent de nombreuses interactions. Ces interactions jouent un rôle primordial aux fortes densités requises pour la BEC.

2.2.3 Limite de validité de la nature bosonique des excitons

Nous avons vu que sous certaines conditions les excitons (et les polaritons) pouvaient être décrits comme des bosons en faible interaction. Dans ce paragraphe nous allons discuter de la validité de cette approximation.

Du fait de la faible énergie de liaison et de la grande taille de l'exciton, son caractère bosonique est plus fragile que celui des atomes, en particulier pour des densités élevées de ses composantes fermioniques. Trois effets peuvent être distingués :

- **Remplissage de l'espace des phases.** Au fur et à mesure que la densité d'électrons et de trous augmente, l'espace des phases est occupé de manière significative. Le principe d'exclusion de Pauli intervient : les porteurs de même spin s'évitent, ce qui peut être pris en compte dans un formalisme à une particule par un terme dit d'échange de l'interaction coulombienne.
- **Ecrantage de la liaison excitonique.** L'interaction électron-trou au sein d'un exciton est écrantée par le gaz d'excitons qui l'entoure. L'énergie de liaison excitonique est alors affaiblie et le rayon de Bohr augmente. Au-delà d'une densité critique, dite densité de Mott, les excitons ne sont plus stables et se dissocient en

un plasma d'électrons et de trous.

- **Perte de cohérence.** Les interactions exciton-exciton et exciton-porteurs libres contribuent à l'élargissement homogène des transitions excitoniques, et affaiblissent donc la cohérence temporelle des excitons et des polaritons.

Ces trois effets deviennent prépondérants lorsque la densité d'excitons devient telle que $n.a_B^2 \sim 1$. La question du remplissage de l'espace des phases est la plus délicate à traiter rigoureusement. Dans l'approche de S. Schmidt-Rink *et al.*, la densité limite effective au-dessus de laquelle les excitons ne peuvent plus être considérés comme des bosons est appelée densité de saturation et, d'après [SR85], peut s'exprimer pour un gaz 2D d'excitons sous la forme :

$$n_{Sat} = \frac{7}{32\pi a_B^2}.$$

M. Combescot a posé des conditions plus drastiques en traitant les excitons comme des bosons composites en seconde quantification [Com01], et en calculant le commutateur suivant :

$$[b_k, b_k^\dagger] \simeq 1 - O(n.a_B^2). \quad (2.10)$$

Les critères ainsi déduits peuvent être inférieurs de plusieurs ordres de grandeur à la densité de Mott.

2.2.4 Transition de phase et décohérence

Les polaritons sont des quasi-particules bidimensionnelles faiblement interagissant qui ne peuvent pas présenter une vraie transition de phase vers une BEC [Mer66, Hoh67, Col73] (cf. section 2.1.4), mais plutôt une transition de phase superfluide Kosterlitz-Thouless pour une température inférieure à la température T_{BKT} [Kos73, Fis88, Loz06, Koi00].

Lorsque la densité de particules dépasse une densité critique, n_{crit} ($n_{crit} < n_{BKT}$, i.e., $T > T_{BKT}(n)$), les particules additionnelles s'accumulent dans l'état fondamental, d'énergie E_0 , et la concentration de particules condensées n_0 vaut $n_0 = n - n_{crit}$. La distribution en k de la densité approche une distribution bimodale comportant la partie thermique du gaz de Bose et la partie quasi-condensée. Ce comportement diffère de la situation d'un vrai condensat de Bose-Einstein (3D) qui possède une longueur de cohérence infinie. Ce n'est donc pas une vraie transition de phase, car la valeur du potentiel chimique μ n'est jamais égale à E_0 .

Lorsque la densité augmente au-delà de la densité de transition, $n > n_{BKT}$, i.e., $T < T_{BKT}(n)$, on peut éventuellement observer une distribution trimodale comportant les fractions thermique, quasi-condensée non superfluide et quasi-condensée superfluide.

Il est important d'ajouter que ces différentes transitions peuvent ne pas être expérimentalement visibles ou différenciables et dépendent fortement du système étudié. La superfluidité peut se manifester sous différentes formes comme l'apparition de vortex quantifiés [AS01, Uts08] ou d'une vitesse critique [Amo09a, Amo09b] (critère de Landau). Les études les plus récentes sur les polaritons de microcavités CdTe mettent en

évidence différents types de transitions de phase et leur diagramme de phase [Kas08]. L'existence de vortex ancrés en présence de désordre dans cette même cavité ne permet pas de conclure à la superfluidité du condensat [Lag08]. La présence de désordre joue également un rôle majeur dans la dynamique des polaritons et peut largement influencer le type de transition de phase observé [Ric05a, Kas06, Kas07].

La transition de phase est associée à l'apparition d'une fonction d'onde macroscopique $\Psi(r)$, qui est un nombre complexe, avec une amplitude, liée à la densité du condensat par $n = \|\Psi\|^2$, et une phase. Le Hamiltonien du système est invariant par un changement arbitraire de la phase de $\Psi(r)$. Cependant, à la transition de phase, cette symétrie est brisée et une phase spécifique définit l'ensemble du condensat de polaritons. $\Psi(r)$ est le paramètre d'ordre de la transition. Ce n'est plus le potentiel chimique μ qui est le paramètre d'ordre dans la BEC. Ainsi, un des critères de définition des superfluides [Leg01] est l'apparition d'une cohérence de phase spatiale macroscopique. Cela signifie que statistiquement, deux points de l'espace sont connectés par un chemin de phase cohérente, même si le reste de l'espace n'est pas décrit par une fonction d'onde avec une phase cohérente. Par conséquent, un régime superfluide peut exister sans l'existence d'une vraie BEC.

La cohérence spatiale, peut être détruite par de nombreux processus : les fluctuations quantiques, comme dans la transition isolant-Mott [Gre02, Jak98], ou les fluctuations thermiques, comme dans les gaz de Bose 1D [Ric03, Hel03] et dans les systèmes multi-puits [Gat06]. Dans les microcavités, la force des interactions entre polaritons, la présence de désordre photonique et le couplage au réservoir externe sont les principales causes de décohérence et font des polaritons un système fondamentalement hors équilibre.

2.3 Expériences sur les excitons

L'idée de BEC des excitons dans les solides fut élaborée il y a une quarantaine d'années dans les travaux de Moskalenko [Mos62], Blatt [Bla62], et Keldysh et Kozlov [Kel68]. La BEC excitonique a été étudiée dans plusieurs systèmes, dont les semi-conducteurs massifs [Han77, Com82, Sno90, Sno91, For93], et les puits quantiques [I.76, Zhu95, Sno02b, But02]. Selon leur densité et la température, les excitons se comportent comme un gaz de Bose interagissant faiblement ou un plasma d'électrons et de trous. Ainsi à faibles densités et basse température, les excitons sont de bons candidats pour observer une BEC.

En raison de leur long temps de vie, l'utilisation d'excitons "sombres" (non couplés à la lumière) semble préférable. C'est le cas par exemple des paraexcitons massifs dans Cu_2O [Sno90, Sno91, For93] dont le spin de l'état fondamental vaut 2 ou des excitons dans des puits quantiques couplés [I.76, Sno02b, But02] où l'électron et le trou sont séparés spatialement. Malgré tout, aucune réelle preuve de la condensation d'excitons

n'a été faite dans ces systèmes. Les difficultés d'une condensation de Bose d'excitons sont de deux types. Le premier est les imperfections intrinsèques des semiconducteurs. Du fait du désordre structural inévitable, les excitons sombres excités hors résonance sont souvent piégés dans des minima locaux du potentiel de désordre et peuvent difficilement être considérés comme des bosons libres capables de condenser. Le second est lié au problème de la détection du condensat. La meilleure preuve d'une condensation de Bose d'exciton serait l'émission de lumière cohérente par recombinaison spontanée des excitons condensés. Mais ce type de recombinaison est a priori interdit pour des excitons sombres.

C'est pourquoi, en pratique, l'étude des polaritons de microcavités (2D) est mieux adaptée car le couplage à la lumière permet d'obtenir des informations directement reliées aux propriétés thermodynamiques du condensat, ainsi qu'à sa cohérence.

2.4 Expériences sur les polaritons

Parmi les travaux réalisés sur les polaritons 2D de microcavité, nous distinguerons dans cette section les études en excitation résonante, mettant en évidence la nature bosonique des polaritons et les processus paramétriques que permet leur courbe de dispersion particulière, et les études en excitation non-résonante, destinées à mettre en évidence la formation spontanée d'un condensat de polaritons.

2.4.1 Processus paramétriques optiques : démonstration de la nature bosonique des polaritons

Une excitation résonante donne lieu à des processus paramétriques et non-linéaires des polaritons. Leur courbe de dispersion $E(\vec{k})$ (cf. figure 2.3) présente un point d'inflexion et permet de réaliser l'équivalent pour les processus paramétriques de l'"accord de phase" tel que défini pour les cristaux non-linéaires [Ste00, Hou00, Ciu01]. Nous distinguerons les expériences à deux faisceaux laser d'amplification paramétrique et les expériences à un faisceau, de photoluminescence paramétrique. Dans un processus d'oscillation paramétrique, deux polaritons identiques créés par la pompe diffusent de manière résonante en une paire de polaritons "signal" et "complémentaire", du fait de la conservation de l'énergie totale et de la quantité de mouvement. La diffusion paramétrique est un processus de mélange d'ondes et, par conséquent, n'a pas trait directement à la BEC au sens thermodynamique du terme. Nous devons toutefois souligner que le cas particulier de la photoluminescence paramétrique présente une grande analogie avec la BEC. Dans le cas de l'amplification paramétrique, le processus est stimulé par un faisceau laser qui sonde en résonance le polariton signal.

En photoluminescence paramétrique, au contraire, seul l'état pompe est excité par le laser. Récemment, Savona *et al.* ont décrit la façon dont le polariton signal impliqué dans la photoluminescence paramétrique peut subir une transition caractérisée par une

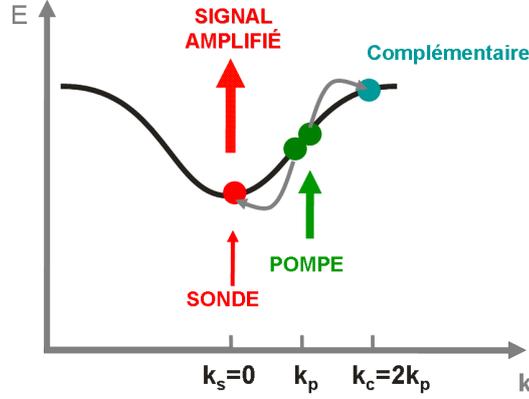


FIGURE 2.3 – Schéma d'un processus paramétrique dans une microcavité. Le faisceau pompe incident crée des polaritons à $\vec{k} = \vec{k}_p$. Le faisceau sonde initie la diffusion paramétrique vers l'état signal ($\vec{k}_s = \vec{0}$) et l'état complémentaire ($\vec{k}_c = 2\vec{k}_p$), et est ainsi amplifié.

rupture de symétrie similaire à une BEC [Sav05]. Une analyse de cet état quantique dans le cadre de la théorie de Gross-Pitaevskii [Pit03] adaptée au cas des polaritons, montre qu'un comportement collectif survient spontanément au-delà du seuil d'émission paramétrique, et que la dispersion des polaritons évolue du comportement de la particule unique à celui d'un superfluide [Car04, Car05].

2.4.2 Observation d'une quasi-condensation des polaritons

Juste après les travaux théoriques de Imamoglu *et al.* en 1996, il était généralement admis au sein de la communauté que la condition pour observer la BEC de polaritons serait l'apparition d'une population macroscopique en $\vec{k} = \vec{0}$ par stimulation bosonique de la relaxation vers cet état. En réalité, comme nous l'avons vu précédemment, l'accumulation de polaritons en $\vec{k} = \vec{0}$ n'est que la première étape vers la BEC, la seule vraie signature de la transition de phase étant l'apparition d'une cohérence de phase à longue portée. Néanmoins, les premières expériences ont été consacrées à l'observation de la stimulation de la relaxation par l'état final [Dan98, Bau00, Boe00, Hua00, Sav00] et à l'occupation de l'état de plus basse énergie [Cao97, Sen99, Das00, Hou00] alors que la formation de la cohérence n'a été étudiée expérimentalement que très récemment.

Il est important de souligner que toutes les observations expérimentales sur les systèmes de polaritons sont faites optiquement. En effet, le déclin radiatif d'un polariton aboutit à l'émission d'un photon. La mesure de l'énergie et de l'angle d'émission des photons donne directement les informations sur l'énergie et le vecteur d'onde des polaritons, et donc sur leur distribution statistique dans l'espace réciproque. En outre, la cohérence spatiale et temporelle de la lumière émise, qui peut être mesurée à l'aide de dispositifs interférométriques, est directement liée à la cohérence des polaritons.

Mesure de la distribution statistique des polaritons et de la dégénérescence du condensat Une preuve claire de la stimulation par l'état final a été donnée en excitant le système hors résonance, avec un laser de pompe en régime continu, à l'énergie du continuum électron-trou [Dan98, Sen99, Boe00]. Une augmentation non linéaire de l'émission des polaritons basse énergie en fonction de l'intensité de la pompe a été observée, lorsque l'intensité d'excitation dépasse un certain seuil. Il a été démontré que, en régime stationnaire, et au-dessus de ce seuil, le mécanisme de relaxation est stimulé, et suffisamment efficace pour créer une occupation macroscopique de l'état de plus basse énergie.

Les travaux ont ensuite porté sur la mesure complète de la distribution statistique des polaritons le long de la branche basse, par l'analyse de la photoluminescence résolue en angle. Ils ont montré la transition depuis une distribution de Maxwell-Boltzmann vers une distribution de Bose des polaritons au seuil d'émission non-linéaire [Den02, Kas06, Bal07]. La figure 2.4 montre l'intensité de l'émission mesurée, en fonction du vecteur d'onde et de l'énergie de la lumière, pour des intensités d'excitation croissantes : les polaritons condensent en $\vec{k} = \vec{0}$. Ces résultats font écho à ceux obtenus dans le cas de la BEC d'atomes dilués [And95a, Dav95, Bra95]. Il est important de souligner que la température effective des polaritons (extraite de la distribution statistique mesurée) est généralement plus grande que la température de l'échantillon. La thermalisation, condition nécessaire de la BEC, est réalisée par des collisions polariton-polariton dans le cas des polaritons dans les cavités GaAs et CdTe. Le couplage avec les phonons du cristal est trop faible pour permettre une thermalisation avec l'ensemble du cristal.

Le **désordre** joue un rôle important dans la dynamique de condensation. Dans le cas des microcavités CdTe [Ric05b], les premières études ont été réalisées dans des conditions telles que le système ne relaxe pas vers l'état de plus basse énergie mais vers des états avec un vecteur d'onde non nul. Il est probable que la grande quantité de désordre dans cette microcavité et l'utilisation d'un très petit spot laser d'excitation influence ce résultat, inhibent la relaxation vers le véritable minimum d'énergie et produisent la formation d'un quasi-condensat à une énergie plus élevée. Les travaux suivants de Richard *et al.* [Ric05a] semblent confirmer ce comportement. En effet, en utilisant un plus grand spot d'excitation, et en produisant donc une population initiale plus homogène dans l'espace, le système relaxe vers l'état de plus basse énergie. Fait intéressant, l'émission est très fine en $\vec{k} = \vec{0}$ dans l'espace de Fourier, alors que, dans l'espace réel, elle est fragmentée en plusieurs spots. Les microcavités à base de GaAs, dont le désordre est plus faible, sont prometteuses en vue d'une complète caractérisation de la BEC des polaritons et en particulier pour approcher une véritable condensation à l'équilibre [Den06, Den07, Bal07]. Enfin, le désordre peut être en partie contrôlé dans des structures de micropiliers ou de mésas confinant le champ électromagnétique et donc les polaritons dans de petites régions homogènes [ED06, Kai06, Baj07].

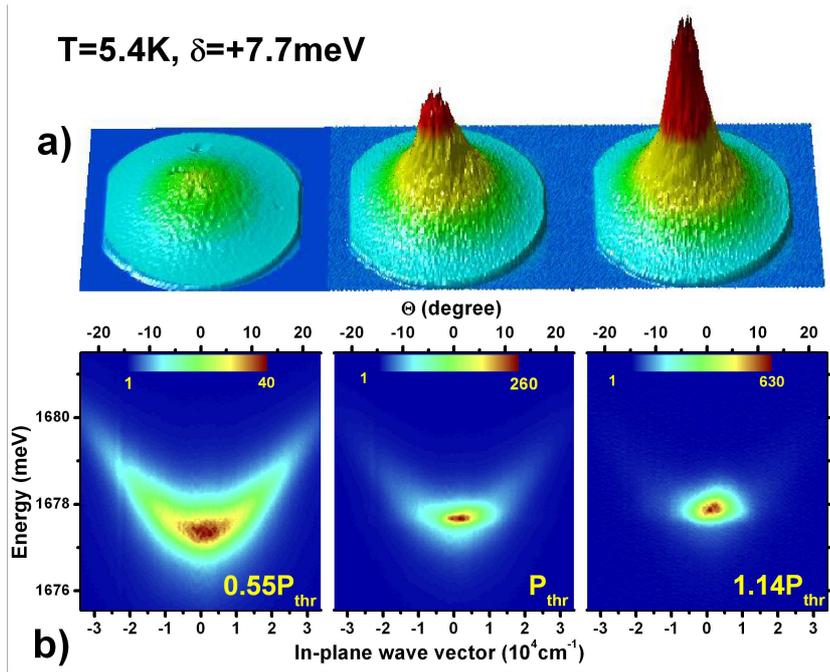


FIGURE 2.4 – Mise en évidence de la condensation en $\vec{k} = \vec{0}$ dans une microcavité CdTe [Kas06]. Émission en champ lointain mesurée à $T = 5.4 \text{ K}$ pour trois intensités d'excitation : 0 , $0.55P_{thr}$ (panneaux de gauche), P_{thr} (panneaux au centre), et $1.14P_{thr}$ (panneaux de droite); $P_{thr} = 1.67 \text{ kW cm}^{-2}$ est le seuil de puissance pour la condensation. (a) Au fur et à mesure que la puissance d'excitation augmente, un pic fin et intense se forme au centre de la distribution d'émission ($\theta_x = \theta_y = 0$), correspondant à l'état fondamental $\vec{k}_{\parallel} = \vec{0}$. (b) Courbe de dispersion $E(k)$ des polaritons correspondant aux données de (a). En-dessous du seuil (à gauche), l'émission est distribuée sur tous les vecteurs d'onde et toutes les énergies de la courbe de dispersion. Au-dessus du seuil, l'émission provient presque exclusivement de l'état énergétique le plus bas $\vec{k}_{\parallel} = \vec{0}$ (panneau de droite). Un blue-shift de $0,5 \text{ meV}$, inférieur à $\hbar\Omega_R$, est observé pour l'état, ce qui indique que la microcavité est en régime de couplage fort.

Mesure de la cohérence du condensat Comme nous l'avons expliqué, la BEC est un processus où un état quantique est macroscopiquement peuplé et présente une corrélation de phase à partir d'un gaz (thermique) de particules. Il est crucial que cette cohérence spatiale se construise spontanément lors de la condensation. Dans les semi-conducteurs, une excitation haute énergie des paires électrons-trous est suivie par une relaxation de l'énergie par l'interaction avec un bain thermique de phonons. La cohérence initiale induite par l'excitation laser est donc perdue après interaction avec les phonons. Et nous pouvons raisonnablement supposer que si une corrélation est présente dans le condensat, cela est dû au mécanisme de BEC.

La première preuve de la formation de la **cohérence du 1er ordre** a été signalée par Richard *et al.* [Ric05b], dans une microcavité à base de semi-conducteurs CdTe. L'objectif était de montrer que la longueur de cohérence de l'émission augmente au seuil de condensation, et dépasse alors la longueur d'onde thermique de de Broglie. Cette étude ne donne pas accès directement à la longueur de cohérence des polaritons, mais à une mesure qualitative de leur cohérence spatiale, i.e. le contraste des tavelures (speckle) de leur émission. Par la suite, le travail de Kasprzak *et al.* [Kas06] a donné la preuve de la dégénérescence quantique et de la formation de corrélations à longue portée à la densité seuil. Dans cette expérience d'interférométrie, les polaritons manifestent en même temps une distribution de l'énergie hautement dégénérée et un ordre à longue portée défini sur des distances bien supérieures à la longueur thermique.

Auparavant, Deng *et al.* avaient tenté de montrer l'apparition d'une **cohérence du 2nd ordre** [Den02]. Dans le cas de la BEC d'un gaz de Bose en interaction faible, on pourrait s'attendre, autour du seuil de transition, à un changement rapide de la corrélation temporelle du second ordre de la valeur de 2, prévue pour une population thermique, à une valeur légèrement plus grande que 1, indiquant la formation d'un état cohérent [Lau04]. Les résultats montrent que, la corrélation temporelle du second ordre $g^{(2)}(\tau = 0)$, pour un délai nul, diminue lentement à partir d'une valeur de 1,8 légèrement au-dessus du seuil, à 1,5 pour une intensité de la pompe 17 fois plus grande que l'intensité seuil. Pour ces raisons, les observations rapportées dans cette étude ne sont pas une signature claire de la BEC de polaritons. L'étude plus récente de Kasprzak *et al.* [Kas08] montre une évolution de la cohérence du 2nd ordre, correspondant à la transition vers une phase condensée, dans une plage d'intensité d'excitation très restreinte autour du seuil de condensation.

2.5 Le laser à polaritons

2.5.1 Définition

La création d'un condensat de polaritons au sein d'une microcavité ouvre la voie à la réalisation de dispositifs à bas seuils similaires à des lasers [Ima96], appelés de fait lasers à polaritons. En effet, comme nous l'avons vu, l'apparition d'une transition de phase en $\vec{k} = \vec{0}$ est caractérisée par une population macroscopique et cohérente de polaritons

dans l'état de plus basse énergie. Ainsi, l'émission de lumière par le condensat est alors cohérente, monochromatique et directionnelle, ce qui est similaire à une émission laser. Notons que la création d'un tel condensat peut avoir lieu dans une situation totalement hors d'équilibre, pourvu que la relaxation des polaritons puisse se faire depuis le réservoir jusqu'en bas de la branche basse. La définition du laser à polaritons est donc plus large que celle de la condensation de Bose.

Le processus d'amplification du laser à polaritons est toutefois physiquement très différent du processus laser classique [Sch58]. Ce dernier repose sur la stimulation de l'émission d'un émetteur par le nombre de photons présents dans le mode optique de la cavité. Cet effet a donc lieu dans un régime de couplage faible entre l'émetteur et le photon. En particulier, le seuil laser dépend dans les lasers classiques de l'inversion de population, alors qu'il ne dépend que du temps de vie des polaritons de l'état fondamental dans le cas du laser à polaritons. Lorsque la relaxation des polaritons vers le condensat devient plus rapide que le temps de recombinaison radiative des polaritons, l'émission est amplifiée. Notons que l'absorption et la ré-absorption de la lumière est intrinsèquement prise en compte dans la description polaritonique, alors que dans un laser conventionnel, l'absorption doit être équilibrée par l'émission stimulée, qui requiert l'inversion de population. Du simple fait que l'état quantique photon pur n'est pas un état propre du système en régime de couplage fort, il ne peut y avoir d'émission stimulée de photons. Le laser à polaritons ne nécessite pas à strictement parler d'inversion de population. En effet le régime de couplage fort permet au grand réservoir d'états excitoniques, qui fournissent le gain, d'exister à des énergies supérieures à celle de l'émission des polaritons. La diffusion des polaritons sépare les processus d'émission et d'absorption, contrairement au laser conventionnel. De fait, le gain du laser à polaritons ne requiert pas une grande densité de porteurs. Ainsi le seuil de la puissance de pompe et la consommation d'énergie prévue pour les lasers à polaritons sont plus faibles que pour les lasers conventionnels.

2.5.2 Régime de fonctionnement

L'effet laser à polaritons a à ce jour été observé dans les microcavités GaAs, CdTe et GaN. Le système est pompé optiquement hors résonance, i.e., les photons de pompe injectent des paires électrons-trous à haute énergie dans le continuum d'absorption du milieu actif de la cavité. Ces porteurs vont rapidement se lier pour former des excitons, puis relaxer jusqu'à la région du bottleneck et éventuellement jusqu'en bas de la branche de polaritons. Au-delà de la densité critique, l'état de plus basse énergie présente une occupation macroscopique et le système devient un laser à polaritons. La non-linéarité de l'émission a été observée expérimentalement [Sen00, But06, Tar00]. La réduction du cône de lumière au-delà du seuil ainsi que l'affinement de la raie d'émission sont une signature de la nature cohérente du condensat. Des différences ont été observées entre le laser à polaritons et le laser conventionnel : au fur et à mesure que l'on augmente la puissance de pompe, l'émission du condensat, détectée en incidence normale, se décale

vers les hautes énergies (blueshift) du fait de l'interaction polariton-polariton. Ce décalage permet d'ailleurs de mesurer le peuplement macroscopique de l'état fondamental.

Le laser à polariton fonctionne bien jusqu'à ce que l'élargissement de la transition excitonique liée à l'augmentation de la densité de porteurs soit comparable au couplage de Rabi et finisse par détruire le régime de couplage fort. Il est alors possible d'observer une seconde non-linéarité dans l'émission qui correspond au régime laser en couplage faible dont la cohérence est maintenant construite sur la population de photons, i.e. un VCSEL (Vertical cavity surface emitting laser) [Baj08](figure 2.5).

Notons que lorsqu'il n'est pas possible de détecter successivement les deux seuils laser en fonction de la puissance d'excitation, il peut être difficile de distinguer un laser à polaritons d'un laser conventionnel. La thermalisation des polaritons détectés par des expériences de photoluminescence résolue en angle a longtemps été considérée comme un critère clé. Cependant, une telle dépendance en angle de la photoluminescence a aussi été observée dans un laser à photon [Baj07]. La cohérence spatiale de l'émission des polaritons démontrée par J. Kasprzak *et al.* [Kas06] est caractéristique également de l'émission des lasers à photons. Le meilleur critère semble être l'énergie de l'émission : en régime de laser à polaritons, elle est égale à celle de la branche basse polaritonique alors qu'elle se décale vers celle du photon nu dans le régime VCSEL. Plus récemment, dans les microcavités GaN, il a été observé que la polarisation de l'émission d'un laser à polaritons est linéaire et s'oriente de manière aléatoire et spontanée [Bau08], ce qui constitue la signature d'une brisure de symétrie dans le système. Ce n'est pas le cas dans les cavités GaAs et CdTe, dans lesquelles la polarisation de l'émission laser est ancrée sur une direction cristallographique particulière en raison de l'anisotropie des contraintes.

2.5.3 Vers le laser à polaritons à température ambiante

2.5.3.1 Nécessité des matériaux à grande bande interdite

Le régime de laser à polaritons disparaît lorsque l'énergie thermique kT devient plus grande que l'énergie de liaison de l'exciton et/ou que celle du dédoublement de Rabi. Dans le premier cas l'exciton est ionisé. Le système est alors constitué d'une mer d'électrons et de trous en faible interaction, rendant le couplage entre le mode de cavité et l'exciton improbable. Dans le second cas, les états de polaritons résultant du couplage fort ne sont plus isolés. Cela revient à élargir les modes de telle sorte que la condition de couplage fort donnée par l'équation 1.43 n'est plus vérifiée. Notons cependant qu'une diode à polaritons fonctionnant à température ambiante a été réalisée dans une microcavité GaAs [Tsi09], malgré une énergie de liaison et un couplage de Rabi de l'ordre de 5 meV.

Ainsi les phénomènes non-linéaires sont limités aux basses températures dans les matériaux GaAs et CdTe [Baj08, Kas06]. Un des meilleurs moyens pour augmenter de façon conséquente (jusqu'à température ambiante) la température critique T_c permettant

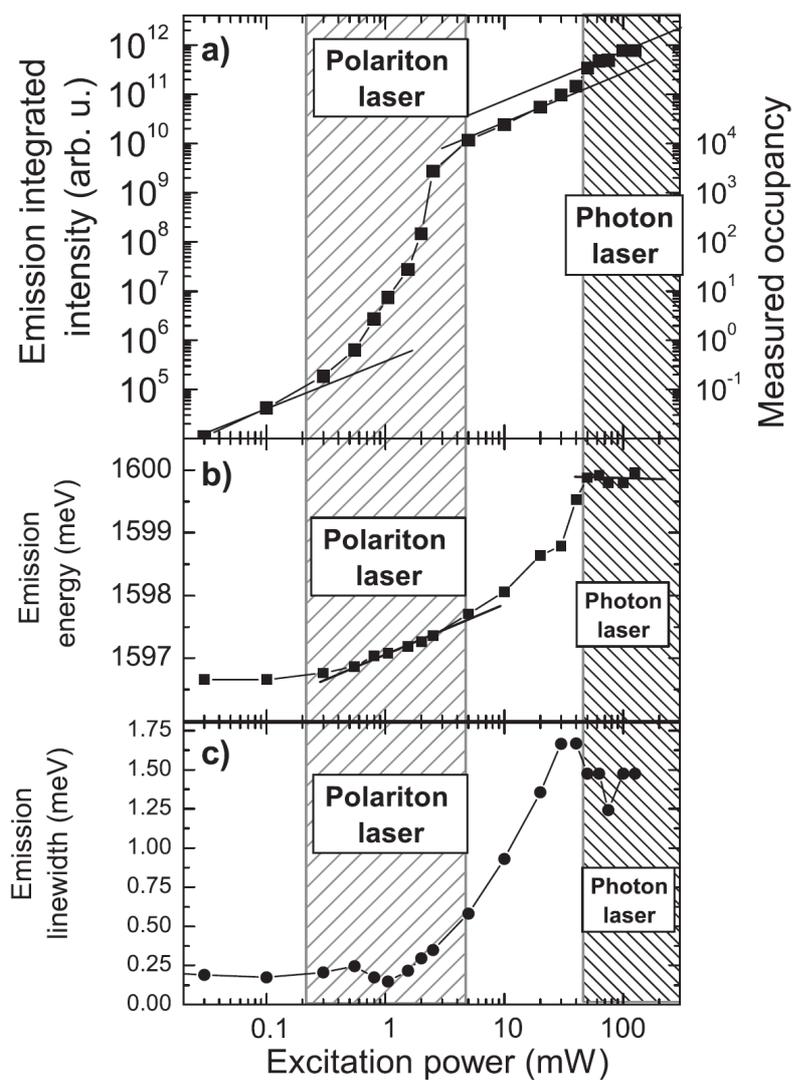


FIGURE 2.5 – Régimes d'émission du laser à polariton et du laser à photon dans une microcavité GaAs à puits quantiques [Baj08]. (a) Intensité intégrée et occupation mesurée, (b) énergie d'émission et (c) largeur de raie d'émission mesurée sur le pic basse énergie en fonction de la puissance d'excitation. Les zones hachurées mettent en évidence les régions de fonctionnement du laser à polaritons et du laser à photon.

d'atteindre le seuil laser des polaritons consiste à utiliser des semiconducteurs possédant des excitons avec une grande énergie de liaison (Ry^*) et une grande force d'oscillateur. Ces conditions sont présentes dans les semiconducteurs à large bande interdite comme GaN ou ZnO [Mal02, SC08, Zam02]. En particulier, dans ZnO, comme nous l'avons vu au chapitre 1, l'énergie de liaison de l'exciton peut dépasser 60 meV , et on prévoit la réalisation des plus importants dédoublement de Rabi connus dans des microcavités inorganiques (cf. Chapitre 3). Notons que l'utilisation de matériaux organiques dans des microcavités, comme les molécules de perovskites, ont permis d'observer le régime de couplage fort à température ambiante, avec des dédoublements de Rabi bien plus importants, de l'ordre de 230 meV [Lan08]. Cette voie émergente offre une alternative prometteuse aux microcavités inorganiques.

L'augmentation de la température ne s'accompagne pas que d'inconvénients. La relaxation par l'interaction avec les phonons acoustiques devrait être plus efficace qu'à basse température. Cela doit permettre, à température ambiante, de s'affranchir de l'effet de goulot d'étranglement (bottleneck), et ainsi d'atteindre plus facilement les conditions de condensation des polaritons.

2.5.3.2 Diagramme de phase des polaritons dans une microcavité ZnO

Le diagramme de phase des polaritons dans une microcavité ZnO, issu des travaux de Zamfirescu *et al.*, est présenté sur la figure 2.6. Le calcul est fait pour un système à l'équilibre thermodynamique. La ligne en trait plein montre la densité critique n_c de formation de la phase condensée des polaritons. Le trait horizontal montre la transition de Mott des excitons, i.e. leur limite de stabilité liée à l'écrantage par le plasma électrons/trous (cf section 2.2.3). La densité d'écrantage dépend principalement du rayon de Bohr a_B . Pour les excitons 3D des cavités massives, cette densité vaut typiquement $n_{ec} = (L/2a_B)(1/4a_B^2)$, où $L/2a_B$ représente le nombre de plans d'excitons qui peuvent remplir la microcavité de largeur L [Zam02]. Le trait vertical pointillé correspond à la limite de dissociation thermique T_{th} des excitons déterminée par l'énergie de liaison excitonique $E_B = k_B T_{th}$. La température critique, température maximale pour laquelle la densité critique peut être obtenue en régime de couplage fort, est ici supérieure à 500 K !

Le diagramme de phase donne les différents régimes de fonctionnement : au-dessous de la courbe de la densité critique décrite par la relation (2.8), la microcavité fonctionne comme une diode à polaritons en régime de couplage fort. Dans le régime de couplage faible, au-delà de la limite de dissociation thermique, le dispositif se comporte comme une diode électroluminescente conventionnelle. L'émission lumineuse provient de la recombinaison des électrons et des trous non-liés. Au-dessus de la densité d'écrantage excitonique, l'émission est gouvernée par les mécanismes de recombinaison du plasma électrons-trous. La microcavité se trouve dans le régime de couplage faible et le dispositif se comporte de manière similaire à un laser conventionnel de type VCSEL. Ce diagramme permet donc d'identifier clairement les limites du régime de fonctionnement du laser à polaritons.

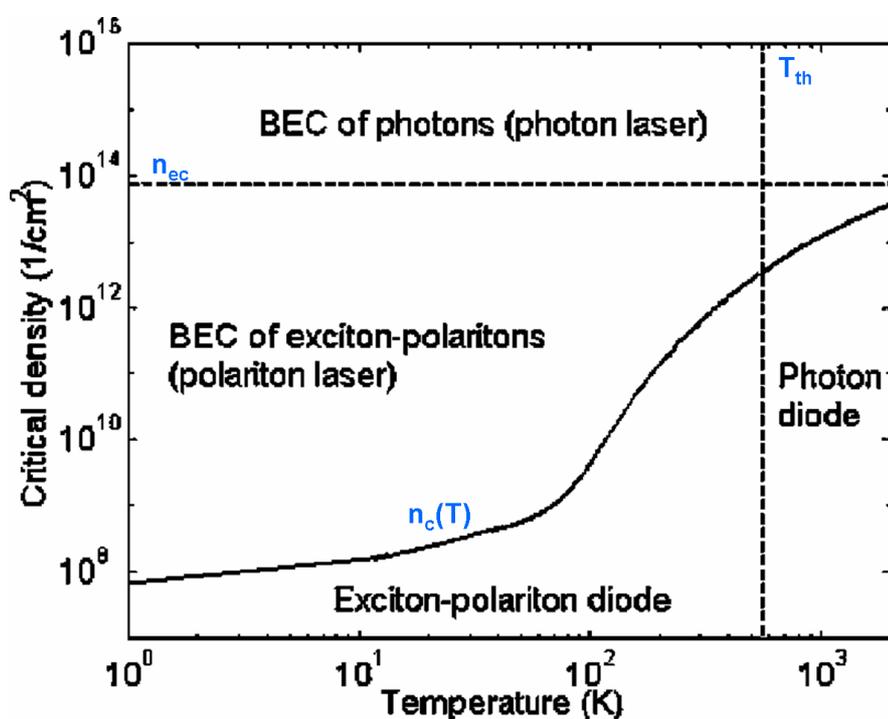


FIGURE 2.6 – Diagramme de phase des polaritons dans une microcavité ZnO à l'équilibre thermodynamique [Zam02]. La ligne pleine indique la densité critique n_c de polaritons en fonction de la température. La ligne pointillée verticale indique la limite de dissociation thermique T_{th} de l'exciton. La ligne pointillée horizontale indique la densité n_{ec} à la transition de Mott pour les excitons.

2.5.3.3 Etat de l'art expérimental

Le couplage fort à température ambiante a récemment été mis en évidence dans les microcavités à base de GaN [AV03, But06]. Dans ces structures, le dédoublement de Rabi peut varier de 40 à 55 meV. Le régime laser à polaritons a été observé à température ambiante dans une microcavité GaN [Chr08, Chr07, Bau08] : ces expériences ont montré la non-linéarité de l'émission, sa cohérence spatiale, et le caractère aléatoire de la polarisation du condensat. Cependant les deux transitions non-linéaires dues au régime laser à polaritons et laser conventionnel ne sont pas observables en raison de la fragilité du miroir diélectrique supérieur : des densités d'excitation plus importantes que leur seuil de dommage sont a priori nécessaires.

En parallèle les progrès technologiques sur ZnO [Ozg05, Nob04] ont permis à différents groupes de mettre en évidence le régime de couplage fort à température ambiante [Shi08, SG07, SG08, Nak08, Méd09b], confirmant la possibilité d'obtenir des dédoublements de Rabi pouvant atteindre 80 meV, soit près de deux fois les valeurs obtenues dans les meilleurs échantillons à base de GaN. D'autres dispositifs alternatifs basés sur la technologie ZnO, comme les micropilliers ou les microdisques, ont permis l'observation du régime de couplage fort à température ambiante [Sun08, vV06].

2.5.3.4 Prévisions théoriques pour les microcavités ZnO

Le diagramme de phase présenté à la figure 2.6 s'écarte notablement de la situation réelle dans les microcavités ZnO, dont les facteurs de qualité actuels sont faibles (de l'ordre de 100). Le temps de vie des photons y est très court, et le système de polaritons est a priori très loin de l'équilibre thermodynamique. Johne *et al.* ont calculé dans un modèle cinétique la densité critique de polaritons permettant d'atteindre le régime laser en fonction du facteur de qualité de la cavité et du désaccord [Joh08]. Ces travaux théoriques, les seuls réalisés actuellement pour les cavités ZnO, nous donnent un repère quant aux expériences que nous avons réalisées. La figure 2.7 montre les résultats de leurs calculs, ainsi que ceux obtenus dans l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique. Les conclusions principales sont les suivantes : (i) le seuil diminue lorsque l'énergie de Rabi augmente ; (ii) un facteur de qualité de l'ordre de 100 est nécessaire pour atteindre le régime laser, dans des conditions toutefois très éloignées de l'équilibre thermodynamique ; (iii) le seuil est plus faible à detuning négatif.

2.6 Conclusion

Les polaritons, construits à partir des photons et des excitons, sont des bosons composites et se comportent comme un gaz de Bose en faible interaction pour de faibles densités. Ils sont donc de bons candidats pour l'obtention d'effets de condensation. Ce chapitre nous a permis de faire une revue des propriétés générales des condensats de Bose-Einstein, en partant de l'exemple des atomes froids, jusqu'aux particularités des condensats de polaritons en microcavité.

Les condensats de polaritons possèdent quatre spécificités :

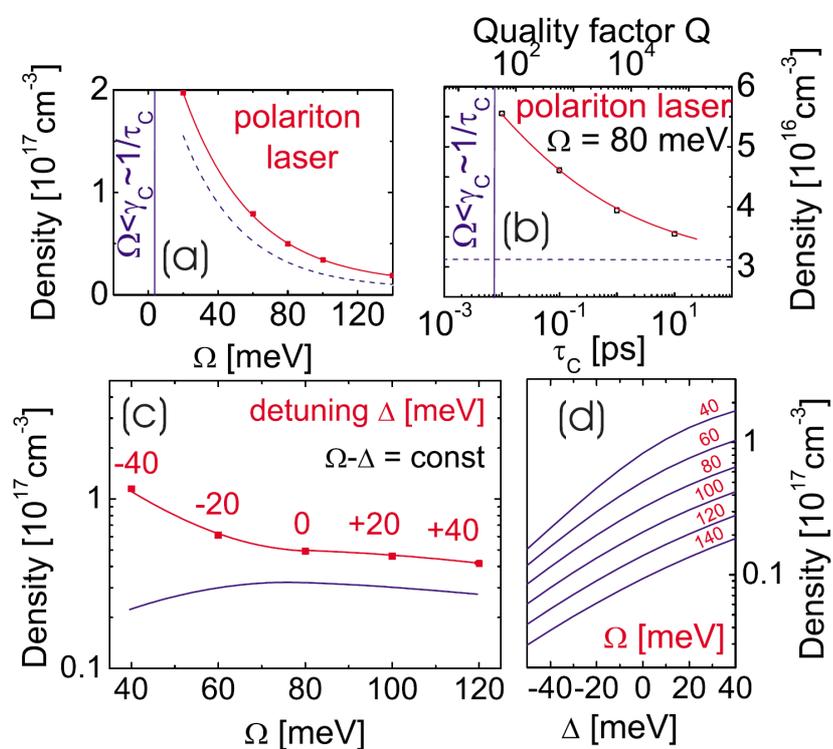


FIGURE 2.7 – Densité seuil du laser à polaritons dans une microcavité ZnO, dans un modèle hors d'équilibre [Joh08]. L'influence des paramètres est étudiée : énergie de Rabi (a), facteur de qualité (b), Detuning (c et d). Le seuil thermodynamique tel que calculé dans la figure 2.6 est présenté en pointillé bleu sur (a) et (b), et en trait bleu sur (c).

- **La masse effective** des polaritons étant bien plus petite, du fait de sa composante photonique, que celle des atomes ou des excitons, une transition de phase est possible à une température cryogénique, voire ambiante.
- Les polaritons possèdent une **durée de vie finie**, contrairement au gaz idéal de Bose sans interaction.
- De plus, ils constituent un **système ouvert** et interagissent avec le réservoir. De fait la population de polaritons est le plus souvent **loin de l'équilibre thermodynamique**.
- Les polaritons peuvent se dissocier ou *perdre leur caractère bosonique* à forte densité. Au-dessus de la densité de Mott, la liaison excitonique est écrantée et les excitons sont ionisés.

Les techniques de spectroscopie résolue en angle permettent de mesurer directement les relations de dispersions des polaritons, leur distribution statistique ainsi que la cohérence des polaritons.

La possibilité de pouvoir étudier une transition de phase de bosons à température ambiante ouvre la voie à la réalisation de nombreuses applications technologiques, dont le laser à polaritons. Ce dispositif est appelé laser car il en possède les principales caractéristiques qui sont l'émission d'une lumière cohérente, monochromatique et directionnelle. Pour autant son principe de fonctionnement ne repose aucunement sur l'émission stimulée et l'inversion de population, comme c'est le cas dans un laser conventionnel. L'émission de lumière provient du condensat de polaritons et porte en elle toutes les caractéristiques spectrales de cohérence, de direction et de polarisation de ce dernier.

Les matériaux à large bande interdite comme GaN et ZnO possèdent une énergie de liaison et une force d'oscillateur suffisamment grande pour pouvoir envisager une condensation de polaritons à température ambiante. Nous avons exposé les différentes prévisions théoriques, réalisées à ce jour pour les microcavités ZnO, qui donnent le diagramme de phase des polaritons et les différents paramètres (dédoublé de Rabi, désaccord, température et densité de polaritons) qui permettraient la réalisation d'un laser à polaritons à température ambiante.

Chapitre 3

Optique linéaire dans les microcavités ZnO

La réalisation du couplage fort est la condition *sine qua non* pour observer des effets collectifs de polaritons. L'étude approfondie de la physique des polaritons et des transitions de phase, présentée au chapitre 2 laisse penser que le couplage fort est une formalité bien maîtrisée. Il n'en est rien. Le couplage fort est aujourd'hui relativement bien maîtrisé dans les microcavités GaAs car ce matériau fait l'objet d'études depuis plusieurs décennies. Les microcavités basées sur GaN sont étudiées depuis une dizaine d'années et la première démonstration du couplage fort ne s'est faite que récemment [AV03]. La croissance épitaxiale de couche de ZnO sur saphir (0001) a été montrée pour la première fois en 1997 [Che97]. Cependant les premiers rapports de microcavités ZnO ne datent que de 2008 [Shi08]. S'inspirant des progrès de la croissance et de la compréhension dans les matériaux qui la précèdent, la technologie ZnO connaît une avancée rapide qui a permis de mettre en évidence le couplage fort très récemment [Shi08, SG08, Nak08, Che09, Méd09b].

Toutefois, à l'image des matériaux à grande bande interdite, le ZnO possède plusieurs spécificités qui doivent être prises en compte et qui le différencient notablement des autres matériaux. Nous avons choisi le ZnO pour ses propriétés excitoniques qui semblent présenter de nombreux avantages pour la réalisation du couplage fort (Chapitre 1) et la condensation des polaritons (Chapitre 2). Ces mêmes propriétés peuvent être toutefois source de problèmes si on n'y prend pas garde. La première section est donc consacrée à l'étude des spécificités du ZnO. Dans un premier temps nous comparons à l'aide de simulations le couplage fort dans ZnO au couplage fort dans des matériaux bien connus comme GaAs et GaN. Puis nous présenterons les particularités du couplage fort dans ZnO liées notamment à l'existence de plusieurs transitions excitoniques, à la grande force d'oscillateur des états excités de ces dernières et à la forte absorption du matériau. D'autre part nous discuterons de la mesure du couplage exciton-photon qui requiert une interprétation détaillée des spectres expérimentaux. Et finalement, nous verrons le rôle de l'élargissement inhomogène sur les spectres de réflectivité.

La seconde section est consacrée aux problèmes de croissance et à la structure des échan-

tillons. Il existe aujourd'hui de nombreuses techniques de croissance et nous discuterons de deux d'entre elles qui sont largement utilisées pour la croissance des microcavités : l'épitaxie par jet moléculaire (Molecular Beam Epitaxy) et l'ablation par laser pulsé (Pulsed Laser Deposition). La structure cristalline des matériaux, la rugosité aux interfaces, l'accord de maille, le contraste d'indices, l'absorption des couches et la maîtrise de leurs épaisseurs sont autant de problèmes à résoudre qui influent sur la qualité optique de la microcavité, le désaccord, le dédoublement de Rabi, ou encore le temps de vie des polaritons par l'intermédiaire de ses constituants excitonique et photonique. Depuis la technique de croissance utilisée jusqu'à la structure des miroirs de Bragg en passant par le choix du substrat, nous allons passer en revue l'ensemble des problématiques qui permettront d'obtenir un échantillon satisfaisant en vue de la réalisation du couplage fort à température ambiante.

La caractérisation des échantillons et la mise en évidence du couplage fort sont détaillées dans la dernière section. Nous avons étudié deux types de microcavités : les microcavités comportant un miroir métallique supérieur et les microcavités semi-hybrides comportant deux miroirs diélectriques différents. Une étude systématique de la réflectivité et de la photoluminescence en fonction du désaccord et de l'angle à la normale de l'échantillon a permis de mettre en évidence l'anti-croisement des modes de polaritons qui est une signature du couplage fort. L'observation du couplage fort en réflectivité n'est toutefois pas suffisant et la PL permet d'évaluer si les polaritons sont de bons candidats à l'étude d'effets collectifs et possèdent les propriétés requises détaillées dans le chapitre 2.

3.1 Spécificités des microcavités ZnO

Cette section a pour but de comparer les modes propres de polaritons et les spectres optiques de microcavités massives similaires à base de GaAs, GaN et ZnO. Nous considérons comme système modèle des cavités d'épaisseur optique λ avec des facteurs de qualité du mode de cavité similaires. Nous développons une approche basée sur les matrices de transfert et le modèle d'oscillateurs couplés (section 1.3.1), qui comprend tous les termes qui sont d'intérêt pour les matériaux à large bande interdite. Nous comparons les spectres de réflectivité pour les trois matériaux étudiés, ainsi que les états propres des polaritons et le facteur de qualité de la branche basse. Ces simulations peuvent être utiles pour la comparaison avec les résultats expérimentaux obtenus sur les microcavités massives GaAs, GaN et ZnO.

Nous discutons en particulier du type de couplage fort qui peut être attendu dans les microcavités à grande bande interdite, et de la quantité qui décrit le mieux la force de ce couplage. En effet, il existe trois façons de prouver le régime de couplage fort dans les microcavités : (i) un dédoublement en énergie des creux en réflectivité si la force d'oscillateur et le confinement spatial des photons sont suffisamment forts ; (ii) des oscillations de Rabi qui sont l'équivalent dans le domaine temporel du dédoublement et apparaissent seulement si les branches haute et basse de polaritons sont isolées des autres résonances

et bien définies ; et enfin (iii) des phénomènes comme la condensation de Bose-Einstein ou la diffusion paramétrique qui nécessitent seulement la branche basse de polaritons (LPB). Dans ce dernier cas, le rôle de la microcavité est de produire une branche basse isolée spectralement, avec des contributions équilibrées exciton et photon. Toutefois, nous allons montrer ci-dessous que la branche supérieure de polaritons (UPB) n'est observable dans les microcavités à base de ZnO que pour des couches actives très fines ($\lambda/4$), car sa cohérence est amortie par l'absorption des états de diffusion de l'exciton. Dans la dernière partie de cette section, nous étudions le rôle de l'élargissement inhomogène sur les spectres optiques.

3.1.1 Comparaison entre microcavités à base de GaAs, GaN et ZnO

Les spectres de réflectivité expérimentaux des microcavités constituées de semiconducteurs à large bande interdite [But06, Shi08, Sel06, AV03] sont dominés par l'élargissement inhomogène et peuvent sembler plus complexes que le cas simple de GaAs. C'est pourquoi nous avons d'abord étudié les propriétés intrinsèques de microcavités massives avec un faible élargissement inhomogène. Cette thèse étant consacrée aux microcavités de ZnO massif, nous ne considérons pas le cas des couches actives à puits quantiques.

Nous comparons différents semiconducteurs afin de mettre en évidence leurs spécificités et leurs différences. Pour ce faire, nous avons choisi trois cavités similaires, d'épaisseur optique λ , composées, pour des raisons de simplicité, des mêmes miroirs de Bragg diélectriques SiN/SiO_2 et où le milieu actif est constitué par une couche de GaAs, GaN ou ZnO, avec une épaisseur qui est ajustée afin que la résonance dans la cavité soit correctement accordée avec celle de l'exciton, c'est-à-dire $L_c = \lambda_0/n_c$, où λ_0 et n_c sont respectivement la longueur d'onde excitonique et l'indice de réfraction du milieu actif. Ces microcavités sont virtuelles dans le sens où il peut être difficile voire impossible dans la pratique de réaliser leur croissance, car les substrats sont souvent différents d'un matériau à l'autre. Mais cette approche est appropriée car nous avons l'intention de comparer le couplage exciton-photon pour différents semiconducteurs. En outre, le nombre de couches dans les miroirs est ajusté pour conserver le même facteur de qualité ($Q \sim 200$) pour le photon non couplé à la résonance du mode excitonique. Le spectre d'une cavité nue (une cavité sans résonance excitonique dans la couche active) est calculé afin de déterminer l'énergie du mode de photon et son facteur de qualité. Des résultats similaires sont obtenus pour des facteurs de qualité Q plus grands. Les résonances excitoniques se voient attribuer un élargissement homogène de $\gamma_X = 0.3meV$ dans GaAs et $\gamma_X = 1meV$ dans GaN et ZnO. La différence dans les valeurs de l'élargissement homogène s'expliquent par une volonté de conserver le même "facteur de qualité" pour les excitons défini comme $Q_X = \frac{E_g}{\gamma_X} \simeq cte.$

Les spectres de réflectivité sont calculés pour les trois matériaux. L'algorithme des matrices de transfert [Bor99], présenté à la section 1.3.1, est bien adapté au calcul des spectres de réflectivité et de transmission des microcavités. Cet algorithme nécessite

de calculer d'abord la constante diélectrique du milieu actif (cf. équation 1.15 et tableau 1.1).

Dans les microcavités GaAs la couche active est décrite par un exciton dans son état fondamental [Tre95]. Mais le problème est plus complexe dans le GaN ou le ZnO wurtzite en raison de la structure de la bande de valence et de la grande force d'oscillateur. En fait, trois paramètres sont importants (cf. tableau 3.1) : l'énergie de liaison de l'exciton ou Rydberg effectif (Ry^*), l'énergie de couplage de Rabi $\hbar\Omega_R$ et l'énergie de séparation entre les excitons composés de différents types de trous, c'est-à-dire la différence en énergie entre les trois extrema des bandes de valence. La hiérarchie de ces différentes énergies change de manière significative entre les trois matériaux considérés et donc le couplage exciton-photon sera affecté de façons différentes. Dans le GaAs massif les deux bandes de valence supérieures sont dégénérées, ($\Delta_{LH-HH} = 0 \text{ meV}$), et le dédoublement de Rabi, pour $Q = 200$, est plus petit que le Rydberg effectif. En conséquence, un seul anti-croisement sera observé sur les spectres de réflectivité résolus en angle. Par contre, dans les semiconducteurs à large bande interdite, l'énergie du dédoublement de Rabi peut être du même ordre de grandeur (cas de GaN) ou beaucoup plus grand (cas de ZnO) que le Rydberg effectif et que l'énergie de séparation entre les trois bandes excitoniques. Ici, l'anti-croisement observé dans les spectres de réflectivité résolue en angle résultera du couplage du mode de cavité avec tous les excitons simultanément.

	GaAs	GaN	ZnO
Rydberg (Ry^*)	4.8 meV	25 meV	60 meV
Séparation des bandes de valence (Δ)	$\Delta_{LH-HH} = 0 \text{ meV}$	$\Delta_{A1s-B1s} = 8 \text{ meV}$ $\Delta_{A1s-C1s} = 26 \text{ meV}$	$\Delta_{A1s-B1s} = 6 \text{ meV}$ $\Delta_{A1s-C1s} = 71 \text{ meV}$
Dédoublement de Rabi (Ω_R)	4 meV [Tre95] $\Omega_R < Ry^*$	30 meV [AV03] $\Omega_R \cong Ry^* \cong \Delta$	120 meV [Zam02] $\Omega_R \gg Ry^*, \Delta$

TABLE 3.1 – Hiérarchie des énergies et des couplages dans GaAs, GaN et ZnO.

Afin de tenir compte de la hiérarchie des énergies de GaN et ZnO dans le calcul de la constante diélectrique (cf. équation 1.15), nous considérons l'état fondamental ($1s$) des excitons A, B et C ainsi que les états excités ns (dont la force d'oscillateur est inversement proportionnelle à n^3 , avec n le nombre quantique principal [Ell57]). Les forces d'oscillateur sont ajustées pour reproduire les dédoublements de Rabi expérimentaux. Les états de dispersion (continuum) sont également inclus. Il est en effet nécessaire de tenir compte de l'absorption due au continuum dans les simulations pour deux raisons :

- Le calcul du produit du coefficient d'absorption des états de diffusion par la lon-

gueur de la cavité $\alpha(E_g) \times L_c$ (cf. tableau 3.2) montre qu'il est au moins dix fois plus important dans GaN et ZnO que dans GaAs. Pour être plus précis, une simple couche de ZnO ayant la même épaisseur optique λ/n_c absorbe, en un seul passage, 95% des photons ayant une énergie au niveau du continuum.

- Le dédoublement de Rabi est plus important que le Rydberg effectif dans les semi-conducteurs à large bande interdite, repoussant la branche haute de polaritons jusqu'à des énergies auxquelles le continuum absorbe la lumière. Il convient de dire que cette situation peut aussi être rencontrée dans des microcavités à base de GaAs, où le dédoublement de Rabi et le Rydberg effectif peuvent être similaires.

	GaAs	GaN	ZnO
Indice de réfraction n_c	3.46	2.6	1.9
$\alpha(E_g)(cm^{-1})$	10^4 [[Stu62]]	1.2×10^5 [[Mut97]]	2×10^5 [[Lia68]]
L_c (nm)	240	146	184
$\alpha(E_g) \times L_c$	0.2	1.8	3.7
a_B (nm)	11	2.8	1.4
L_c/a_B	22	52	131

TABLE 3.2 – Paramètres significatifs de l'absorption par les états de diffusion, dans les microcavités GaAs, GaN et ZnO.

La comparaison entre les spectres de réflectivité des microcavités GaAs, GaN et ZnO est présentée sur la Figure 3.1. L'épaisseur de la couche active est ajustée afin d'obtenir la condition de désaccord nul sous incidence normale ($\delta(\vec{k} = \vec{0}) = 0$). Rappelons que dans GaN et ZnO, seuls les excitons A et B possèdent une force d'oscillateur non nulle sous incidence normale. En commençant à partir du panneau supérieur, dans le cas de GaAs, nous voyons deux creux principaux dans les spectres, signatures du régime de couplage fort. Les lignes en pointillés montrent le spectre de transmission correspondant. En comparant les trois systèmes de matériaux, nous voyons que le dédoublement entre les branches de polaritons augmente de GaAs à ZnO en raison de l'augmentation de la force de l'oscillateur. Nous pouvons également voir sur les spectres de GaN et ZnO de nombreuses structures qui ne figurent pas dans le cas de GaAs et qui sont visibles entre les deux modes extrêmes, ce qui rend les spectres de réflectivité de semi-conducteurs à grand gap plus complexes. Enfin, l'UPB est difficile à identifier, parmi toutes les creux de réflectivité comme discuté ci-dessous. Ces spectres idéaux diffèrent fortement des résultats expérimentaux rapportés dans [Tre95, But06, Shi08] du fait du rôle central joué par l'élargissement inhomogène, détaillé dans la section 3.1.4.

La figure 3.2 présente une simulation des spectres de réflectivité résolus en angle, pour une épaisseur constante de la couche active. Tous les paramètres utilisés dans le calcul sont les mêmes que ceux de la figure 3.1, excepté que le désaccord nul se produit pour un angle de 12° (respectivement 17° et 25°) dans le cas de GaAs (respectivement

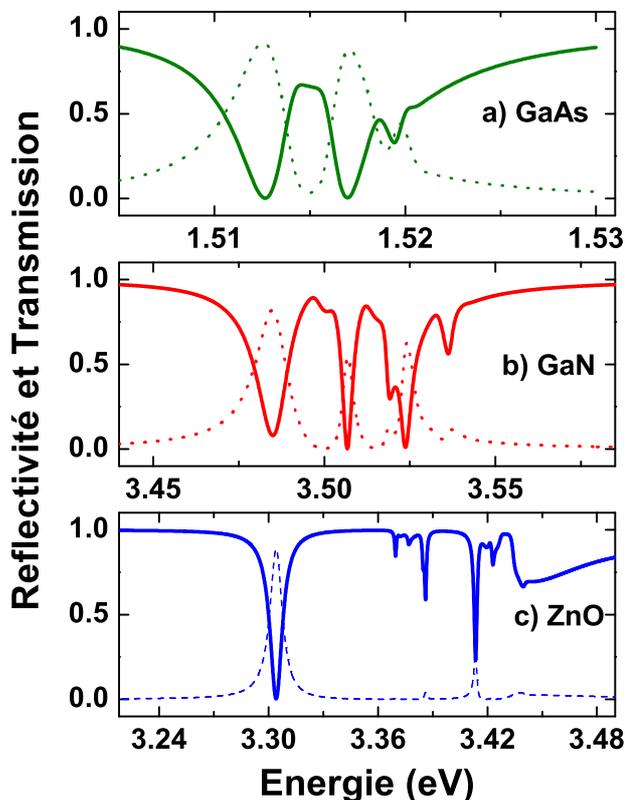


FIGURE 3.1 – Comparaison des simulations des spectres de réflectivité (lignes pleines) et de transmission (lignes pointillées) de microcavités λ de GaAs, GaN et ZnO pour un désaccord nul et en incidence normale.

GaN et ZnO). Le GaAs présente des branches de polaritons dont l'élargissement change en fonction de la composante photonique du fait que l'élargissement du photon est plus grand que celui de l'exciton. Le cas de GaN montre deux anticroisements successifs. L'élargissement du mode haute énergie aux grands angles est dû au couplage avec le continuum des états de diffusion. Dans ZnO, la dispersion angulaire de la branche basse de polaritons est bien visible, alors que le mode haute énergie s'élargit et s'estompe rapidement aux grands angles en raison du passage à travers le continuum. Il est important d'insister sur le fait que ni l'élargissement du photon, ni celui de l'exciton ne sont responsables de l'élargissement de la branche haute de polaritons dans la microcavité ZnO. Cet élargissement est uniquement lié à l'entrée du mode dans le continuum.

3.1.2 Composition des états propres

Matrice de quasi-particules étendue aux états de diffusion Nous allons maintenant nous concentrer sur la composition des états de polaritons. Pour déterminer la composition des différents états en termes d'excitons et de photons, l'algorithme de matrices de transfert n'est plus suffisant. Nous avons besoin d'utiliser le modèle d'oscillateurs couplés [Sav95], qui donne accès d'une part à l'élargissement homogène des états propres par le biais de la partie imaginaire de l'énergie, et, d'autre part, aux coefficients du développement des états propres sur la base exciton-photon (section 1.3.1). En raison des spécificités de GaN et ZnO, nous introduisons dans notre matrice de quasi-particule un quasi-continuum d'états qui rend compte de l'absorption par les états de diffusion de l'exciton¹

$$\begin{pmatrix} E_{X_1} & 0 & \dots & 0 & V_{X_1-\nu} & 0 & \dots & \dots & 0 \\ 0 & E_{X_2} & & \vdots & V_{X_2-\nu} & \vdots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & 0 & \vdots & \vdots & & \ddots & \vdots \\ 0 & \dots & 0 & E_{X_N} & V_{X_N-\nu} & 0 & \dots & \dots & 0 \\ V_{X_1-\nu} & V_{X_2-\nu} & \dots & V_{X_N-\nu} & E_{\nu_1} & V_{D_1-\nu} & \dots & \dots & V_{D_M-\nu} \\ 0 & \dots & \dots & 0 & V_{D_1-\nu} & E_{D_1} & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \ddots & & \vdots & V_{D_2-\nu} & 0 & E_{D_2} & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \vdots & \vdots & \vdots & & \ddots & 0 \\ 0 & \dots & \dots & 0 & V_{D_M-\nu} & 0 & \dots & 0 & E_{D_M} \end{pmatrix} \quad (3.1)$$

Notons que, dans toute cette thèse, les spectres sont présentés en fonction de l'angle d'incidence, et non pas en fonction du vecteur d'onde dans le plan k_{\parallel} afin de pouvoir comparer facilement simulations et expériences. Cependant, du fait de l'invariance par translation dans le plan (x, y) , seul le vecteur d'onde est un bon nombre quantique et est réellement utilisé dans les calculs comme illustré dans la Figure 3.2 : la ligne jaune indique la position des états ayant le même vecteur d'onde. Utiliser le modèle d'oscillateurs couplés en calculant les états propres pour un k_{\parallel} donné au lieu d'un angle θ donné modifie l'évaluation du terme de couplage exciton-photon de quelques pourcents.

Composition des états de polaritons en présence du continuum d'états de diffusion Les états propres donnés par le modèle quasi-particules en polarisation TE sont indiqués sur la Figure 3.3(a-c), où l'élargissement homogène est représenté sous la

1. Le quasi-continuum des états de diffusion D_j est constitué, pour chaque bande d'excitons (A, B, C), d'états d'énergie E_{D_j} répartis de manière uniforme depuis l'énergie du gap jusqu'à une énergie de troncature. L'élargissement homogène γ_D est choisi égal à celui de l'exciton, et est supérieur à l'écart en énergie de deux états successifs. Le terme de couplage avec le mode de cavité $V_{D_j-\nu}$ est ajusté afin que le rapport entre les absorptions du continuum et de l'exciton 1s soit égal au rapport des termes de couplage correspondants dans la matrice de quasi-particule : $\sum_j |V_{D_j-\nu}|^2 / |V_{X_{1s}-\nu}|^2 = Abs_{continuum} / Abs_{X_{1s}}$.

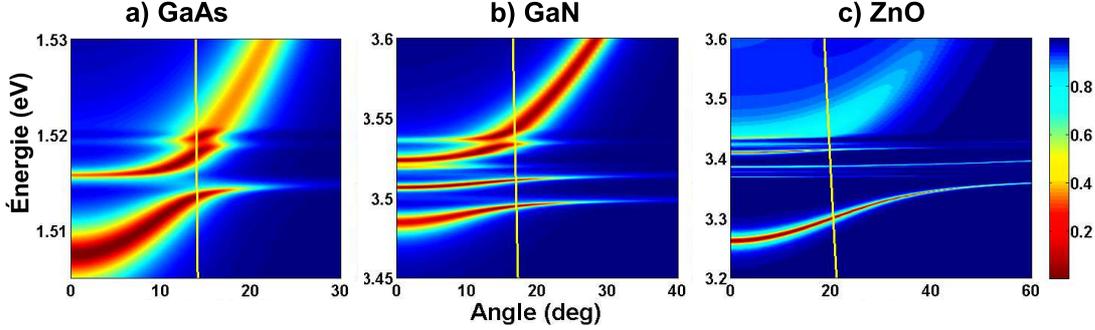


FIGURE 3.2 – Spectres de réflectivité résolue en angle d'une microcavité λ a) GaAs, b) GaN et c) ZnO. La ligne jaune représente les états ayant le même vecteur d'onde.

forme de barres d'erreur². Par souci de clarté, de tous les états excitoniques possibles de la série de Balmer, nous avons seulement inclus les états $1s$ et $2s$. Nous pouvons aisément vérifier que la description du modèle d'oscillateurs couplés donne les mêmes résultats que la méthode des matrices de transfert pour les branches de polaritons. Cependant, tous les états propres (clairs et sombres), sont visibles dans cette représentation. Nous pouvons maintenant donner plus de détails sur la nature de chaque branche, en comparant ces résultats avec les spectres de réflectivité, de transmission et d'absorption (Figure 3.4). En effet, les résonances observées dans le spectre d'absorption de la microcavité sont liées aux interactions incohérentes entre la lumière et les états excitoniques [Agr03] : à ces énergies, les photons sont tout simplement absorbés par le milieu actif. Au contraire, les résonances observées dans les spectres de transmission sont très sensibles aux processus de déphasage à l'intérieur de la cavité³ et correspondent à l'interaction cohérente entre photons et excitons, c'est-à-dire aux états propres de polaritons déduit du modèle d'oscillateurs couplés. Les spectres de réflectivité sont composés à la fois des résonances incohérentes et de celles des polaritons, et doivent donc être interprétés avec prudence.

Comparaison des états propres dans les microcavités GaAs, GaN et ZnO

Examinons d'abord le cas de GaAs : à la résonance la LPB est composée pour moitié d'exciton $1s$ et pour moitié du mode de cavité (Figure 3.3-a,d). Les deux autres états, marquées MPB (middle polariton branch) et UPB, sont très proches en énergie. Dans les résultats expérimentaux [Tre95], pour lesquels l'élargissement homogène de

2. La branche haute polaritonique, au-dessus du gap E_g , est couplée avec les états du continuum. A l'issue de la diagonalisation de la matrice de quasi-particules, cette branche est "diluée" dans les états propres d'énergie supérieures à E_g , dont la composante "mode de cavité" suit une distribution lorentzienne en fonction de l'énergie. Ceci permet de re-construire l'état propre UPB, dont la largeur homogène est celle de cette lorentzienne.

3. Les résonances en transmission peuvent être considérées comme des interférences constructives entre les multiples réflexions dans la cavité Fabry-Perot, qui ont la même phase modulo 2π

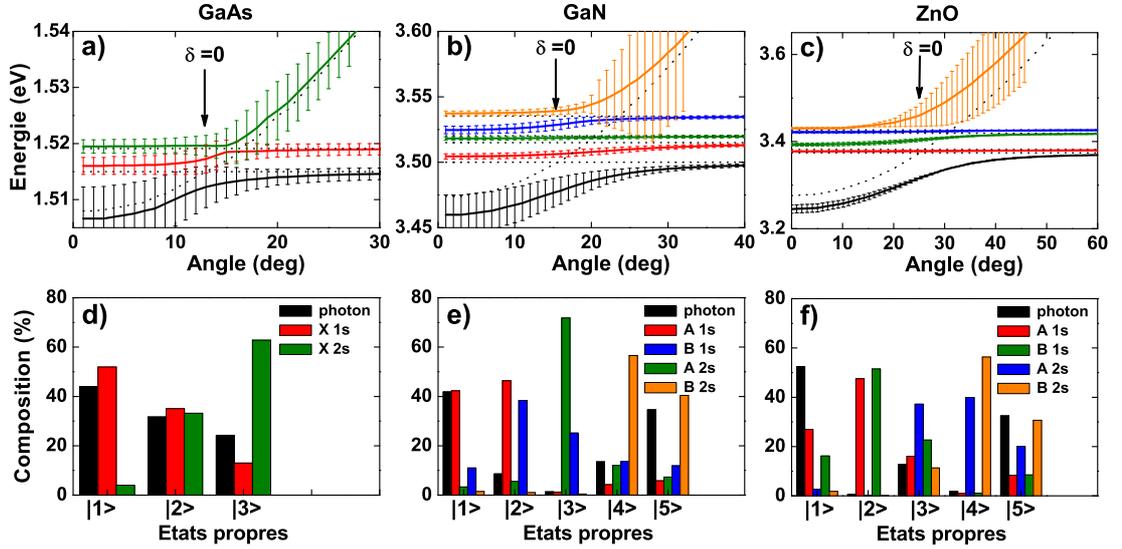


FIGURE 3.3 – (a)-(c) Dispersion en fonction de l’angle des états propres d’une microcavité λ calculée par le modèle d’oscillateurs couplés. Ce modèle fournit les énergies des états propres sombres et brillants. L’élargissement homogène de chaque état est représenté par une barre d’erreur. Les lignes en pointillé indiquent les dispersions de l’exciton et du photon en l’absence de couplage. (d)-(f) Coefficients du développement des états propres pour l’angle correspondant au désaccord nul dans la base exciton-photon.

l’UPB est trois fois plus grand que celui utilisé dans notre modèle, les contributions des branches MPB et UPB ne peuvent être distinguées. Toutes les branches de polaritons apparaissent dans le spectre de transmission (Fig.3.4-d, g) et constituent donc de bons états de polaritons, même lorsque le continuum est inclus dans le calcul. Cependant, une forte absorption incohérente des excitons et du continuum est observée.

Dans le cas de GaN, nous observons dans le spectre de transmission (Figure 3.4-e,-h) une LPB correspondant à l’état propre |1> et deux fortes MPBs (états propres |2> et |4>) (Fig.3.3-b, e). Le pic de l’UPB est beaucoup plus faible que celui prévu par la composante photon de l’état propre |5>⁴. L’absorption au-dessus de 3.5 eV, principalement due aux excitons, amortit fortement la cohérence de l’UPB et des MPBs. Seule la LPB reste un état de polaritons bien défini. L’impact du continuum n’est pas significatif sur les branches de polaritons.

Dans le cas de ZnO (Fig.3.3-c,-f), la LPB à la résonance est aussi composée pour moitié du mode de cavité et pour moitié d’états excitoniques (essentiellement A_{1s} et B_{1s}). Dans le cas simple où ni les états excités, ni le continuum ne sont pris en compte

4. La validité du modèle d’oscillateurs couplés est réduite lorsque l’absorption devient importante, c’est-à-dire, lorsque $\alpha(E_X) \times L_c \sim 1$: en matrice de transfert la distribution du champ électromagnétique à l’énergie des polaritons est dans ce cas très différente de celle du mode de la cavité nue, alors que la base exciton-photon de la matrice quasi-particules ne comprend que le mode de la cavité nue.

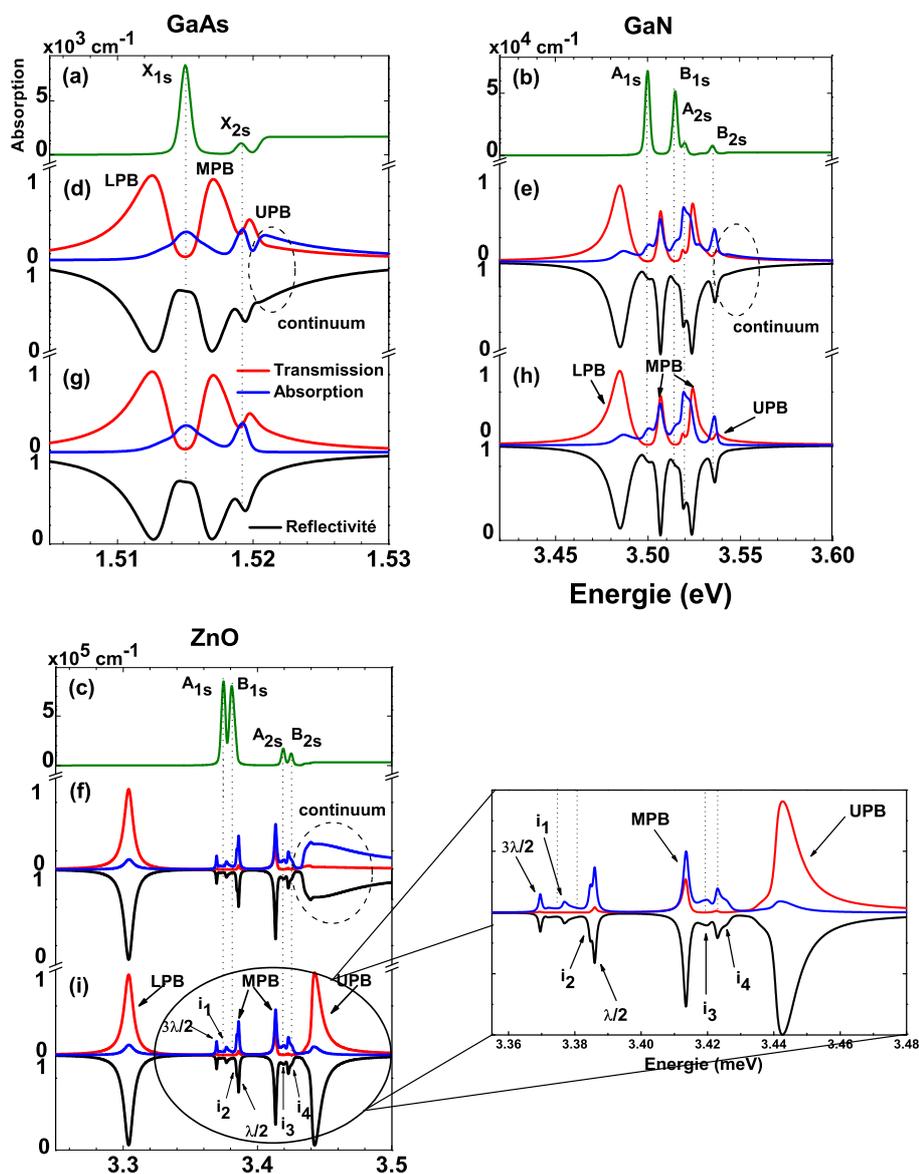


FIGURE 3.4 – Comparaison des spectres simulés en matrice de transfert pour des cavités λ de GaAs, GaN et ZnO. (a-c) Coefficient d'absorption montrant les résonances excitoniques, indiquées par des lignes pointillées sur les autres panneaux; (d-i) Spectres de réflectivité, transmission et absorption d'une cavité, calculés lorsque le continuum est pris en compte (d-f) ou non (g-i).

et où les excitons A et B sont dégénérés en énergie, l'état LPB s'écrirait :

$$|1\rangle = |LPB\rangle = \frac{1}{2}(|A_{1s}\rangle + |B_{1s}\rangle) + \frac{1}{\sqrt{2}}|\nu\rangle, \quad (3.2)$$

ce qui est très proche de la composition calculée ici. En utilisant les mêmes hypothèses que ci-dessus les états étiquetés $|2\rangle$ et $|4\rangle$ (Fig. 3.3-f) sont sombres (ils ne sont pas couplés au champ électromagnétique) et s'écrivent :

$$|2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|A_{1s}\rangle - |B_{1s}\rangle); \quad (3.3)$$

$$|4\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|A_{2s}\rangle - |B_{2s}\rangle). \quad (3.4)$$

Lorsque le continuum n'est pas pris en compte (figure 3.4-i) la LPB et l'UPB apparaissent comme des pics de forte intensité en transmission, alors que toutes les MPBs sont fortement amorties par l'absorption excitonique. Toutefois, lorsque le continuum est inclus dans le calcul (figure 3.4-f), la transmission de l'UPB disparaît, et le pic asymétrique qui est vu en réflectivité est tout simplement la signature de l'absorption par le continuum : la branche haute n'est plus définie. Cela confirme les résultats du modèle de matrice de transfert : la UPB se situe dans la gamme spectrale du continuum et possède un grand élargissement.

Nous allons maintenant regarder en détail les structures calculées dans la gamme spectrale intermédiaire (figure 3.4-i), entre 3,36 eV et 3,43 eV : le creux de réflectivité à $E = 3,415$ eV est également très prononcé en transmission, et correspond à la branche moyenne $|3\rangle$ de polaritons (MPB) qui se trouve entre les énergies des excitons $1s$ et $2s$. Toutes les autres structures sont faibles ou absentes dans le spectre de transmission. Les structures à 3,377 eV et 3,42 eV (marquées i_1 à i_4) sont liées à l'absorption incohérente par les excitons $1s$ et $2s$. Elles ont été identifiées précédemment dans les microcavités organiques, dont les excitons ont aussi une grande force d'oscillateur, et ont été appelées "excitons incohérents" [Agr03]. Elles correspondent aux résonances excitoniques visibles dans le spectre d'absorption (figure 3.4-c) et sont indiquées par les lignes pointillées. Les petits creux sur le spectre de réflectivité, à 3,37 eV et 3,386 eV, découlent de modes optiques avec un ordre différent (marqués respectivement $3\lambda/2$ et $\lambda/2$ sur la figure 3.4-i) de la cavité. Ils apparaissent parce que l'indice de réfraction varie fortement au voisinage de la résonance excitonique, de telle sorte que pour une même épaisseur, la cavité peut remplir les conditions de résonance d'ordres $p = 1, 2, 3$ pour des énergies voisines.

La comparaison entre les trois matériaux met en évidence leurs principales différences : toutes les branches de polaritons sont des états propres bien définis du système couplé exciton-photon dans les microcavités massives GaAs, alors que seules les branches basses de polaritons subsistent dans les spectres de transmission dans les microcavités GaN et ZnO.

Figure de mérite Afin de comparer leurs potentiels respectifs, nous avons défini une figure de mérite par le rapport $\Delta E/\gamma_{LPB}$, où ΔE est la séparation en énergie entre la LPB et la branche suivante, et γ est l'élargissement homogène de la LPB. Ce ratio vaut seulement 2 et 3 dans GaAs et GaN, et augmente jusqu'à 10 pour une microcavité ZnO. Il est important de souligner que nous considérons des microcavités avec le même facteur de qualité pour les résonances de l'exciton et du photon. Les figures de mérite calculées sont comparables à celles mesurées à basse température pour les microcavités GaAs [Tre95] et GaN [Rev08]. La valeur calculée pour la microcavité ZnO est supérieure à celle observée dans les premières démonstrations de couplage fort (cf section 3.5). Par comparaison, des figures de mérite de 20 à 50 peuvent être obtenues dans des microcavités à puits quantiques GaAs et CdTe [Bal07, Den02, Baj08, Kas06]. Les cavités ZnO sont donc attractives dans le but d'accroître cette figure de mérite.

3.1.3 Estimation du couplage exciton-photon

Le terme de couplage exciton-photon $V_{X-\nu}$ est le paramètre ajusté dans le modèle d'oscillateurs couplés et celui d'intérêt pour la modélisation en seconde quantification des phénomènes non-linéaires dans la branche basse polaritonique. Dans le cas de la microcavité ZnO, la table 1.2 donne les forces d'oscillateurs et les constantes de couplages pour les états $1s$ des excitons A, B et C, utilisés dans la modélisation. On obtient un terme de couplage entre la résonance excitonique et le mode de cavité $2 \times \sqrt{V_{X_{A1s-\nu}}^2 + V_{X_{B1s-\nu}}^2} = 97 \text{ meV}$, alors que la séparation en énergie observée entre la LPB et le mode à haute énergie dans la simulation en l'absence du continuum (3.4-i) est de 135 meV . Ceci diffère du cas de GaAs (Fig.3.4-d) où les deux creux en réflectivité proviennent de la LPB et de la UPB, et le dédoublement de Rabi représente directement le terme de couplage $V_{X-\nu}$. Dans le cas de ZnO, la division apparente est en fait renforcée par l'importante force d'oscillateur des états excitoniques excités, ce qui aboutit à la formation des branches médianes. La séparation en énergie entre la LPB et le mode haute énergie, que nous mesurons expérimentalement, n'est donc plus une mesure directe du terme de couplage exciton-photon.

De plus, en raison de la présence des états du continuum, le mode désigné précédemment comme la branche haute de polariton est en régime de couplage faible, même si le critère standard pour le couplage fort $V_{X-\nu} > |\gamma_X - \gamma_\nu|$, où γ_X et γ_ν sont les élargissements homogènes de l'exciton et du photon, est vérifié (cf eq. 1.37). De fait les oscillations de Rabi ne devraient pas être observables dans une microcavité massive ZnO dans une expérience de type pompe-sonde excitant la microcavité par une impulsion couvrant l'ensemble du spectre des polaritons [Nor94]. Les oscillations de Rabi ne sont pas une condition *sine qua non* du régime de couplage fort, et ne sont observées que dans le cas spécifique où deux états de polaritons sont isolés, bien définis et bien équilibrés.

3.1.4 Rôle de l'élargissement inhomogène

Les structures fines mentionnées ci-dessus dans les spectres de réflectivité calculés à proximité et au-dessus de l'énergie de l'exciton (i_1 à i_4) sont la signature de l'absorption incohérente des excitons et de la forte variation de l'indice de réfraction, qui sont deux conséquences de la grande force d'oscillateur de l'exciton. Toutefois, ces structures n'ont jamais été vues expérimentalement dans les microcavités GaN ou ZnO. Nos calculs restent cohérents avec les résultats expérimentaux, parce que nous avons jusqu'à présent laissé de côté la question de l'élargissement inhomogène. Expérimentalement, l'élargissement inhomogène est plus grand dans GaN et ZnO que dans GaAs (quelques dizaines de meV au lieu de $1 meV$ dans nos simulations) pour deux raisons : (i) la croissance est moins bien maîtrisée que dans les composés GaAs et CdTe, en raison de l'accumulation de contraintes dans les miroirs de Bragg, conduisant à l'apparition de défauts structuraux (cf section suivante) ; (ii) les excitons dans les semi-conducteurs à large bande interdite ont un petit rayon de Bohr, de sorte que les fluctuations de potentiel de l'environnement, dont l'exciton voit la moyenne à l'échelle de a_B , sont moins efficacement lissées.

Nous comparons les simulations de spectres de réflectivité de la même cavité λ de ZnO en faisant varier l'élargissement inhomogène de $\sigma = 1 meV$ à $5 meV$ et $30 meV$ (Fig. 3.5). La LPB est robuste, mais les creux intermédiaires attribués à des modes d'ordre supérieur et aux excitons incohérents disparaissent rapidement. Pour $\sigma = 30 meV$, la MPB disparaît aussi et le spectre de réflectivité se simplifie en deux creux bien séparés correspondant à la LPB et au continuum. Entre ces creux, la réflectivité a une valeur de 88% en raison de l'absorption par les résonances maintenant impossible à distinguer.

Confinement du centre de masse Dans les microcavités GaAs, les polaritons peuvent entrer dans le régime dit de quantification du centre de masse [Tre95] pour les états qui ont une composante photon réduite. Le rapport de la longueur de la cavité sur le rayon de Bohr L_c/a_B (Tableau 3.2) est la grandeur pertinente associée. Il est au moins deux fois plus petit dans GaAs que dans GaN et ZnO. Dans ces matériaux, ce régime n'est plus observable car l'élargissement inhomogène est supérieur à l'énergie typique de quantification du centre de masse.

3.2 Conception et fabrication des microcavités ZnO

Nous nous intéressons à présent aux problèmes liés à la conception et à la croissance des échantillons.

Problématique Contrairement aux technologies basées sur le silicium, très développée, ou le GaN, relativement jeune, la filière ZnO est très récente et rencontre de nombreuses difficultés, qui peuvent se résoudre pour partie en suivant l'exemple de ces

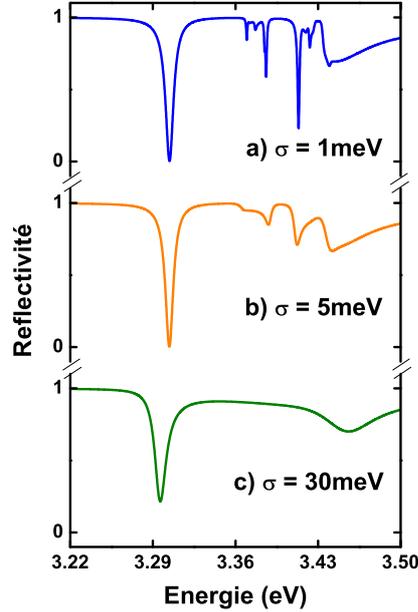


FIGURE 3.5 – Spectres de réflectivité simulés pour une microcavité λ de ZnO, pour différents élargissements inhomogènes : a) $\sigma = 1 \text{ meV}$, b) $\sigma = 5 \text{ meV}$, c) $\sigma = 30 \text{ meV}$.

prédécesseurs. Des progrès considérables ont été obtenus dans la croissance d'hétérostructures ZnO ces dernières années.

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, deux paramètres importants sont à prendre en considération pour atteindre un régime de couplage fort exciton-photon dans une microcavité : le facteur de qualité de la cavité et la largeur de la résonance excitonique. Le facteur de qualité découle directement de la réflectivité des miroirs de Bragg, i.e. du nombre de paires de couches constituant le miroir, mais également du désordre dans les couches et de la rugosité aux interfaces. La largeur de la résonance excitonique dépend quant à elle de la qualité de la couche active, c'est-à-dire de la densité de défauts structuraux, dislocations et impuretés qui contribuent à l'élargissement inhomogène de la transition.

Le problème est donc le suivant : si on veut réaliser le couplage fort exciton-photon dans une microcavité à base de ZnO, il faut au préalable trouver les matériaux qui vont constituer les miroirs et sur lesquels la croissance du ZnO est possible. Les miroirs de Bragg doivent remplir plusieurs conditions : ils doivent être transparents (ne pas absorber) à la longueur d'onde d'émission du composant, ici autour de 350 nm , mais aussi à celle d'excitation (jusqu'à 266 nm) ; le contraste d'indice entre les deux matériaux du miroir doit être suffisamment élevé afin de maximiser la largeur de la bande interdite et de minimiser le nombre de paires de couches nécessaires à une forte réflectivité.

Les différents projets visant à la réalisation du couplage fort exciton-photon dans les microcavités ZnO ont été lancés presque simultanément, en 2005-2007. Les choix technologiques des différentes équipes sont variés, et basés sur leurs expériences antérieures. Ces choix reposent en particulier sur la méthode de croissance utilisée. En effet on peut dénombrer deux méthodes de croissance :

- La déposition par laser pulsé (PLD, Pulse Laser Deposition), qui a permis la réalisation de microcavités tout oxyde, a été utilisée par le groupe de Schmidt-Grund *et al.* [SG08] en Allemagne et par celui de Nakayama *et al.* [Nak08] au Japon avec toutefois des matériaux différents ;
- L'épitaxie par jet moléculaire (MBE, Molecular Beam Epitaxy) de ZnO sur AlN ou AlGa_N a permis la réalisation de microcavités avec des miroirs de Bragg à base de nitrures. C'est cette dernière méthode que nous avons choisie et qui a été également utilisée par le groupe de Shimada *et al.* [Shi08] aux États-Unis et de Chen *et al.* [Che09] à Taiwan.

Nous allons dans cette section détailler les voies développées dans le projet ANR ZOOM (Zinc Oxide Optical Microcavities), dans lequel s'inscrit cette thèse, puis nous donnerons une revue des autres microcavités ZnO fabriquées à travers le monde. Nous présenterons enfin l'élaboration et les principales caractéristiques des miroirs et de la couche active ZnO de nos microcavités.

3.2.1 Les différentes voies envisagées dans le projet ZOOM

Le projet ANR-ZOOM (Zinc Oxide Optical Microcavities). Ce projet a pour objectif d'évaluer le potentiel de la filière ZnO pour les applications des microcavités dans l'UV et le visible et de la comparer à la filière GaN. Quatre laboratoires participent à ce projet :

- le Groupe d'Etude des Semiconducteurs (GES) a apporté les outils de caractérisations optiques dans le domaine du visible et du proche UV et coordonne le projet ;
- le Centre de Recherche sur l'Hétéroépitaxie et ses Applications (CRHEA) de Valbonne, qui a une longue expérience de la croissance des hétérostructures GaN et plus récemment ZnO ;
- le Laboratoire des Sciences et Matériaux pour l'Electronique et d'Automatique (LASMEA) de Clermont-Ferrand, qui a étudié le couplage fort dans les microcavités GaN en collaboration avec le CRHEA ;
- le Laboratoire de Photonique et Nanostructures (LPN) de Marcoussis, qui réalise des miroirs de Bragg à base de couches diélectriques pour les microcavités GaN et celles à couche active organique (pérovskite) [Lan08].

Le savoir-faire du CRHEA et du LASMEA dans la filière GaN a déterminé les choix quant aux structures de nos microcavités. Nous nous sommes orientés vers des structures à miroir inférieur AlN/AlGa_N, réalisés par Jean-Christophe Moreno, Eric Frayssinet et Fabrice Semond. La couche active de ZnO est crue par MBE par Jesús Zúñiga-Pérez.

Les miroirs supérieurs sont soit métalliques (évaporation d'une couche d'Al), soit des miroirs de Bragg SiN/SiO_2 réalisés par Sophie Bouchoule au LPN. La conception des échantillons a été réalisée en étroite collaboration avec François Médard, Pierre Disseix et Joël Leymarie, du LASMEA, qui sont aussi en charge de la caractérisation optique (réflectivité et photoluminescence).

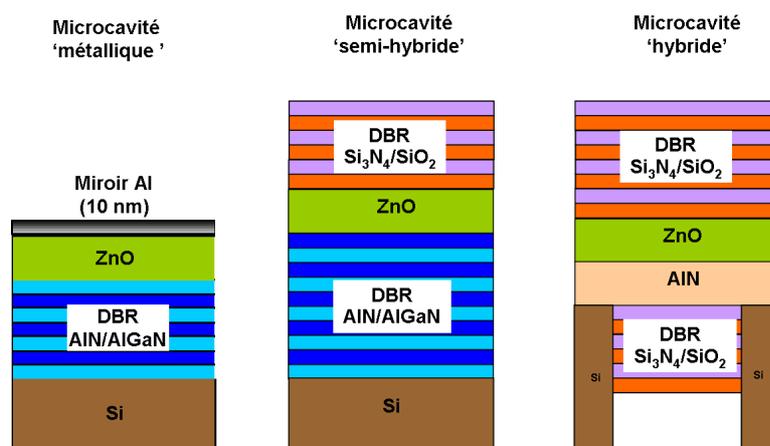


FIGURE 3.6 – Schémas des différentes microcavités réalisées dans le cadre du projet ZOOM. La microcavité métallique (à gauche) possède un miroir supérieur constitué d'une couche d'aluminium. La microcavité semi-hybride (au centre) est constituée de deux miroirs de Bragg (notés DBR) différents entre eux et différents de la couche active. La microcavité hybride (à droite) est constituée de deux miroirs de Bragg identiques.

Trois types de microcavités Afin d'obtenir progressivement un facteur de qualité élevé (de l'ordre de 500 à 1000), plusieurs voies ont été envisagées, de difficulté croissante, présentées sur la figure 3.6 :

- Les microcavités "métalliques" sont constituées d'un miroir inférieur $AlN/AlGaN$ et d'un miroir supérieur constitué d'une fine couche d'aluminium. Les facteurs de qualité visés sont de l'ordre de 50 ;
- Les microcavités "semi-hybrides" sont constituées d'un miroir inférieur $AlN/AlGaN$ et d'un miroir supérieur SiN/SiO_2 . Les facteurs de qualité visés sont de l'ordre de 100 à 500, selon le nombre de paires de chaque miroir de Bragg ;
- Les microcavités "hybrides" sont constituées de deux miroirs SiN/SiO_2 , et nécessitent de retirer le substrat sur une partie de l'échantillon pour une croissance par la face arrière du miroir inférieur. Les facteurs de qualité visés sont de l'ordre de 500 à 1000. Cette dernière voie présente de nombreux verrous technologiques, et est en cours de finalisation.

Les détails concernant l'élaboration et la caractérisation des miroirs et des couches actives sont présentés dans les sections 3.2.3 et 3.2.4. La spectroscopie linéaire des microcavités "métalliques" et "semi-hybrides" fait l'objet des sections 3.3 et 3.4.

3.2.2 Revues des travaux et publications récentes

Les structures des microcavités ZnO ayant fait l'objet de publications au cours des 3 dernières années sont présentées sur la figure 3.7.

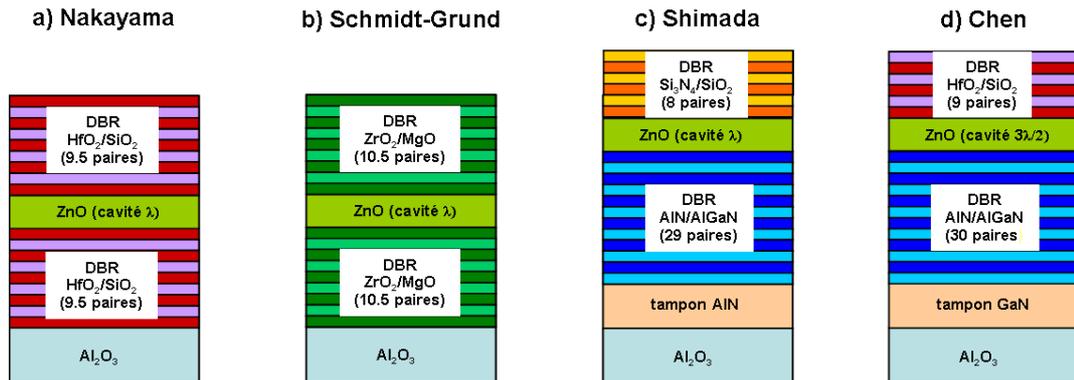


FIGURE 3.7 – Schémas de la structure des différentes microcavités réalisées par d'autres équipes en vue de l'observation du couplage fort. a) Nakayama *et al.* (Japon), b) Schmidt-Grund *et al.* (Allemagne), c) Shimada *et al.* (USA), d) Chen *et al.* (Taiwan).

3.2.2.1 La croissance par dépôt par laser pulsé (PLD) : la voie tout oxyde

La PLD est une technique qui permet de déposer des couches minces grâce à un laser pulsé à forte puissance qui est focalisé, sous ultra-vide, sur une cible de la composition désirée. Le matériau de la cible est vaporisé, puis déposé en une couche mince sur le substrat. Le procédé de la PLD peut être décomposé en quatre étapes : l'ablation laser du matériau cible et la création d'un plasma, la dynamique du plasma, la déposition du matériau sur le substrat et enfin, la nucléation et la croissance de la couche à la surface du substrat. Chacune de ces étapes est importante pour la cristallinité, l'uniformité et la stoechiométrie de la couche résultante.

La microcavité japonaise (Nakayama *et al.*, Université d'Osaka) [Nak08] La microcavité (Figure 3.7-a) est constituée de deux miroirs $HfO_2(48nm)/SiO_2(65nm)$ préparés par pulvérisation cathodique magnétron, méthode très pratique pour le dépôt de matériaux oxyde, et d'une couche de ZnO, d'épaisseur optique λ , déposée sur le miroir inférieur par PLD. Le substrat est du saphir orienté (0001). L'un des inconvénients majeurs de cette méthode est que la croissance du miroir de Bragg inférieur se fait à température ambiante alors que le dépôt de la couche de ZnO se fait à $650^\circ C$. Des mesures de transmission du miroir chauffé dans les mêmes conditions que lors du dépôt de ZnO semblent montrer qu'il reste stable en température et que ses propriétés ne sont pas altérées durant le processus. Toutefois, le spectre de transmission est légèrement décalé en énergie et présente une diminution d'intensité à haute énergie qui serait due

à la queue d'absorption du HfO_2 . Ce problème doit être pris en compte pour ajuster le désaccord de la microcavité convenablement. Le facteur de qualité de la cavité nue est évalué à 500. Le dédoublement de Rabi est estimé à 80 meV .

La microcavité allemande (Schmidt-Grund *et al.*, Université de Leipzig) [SG08] La microcavité (Figure 3.7-b) est constituée de deux miroirs ZrO_2/MgO et d'une couche de ZnO d'épaisseur optique $\lambda/2$ déposés par PLD. Le substrat est du saphir orienté (0001). La diffraction de rayons X montre que les couches sont polycristallines, avec des phases monoclinique, orthorombique et cubique pour ZrO_2 et cubique pour MgO . Le ZnO est lui en phase hexagonale. L'élargissement inhomogène de la transition excitonique, déduit de mesure de largeur à mi-hauteur sur des spectres de PL pour une demi-cavité (i.e., une cavité comportant uniquement la couche de ZnO sur le miroir inférieur), est estimé à 25 meV à 40 K et 50 meV à 300 K . Il est attribué aux imperfections structurales et à la cristallinité limitée de la couche de ZnO. Le facteur de qualité de la cavité est évalué à 500 pour la cavité nue. Le dédoublement de Rabi maximal est de 78 meV . Le mode d'exciton est couplé à la fois au mode de cavité et au mode de fuite (mode de Bragg). Signalons enfin que le couplage fort dans ce type de microcavité a été observé jusqu'à une température de 410 K [Stu09].

3.2.2.2 La croissance par épitaxie par jet moléculaire (MBE) : la voie des nitrures

La MBE consiste à évaporer ou sublimer sous ultra-vide les éléments du matériau qui sont ensuite dirigés vers la surface du substrat. C'est une méthode de croissance relativement lente par rapport à d'autres méthodes couramment utilisées comme la MOCVD (Metal-Oxyde Chemical Vapor Deposition) mais la croissance est contrôlée couche atomique par couche atomique. En effet, le dispositif de MBE comporte un bâti ultra-vide compatible avec de nombreuses techniques d'analyse de surface. Parmi celles-ci on peut citer la RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) dont l'étude des clichés de diffraction permet de visualiser le mode de croissance et de déterminer les paramètres de mailles et, dans certains cas, de connaître la nature des espèces de surfaces ; le spectromètre de masse qui informe sur les espèces présentes au sein de la chambre de croissance ; la réflectivité qui permet d'évaluer l'épaisseur des couches *in situ*.

En raison de la quasi-absence de substrat GaN ou AlN commerciaux, les substrats les plus couramment employés pour la croissance d'hétérostructures à base de nitrures sont les cristaux de saphir plan c ou ceux de silicium Si (111). La différence de maille entre le saphir (0001) et l'AlN est de -13.29% . Cette valeur augmente jusqu'à -19.4% pour l'interface AlN-Si(111). La densité de défauts est en général plus faible sur substrat saphir que sur substrat Si, mais ce dernier est plus intéressant pour des applications puisque la technologie basée sur silicium peut facilement être intégrée en électronique. De plus le substrat de Si peut être retiré chimiquement pour la fabrication des microcavités hybrides. Le substrat saphir présente l'avantage d'être transparent dans l'ultra-violet,

ce qui autorise la mesure du spectre de transmission des microcavités, contrairement au substrat Si.

La microcavité américaine (Shimada *et al.*, Université de Virginie) [Shi08]

La microcavité (Figure 3.7-c) est constituée d'une couche de ZnO d'épaisseur optique λ prise entre un miroir inférieur constitué de 29 paires d' $Al_{0.5}Ga_{0.5}N/GaN$ et un miroir supérieur constitué de 8 paires de SiO_2/Si_3N_4 sur substrat saphir. Le miroir inférieur a été directement crû sur une couche tampon d'AlN sur un substrat de saphir (0001) par la méthode MOCVD. Une couche tampon d'AlN est utilisée afin d'éviter la formation de fissures (cracks) due à la contrainte qui apparaît à cause de la différence du paramètre de maille. Ce type de croissance permet d'éviter les rugosités aux interfaces. La couche de ZnO est ensuite déposée par MBE sur le miroir inférieur en prenant quelques précautions afin de ne pas oxyder la couche d'AlGaIn. Finalement le miroir Si_3N_4/SiO_2 est déposé par le procédé PECVD (Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition). Les miroirs AlGaIn/GaN présentent deux inconvénients : (i) le gap de GaN, égal à 3.44 eV à 300 K, est très proche de celui de ZnO, et l'absorption associée coupe la réflectivité du miroir de Bragg à haute énergie. Les excitons de GaN peuvent même interagir avec le mode de cavité et compliquer l'interprétation des spectres expérimentaux. (ii) La bande interdite est étroite et l'épaisseur des couches doit être particulièrement bien ajustée afin que le pic d'émission du ZnO soit situé à l'intérieur de celle-ci. Le facteur de qualité mesuré vaut environ 100. Un couplage fort semble être observé avec un dédoublement évalué à 50 meV.

La microcavité taiwanaise (Chen *et al.*, Université de Chiao Tung) [Che09]

La microcavité (Figure 3.7-d) est constituée d'une couche de ZnO d'épaisseur optique $3\lambda/2$ prise entre un miroir inférieur constitué de 30 paires d' $Al_{0.23}Ga_{0.77}N/AlN$ et un miroir supérieur constitué de 9 paires de SiO_2/HfO_2 . Le miroir inférieur est crû sur un substrat de saphir orienté (0001). Une couche tampon GaN de $2.8\mu m$ est utilisée entre le substrat et le miroir inférieur. Le miroir AlN/AlGaIn est déposé par MOCVD, puis la couche épaisse de ZnO est déposée sur le miroir inférieur par MBE. Finalement, le miroir supérieur qui utilise du HfO_2 , à la place du Si_3N_4 dans la structure de Shimada, est déposé par évaporation par faisceau d'électrons. Le facteur de qualité est assez élevé et évalué à 220 à partir du pic de PL. Le principal problème de cette structure vient du miroir inférieur qui possède une bande interdite très étroite et mal définie. Cependant un couplage fort est observé avec un dédoublement de Rabi estimé à 58 meV.

3.2.2.3 Comparaison entre MBE et PLD : avantages et inconvénients

Les deux méthodes de croissance présentent des avantages et des inconvénients. La PLD permet d'obtenir des microcavités avec un grand facteur de qualité (jusqu'à $Q \sim 500$). Ainsi le coefficient de réflexion des miroirs est élevé et cette méthode permet d'obtenir une structure comportant très peu de dislocations et de cracks. Le gros inconvénient vient de la structure polycristalline des couches qui élargit de façon inhomogène la transition excitonique (25 meV à basse température). Ainsi cette méthode

serait idéale s'il était possible de mieux maîtriser la cristallinité des couches. Concernant la MBE, le problème est opposé : la couche active de ZnO est de bonne qualité et présente un élargissement inhomogène de la transition excitonique relativement faible (de l'ordre de 5 meV à basse température pour une couche fine de ZnO sur AlN, cf section 3.2.4). En revanche le facteur de qualité de la microcavité reste le facteur limitant ($Q \sim 100 - 200$), ainsi que la largeur de la bande interdite du miroir inférieur, en raison du faible contraste d'indice des couches et des nombreux cracks et dislocations qui apparaissent dans la microcavité lors de la croissance. L'écart du paramètre de maille, ainsi que celui du coefficient d'expansion thermique, induisent en effet une accumulation de contrainte dans le miroir nitrure, alors que le caractère poly-cristallin des miroirs tout-oxyde obtenus en PLD permet de relaxer la contrainte. Le mode de cavité qui en résulte est large avec une durée de vie du photon intra-cavité faible. La branche polaritonique est considérablement élargie (~ 25 meV à température ambiante) et le couplage fort est de fait plus faible que celui prévu théoriquement [Mal02, Zam02].

3.2.3 Les miroirs de nos cavités

Dans les trois voies présentées sur la figure 3.6, trois types de miroirs sont utilisés.

Le miroir inférieur AlN/AlGaN Le choix d'alliages nitrures pour le miroir inférieur s'explique par le fait que cette technologie a été précédemment développée pour la filière GaN [AV03, Sel06] et y a permis l'observation du couplage fort. Le GaN émettant dans la même plage spectrale que le ZnO, respectivement à 3.5eV et 3.37eV à basse température, les miroirs AlN/AlGaN sont optiquement adaptés et s'avèrent donc être de bons candidats. De plus, l'indice de réfraction de l'AlN, comme celui des alliages AlGaN, sont parfaitement connus grâce aux mesures antérieures d'ellipsométrie [AV03].

Au CRHEA, les miroirs de Bragg sont épitaxiés par MBE sur substrat Si. La maîtrise de la croissance d'AlN sur Si est complexe et a fait l'objet de nombreux travaux au CRHEA [Sem01, Ser09]. La couche tampon AlN permet d'éliminer une partie des dislocations créées à l'interface avec le Si. Lors du refroidissement depuis la température de croissance jusqu'à 300 K, de nombreuses fissures (cracks) se forment. Leur densité est de l'ordre de 10 à 100 mm^{-1} dans nos échantillons, pour 11 paires AlN/AlGaN, et augmente avec le nombre de paires.

	<i>AlN</i>	<i>Al_{0.8}Ga_{0.2}N</i>	<i>SiO₂</i>	<i>Si₃N₄</i>	<i>Si</i>	<i>Ta₂O₅</i>
indice de réfraction (375 nm)	2.15	2.45	1.47	2.1	7	2.2
E_{gap} (300K)(eV)	6	3.5	9	~ 5	3.4^5	4

TABLE 3.3 – Paramètres des matériaux diélectriques constituant les miroirs.

Ce type de miroir possède un contraste d'indice peu élevé (cf. Tableau 3.3), $\Delta n/n = 13\%$, qui nécessite un grand nombre de paires pour atteindre une réflectivité importante.

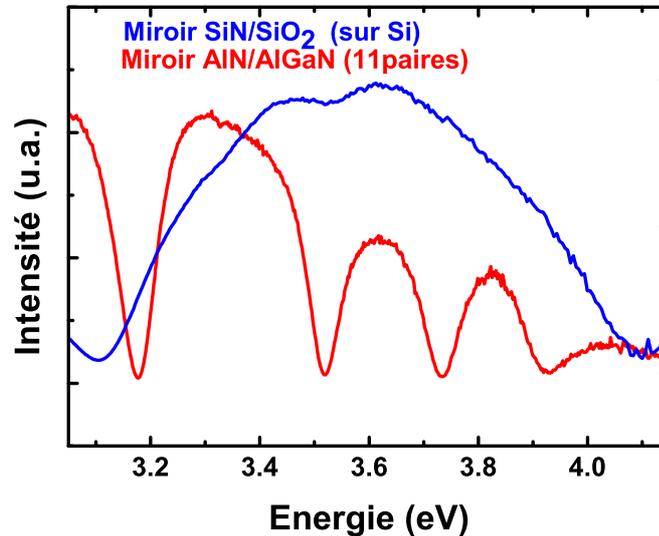


FIGURE 3.8 – Réflectivité des miroirs $AlN/AlGaN$ (11 paires) et SiN/SiO_2 utilisés dans nos microcavités.

Le spectre de réflectivité à 300 K d'un miroir $AlN/AlGaN$ de 11 paires est présenté sur la figure 3.8. La largeur de la bande interdite est de l'ordre de 250 meV, et la réflectivité nominale est de 97% depuis l'air. Notons que c'est la réflectivité depuis le ZnO (ici 94%) qui détermine le facteur de qualité du mode de cavité.

Le miroir Al Pour des raisons de simplicité, le miroir supérieur de la première génération de microcavités dites "métalliques", est une couche d'aluminium d'épaisseur nominale 10 nm. La réflectivité de ce miroir est bien moins grande que celle d'un miroir diélectrique (63% depuis l'air, 55% depuis le ZnO) et repose sur l'absorption du matériau, qui vaut ici environ 10%. Le spectre de réflectivité est lisse, contrairement à celui des miroirs de Bragg.

Les couches métalliques possèdent des modes propres évanescents dits de plasmon de surface à l'interface avec l'air ou un milieu diélectrique. Ceux-ci sont "invisibles" dans des expériences de réflectivité depuis l'air, mais peuvent être source d'absorption ou entrer en résonance avec les excitons [Bel09]. Nous n'en avons pas observé de signature, et leur effet sur les propriétés optiques des microcavités est resté inexploré à ce jour.

Le miroir supérieur diélectrique Dans les microcavités dites "semi-hybrides", le miroir de Bragg supérieur est constitué de couches diélectriques adaptées à la gamme UV. Le LPN développe depuis quelques années, en collaboration avec l'ENS-Cachan, des miroirs SiO_2/Ta_2O_5 et Si_3N_4/SiO_2 avec une réflectivité supérieure à 95% en vue de

fabriquer des microcavités organiques [Lan08]. Ces miroirs sont déposés par PECVD. Le SiO_2 possède un faible indice (cf. tableau 3.3) ainsi que de faibles pertes par absorption dans la gamme UV. Le Si_3N_4 (respectivement Ta_2O_5) est le matériau d'indice élevé (cf. tableau 3.3) et absorbe également peu dans l'UV. Une grande réflectivité avec un petit nombre de paires aurait également pu être obtenu en utilisant de l'oxyde de titane qui a un indice de réfraction encore plus élevé ($n=2.7$ à 340 nm) mais à cause d'un coefficient d'extinction plus grand, la réflectivité est limitée à 97%. Une faible absorption permet de plus une meilleure résistance sous forts flux laser. Nous reviendrons sur ce point dans le dernier chapitre.

Notons que les coefficients de réflexion donnés ci-dessus correspondent à des miroirs déposés sur un substrat de silice. Il est beaucoup plus difficile d'obtenir une forte réflexion pour le miroir supérieur d'une microcavité, i.e. entre le matériau de fort indice (ZnO) et le matériau de faible indice (l'air). Par exemple, pour un miroir de 5 paires Si_3N_4/SiO_2 , le coefficient de réflexion vaut 68% depuis l'air et seulement 44% depuis ZnO. Pour atteindre une valeur de 95% depuis ZnO, un miroir de 11 paires de couches diélectriques est nécessaire, dont le dépôt n'a été maîtrisé que récemment au LPN car cela nécessite un contrôle du flux de matière pendant toute la durée de la croissance. En conséquence, la microcavité semi-hybride présentée dans cette thèse comporte un miroir de 5 paires.

Les miroirs diélectriques présentent de grands avantages : une bande interdite très large et une réflectivité élevée pour un faible nombre de paires du miroir. Les problématiques importantes sont l'absorption résiduelle, le contrôle de l'indice dans la gamme UV et le contrôle de l'épaisseur des couches.

Proposition de miroir inférieur diélectrique, pour les cavités hybrides Les propriétés avantageuses des miroirs diélectriques les rendent plus adaptés à l'obtention de cavités de grand facteur de qualité. Des microcavités dites "hybrides", comportant deux miroirs de Bragg diélectriques, ont donc été envisagées.

Le principe de fabrication est le suivant. La couche active de ZnO est crue par MBE sur une couche tampon AlN, sur un substrat Si. Un miroir diélectrique est ensuite déposé au-dessus de la cavité, suivi par un retrait total ou partiel (fabrication d'une membrane) du substrat par gravure sèche. Des travaux ont été effectués pour améliorer la sélectivité du retrait du silicium, permettant de réaliser des microcavités GaN "hybrides" en régime de couplage fort [Bej08]. La cavité est finalement complétée par le dépôt du second miroir diélectrique à l'intérieur de l'ouverture ainsi réalisée. Ces microcavités devraient posséder a priori un plus grand facteur de qualité que les microcavités semi-hybrides. A la fin de cette thèse, la réalisation très complexe de ces microcavités nécessitait encore des efforts de développement.

3.2.4 La couche active de ZnO de nos cavités

La croissance des couches épaisses de ZnO a été réalisée par Jesús Zúñiga-Pérez au CRHEA. De nombreux efforts ont été faits afin de déposer ZnO sur des couches AlN et AlGaN dans le but d'obtenir des propriétés optiques pour le ZnO aussi bonnes que celles obtenues pour des films minces de ZnO crus sur un substrat de saphir. Un des points clés est le contrôle de la polarité du ZnO durant l'étape de nucléation, car l'oxydation locale de la couche d'AlGaN peut entraîner des domaines de polarité inversée dans la couche de ZnO. Notons que le ZnO et le miroir de Bragg inférieur sont crus dans deux bâtis différents, la reprise de la croissance devant être contrôlée.

Contraintes dans ZnO Le terme "hétérostructure" est dérivé du concept d'"hétéro-épitaxie", qui fait référence à la croissance de différents matériaux cristallines les uns au-dessus des autres sur un substrat. Du fait qu'il existe une différence entre le paramètre de maille des couches entre elles et des couches avec le substrat, des contraintes vont apparaître dans la structure.

Tout d'abord, les contraintes entraînent un décalage en énergie de la transition excitonique. Ce décalage se fait vers les basses ou les hautes énergies suivant que le matériau est en étirement ou en compression. La figure 3.9 montre le décalage en énergie des excitons A, B et C dans le ZnO en fonction de la contrainte. Des mesures de diffraction de rayons X effectuées au CRHEA montrent que la couche de ZnO est relaxée, ou du moins que la déformation biaxiale est inférieure à 0.3% sur une couche tampon AlN, et encore plus faible sur AlGaN. Les mesures de réflectivité du LASMEA, détaillées ci-après, nous renseignent sur l'énergie des transitions excitoniques.

Par ailleurs, de trop fortes contraintes peuvent engendrer des dislocations qui vont se propager dans la structure. Ces dislocations constituent des zones de recombinaison non radiative pour les excitons, et des centres de diffusion pour la lumière. Ces deux effets doivent donc absolument être minimisés.

Caractérisation optique des couches de ZnO L'indice de réfraction et les transitions excitoniques ont été mesurées pour plusieurs couches de ZnO sur saphir et AlN au LASMEA. Même si de nombreuses données concernant les paramètres excitoniques de cristaux massifs de ZnO sont disponibles dans la littérature [Rey99, Zam02, Chi03, Tek04, Tho60], l'objectif est ici de déterminer les propriétés du ZnO cru sur AlN et avec des conditions de croissance proches de celles utilisées pour les microcavités, l'échantillon étant issu du même bâti de croissance.

Dans un premier temps, j'ai participé au LASMEA à la mesure de la réflectivité d'une couche ZnO sur saphir (échantillon Z302), et à sa modélisation (figures 3.10, 3.11). Dans un second temps, Anne-Lise Henneghien puis François Médard ont étudié des couches ZnO sur AlN sur Si. Les mesures d'ellipsométrie ont permis de déterminer, dans la plage spectrale de transparence, la constante diélectrique de fond ϵ_b loin de

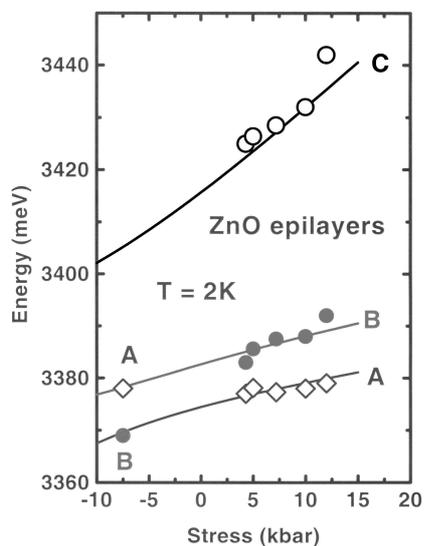


FIGURE 3.9 – Calcul de l'évolution des énergies des transitions excitoniques (lignes) à 2 K dans ZnO en fonction de la contrainte biaxiale (0001). Les symboles représentent des points expérimentaux [Gil01].

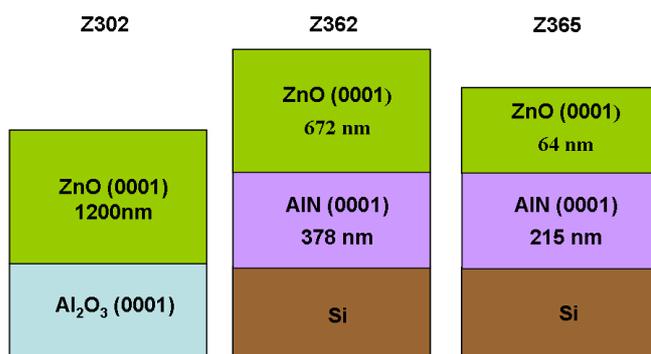


FIGURE 3.10 – Schémas des différents échantillons ayant servi à caractériser les couches de ZnO : l'échantillon Z302 (à gauche), l'échantillon Z362 (au centre) et l'échantillon Z365 (à droite).

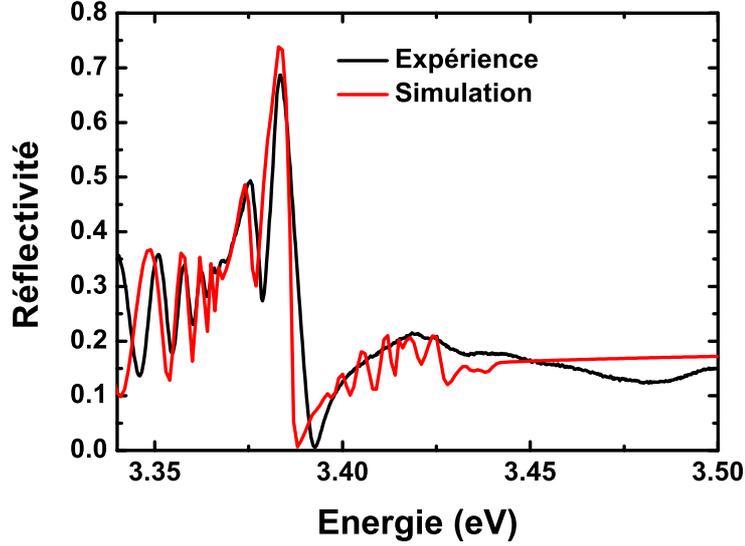


FIGURE 3.11 – Simulation de la réflectivité de l'échantillon Z302. Les paramètres utilisés dans l'équation 1.15 sont $\epsilon_b = 6.2$, $E_{X_A} = 3374\text{meV}$, $E_{X_B} = 3380\text{meV}$, $B_{X_A} = 150000\text{meV}^2$, $B_{X_B} = 200000\text{meV}^2$, $\sigma_{X_A} = 1.2\text{meV}$, $\sigma_{X_B} = 1.1\text{meV}$, $\gamma_{X_A} = 1\text{meV}$ et $\gamma_{X_B} = 1.1\text{meV}$.

toutes résonances excitoniques, donnée par une loi de Sellmeier [Mih09] :

$$\epsilon_b = n^2(\lambda) = a + \frac{b\lambda^2}{\lambda^2 - c^2}, \quad (3.5)$$

avec $a = 3.59$, $b = 0.387$ et $c = 350\text{nm}$. Concernant la plage spectrale au-dessus du gap d'absorption, l'indice de réfraction complexe a également été obtenu par des mesures d'ellipsométrie et les valeurs déduites sont $n = 1.9$ pour la partie réelle de l'indice et $k = 0.7$ pour sa partie imaginaire.

L'étude de la réflectivité à basse température (5K) en incidence normale nous renseigne sur les transitions excitoniques [Méd09a]. Les énergies et forces d'oscillateur des excitons de ZnO, obtenues en ajustant les paramètres dans l'algorithme de matrices de transfert, suivant la formule 1.15, sont les suivantes [Hen08] :

	Exciton A	Exciton B	Exciton C
Z362			
Energie E_0 (meV)	3373	3380	3428
Force d'oscillateur B (meV^2)	110000	125000	-
Elargissement homogène Γ_X (meV)	5	5.2	-
Z365			
Energie E_0 (meV)	3369	3375.5	-
Force d'oscillateur B (meV^2)	130000	55000	-
Elargissement homogène Γ_X (meV)	6	6	-

TABLE 3.4 – Paramètres excitoniques de Z362 et Z365

Nous constatons que les largeurs homogènes des transitions sont de $5 meV$ et $6 meV$ à basse température, ce qui est raisonnable car faible devant la largeur des modes de cavité attendus. L'énergie des transitions excitoniques est celle du ZnO non contraint pour la couche d'épaisseur $670 nm$, et est décalée vers le rouge de $4 meV$ pour la couche plus fine de $64 nm$, montrant une faible contrainte biaxiale en dilatation.

Epaisseur optique de la cavité L'épaisseur d'une cavité Fabry-Pérot est un multiple de $\lambda/2$, où λ est la longueur d'onde du mode de cavité. Cependant, le déphasage à la réflexion sur chacun des deux miroirs peut modifier cette relation. Dans les deux microcavités étudiées en détail dans cette thèse (Z507 et Z536), l'épaisseur optique de la couche ZnO est un multiple impair de $\lambda/4$. Dans le cas de la microcavité "métallique" Z507, le mode de cavité λ s'étend dans la couche $3\lambda/4$ de ZnO ainsi que la première couche $\lambda/4$ d'AlN. Dans le cas de la microcavité "semi-hybride" Z536, le mode de cavité $\lambda/2$ s'étend dans la couche $\lambda/4$ de ZnO ainsi que la première couche $\lambda/4$ de SiO_2 .

Gradient d'épaisseur Une des particularités de la croissance réalisée dans les bâtis d'épitaxie est de présenter des gradients de flux importants sur l'échantillon : les flux diminuent vers les bords de plaque. Pour diminuer ces gradients de flux (et donc d'épaisseur), la croissance est en général réalisée en faisant tourner l'échantillon à une vitesse de quelques dizaines de tours par minute.

Ce gradient d'épaisseur est souhaité dans le cas de la couche active des microcavités, car il permet de faire varier le désaccord entre mode excitonique et mode de cavité : la rotation de l'échantillon est alors stoppée ou ralentie. Le gradient est schématisé dans la figure 3.12. La variation d'épaisseur d'un bout à l'autre de l'échantillon est variable, de 5% à 50%.

Notons que le miroir de Bragg AlGaN/AlN possède aussi son propre gradient d'épaisseur. Les miroirs diélectriques SiN/SiO_2 sont quant à eux homogènes sur l'ensemble de l'échantillon.

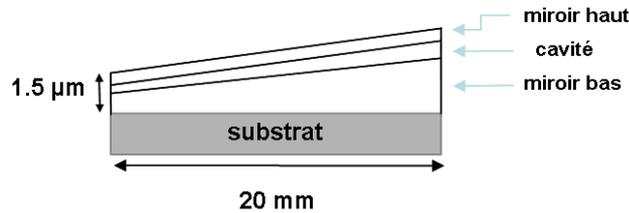


FIGURE 3.12 – Schéma du gradient d'épaisseur le long de la microcavité (vue de côté).

3.3 Microcavité à miroir métallique (Z507)

Les miroirs métalliques étant plus facile à déposer que les miroirs diélectriques, ils ont été utilisés pour les premières microcavités élaborées. La microcavité appelée Z507 est constituée d'une couche de ZnO d'épaisseur optique $3\lambda/4$, d'un miroir inférieur d' $AlN/Al_{0.2}Ga_{0.8}N$ (7.5 paires) cru sur substrat Si(111) et d'un miroir supérieur métallique constitué d'une couche de 10 nm d'aluminium (figure 3.13-b). Deux morceaux de cet échantillon, dénommés Z507 et Z507R permettent de parcourir une grande gamme de désaccords. La réflectivité nominale des miroirs inférieur et supérieur, depuis la couche ZnO, vaut $\sim 85\%$ et 55% respectivement. Le facteur de qualité correspondant est $Q \sim 60$.

Les études effectuées sur cet échantillon ont eu pour objectifs :

- la mise en évidence du couplage fort, la mesure du dédoublement de Rabi et du facteur de qualité ; nous avons pour cela étudié la réflectivité et la photoluminescence en fonction du désaccord entre exciton et mode de cavité.
- la maîtrise de notre compréhension depuis la conception et la fabrication jusqu'à la modélisation des spectres ; le LASMEA et le CRHEA ont pour cela confronté mesures structurales, expériences et simulations.
- l'étude du désordre à l'échelle du micron, en micro-photoluminescence, détaillée au chapitre 4.

3.3.1 Premiers spectres de réflectivité et de photoluminescence

La figure 3.13-a) montre un spectre de réflectivité à basse température ($T = 8 K$) et le spectre de photoluminescence correspondant au même point de l'échantillon Z507. L'échantillon est excité en continu à l'aide de la seconde harmonique d'un laser Argon ($5.07 eV$) avec une puissance incidente $P \sim 30 W/cm^2$ (cf. Annexe A, section A.2 pour le montage expérimental). Le spectre de réflectivité présente quatre structures principales. Les modes à $3.274 eV$ et $3.39 eV$ sont identifiés comme étant la branche basse et haute de polaritons respectivement (LPB et UPB). Les résonances à $3.36 eV$ et $3.371 eV$ correspondent aux transitions excitoniques X_A et X_B attendues dans le ZnO à basse température. L'écart à la valeur dans le ZnO massif s'explique par l'existence d'une contrainte d'étirement due à la différence des coefficients d'expansion thermique

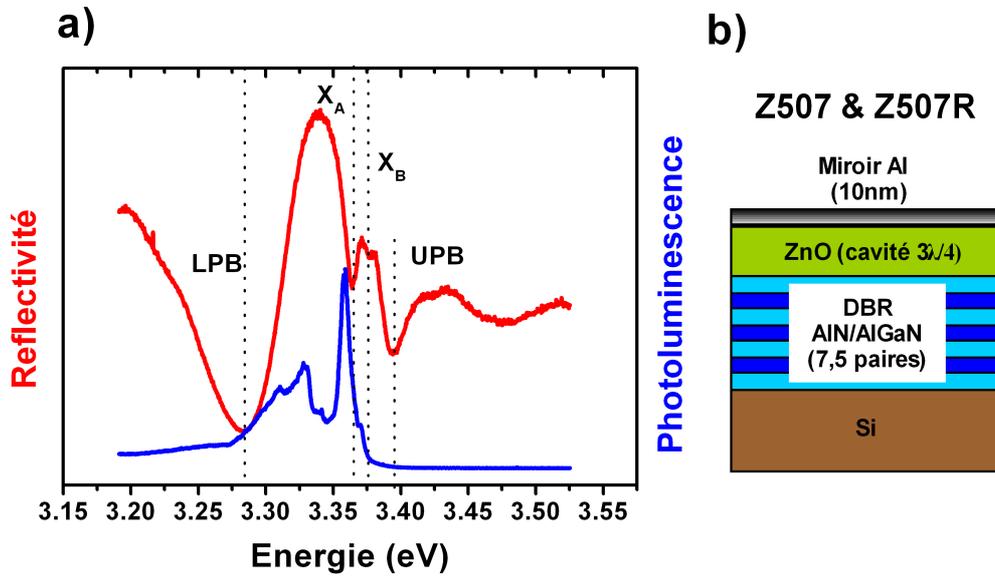


FIGURE 3.13 – (a) Comparaison de la réflectivité et de la photoluminescence de l'échantillon Z507. (b) Schéma de l'échantillon Z507 et Z507R.

du ZnO, de l'AlN du miroir inférieur et du silicium du substrat (cf section 3.2.4).

Le spectre de PL montre quant à lui des structures différentes de celles du spectre de réflectivité. Notons tout d'abord qu'aucune émission n'apparaît aux énergies des modes de polaritons. Un pic de luminescence apparaît à 3.358 eV juste en-dessous de la résonance excitonique et provient des excitons liés à un donneur. L'émission due à la transition excitonique B est également visible juste en-dessous de l'énergie de la transition visible en réflectivité (3.371 eV) mais elle est très faible. Ce spectre sera discuté plus en détail dans l'étude en fonction de l'épaisseur 3.3.3.

3.3.2 Mesure d'anti-croisement en réflectivité en fonction de l'épaisseur

Afin de savoir si les structures présentent un régime de couplage fort, nous avons mesuré la réflectivité en différents endroits des échantillons. Grâce au gradient d'épaisseur des structures élaborées, le désaccord entre l'énergie des transitions excitoniques et l'énergie du mode de cavité peut être ajusté. Le pointé des différentes raies sur les spectres de réflectivité dessine, ou non, l'anti-croisement du mode de cavité avec les

modes excitoniques, première signature du régime de couplage fort. Le dédoublement de Rabi peut alors en être déduit.

La figure 3.14-a) montre les spectres de réflectivité mesurés en micro-réflectivité à basse température (cf. Annexe A) en différents points de l'échantillon Z507. Le pointé des minima de réflectivité est présenté sur la figure 3.14-b). Le mode basse énergie identifié comme la branche basse de polaritons se décale en énergie depuis 3.25 eV jusqu'à l'énergie de la transition excitonique A à 3.36 eV comme attendu pour un tel mode de polaritons. De même, la branche haute de polaritons se décale depuis la résonance excitonique B vers les hautes énergies, bien qu'elle soit moins visible. L'élargissement important de cette branche est attribué à l'absorption du continuum autour de 3.43 eV. La résonance intermédiaire se décale depuis l'énergie des excitons A à celle des excitons B, et est attribuée à la branche intermédiaire de polaritons. Le pointé des deux modes de polaritons LPB et UPB présente un anti-croisement en fonction de l'épaisseur de ZnO, montrant l'existence d'un régime de couplage fort à basse température. Le dédoublement de Rabi associé (noté $\hbar\Omega_R$ sur la figure 3.14-b), évalué en désaccord nul, vaut 80 ± 10 meV. Notre pointé est comparé à celui du CRHEA qui a réalisé une campagne similaire sur cet échantillon.

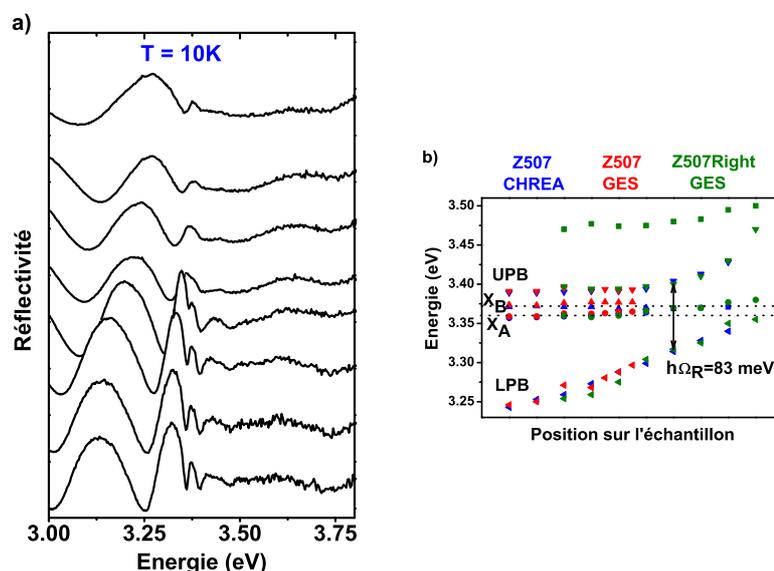


FIGURE 3.14 – (a) Mesure de la réflectivité de l'échantillon Z507 en fonction de la position sur l'échantillon. (b) Comparaison des minima de réflectivité pour différentes campagnes d'expériences effectuées au GES et au CRHEA.

3.3.3 Photoluminescence en fonction de l'épaisseur

Les mesures de micro-photoluminescence à basse température (8K) en fonction de la position sur l'échantillon Z507 sont présentées, pour des désaccords négatifs, sur la figure 3.15. L'échantillon est éclairé par un spot laser (Argon, 5.07 eV) de 2 μm de diamètre à faible puissance ($P = 60 \text{ W/cm}^2$). Pour comparaison, un spectre de réflectivité (couleur bleu sur la figure), a été ajouté (panneau supérieur de la figure 3.15).

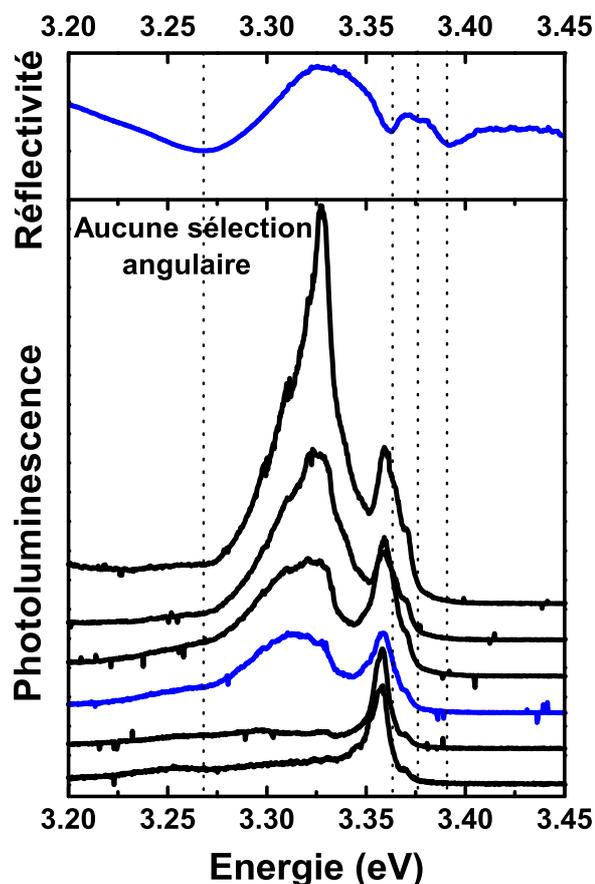


FIGURE 3.15 – Mesure de la photoluminescence, pour une faible puissance d'excitation ($P = 60 \text{ W/cm}^2$), de l'échantillon Z507 en fonction de la position sur l'échantillon. Les spectres de réflectivité et de PL bleu ont été mesurés au même point de l'échantillon. Les spectres correspondent à la luminescence de l'échantillon intégrée sur tous les angles inférieurs à 25° , correspondant à l'ouverture numérique de l'objectif du microscope.

L'interprétation des spectres est la même que celle faite au paragraphe 3.3.1 ci-dessus : nous n'observons pas de pic à l'énergie des branches LPB et UPB identifiées en réflectivité. Le pic à 3.358 eV ne se décale pas en fonction du désaccord, et n'est donc

pas associé à la branche intermédiaire de polaritons.

La raie à 3.327 eV, invisible sur le spectre au désaccord le plus négatif, ne se décale pas non plus en fonction du désaccord, mais sa forme évolue fortement. Son amplitude augmente pour égaler (spectre bleu) puis largement dépasser celle du pic à 3.358 eV. Trois hypothèses sont envisagées pour l'expliquer : une luminescence extrinsèque transmise par le mode de cavité (i), ou à travers le miroir Al (ii), ou enfin une émission des polaritons de la branche basse depuis des angles élevés, très sensible à la collection par l'objectif de microscope (iii).

Dans la première hypothèse (i), la luminescence est extrinsèque, due à des excitons liés ou une bande de défauts de ZnO, de spectre large. Elle est filtrée par le mode de cavité. Elle devrait alors être maximale à l'énergie du mode et se décaler avec lui, ce qui n'est pas le cas.

Dans la deuxième hypothèse (ii), la luminescence extrinsèque traverse le miroir d'aluminium, indépendamment du mode de cavité. En effet, si la bande interdite de la cavité était idéale ($R_{Al} \sim 1$), toute lumière émise par la couche active à une énergie différente de celle du mode de cavité serait réfléchiée par les miroirs et ne pourrait s'échapper de la cavité. Le miroir Al possède cependant une faible réflectivité (55% depuis le ZnO vers l'air). Une telle luminescence a été observée pour des microcavités organiques à miroir métallique, à l'énergie des excitons [Lid02]. Dans ce cas, nous ne nous attendons pas à une variation de l'amplitude du pic associé aussi importante que nous l'observons, sauf si l'épaisseur du miroir d'aluminium n'est pas homogène.

Dans la troisième hypothèse (iii), la relaxation des polaritons de la branche basse ne les amène pas jusqu'au minimum d'énergie, en raison de l'effet de bottleneck présenté en détail au chapitre 5. Ils émettent alors depuis des angles élevés. Notre objectif de photoluminescence collecte les photons émis à des angles inférieurs à 25°. Le spectre de photoluminescence est alors très sensible à la distribution angulaire des polaritons, qui dépend fortement du désaccord. Cependant, nous n'avons pas effectué de mesures de photoluminescence résolue en angle sur cet échantillon, et nous ne pouvons donc pas confirmer cette hypothèse.

Ce comportement, très différent de celui en réflectivité, ne nous permet pas de conclure que le couplage fort est présent en PL, où les états qui émettent ne sont pas nécessairement les polaritons. Le couplage fort est visible en réflectivité car on observe alors les transitions ayant une grande force d'oscillateur et une grande densité d'états. Les travaux antérieurs sur les microcavités GaN ont montré que le couplage fort en photoluminescence est plus difficile à atteindre qu'en réflectivité. Dès 2003, N. Antoine-Vincent *et al.* publiaient des travaux sur le couplage fort dans une cavité à GaN massif, démontré par des mesures de réflectivité [AV03]. Les premiers anti-croisements mesurés en photoluminescence ont été publiés plus récemment, en 2006 et 2007 [But06, Sel06], pour des facteurs de qualité des microcavités deux fois plus élevés, et donc en général

pour des microcavités de type "semi-hybride", à miroir supérieur diélectrique.

3.3.4 Réflectivité en angle - Influence de l'absorption excitonique

La spectroscopie résolue en angle de cette cavité, à basse température, a été mesurée au LASMEA pour valider la modélisation par les matrices de transfert et la maîtrise de l'épaisseur des couches déposées. Ces travaux sont présentés dans la référence [Méd09b], dont est extraite la figure 3.16. Les spectres de réflectivité de plusieurs microcavités similaires, d'épaisseurs différentes, ont de plus été comparés pour mettre en exergue le rôle de la forte absorption excitonique.

La dispersion en angle des modes identifiés sur les spectres de réflectivité confirme le régime de couplage fort. En polarisation TM, les transitions associées aux trois excitons A, B et C sont observées, l'exciton C étant absent en polarisation TE. La branche haute de polaritons à 3.395 eV, à peine visible à 5°, est clairement distinguable entre 20° et 50°. Cette branche se décale vers les hautes énergies et disparaît au-delà de 50° dans le continuum d'absorption, conformément aux simulations effectuées au LASMEA par l'algorithme des matrices de transfert. Le dédoublement de Rabi, bien que difficile à mesurer, est estimé à 70 meV. L'élargissement homogène déduit des simulations pour les excitons A et B vaut 8.5 meV.

Afin de confirmer l'influence de l'absorption de la couche active sur le couplage fort, l'équipe du LASMEA [Méd09b] a par ailleurs comparé les spectres de réflectivité de la cavité Z507 avec une cavité plus fine (Z537, couche active $\lambda/4$). Lorsque l'épaisseur de la cavité augmente, les structures intermédiaires, à l'énergie des excitons A et B, deviennent plus prononcées, et celle associée à la branche haute disparaît. En raison de la forte absorption excitonique, le produit $\alpha \times L_c$, avec α le coefficient d'absorption excitonique et L_c l'épaisseur de ZnO, vaut environ 4.5, et est donc très supérieur à 1. Dans l'intervalle d'énergie [3.365, 3.395] eV, la réflectivité de la cavité $3\lambda/4$ correspond alors à un milieu semi-infini de ZnO recouvert d'une fine couche d'Al. Ces résultats recourent les prédictions théoriques présentées dans la section 3.1 [Fau08].

3.3.5 Conclusion sur la microcavité Z507

Un régime de couplage fort est observé en réflectivité. Les valeurs estimées du dédoublement de Rabi à 10 K sont compatibles entre elles : 80 ± 10 meV dans l'étude en fonction du désaccord, et 70 ± 10 meV dans l'étude en angle. Le facteur de qualité du mode de cavité est de 50, comparable à la valeur nominale prévue par les simulations. En photoluminescence, nous n'observons pas l'émission de polaritons, mais une émission "incohérente" des excitons non couplés, à travers le miroir d'aluminium. Du fait de l'absorption excitonique élevée dans ZnO, la conception de la cavité est extrêmement importante : pour privilégier l'observation de la branche haute polaritonique, la couche active de ZnO doit être fine ($\lambda/4$) ; de plus forts dédoublements de Rabi nécessitent une cavité plus épaisse, mais la branche haute ne peut alors plus être clairement identifiée.

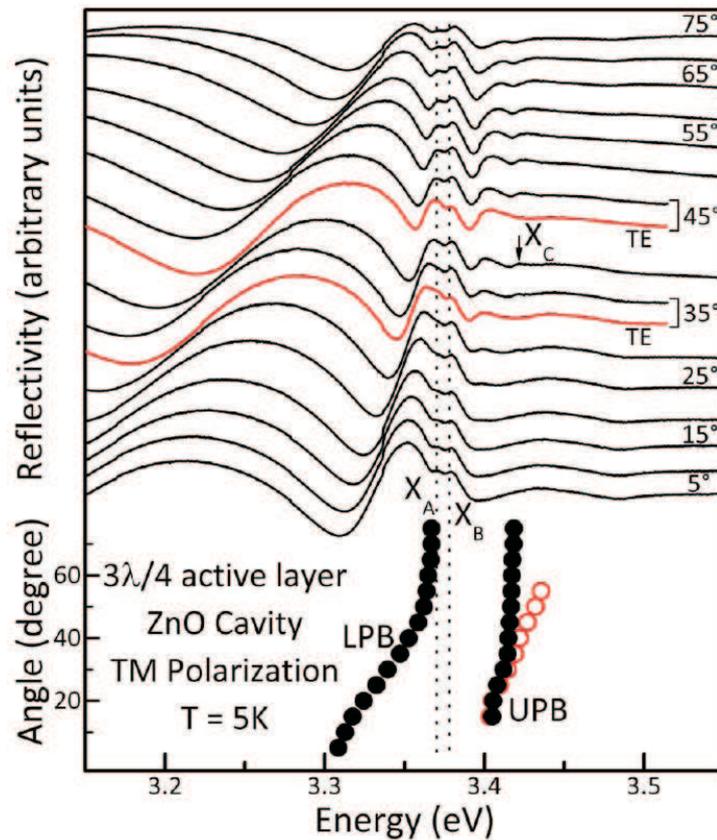


FIG. 2. (Color online) Upper part: low temperature ($T=5$ K) reflectivity spectra of a $3\lambda/4$ ZnO bulk microcavity recorded for various incident angle from 5° to 75° under TM polarization. In order to underline the influence of C exciton on the UPB, TE polarization spectra have been reported for 35° and 45° . Lower part: the energies of reflectivity dips corresponding to the lower polariton branch and upper polariton branch energies are reported as a function of the incident angle (vertical axis) for TM (full circles) and TE (open circles) configurations.

FIGURE 3.16 – Spectroscopie résolue en angle de l'échantillon Z507, à basse température, mesurée au LASMEA, d'après la réf. [Méd09b].

3.4 Microcavité "semi-hybride", à miroir supérieur diélectrique

Après la démonstration du couplage fort en réflectivité dans une microcavité "métallique", l'étape suivante fut d'améliorer le facteur de qualité de la microcavité en déposant un miroir diélectrique à la place du miroir aluminium. L'intérêt du miroir diélectrique réside dans son coefficient de réflexion, plus élevé que celui du miroir métallique et qui permet d'atteindre un facteur de qualité plus élevé. L'inconvénient de ce miroir est sa longueur de pénétration plus grande que dans un miroir métallique, où elle est quasiment nulle. L'épaisseur optique effective $L_c + 2L_{DBR}$ est alors modifiée (cf section 1.2.4).

La microcavité appelée Z536 est constituée d'une couche de ZnO d'épaisseur $\lambda/4$ déposée entre un miroir inférieur de 11 paires d' $AlN/Al_{0.2}Ga_{0.8}N$ et un miroir supérieur de 5 paires de Si_3N_4/SiO_2 (Figure 3.17-a)). Le facteur de qualité prévu pour cette cavité est de l'ordre de 120. Notons que le coefficient de réflexion du miroir diélectrique est comparable à celui du miroir métallique (68% depuis l'air, 44% depuis ZnO) en raison du petit nombre de paires de couches diélectriques (cf section 3.2.3). L'amélioration du facteur de qualité nominal est simplement liée à l'augmentation de la longueur effective de la cavité. La réalisation d'une cavité avec un miroir diélectrique avec un nombre plus élevé de paires SiN/SiO_2 (11 paires au lieu de 5) n'a été possible que très récemment.

Les études effectuées sur cet échantillon ont eu pour objectifs :

- l'évaluation des caractéristiques de cette cavité (facteur de qualité, dédoublement de Rabi) ;
- la compréhension des régimes de couplage fort avec les différents modes impliqués (mode de cavité, modes de Bragg) en fonction de l'épaisseur de la couche active ;
- la comparaison des spectres à basse température et température ambiante ;
- l'étude du désordre à l'échelle du micron, en micro-photoluminescence, détaillée au chapitre 4 ;
- l'étude de l'émission sous forte excitation, détaillée au chapitre 5.

3.4.1 Réflectivité et photoluminescence en fonction du désaccord

La figure 3.17-c) présente les spectres de réflectivité et de photoluminescence en trois points de l'échantillon Z536 (près du centre et à mi-rayon), mesurés à 10 K et 300 K en micro-photoluminescence.

L'interprétation des structures sur les spectres étant complexe, nous avons mesuré la réflectivité et la photoluminescence en fonction de la position sur l'échantillon (Figure 3.18-a,b)) afin de mettre en évidence l'anti-croisement caractéristique du couplage fort. En partant du centre de l'échantillon, trois modes sont facilement identifiables et ont une énergie qui dépend de la position. On peut donc en déduire que ces trois modes ont une composante photonique. La dispersion en "U" des modes reflète la variation d'épaisseur des couches, qui est maximale au centre de l'échantillon. La figure 3.18-c)

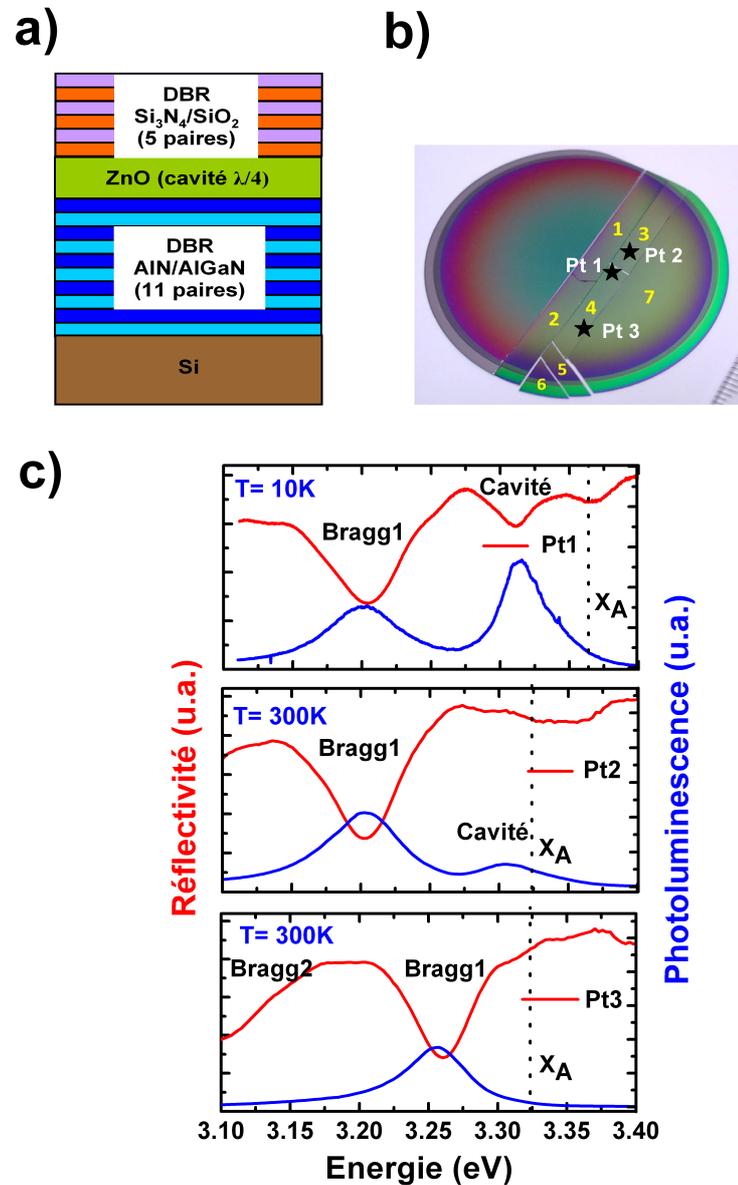


FIGURE 3.17 – (a) Schéma de la microcavité Z536. (b) Photographie de l'échantillon Z536. Les différents points de mesure sont représentés par des étoiles. (c) Spectres de réflectivité (en rouge) et de photoluminescence (en bleu) mesurés pour trois différentes positions sur l'échantillon à basse température et à température ambiante. Les lignes en pointillés verticales indiquent la position de la résonance excitonique.

montre le pointé des minima des spectres de réflectivité en fonction de la position sur l'échantillon.

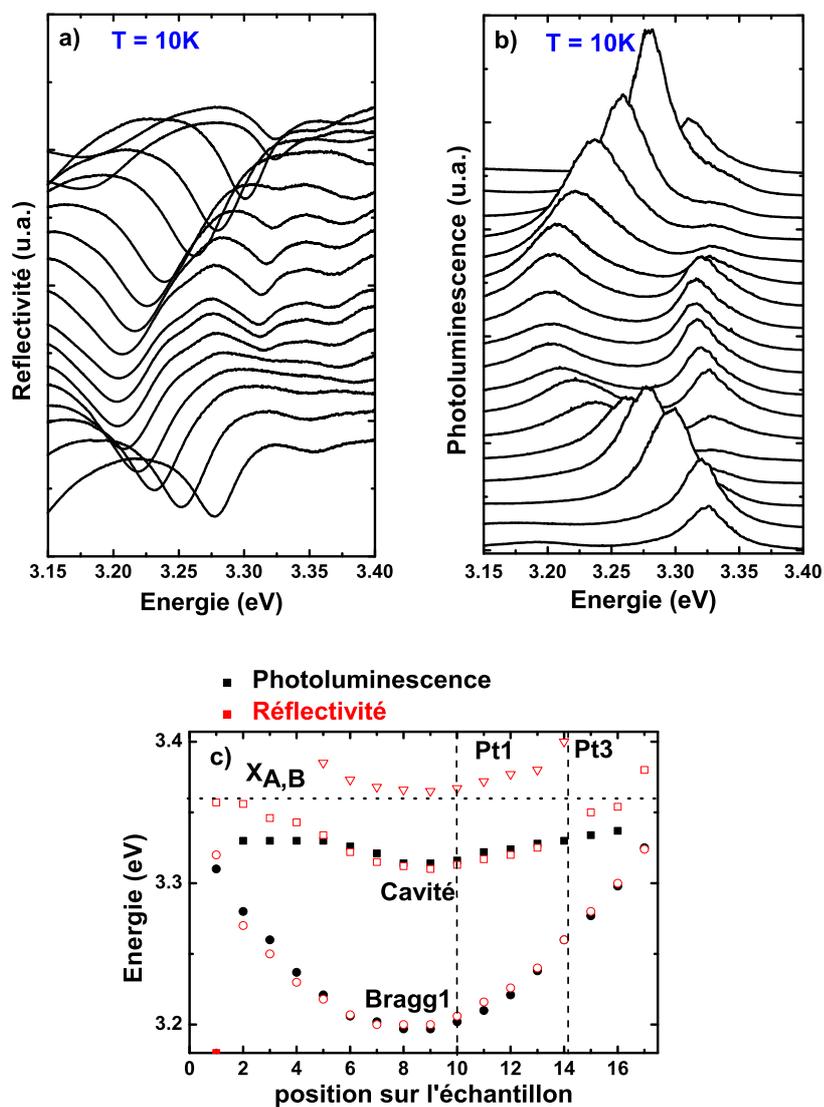


FIGURE 3.18 – (a) Spectres de réflectivité à basse température ($T = 10K$) en fonction de la position sur l'échantillon Z536. (b) Spectres de photoluminescence à basse température ($T = 10K$) en fonction de la position sur l'échantillon Z536. (c) Energies des minima de réflectivité et des maxima de photoluminescence en fonction de la position sur l'échantillon. La ligne horizontale en pointillés montre la résonance excitonique X_A . Les deux lignes verticales en pointillés montrent la position sur l'échantillon des points 1 et 3 discutés dans le texte.

3.4.1.1 Identification des modes de polaritons

L'identification des différentes raies a fait l'objet de débats importants : dans l'interprétation initiale des spectres à 10 K, la plus simple, le mode à 3.21 eV était attribué à la branche basse de polaritons, et les modes à 3.32 eV et 3.37 eV aux branches intermédiaire et haute. L'énergie d'émission des excitons, qui varie légèrement de couche à couche en fonction de la contrainte, n'était pas connue a priori. Cependant, plusieurs éléments nous ont amenés à remettre en cause cette interprétation :

- **L'analyse d'images faites par microscopie électronique à balayage (MEB)** sur des coupes transversales de l'échantillon a fourni une meilleure connaissance des gradients d'épaisseur des couches.
- **L'étude des spectres de réflectivité des miroirs de Bragg.** Les spectres de réflectivité des miroirs de Bragg nitrure (cf figure 3.8) montrent que leur bande interdite est étroite et que le premier mode de Bragg à basse énergie est, dans une structure analogue à Z536, à 3.18 eV. Ce décalage de la bande interdite vers les hautes énergies par rapport aux spectres prédits est dû à une concentration d'aluminium trop importante (30% au lieu de 22%) qui modifie l'indice de réfraction, et donc l'épaisseur optique, des couches AlGaN du miroir.
- **De multiples simulations.** Les simulations de matrice de transfert du LASMEA ont montré que ce mode de Bragg se décale à haute énergie lorsque la microcavité est complétée, par rapport au miroir seul.

Nous avons donc finalement conclu que la structure à 3.21 eV doit être associée au mode de Bragg, et que le mode de cavité est à 3.32 eV. Ces deux modes sont en régime de couplage fort avec l'exciton. Nous déduisons des simulations que l'énergie de l'exciton A dans la couche de ZnO vaut 3.37 eV à 10 K.

3.4.1.2 Désaccords accessibles

La figure 3.17-c) présente donc deux situations typiques de l'échantillon Z536 :

- Au centre de l'échantillon, les modes de Bragg et de cavité sont tous deux à désaccords négatifs à 10 K (point 1) ; à 300 K le désaccord du mode de cavité devient nul (point 2) car l'énergie des transitions excitoniques déduite de la loi de Varshni vaut 3.31 eV [Ozg05] ;
- A mi-rayon (point 3), les modes de Bragg se décalent à haute énergie, et le mode de cavité est à désaccord positif car la couche de ZnO est trop fine, et n'est plus identifiable.

En faisant varier la température et la position, nous avons donc accès à un désaccord positif jusqu'à légèrement négatif (-30 meV) pour le mode de cavité, et uniquement au désaccord négatif ($\delta < -30$ meV) pour le mode de Bragg.

3.4.1.3 Photoluminescence

A la différence de l'échantillon Z507, les raies observées en photoluminescence correspondent aux structures mesurées en réflectivité. Cela constitue un progrès important, puisque ce sont désormais les polaritons qui dominent le spectre de luminescence. Nous n'observons plus d'émission "incohérente" d'excitons non couplés aux modes optiques.

3.4.2 Couplage fort avec le mode de cavité et le mode de Bragg, à température ambiante

Réflectivité et Photoluminescence résolues en angle

Nous nous plaçons dans un premier temps au centre de l'échantillon afin d'étudier le couplage fort avec le mode de cavité. Les mesures en fonction de la position sur l'échantillon laissent un grand nombre de paramètres inconnus du fait que toutes les épaisseurs varient et demeurent incertaines. Les mesures résolues en angle nous permettent d'accéder, pour un jeu d'épaisseurs données, à une gamme de désaccords connue. Le dispositif expérimental (cf. A) nous donne accès à une large plage angulaire allant de 10° à 80° en réflectivité et de -20° à 80° en photoluminescence. Dans cette section nous présentons des mesures effectuées à température ambiante. Le montage ne permettait d'effectuer au départ que des mesures à température ambiante. Un cryostat a été mis en place sur le goniomètre plus tardivement et a permis de mesurer les spectres à différentes températures présentés au chapitre 5.

La figure 3.19 montre les spectres résolus en angle de réflectivité et de photoluminescence à 300 K . Sur la figure 3.19-a), le mode de cavité, pointé en rouge, croise l'énergie des excitons. Ceci pourrait nous amener à conclure au couplage faible. Mais les modes de Bragg influent fortement sur les spectres. En vert, le premier mode de Bragg atteint la résonance avec les excitons à 40° , et montre un anti-croisement avec le mode de cavité en rouge, caractéristique du couplage fort. De même, le second mode de Bragg (en rose), en résonance à 65° , présente un anti-croisement avec la résonance excitonique. A haute énergie, le mode indiqué en bleu est très élargi et est attribué à la branche haute de polaritons. Contrairement aux simulations de la section 3.1, pour lesquelles cette branche est amortie en raison de l'absorption du continuum d'états de diffusion, elle est ici visible car la couche de ZnO est fine, d'épaisseur optique $\lambda/4$.

La photoluminescence a été mesurée sous excitation continue à 5.07 eV au moyen d'un laser Argon doublé en fréquence et sous faible excitation ($P = 20\text{ W/cm}^2$) (figure 3.19 -b)). Les spectres sont dominés par l'émission du premier mode de Bragg, qui suit la même dispersion qu'en réflectivité. La branche associée au mode de cavité est visible en échelle logarithmique, mais on ne peut suivre sa dispersion au-delà de 20° .

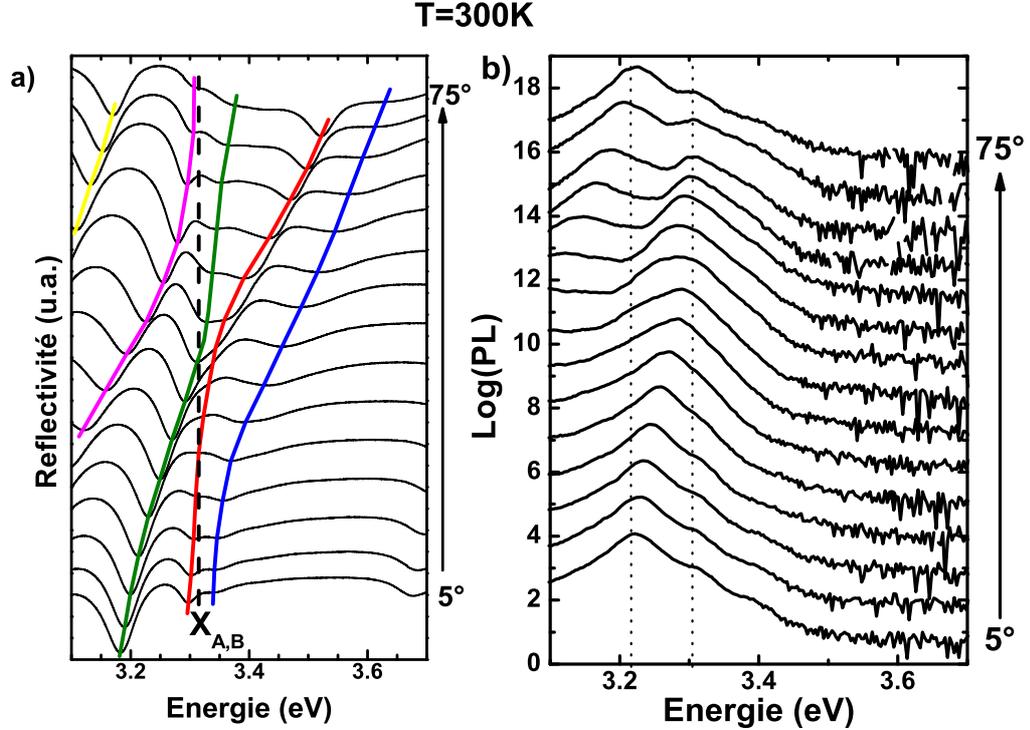


FIGURE 3.19 – (a) Spectres de réflectivité résolue en angle de la microcavité Z356 à température ambiante en polarisation TE, mesurés au LASMEA par F. Medard [Fau09]. Les différentes courbes de couleur (bleu, rouge, verte, violette et jaune) montrent la dispersion des différents modes. (b) Spectres de photoluminescence résolue en angle en un point de l'échantillon de même désaccord mesuré au GES. Les lignes verticales en pointillés servent de référence à angle nul pour les deux modes principaux.

3.4.3 Comparaison au modèle d'oscillateurs couplés

L'analyse des résultats expérimentaux demeure complexe car de multiples modes optiques interviennent. Le modèle d'oscillateurs couplés, présenté pour un mode de cavité et une transition excitonique dans la section 1.3.1, traite les polaritons de cavité comme un mélange des différents modes (mode de cavité et résonances excitoniques) considérés comme une base d'états indépendants. Il a été étendu à plusieurs transitions excitoniques et au continuum d'états de diffusion dans la section 3.1, pour expliquer l'amortissement de la branche haute de polaritons. Nous allons ici l'étendre à plusieurs modes optiques (mode de cavité, modes de Bragg). Toutefois, pour des raisons de simplicité, et du fait que nous ne nous intéressons qu'aux modes aux basses énergies, nous n'avons pas inclus ici le continuum d'états de diffusion. De plus, nous interprétons ici des expériences à 300K pour lesquelles les transitions associées aux excitons A et B sont confondues; nous ne considérons donc qu'une seule transition excitonique. Les états propres du système sont obtenus en diagonalisant la matrice de quasi-particules, qui

s'écrit alors, pour M modes optiques d'énergies E_{ν_M} :

$$\begin{pmatrix} E_{X_1} & V_{X_1\nu_1} & V_{X_1\nu_2} & \cdots & V_{X_1\nu_M} \\ V_{X_1\nu_1} & E_{\nu_1} & 0 & \cdots & 0 \\ V_{X_1\nu_2} & 0 & E_{\nu_2} & & \\ \vdots & \vdots & & \ddots & \\ V_{X_1\nu_M} & 0 & 0 & & E_{\nu_M} \end{pmatrix} \quad (3.6)$$

Dans la figure 3.20, nous comparons les transitions identifiées dans les spectres de réflectivité avec les résonances calculées par le modèle d'oscillateurs couplés. L'ajustement du modèle est réalisé comme suit : la dispersion et l'élargissement homogène des modes optiques "nus" sont obtenus par le modèle de matrices de transfert, en l'absence de résonance excitonique ; leur désaccord et leur couplage avec l'exciton sont des paramètres ajustables. Nous obtenons un bon accord entre modèle et expérience pour un désaccord négatif de -18 meV du mode de cavité à $k = 0^\circ$, un désaccord de -140 meV pour le 1er mode de Bragg, et des couplages $2V_{X-\nu_{cav}} = 47 \text{ meV}$. Le couplage du mode de Bragg à 40° vaut par ailleurs $2V_{X-\nu_{Bragg1}} = 40 \text{ meV}$.

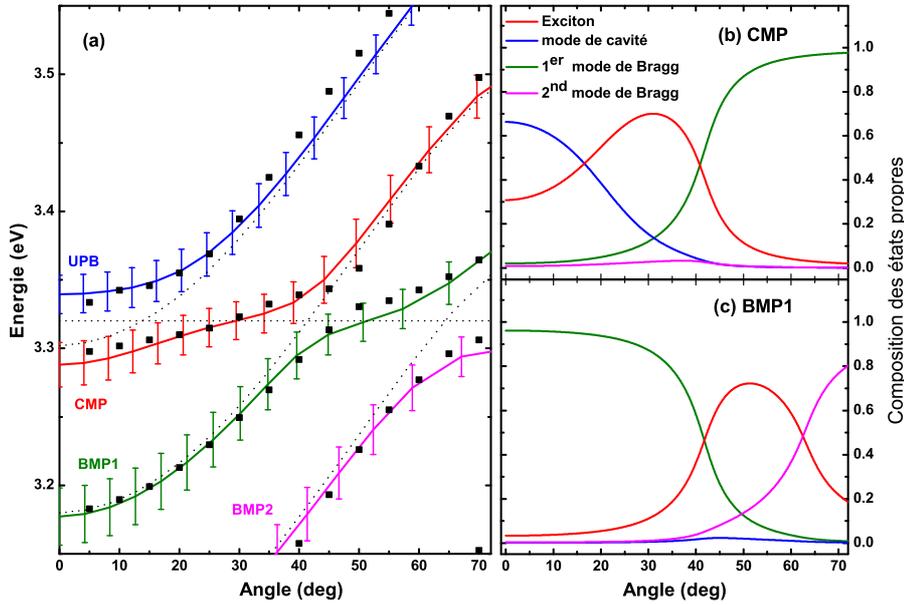


FIGURE 3.20 – (a) Comparaison entre les résonances mesurées (carrés pleins) et le modèle d'oscillateurs couplés (lignes pleines). Les barres d'erreur représentent l'élargissement homogène calculé des modes de polaritons. Les modes non couplés sont représentés par les lignes en pointillés noirs. (b) Dépendance angulaire de la composition des polaritons du mode de cavité (panneau du haut) et des polaritons du mode de Bragg (panneau du bas).

Nous concluons donc que le mode de cavité et le mode de Bragg sont simultanément

en régime de couplage fort. Nous définissons ainsi trois branches polaritoniques : les polaritons de mode de Bragg (Bragg-mode polaritons, BMP), les polaritons de mode de cavité (Cavity-mode polaritons, CMP) et la branche haute (Upper polariton branch, UPB), identifiées sur la figure 3.20. Pour le CMP, le dédoublement de Rabi vaut 40 meV et est légèrement plus grand que l'élargissement homogène du mode de cavité (30 meV , ce qui correspond à un facteur de qualité $Q \sim 100$) et des excitons A et B (25 meV à 300 K). Autour de $\theta = 40^\circ$, la signature du couplage fort entre les excitons et le mode de Bragg est moins prononcée, avec un dédoublement de Rabi d'environ 30 meV . Notons que les dédoublements de Rabi sont inférieurs au termes de couplage $2V_{X-\nu}$ du fait que nous avons introduit plusieurs modes photoniques dans la matrice de quasi-particules et que ces modes se repoussent.

Comparaison entre mode de Bragg et mode de cavité Le couplage est plus faible pour le mode de Bragg que pour le mode de cavité, ce que nous attribuons à deux raisons principales :

- L'intensité du couplage est proportionnelle à l'amplitude du champ dans la couche active. Or les modes de Bragg pénètrent plus dans les miroirs. L'extension spatiale L_B du mode de Bragg est donc plus importante que l'extension du mode de cavité. D'après l'équation 1.33, l'élément de matrice V couplant l'exciton et le champ s'en trouve réduit d'un facteur $\sqrt{\frac{L_{eff}}{L_B}}$.
- Le temps de vie des modes de Bragg est en général plus faible que celui du mode de cavité, en raison d'un facteur de qualité plus petit. Cette caractéristique n'est cependant pas très marquée dans nos échantillons où le premier mode de Bragg présente un facteur de qualité de ~ 85 , comparable à celui du mode de cavité (~ 100), d'après les simulations pour une cavité "nue".

Composition des états propres La figure 3.20-b) présente la contribution relative des états purs aux branches CMP et BMP, en fonction de l'angle. A $\theta = 0^\circ$, le mode de polaritons de cavité, à 3.30 eV , présente une composition avec un bon équilibre exciton-photon, tandis que le mode de polaritons de Bragg, à 3.18 eV , a une petite composante exciton, en raison du désaccord négatif. A $\theta = 40^\circ$, c'est avec le mode de Bragg que les branches CMP et BMP présentent une composition équilibrée exciton-photon.

Nous pourrions nous attendre à ce que la branche de polaritons de mode de cavité constitue un système relativement isolé, et un bon candidat à l'observation d'effets non-linéaires, puisque le désaccord des polaritons de mode de Bragg est trois fois supérieur à leur dédoublement de Rabi. Cependant, les spectres de photoluminescence à température ambiante montrent que l'émission est dominée par les polaritons de mode de Bragg. Le chapitre 5, consacré à la relaxation des polaritons parmi les différentes branches, permettra d'expliquer ces résultats.

Couplage fort à basse température François Médard, au LASMEA, a étudié le couplage entre exciton et mode de cavité à 77 K , par réflectivité résolue en angle. Il a mesuré un dédoublement de Rabi de 60 meV . A cette température, la transition excitonique est décalée vers les hautes énergies et le désaccord du mode de cavité est plus négatif ($\delta = -30\text{ meV}$). Les transitions associées aux excitons A et B sont clairement distinguées.

Comparaison avec la cavité "métallique" Z507 Le dédoublement de Rabi observé est légèrement inférieur à celui mesuré pour la cavité avec le miroir métallique (70 meV à 10 K pour Z507). Nous l'expliquons par le faible confinement du photon : le mode pénètre plus profondément dans le DBR que dans le métal ce qui augmente la longueur effective de la cavité. Ceci a déjà été observé et modélisé dans les microcavités GaN [Rev08].

3.4.4 Couplage fort avec le mode de Bragg seul

Nous choisissons ici un point à mi-rayon sur l'échantillon, similaire au point 3 (cf. figure 3.17-b)). A cette position, le mode de cavité est à désaccord positif et on observe le couplage de la résonance excitonique avec le mode de Bragg.

La figure 3.21 montre les spectres de réflectivité et de photoluminescence résolus en angle, en polarisation TE, à température ambiante. Les courbes en rouge montrent la dispersion des différents modes. On peut distinguer trois modes : un premier mode à 3.34 eV à $\theta = 5^\circ$. Ce mode se décale vers les hautes énergies et correspond à la branche de polaritons résultant du couplage du mode de cavité avec l'exciton (noté CMP). Le mode de Bragg (noté BMP) à 3.298 eV à $\theta = 5^\circ$, n'est visible qu'aux petits angles jusqu'à $\theta = 35^\circ$. Ce mode tend vers la transition excitonique à 3.31 eV à $\theta = 35^\circ$. Au-delà, le second mode de Bragg (noté B2, à 3.12 eV à $\theta = 5^\circ$) vient croiser le système et rend impossible la lecture des modes. Le système comprend alors deux régimes :

- Le mode de Bragg (BMP) est en régime de couplage fort avec l'exciton. Ce mode constitue un canal de relaxation pour les polaritons.
- Le mode de Bragg (B2) est quant à lui en régime de couplage faible et se comporte donc comme un mode de fuite de la cavité.

Notons que cette situation où le second mode de Bragg est en régime de couplage faible est différente de la situation présentée sur la figure 3.20 où les deux modes de Bragg sont en régime de couplage fort. La position sur l'échantillon et le désaccord diffèrent entre les deux situations, les largeurs des modes étant similaires par ailleurs. La condition de désaccord nul apparaît ainsi pour des angles différents et l'épaisseur de ZnO varie. On peut donc s'attendre à ce que le confinement du mode de Bragg dans la couche active ne soit pas le même dans les deux situations, expliquant cette différence de comportement. Les conditions de couplage fort pour les modes de Bragg restent tou-

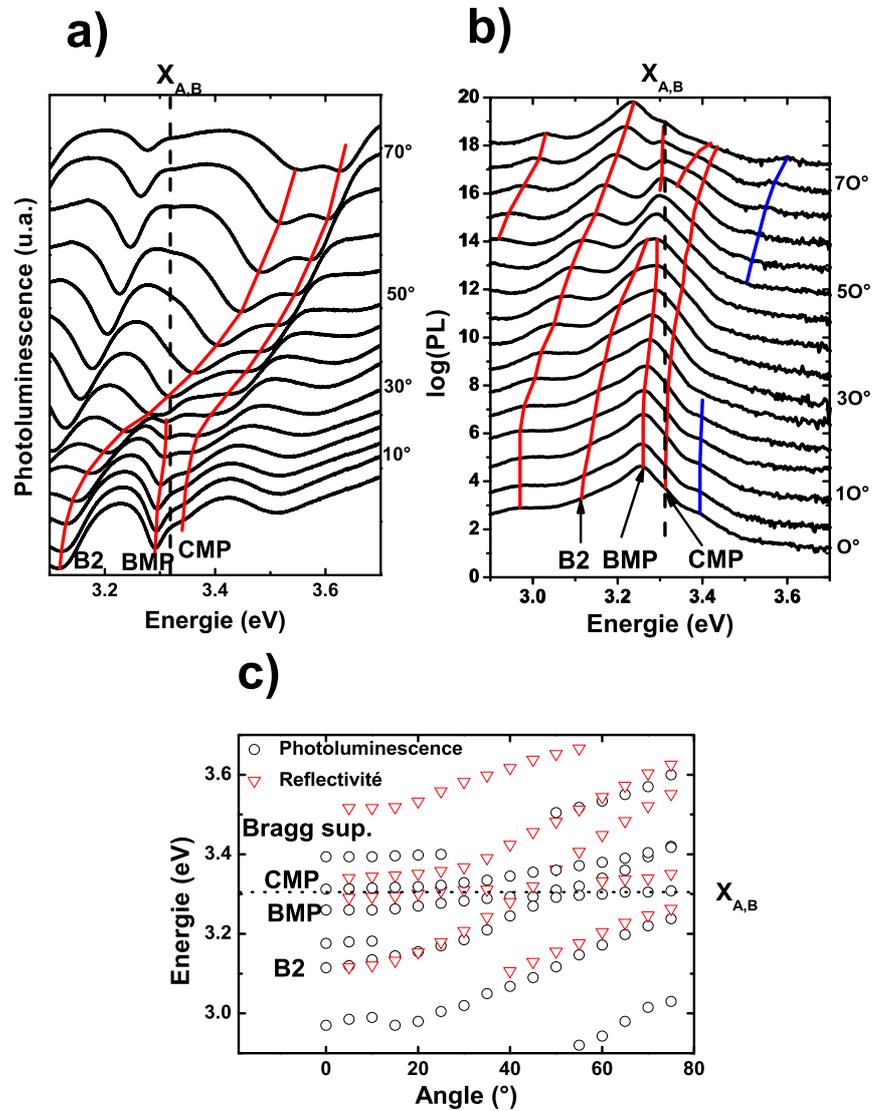


FIGURE 3.21 – (a) Mesures de la réflectivité résolue en angle à température ambiante réalisées au LASMEA. (b) Photoluminescence résolue en angle à température ambiante, mesurée au GES (échelle semi-logarithmique). Les lignes en rouge montrent la dispersion des modes. La courbe bleu montre la dispersion d'une branche qui n'a pas été clairement identifiée. Les deux séries de mesures (a) et (b) ont été effectuées pour le même désaccord exciton-mode de Bragg. (c) Comparaison de la dispersion en énergie des modes en fonction de l'angle de détection en réflectivité (triangles rouge) et en PL (ronds noir).

tefois difficiles à comprendre.

3.4.5 Conclusion sur la microcavité Z536

Le couplage fort a été simultanément observé dans cette microcavité avec le mode de cavité et le mode de Bragg. Les dédoublements de Rabi mesurés valent respectivement 40 meV et 30 meV pour le mode de cavité et le mode de Bragg. La branche haute de polaritons est désormais visible du fait de la faible épaisseur de la couche active de ZnO mais demeure très large spectralement. Seuls les désaccords nul et positif sont accessibles pour le mode de cavité à température ambiante. Un désaccord négatif est possible à basse température, mais il reste toutefois faible. De plus l'écart en énergie, bien qu'important (140 meV), entre le mode de Bragg et le mode de cavité reste trop faible pour empêcher que le mode de Bragg ne soit en régime de couplage fort. La photoluminescence est ainsi dominée par le mode Bragg à température ambiante. Et lorsque l'on va vers des désaccords croissants, seul le mode de Bragg demeure en régime de couplage fort. La conception de la microcavité doit donc inclure une plus grande bande interdite décalée vers les basses énergies si on veut limiter ces problèmes en éloignant le mode de Bragg du mode de cavité.

3.5 Comparaison avec d'autres résultats sur les microcavités planaires ZnO

Il est intéressant de comparer nos résultats avec ceux obtenus par les différents groupes ayant réalisés des microcavités massives de ZnO. Nous discutons ici des résultats expérimentaux publiés par les différents groupes et renvoyons le lecteur aux articles cités pour voir les spectres que nous ne présentons pas ici.

La microcavité américaine (Shimada *et al.*, Université de Virginie) [Shi08] Le mode de polariton basse énergie est observée à 3.23 eV sur le spectre de photoluminescence à température ambiante à 0° (cf. figure 3.22).

Par comparaison avec les spectres de [SG08], on peut émettre deux hypothèses : soit le mode basse énergie est un mode de polaritons résultant du couplage du mode de cavité avec le mode d'exciton avec un désaccord négatif ; soit ce mode résulte du couplage avec un mode de Bragg. Quoi qu'il en soit un couplage fort semble être observé avec un dédoublement évalué à 50 meV . Ici encore la branche haute de polaritons est très mal définie et s'évanouit rapidement en angle.

La microcavité japonaise (Nakayama *et al.*, Université d'Osaka) [Nak08] Les spectres de réflectivité et de photoluminescence résolus en angles à basse température ($T = 10\text{ K}$) montrent la présence du couplage fort (figure 3.23) : on peut clairement voir un mode à basse énergie, autour de 3.06 eV à 10° , qui se décale en fonction de

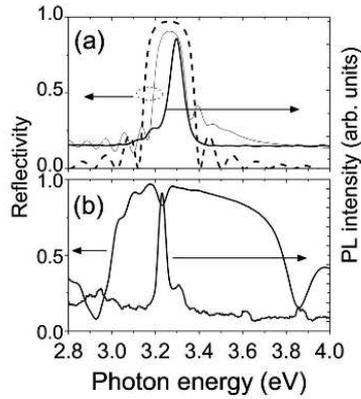


FIG. 2. (a) RT reflectivity spectrum of a 29 pair $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}/\text{GaN}$ DBR (thin solid line) showing a peak reflectivity of $\sim 90\%$ and a stop bandwidth of ~ 150 meV. The dashed line shows the calculated reflectivity spectrum using the transfer matrix method. RT PL spectrum (thick solid line) from a half cavity (without top $\text{SiO}_2/\text{Si}_3\text{N}_4$ DBR) shows that the peak position is located within the stopband of the bottom DBR. (b) RT reflectivity and PL spectra from the full MC. The PL peak and the dip in reflectivity are in good agreement.

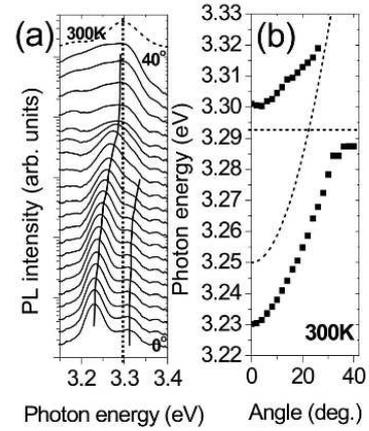


FIG. 3. (a) Angle-resolved PL spectra at RT in the range of 0° - 40° for a λ -thick ZnO hybrid MC. The dotted line is the exciton mode. The solid lines are guides to the eye. (b) Experimental cavity polariton dispersion curve. The dashed lines represent the cavity and exciton modes.

FIGURE 3.22 – La microcavité américaine (Shimada *et al.*). Figures extraites de [Shi08].

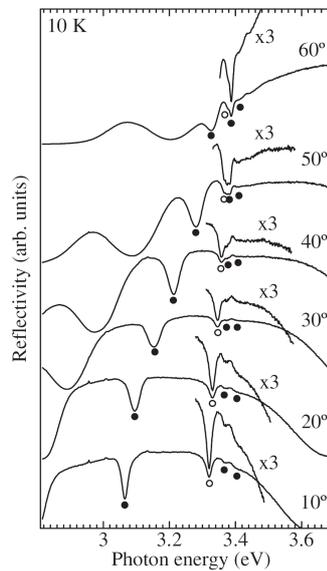


Fig. 2. Angle-resolved reflectance spectra at 10 K in the effective λ -thick ZnO microcavity with the $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ DBRs at the bottom and top.

FIGURE 3.23 – La microcavité japonaise (Nakayama *et al.*). Figures extraites de [Nak08].

l'angle suivant le comportement attendu pour le polariton basse énergie. Les spectres de photoluminescence montrent plusieurs pics à haute énergie qui eux ne bougent pas en fonction de l'angle de détection. Ces structures ne correspondent donc pas à des polaritons et l'auteur attribue ces pics haute énergie à la présence d'excitons liés. La présence des excitons liés et du continuum d'absorption élargit et empêche donc de voir la branche haute comme nous l'avons expliqué précédemment. Les simulations effectuées par un modèle quasi-particules semblent confirmer ce scénario. Notons toutefois que l'auteur n'inclut pas la dépendance angulaire de la force d'oscillateur et n'a pas introduit de continuum. Le dédoublement de Rabi est évalué à 80 meV . Par ailleurs, le creux de réflectivité à 3.32 eV (rond ouvert) n'est pas interprété. Au vu de nos résultats, nous pouvons supposer qu'il correspond au mode de cavité, et que le mode à 3.06 eV est associé au mode de Bragg, tous les deux en régime de couplage fort.

La microcavité allemande (Schmidt-Grund *et al.*, Université de Leipzig) [SG08] Les spectres de PL à basse température ($T = 10 \text{ K}$, figure 3.24) montrent un désaccord exciton-mode de cavité positif ($\delta_{X-cav} = 10 \text{ meV}$). La branche basse est observée autour de 3.3 eV à 10° et les modes de Bragg en désaccord négatifs se situent autour de 3 eV . Il est intéressant de noter que les dédoublements observés avec les modes de Bragg (78 meV au maximum) sont plus importants que celui avec le mode de cavité (19 meV). Nous reviendrons sur cette problématique en détail au chapitre 5.

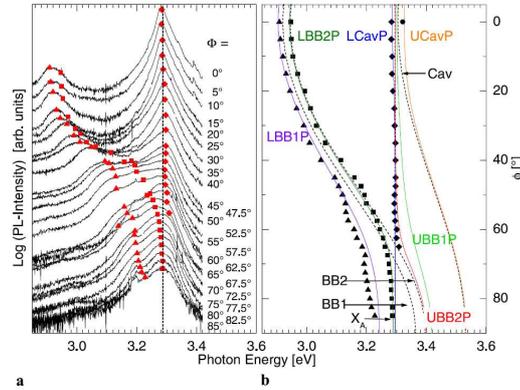


Fig. 3 a Experimental PL spectra of the resonator for $\phi = 0-85^\circ$ at room temperature. The exciton-cavity mode detuning at $\phi = 0$ amounts to $\delta_{E_c-E_X} = 10 \text{ meV}$. The detuning of the exciton and the Bragg band-edge modes 1 and 2 amounts to $\delta_{E_{B1}-E_X} = -376 \text{ meV}$ and $\delta_{E_{B2}-E_X} = -348 \text{ meV}$, respectively. The experimentally determined mode positions are marked in *red filled symbols*. **b** The calculated uncoupled

modes BB1, BB2, X_A, and Cav are plotted as *dashed lines* along with the calculated exciton-polariton modes (*solid lines*): LBB1P (violet), LBB2P (dark green), LCavP (blue), UBB1P (light green), UBB2P (red), and UCavP (orange) as a function of the angle. Note, that the spectral positions of the modes at $\phi = 0$ coincide with those shown in Fig. 2 for room temperature

FIGURE 3.24 – La microcavité allemande (Schmidt-Grund *et al.*). Figures extraites de [SG08].

La microcavité taiwanaise (Chen *et al.*, Université de Chiao Tung) [Che09] Un couplage fort est observé grâce à des mesures de réflectivité résolue en angle (cf.

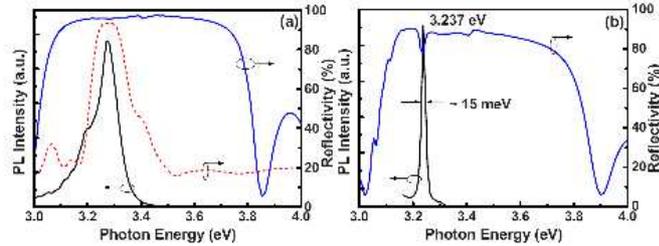


FIG. 2. (Color online) (a) The RT reflectivity spectra of a 30-pair AlN/Al_{0.23}Ga_{0.77}N DBR (dashed line) and a nine-pair SiO₂/HfO₂ DBR (solid line). RT PL spectrum from a half cavity is located within the stop band of the bottom and top DBRs. (b) RT reflectivity and PL spectra from the full hybrid microcavity.

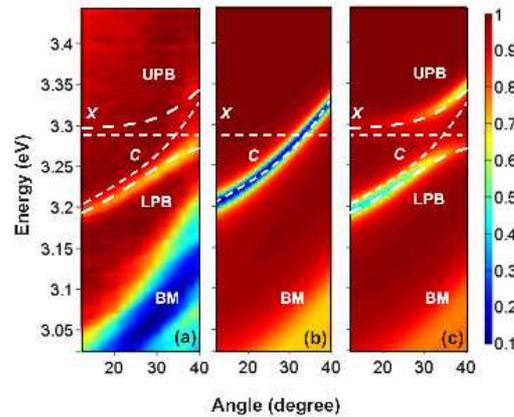


FIG. 3. (Color online) (a) The color map of the measured angle solved reflectivity spectra from 10° to 40° at RT. (b) The color map of the calculated angle solved reflectivity spectra from 10° to 40° without taking the resonant exciton into account. (c) The color map of the calculated angle-solved reflectivity spectra from 10° to 40° with taking the resonant exciton into account.

FIGURE 3.25 – La microcavité taiwanaise (Chen *et al.*). Figures extraites de [Che09].

figure 3.25), comparées avec des simulations utilisant les matrices de transfert. On remarque que la résonance excitonique est située autour de 3.28 eV. Cette valeur est relativement basse. Elle pourrait s'expliquer par la présence d'une contrainte, mais l'auteur n'en fait pas état. La comparaison avec nos microcavités ou celle de Shimada, dont la structure est très semblable, ne permet pas d'expliquer cet écart d'énergie. De plus, les spectres de réflectivité des deux miroirs individuellement montrent une forte ressemblance avec nos échantillons avec un mode autour de 3.2 eV que nous avons identifié comme étant un mode de Bragg dans nos structures. On est ainsi amené à supposer que l'auteur a observé un couplage fort avec un mode de Bragg. Enfin, la plage angulaire des résultats présentés est trop restreinte pour attester clairement l'anti-croisement.

3.6 Comparaison avec d'autres systèmes existants à base de ZnO

Nous avons essayé tout au long de ce chapitre de comparer la filière ZnO avec les autres microcavités existant par ailleurs : dans la première section nous avons comparé le couplage fort dans ZnO avec le cas de GaAs et GaN ; dans la précédente section, nous avons comparé la mise en évidence du couplage fort dans différentes microcavités massives à base de ZnO. Afin d'avoir une vision d'ensemble du sujet, nous comparons dans cette section le couplage fort dans les microcavités ZnO avec celui attesté dans deux structures différentes : les nano-fils et les nano-aiguilles qui ont fait l'objet de deux publications récentes [vV06, Sun08].

Les nano-fils, de 1 à 10 μm de long pour un diamètre variant de 100 à 300 nm , se comportent, du fait de leur longueur finie, comme un guide d'onde. Les modes du champ électromagnétique sont similaires à ceux créés dans une cavité Fabry-Perot et en ce sens, le nano-fil est semblable à une microcavité. Van Vugt *et al.* ont observé un dédoublement de Rabi de 100 meV à température ambiante.

Le couplage fort dans les nano-aiguilles résulte du couplage entre des modes de galerie et les résonances excitoniques, pour un diamètre supérieur (500 – 600 nm) à celui des nano-fils. Les aiguilles constituent en fait les bras d'un tétrapode de ZnO. Leur longueur est d'environ 30 μm pour un diamètre qui décroît constamment de plusieurs micromètres à la racine jusqu'à quelques nanomètres à la pointe. Les modes de galerie se créent dans le plan, de section hexagonale, perpendiculaire à l'axe c de croissance, à l'interface entre le ZnO et l'air. Seule la branche basse de polaritons est visible en photoluminescence. La disparition de la branche haute est attribuée au couplage avec les phonons.

Les fils et les aiguilles nanométriques, multi-modes, confinent donc les photons dans deux directions de l'espace. En conséquence la dispersion des polaritons est observée le long de l'objet unidimensionnel. Nous nous attendons à ce que la physique des polaritons, en vue de la réalisation d'un laser à polaritons ou d'un condensat, soit modifiée en conséquence, en particulier en ce qui concerne la cohérence spatiale.

Ces structures offrent des alternatives intéressantes aux microcavités. Elles ont pour avantage de posséder en général un facteur de qualité plus important que dans les microcavités actuelles par le simple fait qu'elles ont peu voire aucun défauts structuraux. Leur inconvénient majeur réside dans la faible surface qui les rend difficiles à manipuler.

3.7 Conclusion

Nous avons présenté des simulations de spectres de réflectivité, transmission et absorption de microcavités massives GaAs, GaN et ZnO afin de comparer les spécificités du couplage fort de tels systèmes. Les microcavités à large bande interdite possèdent

une hiérarchie d'interactions très spécifique en comparaison du GaAs ou d'autres microcavités II-VI : le dédoublement de Rabi attendu est plus grand que le Rydberg effectif, qui à son tour est plus grand que la séparation en énergie des bande de valence A, B et C. En conséquence, les états excitoniques liés et non liés (l'absorption par les états de diffusion au-dessus de la bande interdite) doivent être pris en compte. Dans les cas spécifiques de GaN et ZnO, nous avons démontré que seule la branche basse de polaritons est bien définie et caractérisée par une forte transmission et une faible absorption. Elle possède une composition exciton-photon bien équilibrée. Finalement, en raison de l'élargissement de la branche haute par le continuum, aucune oscillation de Rabi ne devrait être observée dans les microcavités massives de ZnO sous excitation impulsionnelle cohérente de l'ensemble du spectre, qui reste néanmoins un excellent candidat pour étudier les effets polaritoniques n'incluant que la branche basse.

La croissance des microcavités ZnO reste à l'heure actuelle un défi technologique. Nous avons alors comparé l'approche tout oxyde qui consiste à utiliser des alliages II-VI dans les miroirs et l'approche des nitrures qui utilise la technologie développée auparavant pour GaN. Ces deux approches font respectivement appel à la PLD et à la MBE pour la croissance. La PLD permet de réaliser des miroirs de Bragg avec une grande bande interdite et peu de fissures. La MBE permet quant à elle de fabriquer des couches de ZnO de bonne qualité optique, préservant un faible élargissement pour les transitions excitoniques à $T = 10K$. Nous avons présenté les trois voies mises en oeuvre avec le CHREA et le LASMEA pour la croissance des microcavités, qui sont les "microcavités métalliques", "semi-hybride" et "hybride". Les deux premières voies reposent sur la croissance MBE du ZnO sur un miroir AlN/AlGaIn cru sur Si. Du fait de la forte absorption du continuum dans le ZnO et de la faible largeur de la bande interdite dans nos miroirs nitrures, la position spectrale de la bande interdite et l'épaisseur optique de la couche active de ZnO doivent être très bien ajustées s'il on veut pouvoir observer le régime de couplage fort.

Nous avons présenté la caractérisation linéaire des différents échantillons par des méthodes de réflectivité et de PL en fonction du désaccord exciton-photon et en fonction de l'angle d'incidence. Les deux méthodes sont complémentaires et permettent d'identifier les modes de polaritons. L'étude dans un premier temps de microcavités avec un miroir supérieur métallique nous a permis de mettre en évidence le régime de couplage fort en réflectivité uniquement. La photoluminescence est dominée par l'émission des excitons incohérents. Une microcavité semi-hybride a donc été réalisée afin d'augmenter le facteur de qualité de la microcavité. Le couplage fort a été observé en réflectivité et également en photoluminescence. L'émission est dominée par les polaritons, ouvrant la voie à l'étude de l'émission sous forte excitation (cf. Chapitre 5). Le couplage fort simultané de l'exciton avec le mode de cavité et le premier mode de Bragg a été mis en évidence. Malgré la grande séparation en énergie de ces deux modes, le mode de cavité de polaritons (CMP) n'est pas un système isolé. Le couplage seul du mode de cavité pourrait être observé à condition d'élargir la bande interdite des miroirs de Bragg.

Chapitre 4

Influence du désordre sur la réponse optique des microcavités

Ce chapitre est consacré à l'effet du désordre sur les propriétés optiques des microcavités. Des expériences de micro-réflexivité et de micro-photoluminescence nous ont permis de sonder localement les polaritons, à l'échelle de quelques micromètres, et de mesurer les variations d'énergie, de largeur et de facteur de qualité des différents modes de la microcavité. Les effets générés par le désordre sont rapidement décrits dans la première section. La cartographie fait l'objet de la seconde section et nous permet de tirer des informations sur la nature du désordre : les fissures et la variation des contraintes sont analysées, ainsi que leur influence sur les excitons et les modes photoniques.

4.1 Rôle du désordre

4.1.1 Influence sur les propriétés optiques de la microcavité

Différents travaux ont rapporté ces effets du désordre à la fois dans le cas des expériences d'excitation résonante et hors résonance. Sanvitto *et al.* (2006) ont observé dans un processus d'oscillation paramétrique que, lorsque la puissance d'excitation augmente, le signal provient de différentes régions de l'espace réel. Ils ont de plus montré que localement, le facteur de qualité pouvait augmenter jusqu'à plus de 30000 depuis une valeur de 10000 lorsqu'une grande surface est sondée, juste en se restreignant à une région de $5\mu m^2$. D'autres études ont été réalisées à l'échelle locale sur des miroirs nitrures par Christmann *et al.* [But07, Chr08] grâce à des montages de micro-transmission (μT) et de micro-photoluminescence ($\mu - PL$). L'écart entre les mesures et les prévisions théoriques du facteur de qualité des miroirs a pu ainsi être expliqué. Ils ont en effet montré que lorsqu'une microcavité est sondée sur une zone étendue, le signal résulte de la moyenne de plusieurs modes de cavité. Lorsque la taille du spot est réduite autour de $8\mu m$, le mode de cavité est plus fin et des facteurs de qualité de 2800 peuvent être déduits, à comparer à une valeur moyenne de 1000. La cartographie en μT donne des informations sur l'épaisseur des couches et permet de mettre en évidence le lien entre

désordre structural et propriétés optiques.

4.1.2 Influence du désordre sur la dynamique des polaritons

Le désordre s'avère être un point clé dans de nombreux processus physiques intervenant dans la dynamique des polaritons : localisation, relaxation, interactions et effets non-linéaires. Il brise en effet l'invariance par translation dans le plan et élargit dans l'espace réciproque les états de polaritons, le vecteur d'onde \vec{k}_{\parallel} n'étant plus rigoureusement un bon nombre quantique. Tout élargissement dans l'espace réciproque est équivalent à une localisation dans l'espace réel.

Agranovich *et al.* (2003) ont étudié les effets de localisation qui caractérisent les semiconducteurs organiques [Agr03] dans le cas où les excitons de Frenkel sont localisés et présentent un élargissement inhomogène important (de l'ordre de 20 meV). Par ailleurs, les résultats expérimentaux obtenus par Richard *et al.* [Ric05b] dans les microcavités CdTe mettent en évidence la localisation du condensat dans l'espace réel, due au désordre. En fait, leurs observations de l'émission en angle montre que pour différentes positions sur l'échantillon, au-dessus de la puissance pompe seuil, l'émission cohérente est de la forme d'un anneau circulaire dans l'espace réciproque et non en $\vec{k} = \vec{0}$ au minimum d'énergie. Des observations similaires ont été faites dans les microcavités III-V par Savvidis *et al.* [Sav02] dans des conditions d'excitation quasi-résonante du réservoir d'excitons.

Ceci soulève des questions théoriques sur l'émergence d'un condensat de polaritons et sur ses propriétés. L'impact de la localisation sur la condensation est important et l'image suivante a été proposée pour se représenter ses effets [Kav07] : en présence du désordre, les états de plus basse énergie sont des états localisés. Dans le cadre d'un gaz de bosons sans interaction, seul l'état de plus basse énergie devrait être rempli donnant lieu à un condensat localisé.

Cette image change radicalement en présence d'interactions. En effet, dès qu'un état localisé commence à être rempli, il se décale vers les hautes énergies du fait de l'interaction polariton-polariton. Le potentiel chimique augmente et atteint l'énergie d'un autre état localisé qui, à son tour, commence à se remplir et à se décaler vers les hautes énergies. Le système est alors composé d'un ensemble d'états localisés fortement peuplés, tous avec le même potentiel chimique. Une fois que le potentiel chimique a atteint la valeur de l'énergie de localisation, une délocalisation du condensat a lieu et une transition de phase BKT standard peut avoir lieu [Ber04]. Dans des systèmes réalistes, on peut donc s'attendre à deux transitions de phase bosoniques successives lorsque la densité augmente, qui n'ont pas été clairement identifiées à ce jour.

4.2 Caractérisation du désordre

4.2.1 Cartographie 1D de la microcavité "métallique" Z507

Le dispositif de μ - PL que nous avons utilisé (cf. annexe A) est couplé à une caméra qui nous permet de visualiser la surface de l'échantillon. Les images de la surface de la microcavité constituée d'un miroir supérieur d'Al (Z507) ont révélé la présence de fissures bien visibles (cf. figure 4.1-a). Ces fissures ont la plupart du temps une forme triangulaire ou hexagonale, mémoire de la structure cristalline des couches sous-jacentes.

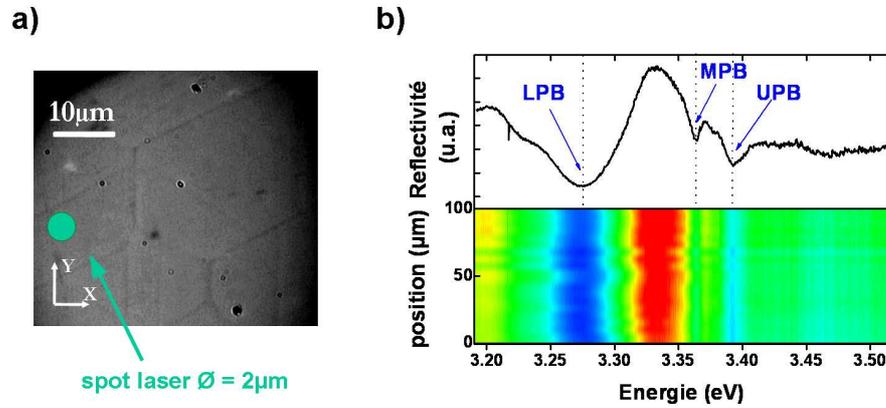


FIGURE 4.1 – a) Image de la surface de l'échantillon Z507 éclairé en lumière blanche. b) Variation de l'énergie des minima de réflectivité en fonction de la position sur l'échantillon sur une distance d'environ $100\mu m$, à $T = 10K$.

Une série de spectres de réflectivité a été réalisée à $10 K$ tous les $5\mu m$ sur une distance de $100\mu m$, puis assemblée en une carte. Notons qu'aucune sélection en angle n'est effectuée et que, étant donné l'ouverture numérique de l'objectif du microscope, les spectres résultent d'une moyenne angulaire sur $\pm 25^\circ$. La figure 4.1-b montre une coupe spectrale, i.e., l'énergie des minima de réflectivité en fonction de la position sur l'échantillon. On peut voir que l'énergie de la branche basse de polaritons (LPB) fluctue d'environ $5 meV$ autour de sa position centrale pour différentes positions sur l'échantillon. A l'opposé les modes excitoniques ainsi que la branche haute de polaritons (UPB) ne varient pas en énergie. La branche basse de polaritons se situe ici à un désaccord très négatif ($\delta = -90 meV$, voir figure 3.14) et possède une importante composante photonique. Cela montre que le désordre est avant tout de type photonique et affecte en premier lieu les modes de la cavité.

Ces effets restent toutefois très faibles. Le couplage fort n'étant pas observé en photoluminescence dans cette microcavité (cf. Chapitre 3), nous n'avons pas poussé plus loin les investigations sur cet échantillon.

4.2.2 Cartographie 2D de la microcavité "semi-hybride" Z536

Nous avons décidé de mener une étude similaire sur l'échantillon Z536. Nous avons tiré profit du fait d'avoir à la fois un mode de Bragg et un mode de cavité en couplage fort pour étudier l'influence du désordre sur les photons, les excitons et les polaritons. Le second but de cette étude concerne la recherche d'effets non-linéaires présentés au chapitre 5. Etant donné que le facteur de qualité de la microcavité Z536 reste globalement faible, nous avons cherché si localement il existe un facteur de qualité plus élevé, plus favorable à l'étude d'effets collectifs de polaritons.

Premier Exemple Dans un premier temps, nous considérons un endroit à mi-rayon de l'échantillon pour lequel seul le mode de Bragg de polaritons à 3.28 eV est visible avec un désaccord négatif $\delta \sim -90 \text{ meV}$ à $T = 10 \text{ K}$ (correspondant au point 3 défini en section 3.4.1.2). La figure 4.2-a montre les spectres de réflectivité et de PL en ce point de l'échantillon. Les cartes de μ -réflectivité et μ -PL ont été réalisées autour de ce point sur une région de $40 \times 40 \mu\text{m}^2$ à basse température ($T=10\text{K}$) (figure 4.2-b), c)). Pour chaque point, le spectre de photoluminescence a été ajusté par une lorentzienne, dont sont extraites les énergies, les largeurs à mi-hauteur et les amplitudes. Nous pouvons ainsi estimer le facteur de qualité Q . Pour les spectres de réflectivité, le minimum est calculé en ajustant le creux de réflectivité par un polynôme d'ordre 2. Sur la figure 4.2, nous ne présentons dans un premier temps que l'énergie du mode de Bragg de polaritons (BMP), identifié en $\mu - PL$ et μ -réflectivité. On peut voir se dessiner sur la carte de μ -PL les fissures visibles à la surface de l'échantillon. En effet, l'énergie du BMP est plus grande sur les fissures qu'elle ne l'est aux centres des zones délimitées par les fissures. La résolution donnée par cette carte est de l'ordre du μm . En comparaison, la carte de μ -réflectivité est plus floue, bien qu'on puisse deviner les différentes zones correspondant à l'image de l'échantillon (4.2-d)). Cela est lié au fait que la lumière blanche est polychromatique, contrairement au laser. La tache de lumière blanche sur l'échantillon est moins bien focalisée que celle du laser en raison d'aberrations chromatiques. On peut également noter que l'énergie varie entre les fissures et le centre de zone d'environ 7 meV et qu'au centre l'énergie est plus basse.

A ce stade de notre étude, il apparaît que les cartes de μ -photoluminescence sont dominées par l'empreinte des fissures. Nous allons maintenant analyser en détail leur influence sur les propriétés optiques de la cavité.

Etude détaillée en fonction du désaccord et de la température Nous avons mesuré la variation de l'amplitude, de l'énergie et du facteur de qualité $Q = E/\delta E$ du BMP et du CMP à différentes températures ($T = 10 \text{ K}, 100 \text{ K}, 200 \text{ K}$ et 300 K).

Deux cas de figures Nous nous sommes concentrés sur deux points spécifiques de l'échantillon. Dans le premier cas, pour un point en bord d'échantillon, seul le mode de Bragg (point 3) de polaritons est visible (cf. figures 4.3). Dans le second cas, le point est proche du centre de l'échantillon (point 1 ; cf. section 3.4.1.2) et on peut observer les

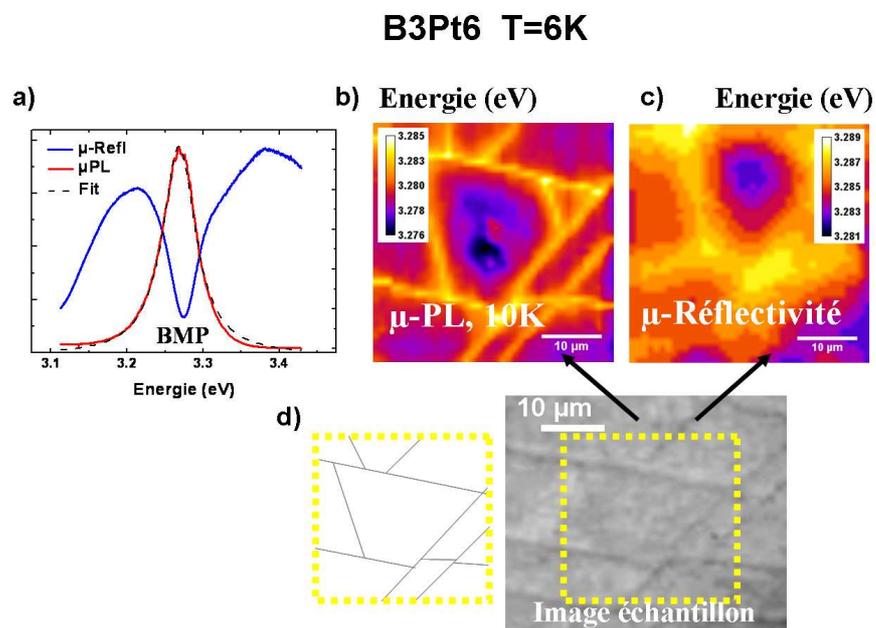


FIGURE 4.2 – Point de même désaccord que le point 3 (cf. section 3.4.1.2) de l'échantillon Z536. (a) Spectre de μ -réflectivité et de μ -PL. Le mode de Bragg de polaritons est noté BMP. L'ajustement du spectre de μ -PL par une lorentzienne est représenté en pointillés noirs. Carte à $T = 10$ K de l'énergie du BMP en fonction de la position sur l'échantillon (zone de $40 \times 40 \mu\text{m}^2$) (b) en μ -PL et (c) en μ -réflectivité. L'échantillon est excité à 5.07 eV au moyen de la seconde harmonique d'un laser Argon, à une puissance de $P = 200$ kW/cm². Le diamètre du spot laser focalisé est de $2 \mu\text{m}$. (d) Image de la surface de l'échantillon (à droite). La répartition des fissures à la surface de l'échantillon est dessinée à gauche de la photographie afin d'aider le lecteur.

polaritons des modes de Bragg et de cavité (respectivement BMP et CMP). Ce point correspond à un désaccord plus négatif que le point précédent : $\delta \sim -140 \text{ meV}$ pour le mode de Bragg et $\delta \sim -30 \text{ meV}$ pour le mode de cavité. Nous avons alors étudié séparément le BMP (figure 4.4) et le CMP (figure 4.5). La carte à $T = 10\text{K}$ n'a pas été mesurée. De plus, la carte à $T = 300\text{K}$ est floue et nous supposons que le laser n'était pas bien focalisé à cette température. La présence de tâches et de nombreuses stries visibles sur les cartes en amplitude est discutée ci-après.

Dégradation photoinduite Sur la figure 4.5 le facteur de qualité est plus petit juste en centre de zone, correspondant à un point sombre sur les figures. Ce point marque précisément un endroit de longue accumulation de spectres sur l'échantillon. La puissance du laser étant trop importante par rapport au seuil de dommage supportable par le miroir supérieur (cf. annexe B), ce dernier a été dégradé, ce qui se traduit par un facteur de qualité plus petit. Cette analyse n'est pas évidente au départ, notamment parce que l'amplitude de l'émission en ces points est plus importante. Il était donc raisonnable d'envisager une condensation locale des polaritons, qui aurait été favorisée par le fait qu'on a un minimum d'énergie en centre de la zone. Nous avons donc effectué des expériences de PL en faisant varier la puissance d'excitation laser afin de mettre en évidence une éventuelle sur-linéarité de l'émission que nous n'avons pas observée. De plus, le mode s'élargit localement en ces points, ce qui ne va pas dans le sens attendu. Finalement, la comparaison avec d'autres cartes pour d'autres points a confirmé que ces points correspondent effectivement à une dégradation locale du miroir supérieur.

Effet de traînées L'amplitude du signal fluctue fortement, jusqu'à 20 – 30%, en particulier sur les images à 300K où l'on voit des "traînées verticales", traces du passage du spot laser lors du balayage. Cette variation d'intensité peut s'expliquer de deux façons :

- Soit par une dégradation de la surface du miroir supérieur par le spot laser.
- Soit par des fluctuations d'intensité du laser lors de l'acquisition de la carte.

Nous n'avons pas conclu sur ce point, et notre interprétation des cartes se concentre sur les énergies et les facteurs de qualité des modes, qui ne sont pas affectés par ce problème.

Rôle des fissures Les cartes mesurées reflètent visiblement l'empreinte des fissures du miroir de Bragg AlGaIn/AlN . Nous étudions ici leur influence sur les modes de polaritons.

Décalage des raies. L'énergie est minimale au centre des zones pour les deux modes. Sa variation entre le centre et le bord de zone vaut 3 meV à 6 meV pour le BMP et 1 meV pour le CMP. Nous en déduisons que la variation de la transition excitonique, liée à la variation de la contrainte, est plus faible que la variation des modes de cavité

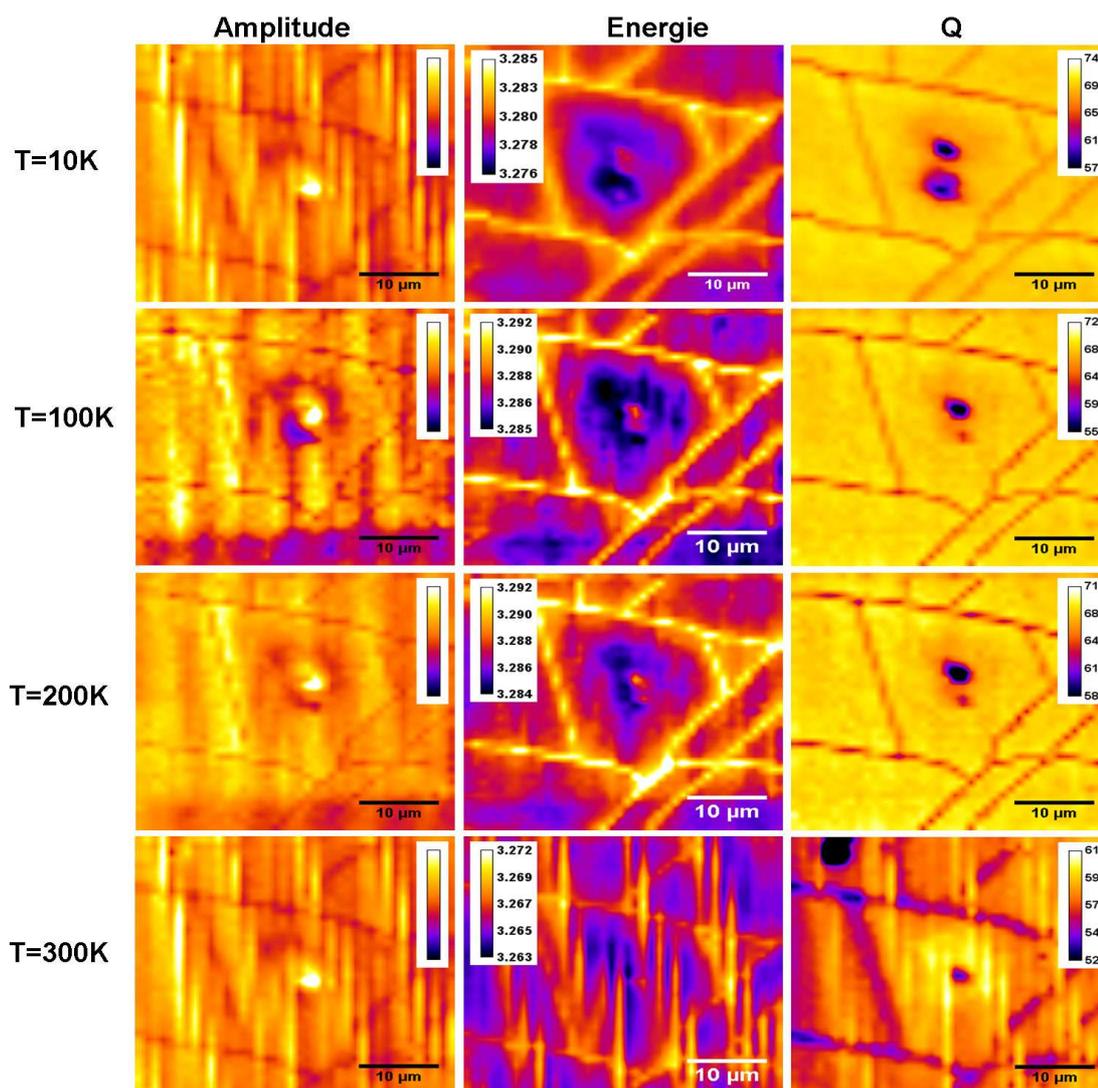


FIGURE 4.3 – Cartographie de l'amplitude au point 3, de l'énergie et du facteur de qualité du mode de Bragg de polaritons (BMP) en fonction de la position sur l'échantillon (zone de $40 \times 40 \mu m^2$) à $T = 10K$, $100K$, $200K$ et $300K$.

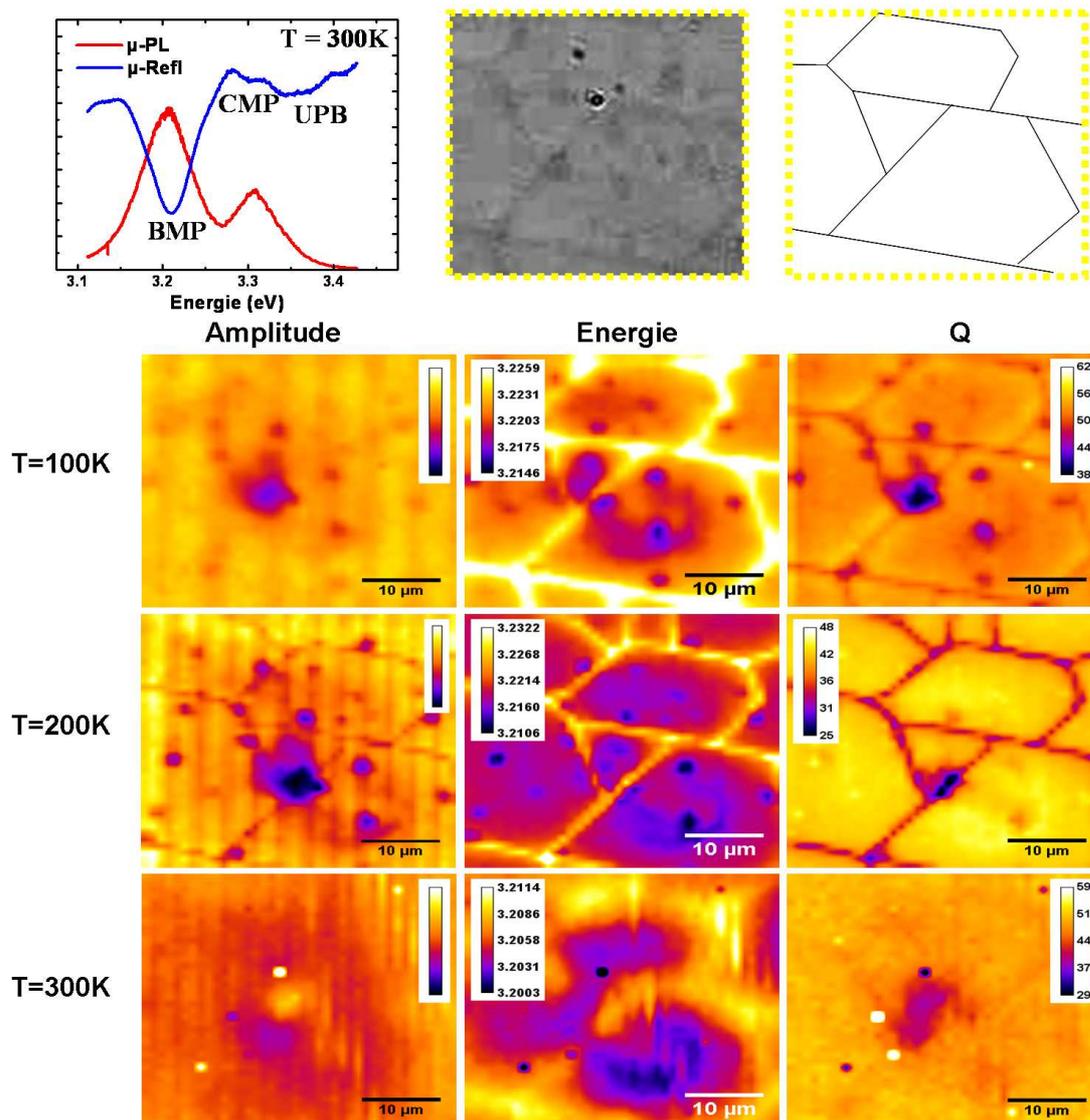


FIGURE 4.4 – Cartographie au point 1 (cf. section 3.4.1.2) de l’amplitude, de l’énergie et du facteur de qualité du mode de Bragg de polaritons (BMP) en fonction de la position sur l’échantillon (zone de $40 \times 40\ \mu\text{m}^2$) à $T = 100\text{K}$, 200K et 300K .

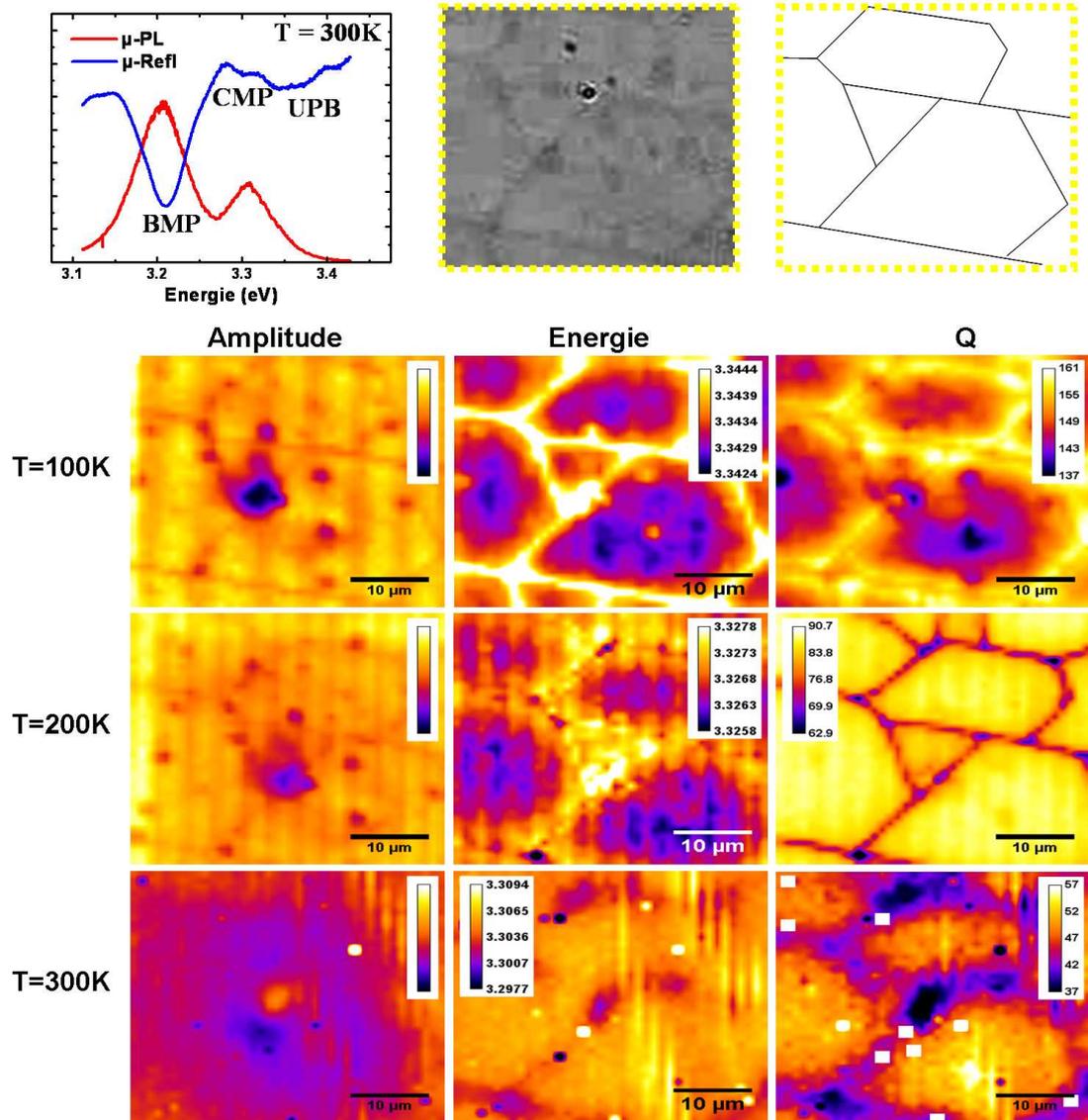


FIGURE 4.5 – Cartographie au point 1 (cf. section 3.4.1.2), de l’amplitude, de l’énergie et du facteur de qualité du mode de cavité de polaritons (CMP) en fonction de la position sur l’échantillon (zone de $40 \times 40 \mu m^2$) à $T = 100K$, $200K$ et $300K$.

due aux variations d'indice et/ou d'épaisseurs. Le décalage spectral dû à un désordre photonique est lié à la présence des fissures. L'indice de réfraction dépend en effet de la contrainte qui se modifie à la proximité des fissures. La variation de l'énergie du BMP résulte donc d'une variation locale de la constante diélectrique. Il est cependant très difficile de séparer les causes possibles et de savoir si les fluctuations d'épaisseur optique proviennent du miroir AlN/AlGaIn ou de la couche de ZnO.

Fluctuations du facteur de qualité. Le facteur de qualité du BMP (cf. figure 4.3) est indépendant de la température jusqu'à $T = 200\text{ K}$ et varie spatialement entre $Q = 52$ et $Q = 72$. Notons que le facteur de qualité du BMP sur la figure 4.4 est plus petit, $25 \leq Q \leq 62$. Cela s'explique par le fait que sa composante photon est plus grande et son désaccord négatif plus grand. Ces observations diffèrent pour le CMP. Son facteur de qualité est maximal au bord des fissures à $T = 10\text{ K}$ et varie de 15 % depuis les fissures jusqu'au centre. De plus il diminue fortement lorsque la température augmente. Cela s'explique par l'augmentation de l'élargissement des transitions excitoniques avec la température. Jusqu'à $T = 200\text{ K}$ le facteur de qualité est maximal près des fissures aussi bien pour le BMP (très photonique) que le CMP (très excitonique). On peut supposer que l'exciton comme le photon ont un environnement plus "propre" près des fissures. On peut en donner trois raisons :

- La contrainte y est relaxée en partie,
- Les dislocations y sont moins nombreuses,
- La densité d'impuretés y est plus faible.

Au-delà de $T = 200\text{ K}$, le facteur de qualité est minimal près des fissures, avec une variation de près de -20% par rapport au centre. Cet effet est toutefois plus prononcé pour le CMP et pourrait être dû à la diffusion des polaritons vers la fissure.

Amplitude. L'amplitude du signal de photoluminescence subit des fluctuations de point en point sur l'échantillon, donnant lieu à des traînées non expliquées. Néanmoins, on constate qu'elle diminue systématiquement au niveau des fissures, de l'ordre de -50% par rapport au centre. Cet effet est plus prononcé à basse température (fluctuation de -55% à 100 K) qu'aux températures élevées ($T > 200\text{ K}$). On peut supposer que l'absorption est plus faible ou bien que les recombinaisons non radiatives des polaritons sont plus fréquentes au voisinage des fissures.

Désordre et élargissement des modes. Le désordre donne lieu à des fluctuations locales de l'énergie des polaritons dont la distribution statistique engendre un élargissement inhomogène des pics de PL. En sondant l'échantillon localement, avec une résolution inférieure à la taille du désordre, il est possible de s'affranchir du désordre et d'avoir ainsi accès à l'élargissement homogène des modes. Dans notre situation, l'ensemble des spectres issus de la micro-photoluminescence peuvent être ajustés à l'aide de pics lorentziens (figure 4.6-a,b). L'ajustement par des gaussiennes n'est pas du tout

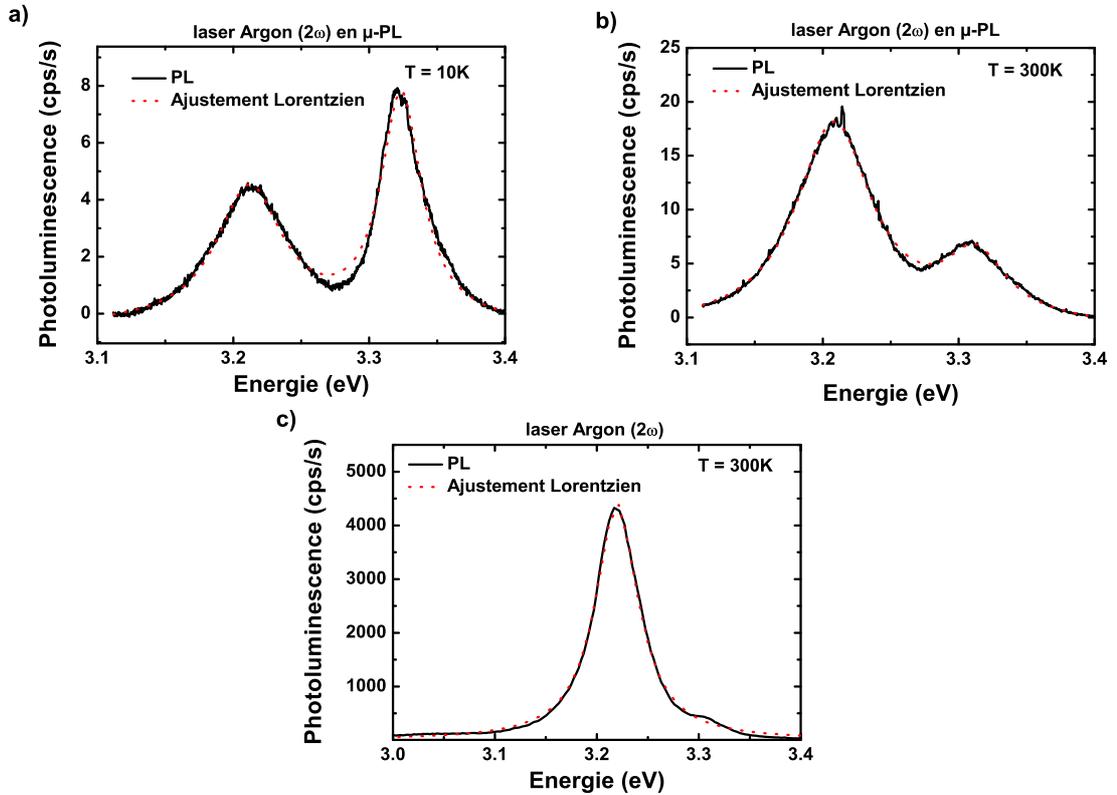


FIGURE 4.6 – Spectres de PL (en noir) sous excitation non résonante (Argon doublé) issus d’expériences de μ -PL a) à 10 K et b) 300 K et c) de PL résolue en angle à l’aide du goniomètre. L’ajustement des courbes est tracé en pointillés rouge.

satisfaisant. L’ajustement par une fonction de Voigt tenant compte des élargissements inhomogène et homogène donne un grand nombre de solutions pour le rapport des deux élargissements. Il n’est pas suffisamment fiable et n’a pas été retenu pour ajuster automatiquement les spectres des cartes de μ -PL.

La largeur homogène des modes mesurée à 10 K vaut 35 meV pour le CMP, et $\sim 50 - 60$ meV pour le CMP et le BMP à 300 K. Elle est légèrement supérieure à celle calculée par le modèle d’oscillateur couplés de la figure 3.20 : 25 et 32 meV pour le CMP à 10 K et 300 K, 42 meV pour le BMP à 300 K.

Cette différence peut avoir deux origines :

- D’une part on mesure en μ -PL une variation spatiale de l’énergie des modes (1 meV pour le CMP et 6 meV pour le BMP) qui doit contribuer à l’élargissement inhomogène, mais cette contribution reste suffisamment faible, 10% de la largeur totale, pour que les pics restent lorentziens.
- D’autre part un élargissement additionnel provient de l’intégration en angle de -25° à $+25^\circ$ due à l’ouverture numérique de l’objectif du microscope. Cet élargissement est toutefois difficile à quantifier dans la mesure où l’angle solide réel

de collection, pour l'ensemble du montage, est inférieur à celui du seul objectif. Cette source d'élargissement reste négligeable pour le CMP dans la mesure où le mode ne varie pratiquement pas en énergie dans la plage angulaire susmentionnée.

En photoluminescence résolue en angle, avec la même source laser, l'ajustement lorentzien des spectres est aussi correct (figure 4.6-c). Le diamètre du spot d'excitation est alors de l'ordre de $500\mu m$, très supérieur à la taille typique du désordre. Les largeurs à mi-hauteur mesurées à $300 K$ sont semblables à celles mesurées en μ -PL.

Dans les deux cas, nous ne sommes pas en mesure d'expliquer l'écart entre les élargissements mesurés et calculés pour le CMP, qui est trop important pour être compatible avec les variations de l'énergie du mode observées en μ -PL.

Comparaison avec l'étude du désordre dans une microcavité GaN Il est intéressant de comparer nos expériences avec celles réalisées par Butté *et al.* [But07]. Leurs études montrent de grandes variations locales du facteur de qualité (de moins de 1000 à 2800), accompagnées de grandes variations en énergie du mode de cavité. Les deux études sont donc réalisées sur des microcavités de facteurs de qualité et donc de régimes d'élargissement très différents : dans GaN, la largeur homogène est très inférieure à la largeur inhomogène, liée à un désordre qui peut être résolu en micro-photoluminescence. Dans Z536, l'élargissement homogène domine l'élargissement inhomogène.

4.3 Conclusion

Nous avons étudié l'influence du désordre sur les propriétés optiques des microcavités. La présence des fissures modifie l'énergie des modes et leur facteur de qualité. Ce phénomène est bien visible lorsque l'on sonde la microcavité avec un spot de quelques microns de diamètre. Nous observons que la géométrie du désordre reflète celle des fissures.

La comparaison des modes BMP et CMP nous informe que le désordre est principalement de nature photonique, dû à une variation d'indice et d'épaisseur du ZnO et/ ou des couches des miroirs de Bragg en fonction de la contrainte.

Un problème lié à la détérioration du miroir supérieur sous excitation locale subsiste. Ce dernier absorbe à l'énergie du laser et est abimé sous forte excitation. Cet effet est bien visible en cartographie où aussi bien l'amplitude que le facteur de qualité des modes sont affectés aux points où le temps d'excitation a été trop long. Notons qu'en $\mu - PL$ la densité d'excitation est supérieure à celle utilisée en PL (quelques $50 kW \cdot cm^{-2}$ au lieu de $0.5 kW \cdot cm^{-2}$ avec un laser Argon).

Une variation de l'énergie des modes allant de $1 meV$ à $6 meV$ est observée entre le centre et le bord de zone de fissures. Elle pourrait constituer un puits de potentiel, même peu profond, servant à piéger les polaritons. L'utilité d'un tel puits de potentiel

afin de faciliter la condensation des polaritons reste une question ouverte. Notons que le désordre local deviendra a priori plus visible dans la prochaine génération de microcavités de ZnO, dont le facteur de qualité attendu est de l'ordre de 500. La variation d'énergie induit un élargissement inhomogène faible en regard de la largeur homogène des modes, expliquant que les spectres de photoluminescence s'ajustent très bien avec des raies lorentziennes. Les valeurs des largeurs homogènes ainsi déduites sont toutefois supérieures à celles déduites des modèles de matrice de transfert et d'oscillateurs couplés, ce que nous ne sommes pas en mesure d'expliquer.

La prépondérance de l'élargissement homogène sur l'inhomogène explique que le facteur de qualité ne s'améliore pas notablement lorsqu'on sonde la microcavité avec un spot de quelques μm . Néanmoins, le facteur de qualité est meilleur près des fissures à basse température et est à l'opposé minimal près des fissures à température ambiante. Il est finalement difficile de conclure sur la qualité structurale du ZnO près et loin des fissures. La relaxation de la contrainte, la densité de dislocations, le nombre d'impuretés ou encore la diffusion des exciton près des fissures sont autant de paramètres qui peuvent altérer localement le facteur de qualité.

Chapitre 5

Relaxation des polaritons sous forte excitation.

La simultanéité du couplage fort des excitons avec le mode de cavité et le premier mode de Bragg a été démontrée à température ambiante au chapitre 3. Étant donné que le désaccord négatif du mode de Bragg est trois fois plus grand que le dédoublement de Rabi, on peut s'attendre à ce que les polaritons issus du mode de cavité soient un bon candidat pour la réalisation d'une émission non linéaire, car ils sont bien isolés des autres branches polaritoniques. Toutefois, nous montrons ci-dessous que les polaritons relaxent efficacement sur la branche basse issue du mode de Bragg, dont l'émission est dominante sous forte densité d'excitation. Dans ce chapitre, nous avons donc cherché à comprendre les paramètres clefs de la relaxation des polaritons et tenté d'influer sur le partage entre canaux de relaxation. Pour ce faire, plusieurs possibilités sont envisageables :

- Parcourir l'espace des paramètres : température, désaccord et puissance d'excitation.
- Changer de mode d'excitation : excitation résonante ou quasi-résonante, impulsionnelle ou continue. Nous avons pour cela utilisé différentes sources d'excitation.
- Focaliser le faisceau laser afin d'augmenter la puissance surfacique d'excitation et la densité de polaritons.

Une étude systématique des paramètres (énergie, largeur à mi-hauteur et amplitude) des spectres de photoluminescence a été menée afin de comprendre l'évolution du taux d'occupation des différentes branches et de déterminer si la population de polaritons tend vers un équilibre thermique. La première section présente une revue des différents phénomènes physiques observés à température ambiante, sous excitation quasi-résonante au moyen d'un laser Nd :YAG, pour différentes puissances d'excitation. La seconde section a pour objectif de détailler les différents phénomènes physiques observés dans la première section. A cette fin nous comparons deux points de l'échantillon Z536 de désaccords différents. La troisième section présente une étude sous excitation résonante créée par un laser Ti :Sa. Finalement, la quatrième section présente des résultats ob-

tenus en micro-photoluminescence pour différentes puissances d'excitation. Enfin, dans la cinquième section, nous comparons nos données expérimentales avec les prévisions théoriques présentées au chapitre 2.

5.1 Relaxation et émission des modes de polariton sous forte excitation.

Avant de commencer une étude comparative de l'émission des différents modes de polaritons, nous reprenons le cas étudié en section 3.4. Rappelons qu'en ce point de l'échantillon Z536, à $T = 300K$, le mode de cavité est presque à désaccord nul par rapport à la transition excitonique et le premier mode de Bragg est en désaccord négatif ($\delta = -140meV$) en incidence normale (cf. figure 3.20).

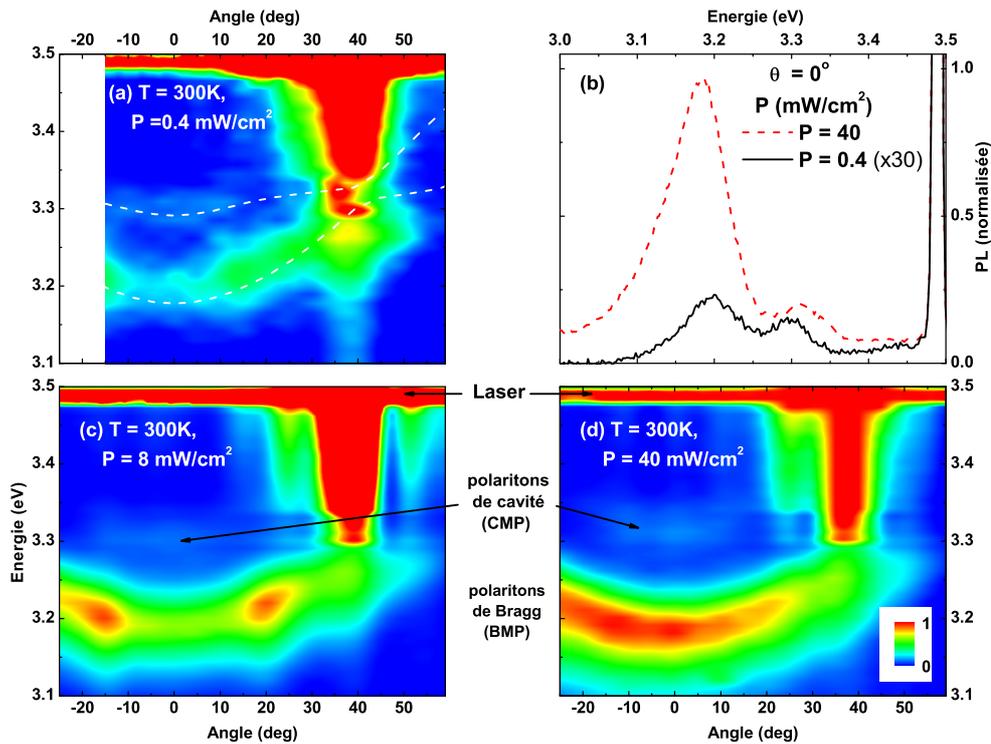


FIGURE 5.1 – (a,c,d) Cartes de photoluminescence résolue en angle en polarisation TE pour différentes puissances d'excitation (fausses couleurs). Les modes de polaritons issus du modèle d'oscillateurs couplés sont représentés en pointillés blanc sur la figure (a); (b) Spectres de PL correspondant à l'angle de détection $\theta = 0^\circ$.

Les spectres de PL (Figure 5.1) ont été obtenus sous excitation impulsionnelle quasi-résonante à $3,49 eV$ par la troisième harmonique d'un laser Nd :YAG ($E_0 = 0.1mJ.cm^{-2}/impulsion$, durée de l'impulsion : $5ns$, taux de répétition : $10Hz$, spot

laser de diamètre 0.8 mm). Le faisceau laser arrive sur l'échantillon avec un angle d'incidence de $\theta = 40^\circ$. En variant l'angle de détection, on mesure la distribution angulaire de l'émission des polaritons et donc l'occupation relative des polaritons des différentes branches, qui reflète la compétition entre les processus de relaxation et d'émission. Les détails de l'expérience sont données en annexe A. La saturation en intensité visible à $\theta = 40^\circ$ à toutes les énergies provient de la réflexion spéculaire du laser que notre dispositif expérimental ne nous a pas permis d'éviter.

5.1.1 Relaxation à faible puissance d'excitation

Sous faible densité d'excitation ($P = 0.4 \text{ mW/cm}^2$ et $P = 40 \text{ mW/cm}^2$), nous observons que le mode de polaritons de cavité à 3,30 eV émet principalement autour de $\theta = 0^\circ$, ce qui montre que la relaxation vers le minimum de cette branche est efficace. Au contraire, les polaritons issus du mode de Bragg émettent essentiellement aux grands angles (typiquement de 15° à 40° à la densité d'excitation $P = 0.4 \text{ mW/cm}^2$), apportant la preuve de "l'effet de goulot d'étranglement" (bottleneck en anglais). Nous avons plusieurs fois évoqué cet effet dans les précédents chapitres. Il s'explique simplement par la compétition entre les temps caractéristiques des différents mécanismes de relaxation mis en jeu et la durée de vie des polaritons. La relaxation vers un état d'équilibre thermique ne peut être complète que si la durée de vie des polaritons est bien plus longue que le temps de relaxation, ce qui n'est pas le cas ici.

5.1.2 Relaxation sous forte excitation

Lorsque la puissance d'excitation P augmente (figures 5.1-c,-d), la distribution angulaire de l'émission du mode de Bragg de polaritons change : le maximum de l'émission se décale à $\theta = 20^\circ$ à $P = 8 \text{ mW/cm}^2$ et $\theta = 0^\circ$ à $P = 40 \text{ mW/cm}^2$. Nous attribuons ce phénomène à un renforcement de la diffusion exciton-exciton, lorsque la densité des particules augmente : en dépit de leur caractère fortement photonique, les polaritons du mode de Bragg interagissent efficacement avec les excitons du réservoir et relaxent plus rapidement. L'ajustement des spectres de photoluminescence sous forte excitation n'est pas similaire à celui fait au chapitre 4. En effet, le meilleur ajustement est donné par une lorentzienne pour le BMP et une gaussienne pour le CMP. La figure 5.2 montre l'ajustement des spectres issus de la figure 5.1-a) pour deux angles différents. Ce changement de forme du CMP (Lorentzienne à Gaussienne) aux fortes puissances d'excitation reste inexpliqué. La figure 5.3 montre l'énergie, la largeur à mi-hauteur et la probabilité d'émission (intensité de PL divisée par le temps d'acquisition) issus des ajustements des spectres pour le mode de cavité et le mode de Bragg de polaritons.

Les différentes observations physiques seront détaillées dans la suite du chapitre, nous nous contentons ici de les passer en revue.

5.1.3 Mécanismes de relaxation

Lors d'une excitation non-résonante, des paires électron-trou sont créés. Après relaxation de ces porteurs il y a formation d'excitons de grand k_{\parallel} , qui vont relaxer jus-

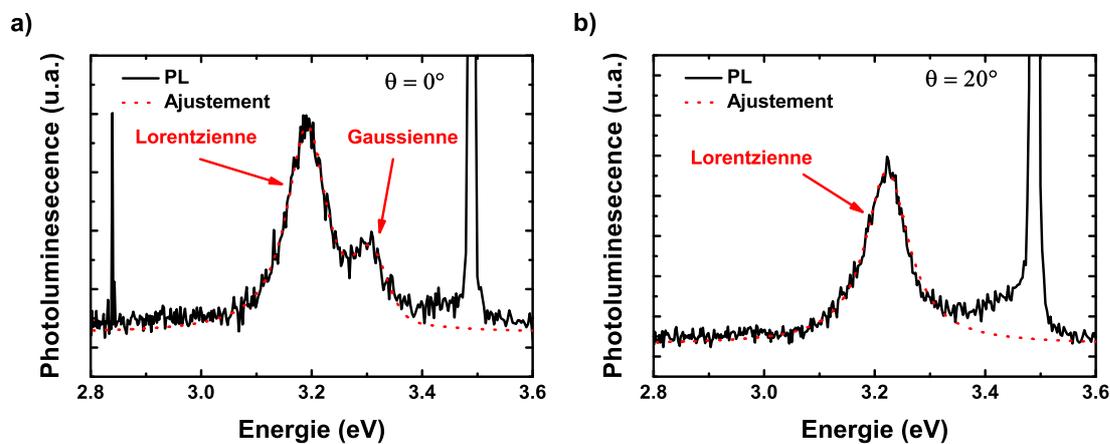


FIGURE 5.2 – Ajustement des spectres de PL de la figure 5.1-a) ($P = 0.4 \text{ mW/cm}^2$) a) à 0° et b) à 20° .

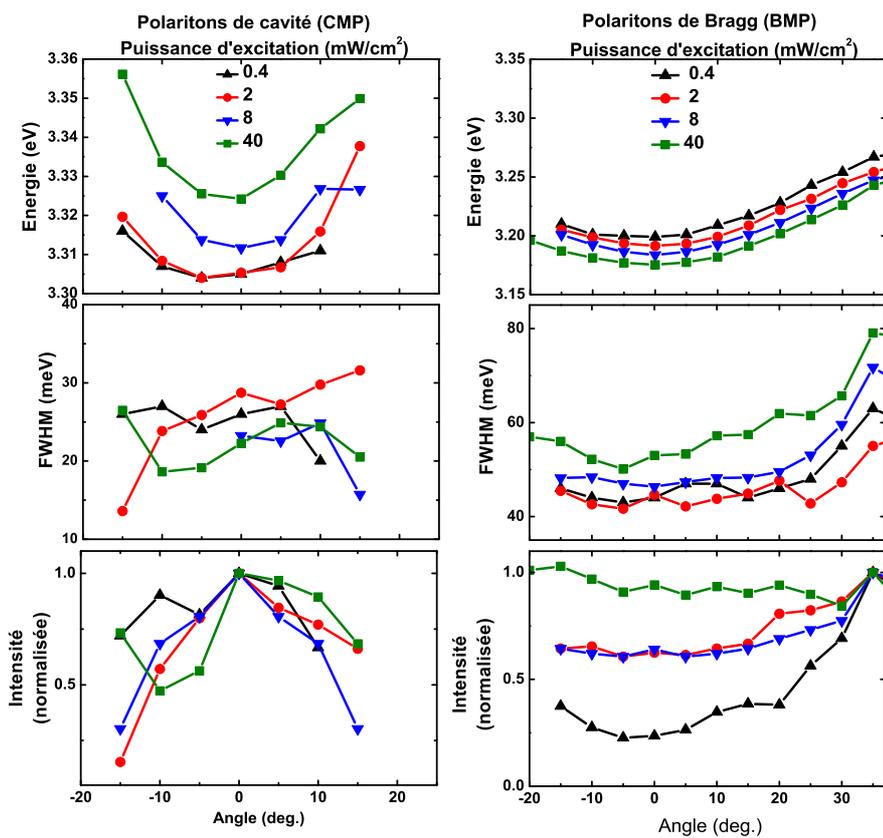


FIGURE 5.3 – Energie, largeur à mi-hauteur et probabilité d'émission a) du mode de cavité de polaritons et b) du mode de Bragg de polaritons, pour différentes puissances d'excitation. L'intensité du mode de Bragg est normalisée à 35° afin de faciliter la lecture.

qu'aux états de polaritons. les principaux mécanismes de diffusion identifiés sont :

- Relaxation par phonons acoustiques.
- Relaxation par phonons longitudinaux optiques (LO).
- Interactions polariton-polariton.
- Interactions polariton-porteur libre.
- Interactions polariton-désordre structurel.

Tous ces processus font intervenir la composante excitonique du polariton qui est proportionnelle au facteur de Hopfield de l'état excitonique.

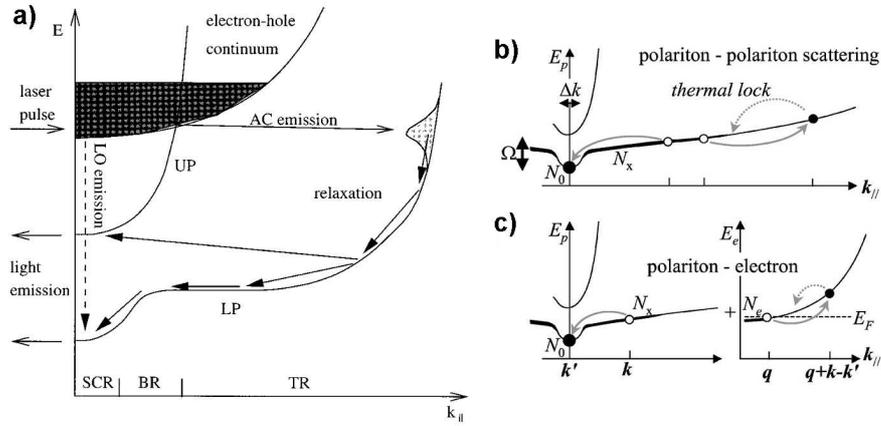


FIGURE 5.4 – (a) Représentation schématique de la dispersion des polaritons, du réservoir thermique de porteurs libres et des processus possibles de formation des polaritons : processus de diffusion par absorption ou émission de phonon acoustique et recombinaison radiative. UP : branche haute (upper branch); LP : branche basse (lower branch); SR : région de couplage fort (strong-coupling region); BR : région du goulot d'étranglement (bottleneck region); TR : région thermique (thermal region). (extrait de [Tas97]); (b) diffusion des polaritons en $\vec{k} = \vec{0}$ par un processus polariton-polariton; (c) diffusion des polaritons en $\vec{k} = \vec{0}$ par un processus polariton-porteur libre. (extraits de [Mal02]).

Nous nous contenterons de donner une image simplifiée des mécanismes possibles (figure 5.4) et le temps caractéristique de ces processus.

Les processus de collisions exciton-exciton ne sont pris en compte que dans le cas des fortes excitations.

Interaction polariton-phonon optique La relaxation par phonon LO est très efficace dans les composés II-VI, très polaires, mais n'est possible, dans ZnO, que pour des états séparés de plus de $E_{LO} = 72\text{meV}$ [Ozg05] (la dispersion du phonon LO dans ZnO est très plate). Le temps typique de l'interaction exciton-phonon LO est la picoseconde¹.

Interaction polariton-phonon acoustique Les interactions entre excitons et phonons acoustiques sont bien moins efficaces que celles entre excitons et phonons optiques.

1. Ce temps n'a pas été mesuré dans ZnO.

L'énergie échangé lors du processus est d'environ $1meV$. Cette interaction intervient surtout dans la région sombre, où le temps de relaxation (quelques centaines de ps) du polariton (purement excitonique) est plus court que son temps de vie. Plus la composante photon du polariton grandit, plus son temps de vie diminue. Afin de descendre en bas de la branche de polaritons, ces derniers doivent encore dissiper $30 - 80meV$ dans le cas de ZnO. Ce processus assisté par les phonons acoustiques nécessiterait un temps bien plus long que le temps de vie des polaritons ($25fs$ en $\vec{k} = \vec{0}$ dans nos microcavités).

Interaction polariton-polariton Cette diffusion élastique est une interaction dipôle-dipôle entre les composantes excitoniques des polaritons ayant une durée typique de quelques ps. Cet effet, proportionnel à la densité de polaritons, apparaît avant d'atteindre la densité de Mott $n \times a_X^3 \simeq 1$. Ce processus est très probable du fait de la forme non parabolique de la relation de dispersion. Chaque processus de diffusion peut fournir une énergie de quelques meV. C'est le principal processus responsable de la relaxation des polaritons en bas de la branche basse et qui permet de passer outre le goulot d'étranglement. Toutefois l'interaction polariton-polariton ne dissipe pas d'énergie et ne réduit pas la température du gaz de polaritons. Ce processus peut également engendrer une fonction de distribution hors d'équilibre.

Interaction polariton-exciton Cette interaction est similaire au processus polariton-polariton mais fait intervenir des excitons d'un réservoir. La diffusion polariton-exciton dépend du taux d'occupation des états. Ce processus peut jouer un rôle important dans ZnO [Joh08] du fait des nombreuses résonances excitoniques qui sont autant de réservoirs d'excitons. L'effet est cette fois proportionnel à la densité d'excitons sombres dans le réservoir, qui est importante en régime de goulot d'étranglement.

Interaction polariton-électron Les électrons libres créés lors du pompage peuvent interagir avec les polaritons. Des porteurs libres en excès, avec toutefois une densité suffisamment faible pour ne pas détruire les corrélations excitoniques, peuvent alors fournir un mécanisme de relaxation aux polaritons. L'interaction polariton-électron est une interaction du type dipôle-charge et le temps de diffusion associé est inférieur à la ps. De plus, du fait de sa faible masse (en comparaison des excitons), un électron peut échanger davantage d'énergie qu'un exciton pour un vecteur d'onde donné. Ce mécanisme est très utile pour la relaxation des polaritons dans la région la plus pentue de la courbe de dispersion. L'interaction polariton-électron est un processus dissipatif pour le gaz de polaritons [Mal02, Qar03, Lag03, Tar03, Per05, Baj06]. Des structures comportant un gaz d'électrons dans un puits quantique ont été conçues dans les microcavités GaAs pour résoudre le problème du goulot d'étranglement [Mal02, Qar03, Tar03], mais dans notre cas, il n'y a pas de dopage intentionnel de ZnO et ce processus n'est pas important *a priori*.

5.1.4 Calcul de la densité d'excitons

La densité d'excitons est un paramètre clef dans la compréhension des expériences présentées à la figure 5.1. La durée de l'impulsion du Nd :YAG ($T_{impulsion} = 5 \text{ ns}$) est beaucoup plus longue que la durée de vie du système. Nous considérons donc que nous sommes en régime stationnaire. La densité d'excitons créés, n , résulte dans ce cas de la compétition entre la génération g et la recombinaison des excitons, majoritairement non-radiative dans le ZnO massif à température ambiante. L'équation cinétique est donnée par :

$$\frac{dn}{dt} = g - \frac{n}{\tau_{non-rad}} = 0.$$

Le taux de génération par unité de volume et de temps s'écrit :

$$g = (1 - R) \frac{E}{E_0 T_{impulsion} S d},$$

où R est le coefficient de réflexion à l'énergie du laser et à l'angle d'excitation ; E est l'énergie de chaque impulsion laser, E_0 est l'énergie du laser (3.49 eV), S est la surface du spot et d est l'épaisseur de la couche active de ZnO. Par suite, l'expression de la densité est donnée par :

$$n = (1 - R) \cdot \frac{E}{E_0 T_{impulsion}} \frac{\tau_{non-rad}}{S d} \text{ (cm}^{-3}\text{)} \quad (5.1)$$

L'énergie d'excitation E est liée à la puissance d'excitation P par $E = P/f$, avec f le taux de répétition du laser ($f = 10 \text{ Hz}$). Nous avons déterminé le temps de vie non radiatif $\tau_{non-rad}$, à 300 K , à partir d'expériences préliminaires de pompe-sonde dégénérées à l'énergie du réservoir excitonique, réalisées au Cavendish Laboratory (Cambridge) avec J. J. Baumberg et S. Christopoulos. Notons que le temps de vie non radiatif est plus long à basse température qu'à température ambiante. Nous avons toutefois utilisé la même valeur de $\tau_{non-rad}$ à toutes les températures. Nous sous-estimons donc systématiquement la densité d'excitons créée pour $T < 300 \text{ K}$. Enfin, nous supposons dans notre calcul que l'ensemble des photons issus du faisceau laser qui ne sont pas réfléchis par la microcavité sont absorbés, soit environ 50% des photons à 3.49 eV , à 40° , l'angle d'incidence du laser sur l'échantillon. Puis on suppose que les photons absorbés sont convertis en excitons sans perte.

Ces approximations importantes nous permettent toutefois d'estimer la densité d'excitons en première approximation.

5.1.5 L'effet "bottleneck"

Lorsque le temps de relaxation des polaritons est plus long que leur durée de vie, ils ne peuvent pas fortement peupler les états du bas de la branche basse. La relaxation assistée par phonons n'y est plus efficace. On a alors une accumulation des porteurs dans la région où les polaritons émettent. Généralement, cette région se situe au point d'inflexion de la courbe de dispersion, là où la pente est la plus élevée, c'est-à-dire là

où la densité d'états est la plus faible. La photoluminescence provient donc de la région de la courbe de dispersion où les polaritons se recombinent radiativement. Cet effet fut appelé l'effet 'bottleneck' par Tassone *et al.* (1997) [Tas97], car il est engendré par l'existence d'un 'goulot' de relaxation dans la relation de dispersion. Ajoutons que, dans cette situation, la fonction de distribution des polaritons ne peut atteindre l'équilibre thermique en raison de la trop faible cinétique de relaxation. L'effet "bottleneck" a été identifié dans les microcavités GaAs [Tar00], CdTe [Mül00] et GaN [SC08].

Notre observation d'un effet de goulot d'étranglement pour le mode de Bragg de polaritons pour d'importants désaccords négatifs peut être expliqué par leur petite composante exciton, et la courte durée de vie des photons : le taux de diffusion des polaritons est proportionnel à leur composante excitonique de sorte que la relaxation dans le mode de Bragg de polaritons est plus lente que celle dans le mode de cavité de polaritons [Tar00]. En comparaison, Johne *et al.* [Joh08] prévoient l'absence du goulot d'étranglement pour une microcavité avec un facteur de qualité $Q = 500$, un désaccord nul, et un temps de vie non-radiatif des excitons $\tau_{non-rad} = 300 ps$.

Dépendance angulaire de la probabilité d'émission L'évolution de l'intensité des pics de PL en fonction de l'angle est l'information la plus sensible dans nos expériences. Elle nous donne accès à la probabilité d'émission des polaritons et *in fine* au taux d'occupation des différentes branches. Le taux d'occupation est proportionnel à la probabilité d'émission divisée par la composante photonique du mode pour un angle donné.

La figure 5.3 (cadres du bas) permet de comparer l'intensité d'émission de photoluminescence à l'énergie du mode de cavité et de Bragg de polaritons pour différents angles de détection et différentes puissances d'excitation. On retrouve les comportements décrits précédemment à partir des cartes, à savoir :

- **L'intensité du mode de cavité de polaritons** est maximale en $\theta = 0^\circ$ et diminue aux plus grands angles. Ce comportement ne varie pas de manière significative en fonction de la puissance.
- **L'intensité du mode de Bragg de polaritons**, pour de faibles puissances d'excitation ($P < 8 mW/cm^2$), est minimale à $\theta = 0^\circ$ et augmente ensuite avec l'angle de détection, ce qui correspond au goulot d'étranglement. L'angle d'émission maximale dépend de la puissance d'excitation. Nous verrons par la suite qu'il dépend également du désaccord. Lorsqu'on augmente la puissance d'excitation, l'intensité devient quasi constante, traduisant une relaxation des polaritons vers le bas de la branche.

La fonction de distribution des polaritons Nous avons vu qu'il est possible de supprimer le goulot d'étranglement en augmentant la puissance d'excitation. Pour $P = 40 mW/cm^2$, les polaritons relaxent jusqu'en bas de la branche du mode de Bragg

de polaritons. Toutefois le système de polaritons reste hors d'équilibre thermique comme le montre la figure 5.5 où est représentée le taux d'occupation relatif de la branche du mode de Bragg de polaritons en fonction de l'énergie. On s'attendrait à observer une droite, en échelle semi-logarithmique, lorsque le système atteint un régime d'équilibre thermodynamique. A titre de comparaison, nous avons représenté la distribution de Maxwell-Boltzmann à $T = 300K$ (droite bleue) en fonction de l'énergie. Les deux courbes sont bien différentes. Il semble que l'occupation des polaritons déduite n'atteint pas un régime thermique avec une température effective, en raison de la courte durée de vie des photons [Kas08].

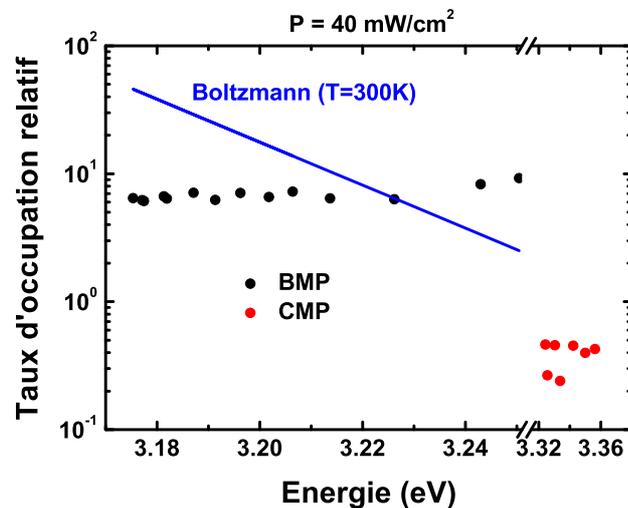


FIGURE 5.5 – Taux d'occupation relatif du mode de Bragg de polaritons dans l'expérience présentée à la figure 5.1-d).

En résumé, la figure 5.3 met en évidence les différents phénomènes que nous retrouverons dans toutes les expériences où la puissance d'excitation varie :

- L'énergie des modes de polaritons dépend de la puissance d'excitation.
- La largeur à mi-hauteur ne varie pas de manière significative.
- La probabilité d'émission dépend fortement de la puissance d'excitation et du désaccord.
- La fonction de distribution des polaritons est hors d'équilibre thermique.

Signalons enfin que si l'on augmentait davantage la puissance d'excitation, on s'attendrait à observer un pic d'émission intense en $\theta = 0^\circ$ du fait que tous les polaritons descendraient en bas des branches, y formant éventuellement un condensat, d'où ils émettraient. Or jamais on n'observe ce phénomène même en augmentant la puissance jusqu'à endommager (surface piquée visible à l'oeil) le miroir supérieur. L'étude du seuil de dommage de ce miroir fait l'objet de l'annex B.

5.1.6 Evolution en puissance des spectres

Décalage de l'énergie L'énergie des modes est montrée pour les deux modes de polaritons sur les cadrans du haut de la figure 5.3. La dispersion des modes est bien visible en fonction de l'angle. De plus, on peut voir que l'énergie des modes change lorsque la puissance augmente. Le mode de Bragg de polaritons se décale vers les basses énergies (red-shift) alors que le mode de cavité se décale vers les hautes énergies (blue-shift). La figure 5.6 montre les spectres de PL à $\theta = 0^\circ$. Le mode de Bragg et de cavité de polaritons se décalent respectivement de $\Delta E = -16\text{meV}$ et $\Delta E = +17.2\text{meV}$. Comme nous le verrons par la suite, le sens du décalage en énergie (blue-shift et red-shift) reste le même dans toutes les expériences pour différents désaccords. Par contre l'amplitude de ces décalages entre les deux modes varie selon les cas. Notons que la totalité de la branche se décale en énergie, que l'on ait supprimé ou non le goulot d'étranglement. Une étude systématique de ce phénomène sera faite dans la section 5.2.

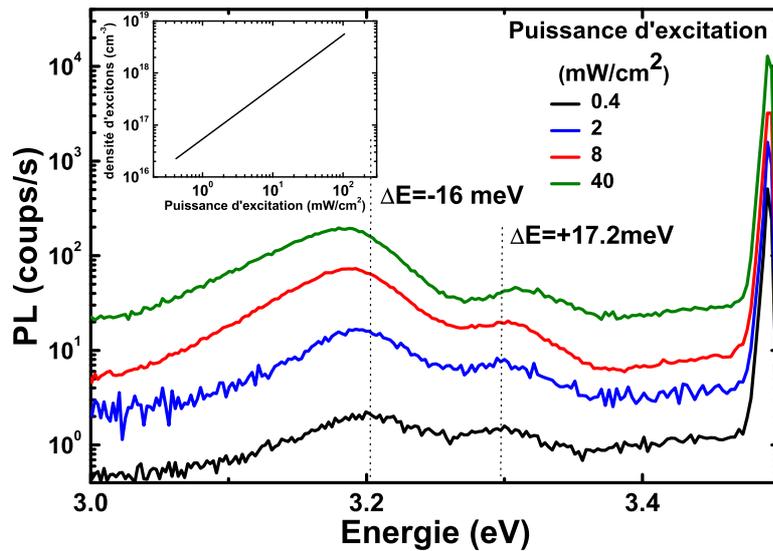


FIGURE 5.6 – Spectres de PL en incidence normale pour différentes puissances d'excitation (échelle semi-logarithmique). Le décalage des modes en énergie ΔE entre les puissances extrémales est indiqué sur la figure; les lignes en pointillés permettent de mieux visualiser ce décalage depuis la position centrale de chaque pic à faible puissance. La courbe en insert donne la densité d'excitons en fonction de la puissance d'excitation (échelle logarithmique).

Variation de la largeur à mi-hauteur Concernant la largeur à mi-hauteur des modes (cf. figure 5.3 cadrans du milieu), entre $P = 0.4\text{mW}/\text{cm}^2$ et $P = 40\text{mW}/\text{cm}^2$, elle diminue de -5meV pour le CMP alors qu'elle augmente de 14meV pour le BMP. Les pics de photoluminescence du CMP, avec une largeur moyenne de 25meV , sont plus fins que ceux du BMP qui possèdent une largeur moyenne de 50meV . De plus la largeur des modes ne semble pas dépendre de l'angle d'émission.

5.1.7 Comparaison avec un système connu : GaN

Il est une fois de plus intéressant de comparer nos résultats avec ceux obtenus dans les microcavités massives à base de GaN. La disparition du goulot d'étranglement a été observée pour une puissance seuil $P = 80 \text{ W/cm}^2$ [SC08]. La comparaison est complexe car les conditions d'excitation sont différentes. La microcavité GaN est excitée hors résonance par un laser impulsionnel de durée 8 ps , à 300 nm , avec un taux de répétition de 82 MHz . Les excitons de la couche active de la microcavité ont une durée de vie non radiative courte de l'ordre de $\tau_{\text{nonrad}} = 3 \text{ ps}$. Elle est comparable à la durée de l'impulsion utilisée et beaucoup plus courte que celle du laser Nd :YAG ($T_{\text{impulsion}} = 5 \text{ ns}$) utilisé dans les expériences présentées dans cette section. Dans notre cas, la densité d'excitons est donnée par l'équation 5.1 avec $E\tau_{\text{nonrad}}/T_{\text{impulsion}} \sim 5 \mu\text{J.cm}^{-3}$. Alors qu'ici, en excitation impulsionnelle, la densité d'exciton est de l'ordre de AE/E_0 , où A est l'absorption de la microcavité, prise égale à $(1 - R)$, $E \sim 1 \mu\text{J.cm}^{-3}$ est l'énergie par impulsion et E_0 est l'énergie du laser.

La densité d'excitons est donc similaire dans les deux cas, de l'ordre de $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

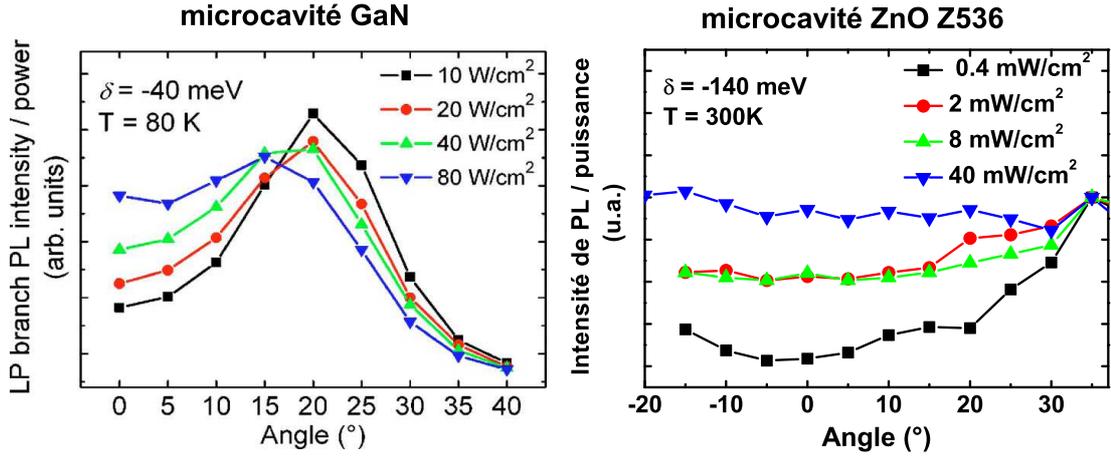


FIGURE 5.7 – Comparaison de la puissance seuil de suppression du bottleneck dans GaN (figure de gauche, extraite de [SC08]) et ZnO (figure de droite)

5.2 Etude détaillée en fonction du désaccord et de la température

La présence de plusieurs branches polaritoniques simultanément en couplage fort constitue autant de canaux de fuite pour les polaritons. Nous avons donc parcouru l'espace des paramètres (désaccord, température et puissance d'excitation) afin de déterminer s'il est possible de sélectionner un canal de relaxation en particulier. Cette étude a également pour but d'approfondir la compréhension des processus présentés dans la section 5.1, de voir *in fine* quelles conditions sont favorables à la réalisation

d'un condensat de polaritons, et de les confronter aux prévisions théoriques 2.5.

5.2.1 Relaxation des polaritons en fonction du désaccord

Nous avons réalisé des cartes de photoluminescence résolue en angle en deux points de l'échantillon similaires aux points 1 et 3 (cf. p. 97) situés respectivement au centre et au bord de l'échantillon, que nous nommerons par la suite point 1a et point 3a. Les figures 5.8 et 5.9 présentent ces cartes en différentes températures ($T = 10, 100$ et $300K$) et pour différentes puissances surfaciques d'excitation ($P = 2, 20, 100 \text{ mW/cm}^2$, soit $E = 0.2, 2, 10 \text{ mJ/cm}^2/\text{impulsion}$). Nous montrons ici, d'une part, comment il est possible de supprimer le goulot d'étranglement, et d'autre part, comment on peut modifier la relaxation dans une branche de polaritons donnée, en jouant à chaque fois sur la température et la densité d'excitons.

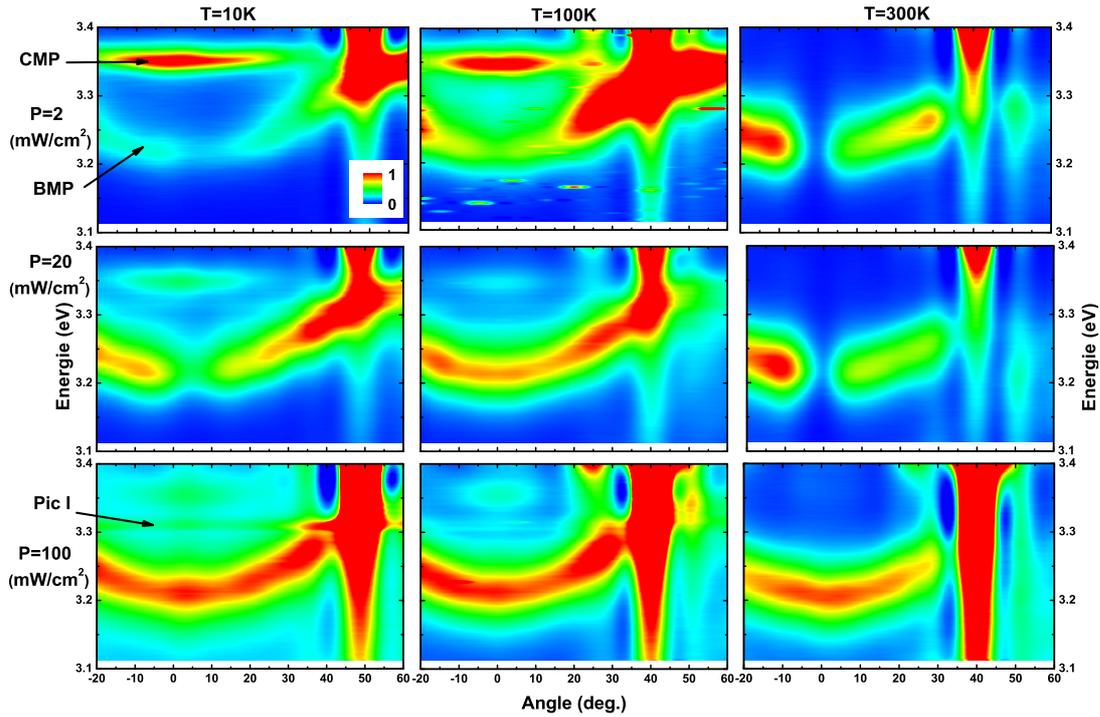


FIGURE 5.8 – PL résolue en angle au point 1a en fonction de la température et de la puissance d'excitation.

Suppression du goulot d'étranglement Le point 1a (cf. figure 5.8) montre un système avec un désaccord du CMP plus positif que celui présenté au début de ce chapitre. A savoir que le mode de cavité est à désaccord nul par rapport à la transition

excitonique et le premier mode de Bragg est en désaccord négatif ($\delta = -120 \text{ meV}$ au lieu de $\delta = -140 \text{ meV}$ à 300 K) en incidence normale. Notons que l'on détecte de la luminescence issue de la branche du mode de Bragg de polaritons au-delà de 40° qui est l'angle d'excitation du laser. Cela montre que nous n'excitons pas de manière résonante les branches de polaritons et que les porteurs libres, créés à l'énergie du laser (3.49 eV), relaxent depuis cette énergie vers le réservoir d'excitons à grand k_{\parallel} .

A basse température ($T = 10 \text{ K}$, cf. figure 5.8 colonne de gauche), le mode de cavité de polaritons apparaît clairement. Il est le principal canal de relaxation pour les polaritons à $P = 2 \text{ mW/cm}^2$. Lorsque la puissance augmente, ce canal demeure toujours autant peuplé et continue de se remplir aux grands angles (c.à.d. dans les états de grands k_{\parallel}). Mais le mode de Bragg de polaritons devient un canal de plus en plus favorable au fur et à mesure que le goulot d'étranglement est repoussé vers les petits angles ($\theta = 30^\circ$ à $P = 2 \text{ mW/cm}^2$ et $\theta = 5^\circ$ à $P = 20 \text{ mW/cm}^2$). Ainsi le mode de cavité de polaritons apparaît moins intense sur les cartes relativement au mode de Bragg de polaritons. Pour $P = 100 \text{ mW/cm}^2$, le mode de Bragg de polaritons est peuplé jusqu'en bas de la branche. Le mode de cavité apparaît quant à lui comme un îlot sur la carte, toujours plus petit.

Notons également la présence clairement visible d'un mode qui émet à 3.305 eV (noté pic I). Ce mode se devine déjà à $P = 20 \text{ mW/cm}^2$. Son énergie est indépendante de l'angle et l'intensité de luminescence augmente avec la puissance d'excitation. Nous reviendrons sur ce mode un peu plus loin dans cette section.

A $T = 100 \text{ K}$, nous retrouvons un comportement assez similaire. De fait, l'exciton s'est peu décalé en énergie entre 10 K et 100 K , le désaccord des modes reste le même. Le goulot d'étranglement est plus facilement supprimé : pour $P = 20 \text{ mW/cm}^2$ les polaritons relaxent jusqu'en bas de la branche. La densité d'excitons créée est alors estimée à 10^{18} cm^{-3} .

Considérons maintenant le cas où la puissance d'excitation demeure constante ($P = 2 \text{ mW/cm}^2$) et où la température évolue de 10 K à 300 K (cf. figure 5.8 ligne du haut). On s'aperçoit que le mode de polaritons de cavité disparaît au fur et à mesure que la température augmente au profit du mode de Bragg de polaritons. De la même façon que précédemment, le goulot d'étranglement se produit pour des angles de plus en plus petits alors que l'intensité de l'émission devient de plus en plus importante, relativement au mode de cavité de polaritons. L'agitation thermique engendrée par l'augmentation de température entre 10 K et 300 K favorise manifestement la relaxation des polaritons dans la branche du mode de Bragg de polaritons.

Il est donc possible de supprimer le goulot d'étranglement soit en augmentant la densité d'excitons (pour une température donnée) soit en augmentant la température (à puissance d'excitation fixe). On peut en conclure que la relaxation assistée par phonons joue un rôle non négligeable suivant les prévisions théoriques [Joh08].

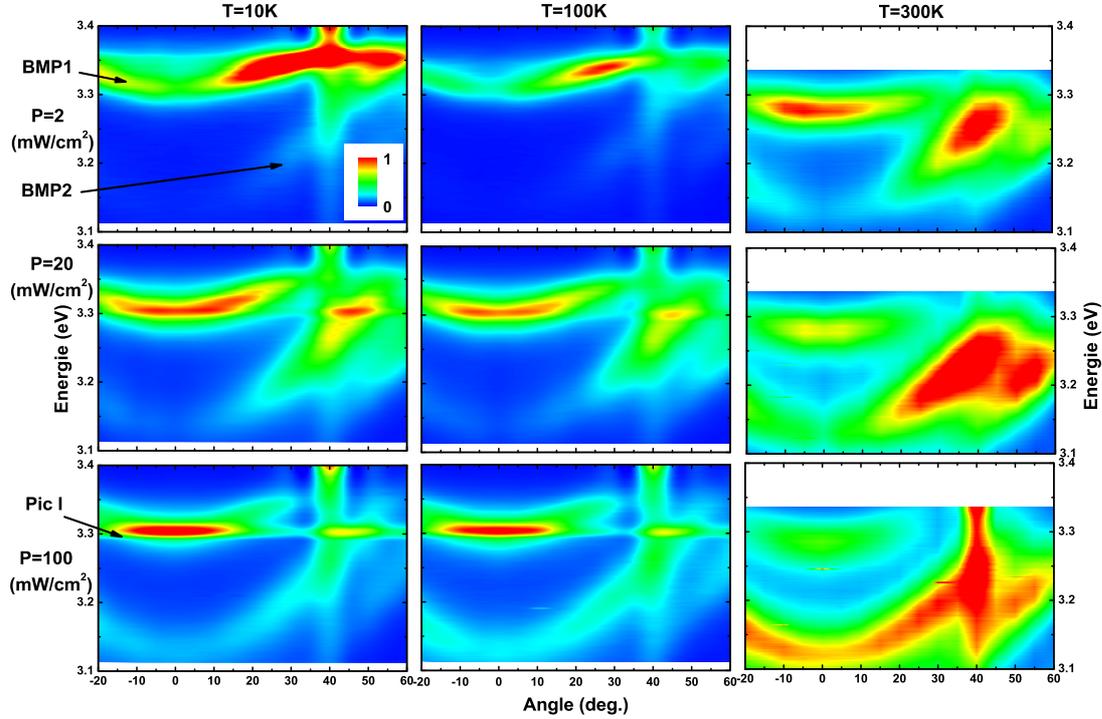


FIGURE 5.9 – PL résolue en angle au point 3a en fonction de la température et de la puissance d’excitation.

Compétition entre les branches de polaritons Au point 3a (figure 5.9) la situation est un peu différente. En effet, en ce point le mode de cavité de polaritons est en désaccord positif et les deux modes visibles résultent du couplage fort de l’exciton avec les deux premiers modes de Bragg, notés BMP 1 et BMP 2.

A basse température ($T = 10\text{ K}$), un goulot d’étranglement est visible sur les deux branches. Nous avons vu que le couplage exciton-Bragg est moins important. Le premier mode de Bragg de polaritons (autour de 3.3 eV) est le canal préférentiel de relaxation des polaritons. En revanche, le second mode (autour de 3.15 eV) n’est pratiquement jamais peuplé, même lorsqu’on augmente la puissance d’excitation. Ce mode est en effet très éloigné en énergie ($\delta \sim -170\text{ meV}$) du reste du système. Le goulot d’étranglement est d’autant plus difficile à surmonter dans cette branche que la pente y est forte. Un comportement similaire est observable à faible puissance ($P = 2\text{ mW/cm}^2$) lorsqu’on augmente la température. Toutefois le goulot d’étranglement est en partie supprimé sur la branche BMP 2 à température ambiante. Les polaritons semblent, dans ce cas, plus facilement relaxer, grâce à l’agitation thermique, que en augmentant la densité d’excitons. Le phénomène opposé semble avoir lieu au point 1a (figure 5.8).

Considérons maintenant le cas des fortes puissances ($P = 100\text{ mW/cm}^2$, figure 5.9

ligne du bas). La relaxation dans le mode BMP 2 est désormais possible à température ambiante. En raison du fort décalage en énergie de l'exciton (à 3.31 eV à 300 K) le mode de Bragg de polaritons, à 3.3 eV aux basses températures, se trouve désormais à 3.275 eV , plus proche du second mode qui lui n'est pratiquement pas décalé en énergie. La proximité des deux modes modifie la courbure au point d'inflexion des branches et peut expliquer pourquoi les polaritons peuvent désormais relaxer dans la branche BMP 2.

Deux spécificités sont à noter par ailleurs. La première est qu'en augmentant suffisamment la puissance d'excitation à 300 K , on parvient à casser le goulot d'étranglement et à peupler le bas de la branche basse. Dans ces conditions le mode de Bragg de polaritons à 3.275 eV se comporte comme le mode de cavité de polaritons dans la figure 5.8. La seconde est que la luminescence visible à $\theta = 50^\circ$ autour de 3.21 eV , est la signature du couplage avec un troisième mode de Bragg, montrant encore une fois, si besoin est, à quel point l'interaction lumière-matière est importante dans ZnO.

Retenons de cette étude qu'il est possible de limiter la relaxation des polaritons dans une seule branche en choisissant astucieusement le couple (P,T) de puissance d'excitation et de température, favorisant éventuellement la relaxation de polaritons en bas de la dite branche.

Nature de l'émission non dispersive Aux basses températures ($T = 10 - 100\text{K}$), l'émission du mode à 3.305 eV est visible à partir de $P = 20 \text{ mW/cm}^2$. Ce mode, dont nous avons signalé la présence sur la figure 5.8, a les caractéristiques suivantes :

- Sa relation de dispersion est plate (3.305 eV).
- L'intensité de l'émission augmente avec la puissance d'excitation, de manière sur-linéaire.
- Ce mode est visible à 3.305 eV sur les figures 5.8 et 5.9. Sa nature n'est donc pas sensible au désaccord.
- Ce mode n'émet que lorsque il est en coïncidence avec l'énergie d'un mode de polaritons. Ce phénomène est bien visible sur la figure 5.9.

On peut donc conclure qu'il ne s'agit pas d'un mode de polaritons puisqu'il ne disperse pas en énergie et est insensible au désaccord. On pourrait supposer qu'il s'agit d'une réplique phonon de l'exciton (à 3.37 eV à 10K). En effet le phonon LO a une énergie de 72 meV dans le ZnO. Si tel est le cas, pourquoi ne voit-on pas la luminescence de l'exciton, forcément plus intense que celle de sa réplique phonon ? L'hypothèse d'une réplique phonon du laser (à 3.49 eV) doit être écartée, ne correspondant pas en énergie. Pour comparaison, la figure 5.10 présente les énergies des pics de photoluminescence mesurés sur une demi-cavité (sans miroir de Bragg supérieur) similaire à l'échantillon Z536. L'énergie de ce mode ne correspond à aucune des transitions intrinsèques observées dans le ZnO. On peut donc en conclure que ce mode est de nature extrinsèque et trouve probablement sa source dans les excitons liés de ZnO.

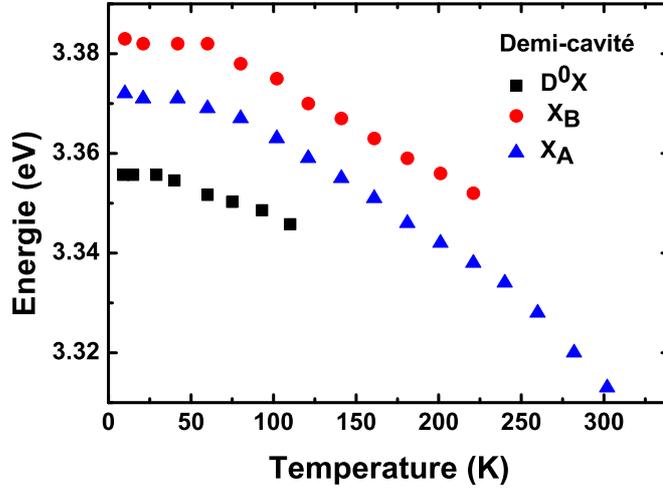


FIGURE 5.10 – Transitions observées en PL dans le ZnO en fonction de la température. Expériences réalisées au CRHEA (M. Leroux et J. Zúñiga-Pérez) sur une demi-cavité (sans miroir électrique supérieur) similaire à Z536.

5.2.2 Influence de la puissance sur l'énergie des modes

Nous avons observé à la section 5.1 que l'énergie des modes dépend de la puissance d'excitation. Une série de spectres de photoluminescence a été mesurée pour une gamme de puissances plus grande (figure 5.11). On voit que le mode de cavité de polaritons se décale vers les hautes énergies et le mode de Bragg de polaritons vers les basses énergies. Le décalage en énergie devient significatif au-delà de $P = 50 \text{ mW/cm}^2$. Le mode de cavité de polaritons est plus affecté que le mode de Bragg. La figure 5.11-b) montre que ce décalage est linéaire avec la densité d'excitons créés.

Ce phénomène est également observable pour les points 1a et 3a. Toutefois le décalage varie fortement en amplitude. Signalons que la gamme de puissances utilisée est volontairement petite afin de ne pas endommager le miroir supérieur de la microcavité. La puissance surfacique maximale vaut 100 mW/cm^2 . Or les décalages deviennent importants pour des puissances supérieures. Il est par conséquent normal que les décalages en énergie observés soient plus faibles dans la figure 5.6 que dans la figure 5.11.

L'origine physique des décalages en énergie est difficile à déterminer et leur comportement n'est pas homogène sur l'ensemble des expériences que nous avons présentées. On peut cependant formuler plusieurs constatations à ce propos à partir des caractéristiques récurrentes :

- Les modes de polaritons s'élargissent lorsque la puissance d'excitation augmente. Les raies des modes sont asymétriques et le pic de PL du mode de cavité (respectivement de Bragg) de polaritons s'élargit sur le flanc haute (basse) énergie.
- Lorsque les modes se décalent en énergie, le décalage en énergie varie linéairement

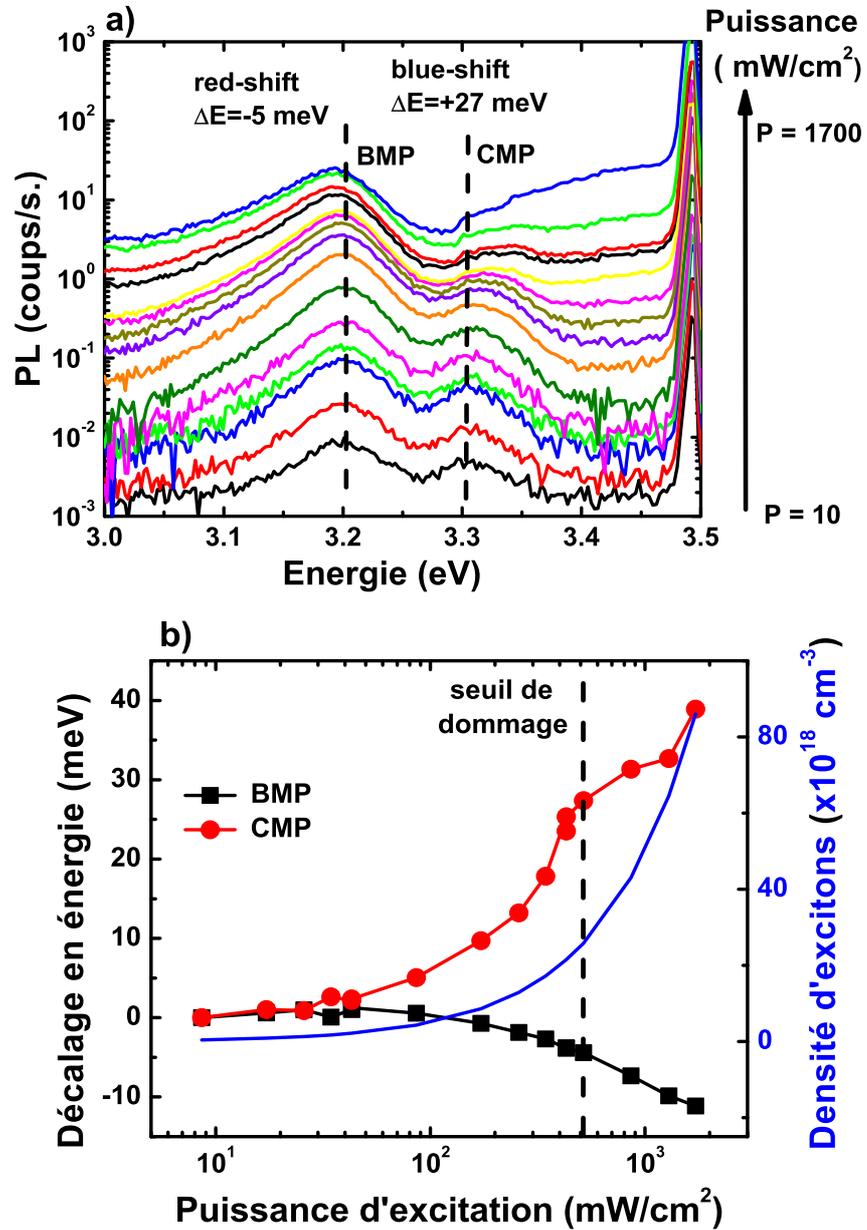


FIGURE 5.11 – a) Spectre de PL à $\theta = 0^\circ$ en fonction de la puissance d'excitation à 300 K pour un désaccord correspondant à celui du point 1a. Les lignes noires sont un guide pour les yeux afin de voir les décalages en énergie des modes. b) Décalage en énergie des modes de Bragg et de cavité de polaritons (respectivement notés BMP et CMP sur la figure) en fonction de la puissance d'excitation.

avec la densité d'excitons.

– L'ensemble de la branche est affectée par ce décalage en énergie et pas seulement

certains états.

- Le mode de cavité (respectivement de Bragg) de polaritons subit un blue-shift (red-shift).

Plusieurs phénomènes physiques ayant été observés [Ric05a, Sav01] peuvent expliquer un décalage vers le bleu de la branche basse de polaritons dans un système où un seul mode de cavité est couplé à l'exciton :

- Une interaction exciton-exciton de type Coulombienne. A forte densité d'excitons, l'interaction Coulombienne n'est plus négligeable. Cela entraîne généralement une diminution du couplage exciton-photon et donc une diminution de l'énergie de Rabi. La branche basse de polaritons se décale alors vers les hautes énergies et la branche haute vers les basses énergies.
- Une interaction polariton-polariton. Lors de la diffusion stimulée de polaritons, l'interaction entre polaritons, au-delà de la densité seuil de condensation, entraîne un décalage vers le bleu de la totalité de la branche basse de polaritons.

Ces effets sont cependant faibles, inférieurs à 1 meV [Ric05a, Sav02].

Dans GaAs et CdTe, aucun processus pouvant entraîner un décalage de la branche de polaritons vers les basses énergies n'ont encore été recensés à notre connaissance.

Nous pouvons envisager une origine photonique du phénomène. L'augmentation de la puissance d'excitation entraîne deux effets :

- Une augmentation de la densité d'excitons, qui entraîne une variation de l'indice effectif de la couche active.
- Un échauffement local de l'échantillon peut également modifier l'indice de réfraction des couches.

Il nous est cependant impossible de déterminer si cette variation d'indice affecte d'abord la couche active ou la cavité, probablement les deux. Par ailleurs, nous avons vu au chapitre 4 qu'un désordre photonique pouvait être à l'origine d'un décalage en énergie des modes de polaritons. L'origine photonique du phénomène semble donc être l'hypothèse la plus probable.

5.2.3 Equilibre thermique

Nous avons vu sur les figures 5.8 et 5.9 qu'il est possible de faire relaxer les polaritons en bas des branches en ajustant le désaccord, la température et la puissance d'excitation. Le mode de cavité de polaritons, dont le désaccord est faible, est souvent un bon canal de relaxation pour les polaritons. Et nous avons vu qu'aux fortes puissances, la distribution d'intensité devient importante autour de $\pm 5^\circ$. Cette observation encourage à penser que la population de polaritons tend vers un équilibre thermique. La figure 5.12 montre l'évolution en fonction de la puissance du taux d'occupation des branches des modes de cavité et de Bragg de polaritons du point 1a à 100 K.

Le taux d'occupation est calculé en divisant l'intensité de photoluminescence, normalisée par le temps d'acquisition, par la somme des composantes photons constituant chaque état propre (E, k_{\parallel}) , issue de la diagonalisation de la matrice d'oscillateurs cou-

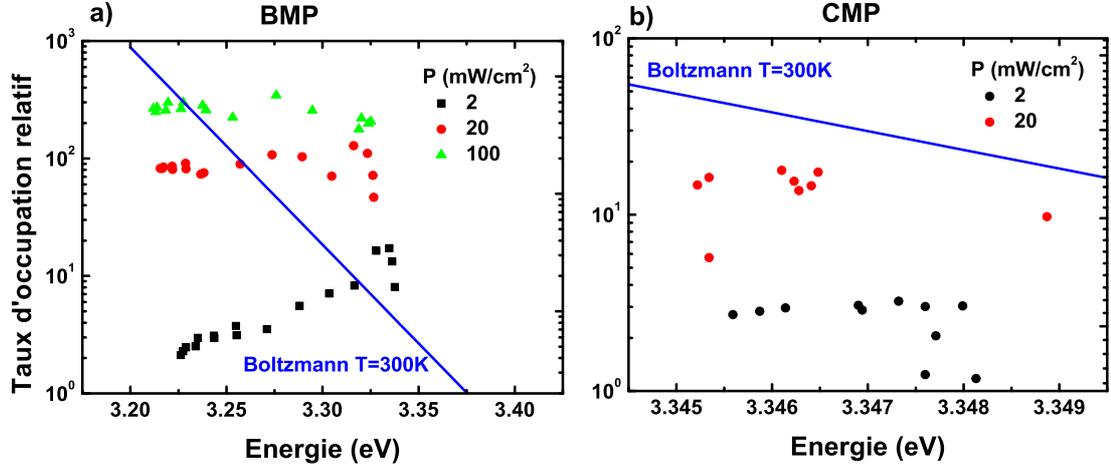


FIGURE 5.12 – Evolution du taux d’occupation a) du mode de Bragg de polaritons (BMP) et b) du mode de cavité de polaritons (CMP), en fonction de la puissance d’excitation ($T = 100 K$).

plés (cf. figure 3.20-b)).

Concernant le mode de cavité de polaritons, le taux d’occupation à faible puissance est le même quel que soit l’angle : tous les états sont peuplés identiquement. Lorsque la puissance augmente, le taux d’occupation devient plus grand au centre de la branche qu’aux extrémités. Pour autant cette différence d’intensité relative demeure très faible. La dispersion du CMP étant très faible, il reste difficile à analyser. Il n’a d’ailleurs pas pu être identifié à la plus forte puissance ($P = 100 mW/cm^2$). Pour le mode de Bragg de polaritons, à faible puissance, le taux d’occupation est minimal au centre de la branche, du fait du goulot d’étranglement. Puis il devient constant en angle lorsqu’on augmente la puissance, augmentant d’un facteur 30 entre $P = 2 mW/cm^2$ et $P = 20 mW/cm^2$, reflétant la suppression du goulot d’étranglement, puis d’un facteur 3 entre $P = 20 mW/cm^2$ et $P = 100 mW/cm^2$. Par la suite le taux d’occupation évolue moins rapidement que la population d’excitons créés. Si on considère que parallèlement la variation du taux d’occupation dans le mode de cavité de polaritons est négligeable, cela traduit le fait que tous les polaritons n’ont pas le temps de relaxer en bas de la branche, très certainement à cause de leur faible durée de vie.

La population de polaritons n’atteint jamais un équilibre thermique. Le tracé du taux d’occupation des polaritons dans les différentes branches en fonction de l’énergie ne se rapproche jamais d’une distribution de Boltzmann (cf. figure 5.12).

Notons qu’au seuil de dommage du miroir supérieur la densité d’excitons est de $1.10^{19} cm^{-3}$ soit deux ordres de grandeur au-dessus de la densité prévue théoriquement pour atteindre le seuil laser [Joh08]. Ce n’est donc pas un facteur limitant pour l’obtention d’un condensat de polaritons dans le régime cinétique et on pourrait augmenter davantage la densité d’excitons.

5.2.4 Conclusion intermédiaire

Nous avons vu à travers l'étude de la PL en fonction du désaccord, de la température et de la puissance d'excitation, qu'il est possible de sélectionner préférentiellement un mode pour la relaxation des polaritons. Cela étant, la population de polaritons n'atteint jamais l'équilibre thermique, en raison de la trop courte durée de vie des polaritons. Une analyse approfondie des différents mécanismes de diffusion des polaritons nécessiterait des simulations, que nous n'avons pas faites, à partir de l'équation de Boltzmann semi-classique, comme par exemple dans les travaux de Johne *et al.* [Joh08], et prenant en compte les spécificités de notre système.

Nous avons par ailleurs envisagé d'autres moyens afin de stimuler la relaxation des polaritons et de compenser leur faible durée de vie. Une première voie est d'exciter une branche de polaritons en résonance afin de favoriser la relaxation stimulée des polaritons. Une autre voie est d'augmenter davantage la densité d'excitons, en focalisant le faisceau laser.

5.3 Effets non linéaires sous excitation résonante

Nous avons réalisé des expériences similaires de photoluminescence résolue en angle en changeant de source d'excitation. La seconde harmonique du Ti :Sa nous permet d'exciter en résonance avec les branches de polaritons. La durée des impulsions est alors de 2 ps , et l'énergie par impulsion est beaucoup plus faible. Nous avons excité d'une part à 3.44 eV , dans la branche haute de polaritons, et d'autre part à 3.27 eV , dans la branche basse. Dans le second cas, notre spectromètre étant ébloui par le laser diffusé, nous n'avons pu observer l'émission de polaritons.

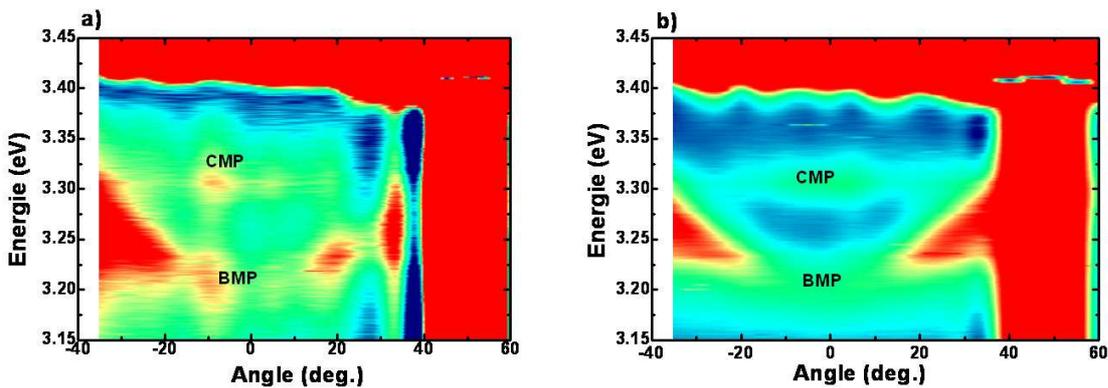


FIGURE 5.13 – Carte de PL résolue en angle sous excitation résonante au Ti :Sa (taux de répétition 80 MHz , durée de l'impulsion 2 ps) a) à faible puissance ($P = 0.2\text{ W/cm}^2$), b) à forte puissance ($P = 2\text{ W/cm}^2$).

En excitant à 3.44 eV (figure 5.13), l'énergie d'excitation est proche de celle de la

série d'expériences des sections 5.1 et 5.2. Le mode de cavité de polaritons apparaît très clairement sur ces images malgré les faibles puissances crêtes d'excitation en comparaison de celles utilisées avec le laser Nd :YAG. Le goulot d'étranglement est aussi observé, mais ne peut être supprimé en augmentant la puissance d'excitation. L'énergie maximale par impulsion ($E \sim 40 \text{ nJ/cm}^2/\text{impulsion}$) correspond à une densité d'excitons de $\sim 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Notons que ce régime d'excitation est impulsionnel étant donné que la durée des impulsions est inférieure au temps de vie non radiatif des excitons dans la couche active. La formation d'un condensat sous excitation impulsionnelle s'avère plus difficile qu'en régime continu. Le système de polaritons étant hors équilibre, une alimentation permanente du gaz de polaritons doit venir compenser les nombreuses pertes du système. Un régime continu pallie mieux à ce problème.

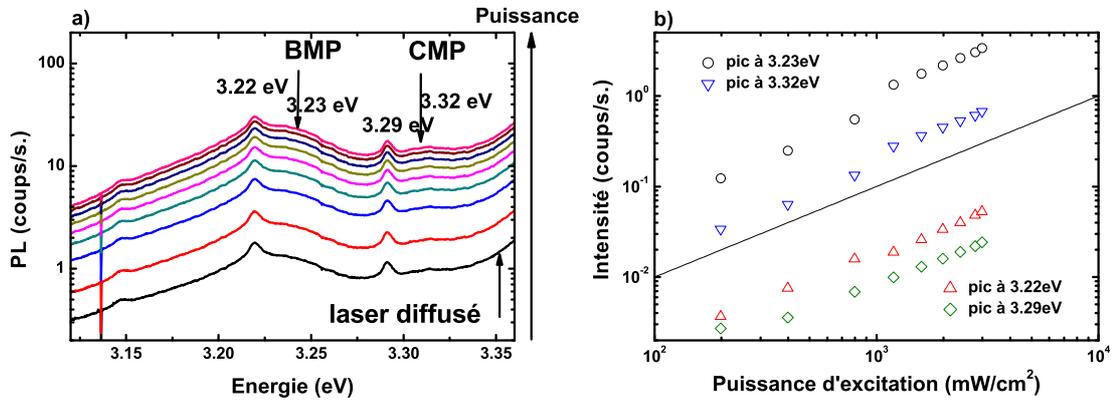


FIGURE 5.14 – Evolution des spectres de PL en fonction de la puissance d'excitation sous excitation impulsionnelle picoseconde ($P = 0.4 - 3 \text{ W/cm}^2$) à 300 K.

La figure 5.14-a) montre les spectres de photoluminescence pour différentes puissances d'excitation ($P = 0.4 - 3 \text{ W/cm}^2$). On note la présence de deux pics fins à 3.22 eV et 3.29 eV sur le flanc basse énergie des modes de polaritons. Ces pics sont des répliques phonons du laser : il sont distants de $\sim 72 \text{ meV}$, ce qui correspond à l'énergie du phonon LO et est en bon accord avec l'énergie du laser à 3.44 eV. De plus l'intensité de ces pics varie linéairement avec la puissance du laser (figure 5.14-b)). Concernant les modes de polaritons à 3.23 eV et 3.32 eV, on n'observe aucune sur-linéarité de l'émission lorsqu'on augmente la puissance, confirmant qu'on reste tout le temps dans un régime linéaire. Notons qu'aucun décalage en énergie des modes n'est observé, lié une fois encore à la faible densité d'excitons.

5.4 Excitation en micro-photoluminescence

Une dernière possibilité afin d'augmenter la densité d'excitons est de focaliser le faisceau laser. Cela est possible grâce au dispositif de micro-photoluminescence utilisant l'objectif de microscope. L'échantillon est excité en continu à l'aide de la seconde

harmonique d'un laser Argon (5.07 eV). Une étude en puissance a été menée sur les point 1 et 3 étudiés au chapitre 4. La figure 5.15 montre les spectres de photoluminescence obtenus à 10K et 300K pour des puissances allant de $P = 0.03 \text{ kW/cm}^2$ à $P = 220 \text{ kW/cm}^2$. La puissance surfacique est bien plus importante que précédemment. Malgré cela la densité d'excitons maximale de 10^{17} cm^{-3} demeure bien inférieure à celle observée auparavant en régime continu. Aucun changement de régime n'a donc pu être observé.

Notons que dans ces expériences, le miroir supérieur est dégradé bien que la puissance surfacique seuil (cf. annexe B) ne soit jamais atteinte.

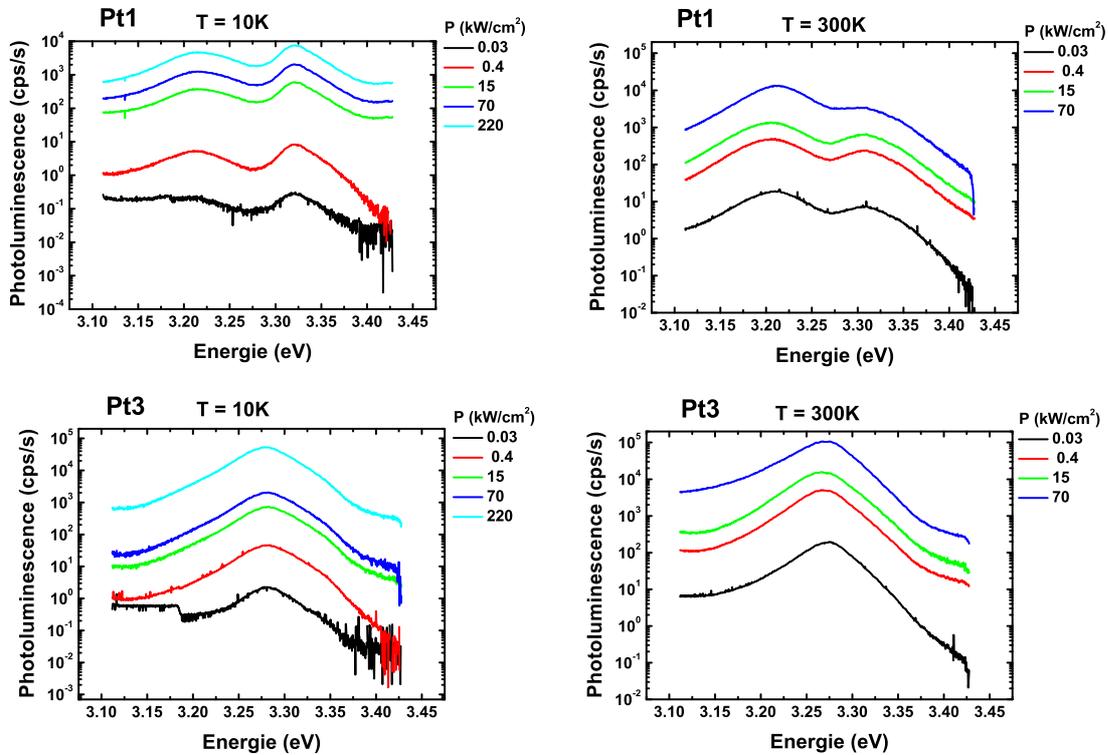


FIGURE 5.15 – Evolution des spectres de PL en régime continu ($P = 0.03 - 220 \text{ kW/cm}^2$) à 10 K et 300 K au point 1 et au point 3.

5.5 Comparaison avec les prévisions théoriques

Nous reprenons ici les prévisions théoriques présentées au chapitre 2 donnant les densités critiques d'excitons nécessaires à l'obtention d'un régime laser à polaritons dans une microcavité massive de ZnO (cf. figure 5.16).

Nous n'avons obtenu aucune preuve d'un régime laser dans la microcavité Z536. Le facteur de qualité faible ($Q \sim 100$) en est certainement la principale raison. Pour autant le modèle utilisé par Johne *et al.* [Joh08] prévoit une densité seuil pour observer une

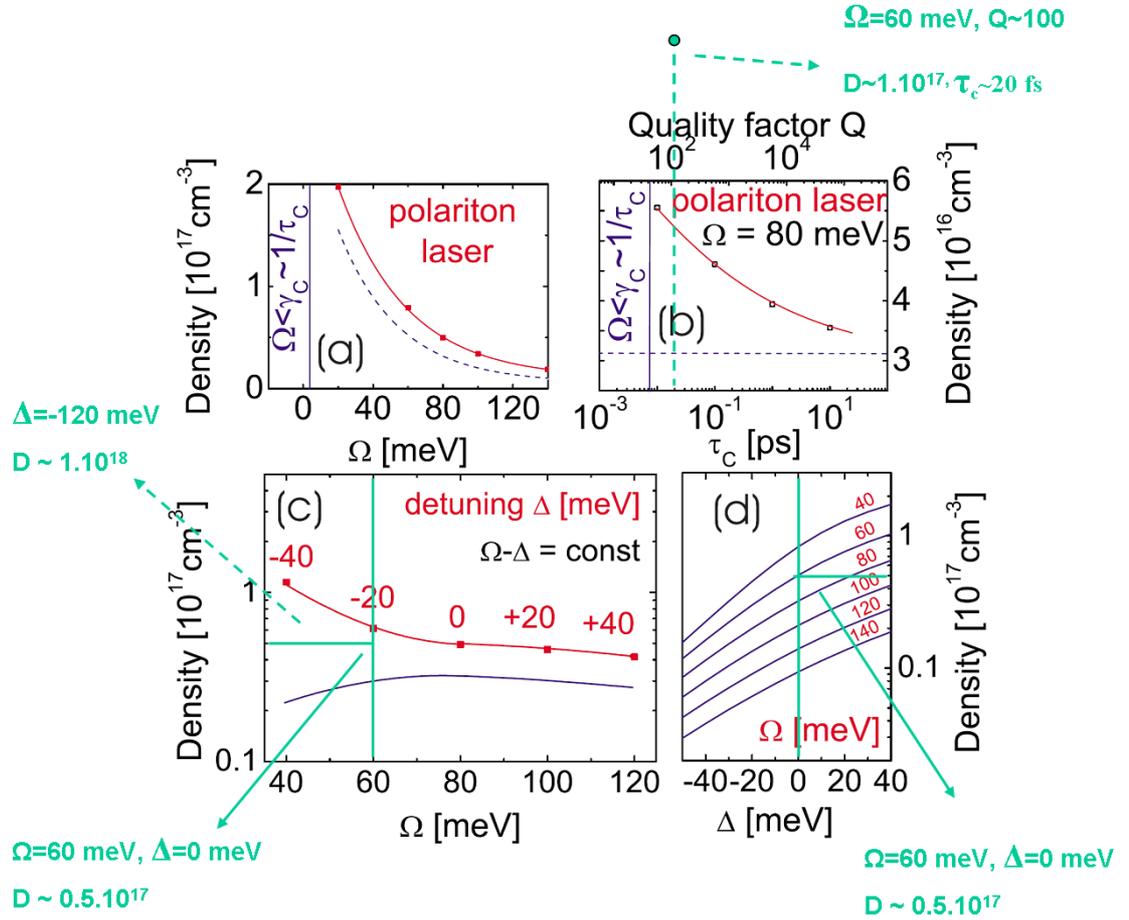


FIGURE 5.16 – Comparaison des densités d’excitons calculées à partir de nos expériences avec les prévisions théoriques nécessaires à l’obtention d’un laser à polaritons dans une microcavité massive ZnO (extrait de [Joh08]).

émission laser de 10^{17} cm^{-3} , pour un facteur de qualité $Q \sim 100$ (correspondant à une durée de vie $\tau \sim 20 \text{ fs}$) et un dédoublement de Rabi de 60 meV . Ce jeu de paramètres est déjà un cas limite du modèle qui prévoit un temps de vie critique de 8 fs , correspondant à un facteur de qualité $Q \sim 40$, en-dessous duquel le régime de couplage fort est perdu.

Comment expliquer cet écart à la théorie ?

- Le temps de vie non-radiatif des excitons $\tau_X = 300 \text{ ps}$ utilisé dans le modèle est bien supérieur à celui que nous avons déduit, $\tau_X \sim 15 \text{ ps}$, permettant une meilleure thermalisation des excitons et des polaritons.
- Le modèle ne prend en compte qu’une seule branche de polaritons. Cet aspect est peut-être le plus important, car on ne sait pas de quelle façon la densité seuil pour atteindre le laser à polaritons est affectée lorsqu’il existe plusieurs canaux de relaxation pour les polaritons à des énergies et des vecteurs d’onde différents.

- La branche polaritonique de Bragg dans laquelle s'accumule les polaritons est à des désaccords bien plus négatifs que ceux envisagés par le modèle. On ne peut donc que comparer les densités seuils pour les branches ayant un désaccord similaire avec ceux du modèle (ligne pleine) et extrapoler ces valeurs (ligne pointillés) pour les autres désaccords. Ainsi à désaccord nul, correspondant généralement au désaccord du mode de cavité, pour un dédoublement de Rabi de 60 meV , la densité seuil calculée vaut $5.10^{16} \text{ cm}^{-3}$, en-deçà des densités utilisées dans nos expériences. La densité seuil extrapolée pour un désaccord de -120 meV , correspondant aux modes de Bragg de polaritons, serait de $1.10^{18} \text{ cm}^{-3}$, ce qui correspond à la densité expérimentale pour supprimer le goulot d'étranglement. Il se peut donc que l'on soit proche d'un seuil laser, puisque les polaritons relaxent en bas de la branche. Et on peut espérer que les efforts à fournir afin d'augmenter le temps de vie des polaritons ne soient pas énormes.
- Lorsqu'on modifie le couple (P,T) de puissance d'excitation et de température on peut changer entièrement le canal de relaxation pour les polaritons du mode de cavité vers le mode de Bragg (cf. figure 5.9).
- Finalement, nous pouvons surestimer la densité d'excitons créés dans la couche active. En effet, nous considérons que tout ce qui n'est pas réfléchi est absorbé par le ZnO et que tous les porteurs sont transformés en excitons. Or nous avons entre autre insisté sur l'importance d'une émission extrinsèque des résonances excitoniques au chapitre 3. De plus nous utilisons un temps de vie radiatif des excitons qui est indépendant de la température. Ces approximations très fortes peuvent amener une erreur d'un ordre de grandeur sur les densités calculées.

5.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié la relaxation des polaritons dans les différentes branches issues du couplage fort. Ce problème est important lorsqu'on souhaite accumuler des polaritons sur une branche donnée en vue de créer un condensat. Nous observons un effet de goulot d'étranglement (bottleneck) à faible densité, sur la branche de polaritons de Bragg mais pas sur la branche de polaritons de cavité. A grande densité d'excitation, l'effet du goulot d'étranglement est supprimé et l'émission à $\theta = 0^\circ$ du mode de Bragg de polaritons est beaucoup plus intense que celle du mode de cavité de polaritons. Nous avons montré qu'un ajustement des différents paramètres (désaccord, température, puissance d'excitation) permet de favoriser la relaxation des polaritons dans un canal préférentiel. Notre étude semble par ailleurs montrer que la diffusion assistée par phonon est un mécanisme efficace dans les microcavités ZnO, suivant en cela les prédictions théoriques, car le goulot d'étranglement peut être supprimé soit en augmentant la densité d'excitons, i.e. les interactions entre porteurs, soit la température, i.e. les interactions avec les phonons. Toutefois la population de polaritons n'atteint jamais l'équilibre thermique.

La figure 5.17 présente les densités d'excitons accessibles expérimentalement en fonction de la source laser et du dispositif utilisés. La densité d'excitons créés au seuil de

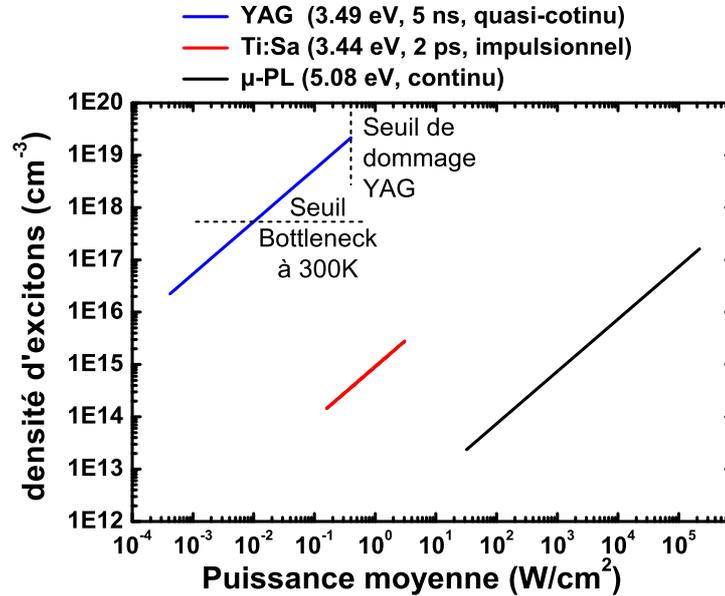


FIGURE 5.17 – Densité d’excitons créés en fonction de la puissance moyenne d’excitation pour les différentes sources laser utilisées.

suppression du goulot d’étranglement ne peut être atteinte qu’avec la troisième harmonique du laser Nd :YAG, et est supérieure à celle prévue théoriquement pour réaliser un condensat de polaritons dans les microcavités de facteur de qualité plus grand que le nôtre.

Les autres voies que nous avons envisagées, à savoir l’excitation résonante et la focalisation du faisceau laser, n’ont pas permis de mettre en évidence un changement de régime. Cela doit être attribué au trop court temps de vie des polaritons. Et bien que les régimes d’excitation soient différents (résonant impulsionnel et non résonant continu) de celui du laser Nd :YAG (quasi-résonant continu), une comparaison avec GaN nous permet de penser que la densité d’excitons nécessaire à la suppression du goulot d’étranglement soit à peu près la même dans les deux systèmes.

Nous avons ainsi montré que l’émission de la microcavité ne peut pas être comprise en supposant la relaxation des excitons du réservoir vers une seule branche basse de polaritons. Un modèle théorique tenant compte de la configuration actuelle des modes de cavité et de Bragg permettrait d’avoir une idée plus précise des densités d’excitons nécessaires pour atteindre le régime de laser à polaritons.

Conclusion

Dans ce travail de thèse à la fois théorique et expérimental, nous avons pu aborder différents aspects du régime de couplage fort dans les microcavités massives à base de ZnO.

Dans le premier chapitre, introductif, nous avons rappelé les propriétés essentielles du régime de couplage fort. Lorsque le temps caractéristique du couplage exciton-photon devient plus court que le temps de déphasage de l'exciton et la durée de vie du photon dans la cavité, les états propres de la microcavité sont des états mixtes exciton-photon appelés polaritons de cavités. Ces états sont séparés d'une énergie appelée dédoublement de Rabi, proportionnelle à la racine carrée de la force d'oscillateur de l'exciton. Or les excitons du ZnO ont pour particularités d'avoir une grande force d'oscillateur et une grande énergie de liaison (60 meV) qui en font de bons candidats pour l'étude du couplage fort à température ambiante.

Dans le chapitre 2, nous avons présenté une revue des effets bosoniques des polaritons, destinée à mettre en perspective nos travaux au sein des récents développements dans les microcavités. Les polaritons de cavité possèdent par ailleurs une masse effective très faible (environ $10^{-5}m_0$) et se comportent, à faible densité, comme un gaz de Bose en faible interaction. Il est alors possible d'observer une transition de phase des polaritons du type condensation de Bose-Einstein au-delà d'une certaine densité. Cette caractéristique unique permet d'envisager des applications telles que le laser à polaritons, pouvant fonctionner à température ambiante dans des matériaux comme le ZnO.

Nos premiers travaux ont été consacrés à la mise en évidence du couplage fort à température ambiante dans différents échantillons de microcavités massives à base de ZnO dont le facteur de qualité varie de 50 à 100 (chapitre 3). Les spécificités des microcavités ZnO ont été modélisées :

- Les dédoublements de Rabi observés sont les plus importants ($60-80 \text{ meV}$) parmi les microcavités inorganiques.
- Le dédoublement de Rabi est commensurable avec l'énergie de liaison de l'exciton et la séparation en énergie des différentes résonances excitoniques. Il en résulte que, la plupart du temps, la branche haute de polaritons disparaît dans le continuum d'absorption excitonique. Elle n'est donc plus visible dans des expériences de réflectivité et de photoluminescence.

Nous avons comparé deux types de microcavités, de miroirs supérieurs différents. Dans la microcavité à miroir supérieur métallique, le couplage fort n'est observé qu'en réflectivité. Dans la microcavité à miroir supérieur diélectrique, le couplage fort est observé en réflectivité mais aussi en photoluminescence, jusqu'à température ambiante, simultanément avec le mode de cavité et les modes de Bragg. Ces résultats sont comparés aux travaux récemment publiés sur d'autres types de microcavités à base de ZnO.

Le désordre, lié en particulier à la présence de fissures, fait l'objet du chapitre 4. Nous avons cartographié des zones de la microcavités à l'échelle du micron, i.e., quelques fois la longueur d'onde du mode de cavité, et nous avons pu ainsi mettre en évidence une faible modification de l'énergie des modes et du facteur de qualité de la microcavité. Notre étude a montré que ce désordre est de nature photonique et induit un élargissement inhomogène faible devant l'élargissement homogène des modes polaritoniques.

Finalement, nous avons étudié au chapitre 5 la dynamique de relaxation des polaritons dans les branches du mode de cavité et du mode de Bragg de polaritons. La dispersion dans le plan du polariton de basse énergie présente une zone où la relaxation par phonons est difficile : le goulot d'étranglement (bottleneck). Cette zone crée une accumulation d'excitons lors d'une excitation non-résonante et empêche la relaxation des polaritons en bas de la branche. Nous avons mis en évidence pour la première fois ce phénomène dans une microcavité ZnO, pour la branche de polariton de Bragg. Et nous avons montré qu'il est possible de faire relaxer les polaritons jusqu'en bas de la branche en augmentant la densité d'excitons ou la température pour des désaccords négatifs. Le mode de cavité de polaritons, à désaccord nul, est peuplé de manière efficace. Toutefois la présence d'autres modes en couplage fort empêche une forte accumulation des polaritons dans ce mode. La population de polaritons n'atteint jamais l'équilibre thermique, en raison de la trop courte durée de vie des polaritons, plus courte que le temps de relaxation.

Ce travail de thèse a donc permis de valider les potentialités de la filière ZnO et ouvre la voie à un large champ d'investigation. Les microcavités ZnO développées en collaboration avec le CRHEA et le LASMEA sont comparables aux autres microcavités planaires ayant fait l'objet de publications : leurs énergies de Rabi sont légèrement plus faibles car nous avons privilégié des couches actives minces pour simplifier l'interprétation des résultats spectroscopiques ; les facteurs de qualité de nos cavités sont moins grands que dans les échantillons "tout oxyde", mais ces derniers souffrent du caractère polycristallin de leur couche active, et de l'élargissement des transitions excitoniques qu'il induit. Par ailleurs, les énergies de Rabi sont moins fortes que dans les systèmes 1D tels que les nano-bâtonnets, mais la physique des polaritons y sera a priori moins riche que dans les cavités planaires.

L'enjeu majeur est dans un premier temps d'augmenter la durée de vie des polaritons et pour cela, d'améliorer le facteur de qualité des microcavités, et d'augmenter l'énergie

de Rabi en choisissant des couches actives plus épaisses. La prochaine génération de microcavités hybrides, dont nous avons fait mention, pourrait résoudre ce problème. Il faudra par la suite tenir compte des spécificités du couplage fort dans les microcavités ZnO et adapter leur conception en conséquence.

D'un point de vue physique, nos résultats sont très prometteurs quant à la réalisation d'un condensat de polaritons à température ambiante à base de ZnO, ainsi que de dispositifs optoélectroniques. A cette fin, il faudra étudier l'efficacité des différents mécanismes de diffusion dans la relaxation des polaritons. Les développements expérimentaux réalisés au cours de cette thèse y seront bien adaptés : la poursuite des études sous excitations non résonante en régime continu doit permettre de mettre en évidence le seuil d'apparition d'un régime sur-linéaire caractéristique d'une relaxation stimulée. La compréhension en termes de condensat thermalisé, à l'équilibre, ou cinétique, hors d'équilibre, y sera d'autant plus complexe que plusieurs branches polaritoniques sont en compétition. Les études de micro-photoluminescence apporteront par ailleurs des informations sur l'influence des fissures sur la relaxation sous forte excitation.

Annexe A

Les dispositifs expérimentaux

Les études expérimentales du régime de couplage fort et de la dynamique des polaritons dans nos microcavités ont été obtenues sur deux dispositifs, l'un de réflectivité et de photoluminescence résolues en angle développé au cours de cette thèse, et l'autre de micro-réflectivité et de micro-photoluminescence qui a été adapté à l'étude des microcavités.

A.1 Micro-photoluminescence et micro-réflectivité

La microscopie confocale consiste à illuminer ponctuellement l'échantillon en focalisant le faisceau source (laser ou lampe blanche) à l'aide d'un objectif, et de sélectionner spatialement le signal détecté. L'objectif de microscope permet de focaliser le laser d'excitation sur un spot de diamètre $1 - 1.5 \mu m$ et de collecter le signal provenant de la zone excitée. Le microscope est utilisé en mode confocal lorsqu'on place dans le plan objet de l'objectif, qui collecte la lumière émise par l'échantillon, un trou de très petite taille (appelé sténopé en français et pinhole en anglais), de l'ordre de quelques dizaines de microns. Ce dernier a pour fonction de rejeter la majeure partie des rayons lumineux ne provenant pas directement du point illuminé. Un grandissement typique de $\times 25$ et un trou de $50 \mu m$ permettent d'atteindre une résolution en détection de $2 \mu m$. L'image ainsi obtenue (reconstituée point par point) est moins floue et a un meilleur contraste qu'avec un microscope optique conventionnel, même si la résolution est la même dans les deux cas. Le montage fut mis en place par Richard Bardoux [Bar07] au cours de sa thèse afin d'étudier des boîtes quantiques, de taille nanométriques. Dans notre cas, la micro-photoluminescence nous permet de résoudre spatialement la luminescence issue des polaritons, dont la taille typique est de l'ordre du micromètre. Sans ce dispositif, le faisceau laser, qui peut être focalisé sur un spot de $100 \mu m$ avec une lentille adéquate, excite une région beaucoup plus étendue et la luminescence détectée moyenne tous les effets ayant lieu sur des distances plus petites. Le schéma synoptique du dispositif expérimental de micro-photoluminescence est indiqué sur la figure A.1.

Il peut être décomposé en quatre blocs principaux :

ainsi que tout le reste du dispositif schématisé sur la figure A.1 sont déposés sur une table optique elle-même isolée des vibrations provenant du sol du site expérimental par l'intermédiaire d'amortisseurs pneumatiques.

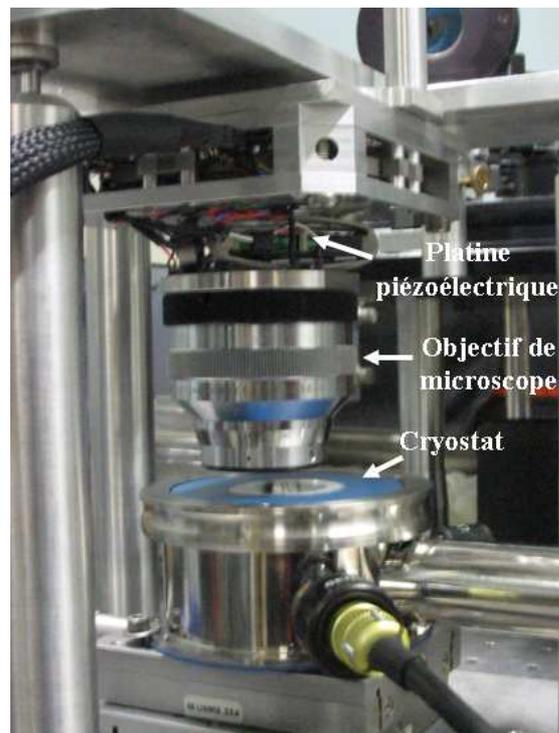


FIGURE A.2 – Plateforme mécanique solidarissant le cryostat et l'objectif de microscope.

- Le cryostat : Afin d'opérer à basse température, nous refroidissons l'échantillon par l'intermédiaire d'un cryostat Microstat Hires de la marque Oxford. L'échantillon est collé (graisse à vide Apiezon) sur un support métallique (voir figure A.3) refroidi par un flux d'hélium liquide. La température de ce support est ajustée automatiquement par rétro-action par l'intermédiaire d'un contrôleur électronique qui régule le flux d'hélium liquide et la résistance chauffante. La mesure de la température de l'échantillon est un point important : nous n'avons pu effectuer de mesure fiable au niveau de l'échantillon, indépendante de la température indiquée par le contrôleur, mais nous évaluons à 10 K la plus basse température accessible. La distance entre le support de l'échantillon et la fenêtre du cryostat est de l'ordre de 2.2 mm (distance compatible avec la distance de travail de l'objectif).
- Déplacements : La platine piézo-électrique permet de déplacer l'objectif dans les trois directions de l'espace avec une précision de l'ordre de 100 nm (cf. figure A.2). Cette précision est déterminée par celle de la tension qui sert de consigne à l'alimentation électrique de la platine. Ces déplacements permettent de se positionner



FIGURE A.3 – Photographie du cryostat sans fenêtre.

finement sur un objet donné ou bien de cartographier automatiquement une zone de l'échantillon. Le champ maximal des déplacements est de $200 \mu m$. Pour se déplacer de manière macroscopique sur les échantillons, nous utilisons des platines de déplacement manuelles placées sous le cryostat.

- La table optique :

Elle constitue un microscope "éclaté" et réalise les fonctions suivantes :

- Ligne de collection. Un miroir sphérique (MS_1) reforme l'image de l'échantillon dans un plan intermédiaire, dans lequel se trouve le trou de sélection confocale (PH). L'image de ce plan est ensuite reformée sur la fente d'entrée du spectromètre par un miroir sphérique (MS_2) et un miroir parabolique hors d'axe.
- Lumière blanche et camera. Deux miroirs amovibles permettent d'éclairer toute la surface de l'échantillon à l'aide d'une lampe à filament de tungstène et d'un condenseur. Il est ainsi possible d'acquérir des spectres ou des cartes en micro-réflexivité. La lampe tungstène permet de mesurer des spectres dans le proche UV, jusqu'à 340 voire $320 nm$. La résolution demeure cependant plus faible qu'en photoluminescence du fait des aberrations engendrées par l'utilisation d'une source polychromatique. Ce système permet par ailleurs de former l'image de la surface de l'échantillon sur le capteur d'une webcam commerciale (Philips Toucam-pro).

- Le laser. Nous avons ici utilisé comme source laser un laser Argon doublé continu ($5.08 eV$), de puissance maximale $P = 100 mW$.

- Le spectromètre. Nous utilisons en détection un spectromètre Jobin-Yvon iHR550 de distance focale de $55 cm$ avec un réseau de 150 ou de 1200 traits/mm couplé à un

détecteur CCD refroidi à l'azote liquide, de très faible bruit.

Enfin, l'interfaçage de tous les instruments contrôlant le spectromètre, la platine piézo-électrique fixée à l'objectif, les acquisitions de la caméra CCD, est réalisé par le logiciel LabView, et permet de réaliser des séries automatiques d'expériences, en particulier la cartographie de photoluminescence par balayage des échantillons.

A.2 Réflectivité et photoluminescence résolues en angle

L'étude des polaritons de microcavités planaires nécessite de sonder leur distribution dans l'espace réciproque. Deux approches optiques sont alors possibles : il s'agit ou bien d'imager directement le plan de Fourier de la lentille ou de l'objectif collectant le signal à l'aide d'une fibre optique ou d'une fente ; ou bien d'utiliser un goniomètre afin de détecter la lumière émise sur un "anneau" dans les différentes directions de l'espace. Etant donné la large plage angulaire requise (de 0° à 70°) pour mesurer correctement le couplage fort dans nos microcavités, nous avons choisi de réaliser un montage goniométrique. La photographie du montage est présentée sur la figure A.4, et son schéma sur la figure A.5. Il peut être décomposé en trois parties :

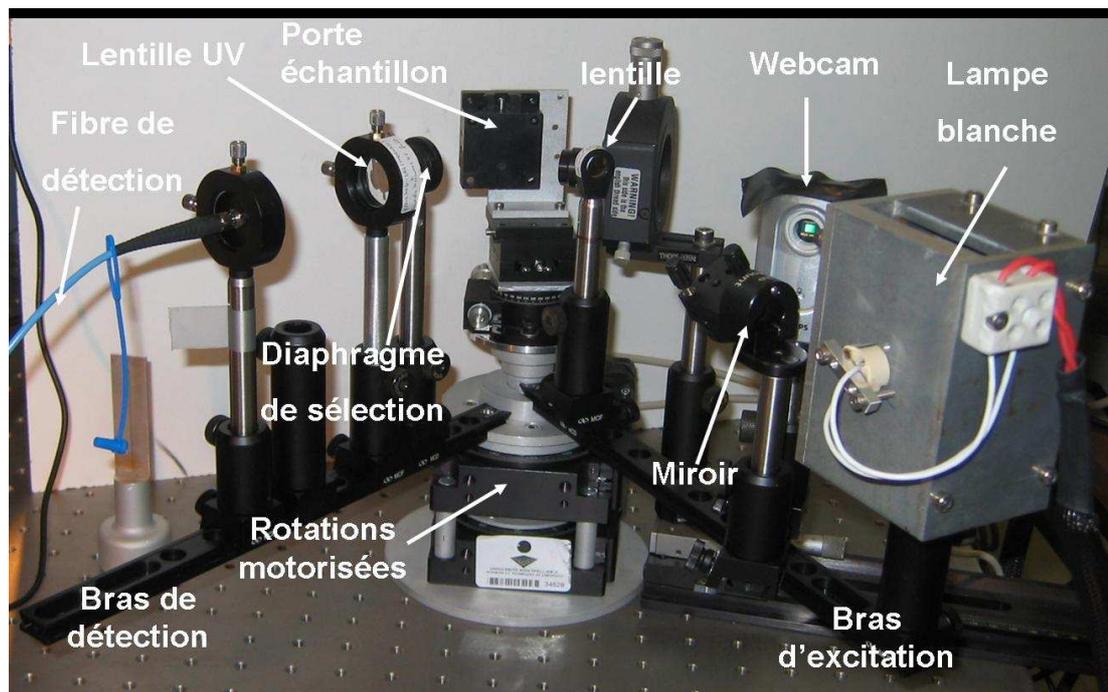


FIGURE A.4 – Photographie du goniomètre.

- Le goniomètre. Le goniomètre permet de faire varier à la fois l'angle du faisceau d'excitation et l'angle de détection. Le goniomètre n'étant pas solidaire du reste du dispositif, cela nous assure une grande souplesse de mouvement pour pouvoir le coupler

à différentes sources d'excitation. Ce dispositif, mis en place et amélioré au fur et à mesure de cette thèse, ne permettait au départ que de travailler à température ambiante. Un cryostat fut ajouté par la suite à la place du porte échantillon. Quatre éléments constituent le goniomètre :

- Les rotations motorisées. Elles sont le support sur lequel viennent se fixer les bras du goniomètre. Il s'agit de deux rotations (Standa-8MR190), centrées sur le même axe et pilotées par un moteur pas à pas qui est interfacé avec l'ordinateur. La précision des moteurs est de l'ordre de la minute d'arc, bien inférieure à la résolution angulaire du montage optique.
- Le porte-échantillon. Il est fixé sur une rotation manuelle de même axe central que les rotations motorisées. Cette liberté angulaire nous permet de modifier l'angle d'incidence du laser sur l'échantillon. L'angle du porte-échantillon est défini par rapport à l'axe de référence fixé sur l'axe (Ox). Les angles d'excitation laser (θ_e) et de détection (θ_d) sont toujours définis par rapport à la normale au porte-échantillon (cf. figure A.5). Nous avons pris un soin particulier au protocole d'alignement des trois axes de rotation, confondus à $50 \mu m$ près.

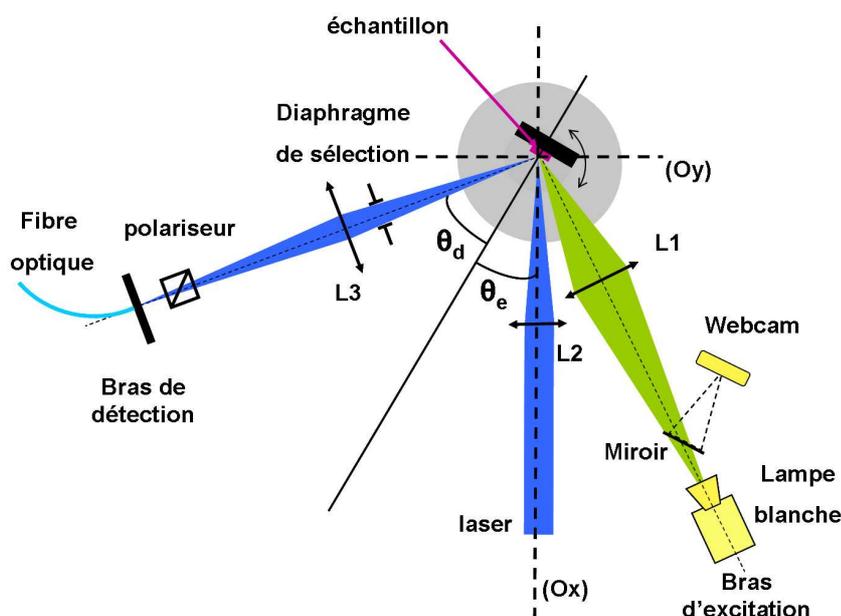


FIGURE A.5 – Schéma du dispositif de réflectivité et de photoluminescence résolues en angle.

- Le bras de détection. Ce bras est équipé d'un diaphragme, d'une lentille de focale 50 mm , d'un polariseur et du support pour la fibre optique. Le diaphragme permet de sélectionner l'angle solide dans lequel on détecte la lumière. Cela nous permet d'avoir une résolution angulaire de 1° . La lentille focalise la lumière sur la fibre optique qui a un coeur de $200 \mu m$ de diamètre.
- Le bras d'excitation. Ce bras est équipé d'une lampe blanche, d'un miroir amovible, d'une webcam et d'une lentille de focale 50 mm . Cela nous permet, d'abord,

de pouvoir réaliser des expériences de réflectivité résolue en angle. Ensuite, ce dispositif permet de visualiser sur la caméra la surface de l'échantillon en l'éclairant depuis le bras d'excitation grâce à une lampe blanche fibrée. Enfin, nous utilisons ce dispositif dans notre protocole de réglage du laser en superposant le spot laser à celui de la lampe blanche sur l'échantillon.

- le cryostat. Le cryostat est le même que celui utilisé en microscopie confocale. Il est tenu par une machoire, solidaire d'un trépied qui est indépendant du goniomètre. L'angle du cryostat est fixé de la même manière que celui du porte-échantillon, par rapport à l'axe (Ox), à la différence que le cryostat est fixe et ne peut être tourné aisément. La fenêtre du cryostat décale le point de détection sur l'échantillon lorsque l'angle de détection augmente. Cela est compensé par une translation adéquate du goniomètre par rapport au cryostat.

- Les sources laser.

Nous avons utilisé trois sources laser couplées avec le goniomètre.

- Le laser Argon doublé continu (244 nm , 5.07 eV , $P_{max} = 100\text{ mW}$).
- Le laser Ti :Sa. Il s'agit d'un laser Tsunami impulsif accordable dans la gamme spectrale $720 - 840\text{ nm}$ (avec le jeu de miroirs installé), avec une durée d'impulsion de 2 ps , un taux de répétition de 80 MHz . Nous avons utilisé la seconde harmonique ($\sim 3.44\text{ eV}$) générée à partir d'un cristal non linéaire afin de pouvoir exciter les modes de polaritons en résonance.
- Le laser Nd :YAG. Nous avons utilisé la troisième harmonique d'un laser Nd :YAG à 3.49 eV afin d'exciter en quasi-résonance la microcavité. Les impulsions durent 5 ns , avec un profil temporel relativement rectangulaire (taux de répétition de 10 Hz). Cela correspond donc à un régime de forte excitation quasi-continue pour les microcavités.

- La détection. Le dispositif de détection est le même que dans le montage précédent. La fibre de détection est reliée au spectromètre iHR550, couplée à une caméra CCD refroidie à l'azote liquide. Les spectres de réflectivité sont normalisés par le spectre de la lampe, mesuré sur un miroir aluminium évaporé sur un substrat de silicium, et placé à côté de l'échantillon. La réponse spectrale de l'ensemble du dispositif est ainsi prise en compte.

Annexe B

Mesure du seuil de détérioration du miroir supérieur de la microcavité

Nous présentons ici une étude menée afin de connaître le seuil de dommage du miroir diélectrique supérieur de la microcavité. Nous avons en effet observé une détérioration de ce miroir, visible à l'œil, sous forte excitation. Celle-ci limite actuellement la densité de polaritons que nous pouvons injecter.

Nous avons déterminé la résistance du miroir supérieur au fort flux incident du laser YAG, sur un miroir SiN/SiO_2 , qui est le miroir utilisé dans l'échantillon Z536, mais également sur d'autres types de miroirs qui pourraient in fine être utilisés dans les futurs échantillons.

Nous avons effectué des expériences de réflectivité en éclairant simultanément un point de l'échantillon avec la lumière blanche (à $\theta = -40^\circ$) et avec le laser (en incidence normale), en faisant varier la puissance d'excitation du laser. La réflectivité est détectée à l'angle $\theta_d = +40^\circ$. Nous avons également mesuré la diffusion du laser, qui est reliée à la rugosité et/ou la qualité de la surface : une forte diffusion du laser concorde avec un aspect "piqué" (à l'œil) de l'échantillon à l'endroit du spot (en d'autres termes l'échantillon est abîmé). Nous utilisons la troisième harmonique du laser Nd :YAG comme source d'excitation (3.49 eV, taux de répétition de 10Hz), de forte puissance crête mais d'énergie inférieure au seuil d'absorption des diélectriques, ce qui n'est pas le cas d'autres sources que nous avons utilisées comme la seconde harmonique du laser Ar^+ à 5.08 eV ou la quatrième harmonique du YAG à 4.66 eV.

Les échantillons fabriqués par Sophie Bouchoule (au LPN) sur substrat Si sont désignés par des numéros. En voici la description :

- $n^\circ 1$: Couche SiO_2 déposée en PECVD d'épaisseur $e = 250nm$.
- $n^\circ 2$: Couche SiN_x déposée en PECVD d'épaisseur $e = 250nm$.
- $n^\circ 3$: 5 paires SiO_2/SiN_x déposée en PECVD.
- $n^\circ 4$: Couche SiO_2 déposée par évaporation sous vide d'épaisseur $e = 250nm$.
- $n^\circ 5$: Couche Ta_2O_5 déposée par évaporation sous vide (dépôt continu) d'épaisseur $e = 250nm$.

- $n^{\circ}6$: Couche Ta_2O_5 déposée par évaporation sous vide (maintien stoechiométrie a priori meilleur que dans l'échantillon $n^{\circ}5$) d'épaisseur $e = 250nm$.
- $n^{\circ}7$: 5 paires SiO_2/Ta_2O_5 déposée par évaporation sous vide (futurs miroirs à base de Ta_2O_5).

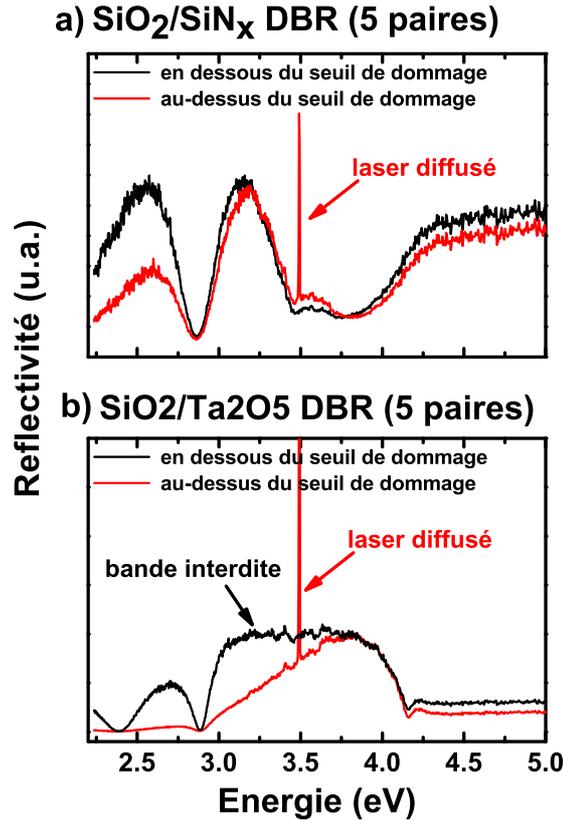


FIGURE B.1 – Réflectivité des échantillons a) $n^{\circ}3$ et b) $n^{\circ}7$ sous éclairage simultané du laser et de la lumière blanche au-dessous et au-dessus du seuil de dommage des miroirs.

Les deux miroirs à proprement parler, SiO_2/SiN_x et SiO_2/Ta_2O_5 , correspondent respectivement aux échantillons $n^{\circ}3$ et $n^{\circ}7$. La figure B.1 montre les spectres de réflectivité des miroirs pour une puissance laser en-dessous (en noir) et au-dessus du seuil de dommage (en bleu). Concernant le miroir SiO_2/SiN_x , les épaisseurs sont proches de $\lambda/4$ mais pas égales. C'est pourquoi le spectre de réflectivité ne présente pas de bande d'arrêt caractéristique d'un miroir de Bragg. La réflectivité du miroir à base de SiN_x n'est que partiellement altérée dans la bande interdite, contrairement au miroir à base de Ta_2O_5 qui voit la réflectivité de sa bande interdite chuter fortement. De plus, et cela est vrai pour tous les échantillons, le flanc basse énergie est détérioré sous fortes puissances.

Afin de déterminer la puissance seuil pour laquelle le miroir est endommagé, on calcule l'intensité intégrée du pic laser (à $3.49eV$) en fonction de la puissance d'excitation

laser (cf figure B.2). Le rayon du spot laser (YAG) focalisé sur l'échantillon est de 0.8mm . Au seuil de dommage, la réflectivité des miroirs chute, soit parce que la lumière est plus diffusée que réfléchi (rugosité de surface), soit parce que les couches sont modifiées en profondeur (possibilité de recuit ou d'une ablation?), soit parce que les indices et les épaisseurs sont modifiés (interférences non constructives). Le signal à l'énergie du laser est proportionnel au coefficient de diffusion de la surface : si le laser était parfaitement réfléchi, il ne serait pas collecté par la fibre optique de détection, placée hors de la direction de réflexion spéculaire.

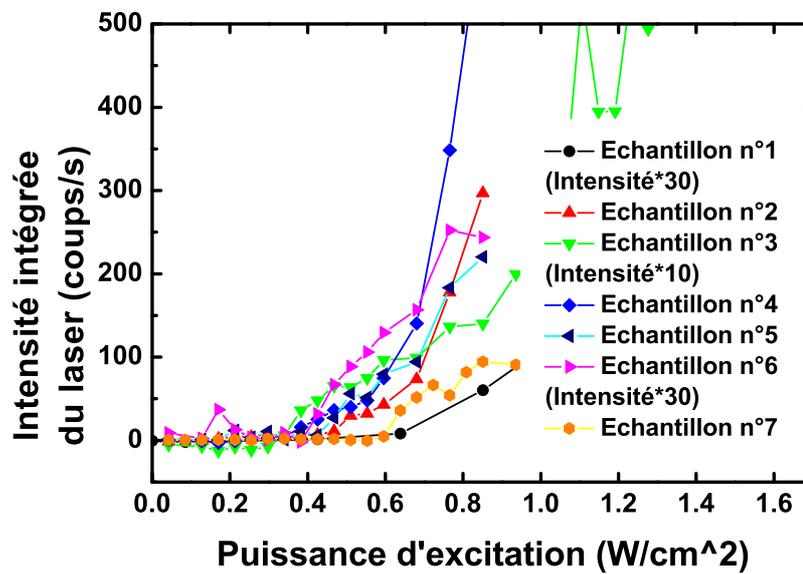


FIGURE B.2 – Mesure du seuil de dommage de différents miroirs diélectriques.

Echantillon n°	1	2	3	4	5	6	7
Seuil de dommage ($J/cm^2/impulsion \times 10^{-5}$)	0.64	0.51	0.43	0.51	0.43	0.38	0.55
	6.4	5.1	4.3	5.1	4.3	3.8	5.5

TABLE B.1 – Seuil de dommage de différents miroirs diélectriques.

On peut conclure qu'il n'y a pas de différence forte de seuil pour les différents échantillons et qu'au-delà d'une puissance d'excitation de 0.4 W/cm^2 on détériore le miroir supérieur de la microcavité.

Bibliographie

- [Agr03] V. M. Agranovich, M. Litinskaia, and D. G. Lidzey. *Cavity polaritons in microcavities containing disordered organic semiconductors*. Phys. Rev. B **67**, 085311 (2003).
- [Amo09a] A. Amo, D. Sanvitto, F. P. Laussy, D. Ballarini, E. del Valle, M. D. Martin, A. Lemaitre, J. Bloch, D. N. Krizhanovskii, M. S. Skolnick, C. Tejedor, and L. Vina. *Collective fluid dynamics of a polariton condensate in a semiconductor microcavity*. Nature **457**, 291–2 (2009).
- [Amo09b] Alberto Amo, Jerome Lefrere, Simon Pigeon, Claire Adrados, Cristiano Ciuti, Iacopo Carusotto, Romuald Houdre, Elisabeth Giacobino, and Alberto Bramati. *Superfluidity of polaritons in semiconductor microcavities*. Nat Phys **5**, 805–8 (2009).
- [And95a] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell. *Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor*. Science **269**, 198–2 (1995).
- [And95b] L.C. Andreani. *Optical Transition, Excitons, and Polaritons in Bulk and Low-Dimensional Semiconductor Structures*. Plenum Press, New York, 1995.
- [AS01] J. R. Abo-Shaeer, C. Raman, J. M. Vogels, and W. Ketterle. *Observation of Vortex Lattices in Bose-Einstein Condensates*. Science **292**, 476–4 (2001).
- [Ast09] G. E. Astrakharchik, J. Boronat, J. Casulleras, I. L. Kurbakov, and Yu. E. Lozovik. *Equation of state of a weakly interacting two-dimensional Bose gas studied at zero temperature by means of quantum Monte Carlo methods*. Phys. Rev. A **79**, 051602–4 (2009).
- [AV03] N. Antoine-Vincent, F. Natali, D. Byrne, A. Vasson, P. Disseix, J. Leymarie, M. Leroux, F. Semond, and J. Massies. *Observation of Rabi splitting in a bulk GaN microcavity grown on silicon*. Phys. Rev. B **68**, 153313 (2003).
- [Baa08] A. Baas, K. G. Lagoudakis, M. Richard, R. Andre, Le Si Dang, and B. Deveaud-Pledran. *Synchronized and Desynchronized Phases of Exciton-Polariton Condensates in the Presence of Disorder*. Phys. Rev. Lett. **100**, 170401–4 (2008).
- [Baj06] D. Bajoni, M. Perrin, P. Senellart, A. Lemaitre, B. Sermage, and J. Bloch. *Dynamics of microcavity polaritons in the presence of an electron gas*. Phys. Rev. B **73**, 205344–8 (2006).

- [Baj07] D. Bajoni, P. Senellart, A. Lemaitre, and J. Bloch. *Photon lasing in GaAs microcavity : Similarities with a polariton condensate*. Phys. Rev. B **76**, 201305–4 (2007).
- [Baj08] D. Bajoni, P. Senellart, E. Wertz, I. Sagnes, A. Miard, A. Lemaitre, and J. Bloch. *Polariton Laser Using Single Micropillar GaAs-GaAlAs Semiconductor Cavities*. Phys. Rev. Lett. **100**, 047401–4 (2008).
- [Bal07] R. Balili, V. Hartwell, D. Snoke, L. Pfeiffer, and K. West. *Bose-Einstein Condensation of Microcavity Polaritons in a Trap*. Science **316**, 1007–10 (2007).
- [Bar38] J. Bardeen. *An Improved Calculation of the Energies of Metallic Li and Na*. J. Chem. Phys. **6**, 367–3 (1938).
- [Bar07] R. Bardoux. *Spectroscopie de boîtes quantiques individuelles GaN/AlN en phase hexagonale*. Thèse de doctorat, Université de Montpellier, 2007.
- [Bas75] F. Bassani and G.P. Parravicini. *Electronic States and Optical Transitions in Solids*. Oxford, New York, Pergamon Press, 1975.
- [Bas92] G. Bastard. *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*. 1992.
- [Bau00] J. J. Baumberg, P. G. Savvidis, R. M. Stevenson, A. I. Tartakovskii, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker, and J. S. Roberts. *Parametric oscillation in a vertical microcavity : A polariton condensate or micro-optical parametric oscillation*. Phys. Rev. B **62**, R16247 (2000).
- [Bau08] J. J. Baumberg, A. V. Kavokin, S. Christopoulos, A. J. D. Grundy, R. Butte, G. Christmann, D. D. Solnyshkov, G. Malpuech, G. Baldassarri Hoger von Hogersthal, E. Feltin, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. *Spontaneous Polarization Buildup in a Room-Temperature Polariton Laser*. Phys. Rev. Lett. **101**, 136409–4 (2008).
- [Bej08] K. Bejtka, F. Reveret, R. W. Martin, P. R. Edwards, A. Vasson, J. Leymarie, I. R. Sellers, J. Y. Duboz, M. Leroux, and F. Semond. *Strong light-matter coupling in ultrathin double dielectric mirror GaN microcavities*. Appl. Phys. Lett. **92**, 241105–3 (2008).
- [Bel96] I. V. Belousov and V. V. Frolov. *Nonmonotonic decay of nonequilibrium polariton condensate in direct-gap semiconductors*. Phys. Rev. B **54**, 2523 (1996).
- [Bel09] J. Bellessa, C. Symonds, K. Vynck, A. Lemaitre, A. Brioude, L. Beur, J. C. Plenet, P. Viste, D. Felbacq, E. Cambril, and P. Valvin. *Giant Rabi splitting between localized mixed plasmon-exciton states in a two-dimensional array of nanosize metallic disks in an organic semiconductor*. Phys. Rev. B **80**, 033303–4 (2009).
- [Ber72] V. Berezinskii. Sov. Phys. JETP **34**, 6 (1972).
- [Ber04] O. L. Berman, Y. E. Lozovik, D. W. Snoke, and R. D. Coalson. *Collective properties of indirect excitons in coupled quantum wells in a random field*. Phys. Rev. B **70**, 235310 (2004).

- [Bla62] J. M. Blatt, K. W. Böer, and W. Brandt. *Bose-Einstein Condensation of Excitons*. Phys. Rev. **126**, 1691 (1962).
- [Blo97] J. Bloch and J. Y. Marzin. *Photoluminescence dynamics of cavity polaritons under resonant excitation in the picosecond range*. Phys. Rev. B **56**, 2103 (1997).
- [Boe00] F. Boeuf, 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).
- [Bor99] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Cambridge University Press; 7th edition, 1999.
- [Bos24] S. N. Bose. *Thermal equilibrium of the radiation field in the presence of matter*. Z. Phys. **26**, 1 (1924).
- [Bra95] C. C. Bradley, C. A. Sackett, J. J. Tollett, and R. G. Hulet. *Evidence of Bose-Einstein Condensation in an Atomic Gas with Attractive Interactions*. Phys. Rev. Lett. **75**, 1687 (1995).
- [But01] L. V. Butov, A. L. Ivanov, A. Imamoglu, P. B. Littlewood, A. A. Shashkin, V. T. Dolgoplov, K. L. Campman, and A. C. Gossard. *Stimulated Scattering of Indirect Excitons in Coupled Quantum Wells : Signature of a Degenerate Bose-Gas of Excitons*. Phys. Rev. Lett. **86**, 5608 (2001).
- [But02] L. V. Butov, A. C. Gossard, and D. S. Chemla. *Macroscopically ordered state in an exciton system*. Nature **418**, 751–7 (2002).
- [But06] R. Butte, G. Christmann, E. Feltn, J.-F. Carlin, M. Mosca, M. Ilegems, and N. Grandjean. *Room-temperature polariton luminescence from a bulk GaN microcavity*. Phys. Rev. B **73**, 033315–4 (2006).
- [But07] R. Butte, J.-F. Carlin, E. Feltn, M. Gonschorek, V. Nicolay, G. Christmann, D. Simeonov, A. Castiglia, J. Dorsaz, H. J. Buehlmann, S. Christopoulos, G. Baldassarri Hoger von Hogersthal, A.J.D. Grundy, M. Mosca, C. Pinquier, F. Demangeot, J. Frandon, P.G. Lagoudakis, J.J. Baumberg, and N. Grandjean. *Current status of AlInN layers lattice-matched to GaN for photonics and electronics*. J. Phys. D : Appl. Phys. **40**, 6328–63 (2007).
- [Cao97] H. Cao, S. Pau, J. M. Jacobson, G. Björk, Y. Yamamoto, and A. Imamoglu. *Transition from a microcavity exciton polariton to a photon laser*. Phys. Rev. A **55**, 4632 (1997).
- [Car04] I. Carusotto and C. Ciuti. *Probing Microcavity Polariton Superfluidity through Resonant Rayleigh Scattering*. Phys. Rev. Lett. **93**, 166401 (2004).
- [Car05] I. Carusotto and C. Ciuti. *Spontaneous microcavity-polariton coherence across the parametric threshold : Quantum Monte Carlo studies*. Phys. Rev. B **72**, 125335– (2005).
- [Che97] Y. Chen, D. M. Bagnall, Z. Zhu, T. Sekiuchi, K.-t. Park, K. Hiraga, T. Yao, S. Koyama, M. Y. Shen, and T. Goto. *Growth of ZnO single crystal thin films*

- on c-plane (0 0 0 1) sapphire by plasma enhanced molecular beam epitaxy.* Journal of Crystal Growth **181**, 165–1 (1997).
- [Che09] J-R. Chen, T-C. Lu, Y-C. Wu, S-C. Lin, W-R. Liu, W-F. Hsieh, C-C. Kuo, and C-C. Lee. *Large vacuum Rabi splitting in ZnO-based hybrid microcavities observed at room temperature.* Appl. Phys. Lett. **94**, 061103–3 (2009).
- [Chi03] S. F. Chichibu, T. Sota, G. Cantwell, D. B. Eason, and C. W. Litton. *Polarized photoreflectance spectra of excitonic polaritons in a ZnO single crystal.* J. Appl. Phys. **93**, 756–7 (2003).
- [Chr94] P. Christol. *Les excitons dans les nanostructures semiconductrices : Modélisation dans un espace de dimension fractionnaire.* Thèse de doctorat, Université Montpellier II, 1994.
- [Chr07] S. Christopoulos, G. Baldassarri Hoger von Hogersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Christmann, R. Butte, E. Feltin, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. *Room-Temperature Polariton Lasing in Semiconductor Microcavities.* Phys. Rev. Lett. **98**, 126405–4 (2007).
- [Chr08] G. Christmann, R. Butte, E. Feltin, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. *Room temperature polariton lasing in a GaN/AlGaIn multiple quantum well microcavity.* Appl. Phys. Lett. **93**, 051102–3 (2008).
- [Ciu01] C. Ciuti, P. Schwendimann, and A. Quattropani. *Parametric luminescence of microcavity polaritons.* Phys. Rev. B **63**, 041303 (2001).
- [Cla09] P. Clade, C. Ryu, A. Ramanathan, K. Helmerson, and W. D. Phillips. *Observation of a 2D Bose Gas : From Thermal to Quasicondensate to Superfluid.* Phys. Rev. Lett. **102**, 170401–4 (2009).
- [Col73] S. Coleman. *There are no Goldstone bosons in two dimensions.* Communications in Mathematical Physics **31**, 259–2 (1973).
- [Com82] C. Comte and P. Nozières. *Exciton Bose condensation : the ground state of an electron-hole gas - I. Mean field description of a simplified model.* Journal de Physique **43**, 1069–10 (1982).
- [Com01] M. Combescot and C. Tanguy. *New criteria for bosonic behavior of excitons.* EPL (Europhysics Letters) **55**, 390–3 (2001).
- [CT93] C. Cohen-Tannoudji, F. Laloe, and F. Diu. *Mécanique quantique.* Hermann, 1993.
- [Dal99] F. Dalfovo, Giorgini S., Lev P. Pitaevskii, and S. Stringari. *Theory of Bose-Einstein condensation in trapped gases.* Rev. Mod. Phys. **71**, 463–5 (1999).
- [Dan98] L. S. Dang, D. Heger, R. André, F. Boeuf, and R. Romestain. *Stimulation of Polariton Photoluminescence in Semiconductor Microcavity.* Phys. Rev. Lett. **81**, 3920 (1998).
- [Das00] G. Dasbach, T. Baars, M. Bayer, A. Larionov, and A. Forchel. *Coherent and incoherent polaritonic gain in a planar semiconductor microcavity.* Phys. Rev. B **62**, 13076 (2000).

- [Dav95] K. B. Davis, M. O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle. *Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms*. Phys. Rev. Lett. **75**, 3969 (1995).
- [Den02] H. Deng, G. Weihs, C. Santori, J. Bloch, and Y. Yamamoto. *Condensation of Semiconductor Microcavity Exciton Polaritons*. Science **298**, 199–2 (2002).
- [Den06] H. Deng, D. Press, S. Gotzinger, G. S. Solomon, R. Hey, K. H. Ploog, and Y. Yamamoto. *Quantum Degenerate Exciton-Polaritons in Thermal Equilibrium*. Phys. Rev. Lett. **97**, 146402–4 (2006).
- [Den07] H. Deng, G. S. Solomon, R. Hey, K. H. Ploog, and Y. Yamamoto. *Spatial Coherence of a Polariton Condensate*. Phys. Rev. Lett. **99**, 126403–4 (2007).
- [Diu96] B. Diu, D. Lederer, and B. Roulet. *Physique Statistique*. Hermann, 1996.
- [ED06] O. El Daif, A. Baas, T. Guillet, J.-P. Brantut, R. I. Kaitouni, J. L. Staehli, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud. *Polariton quantum boxes in semiconductor microcavities*. Appl. Phys. Lett. **88**, 061105–3 (2006).
- [Ein24] A. Einstein. *Quantum theory of monatomic ideal gases*. Sitzber. Kgl. Preuss. Akad. Wiss.2 (1924).
- [Ein25] A. Einstein. *Quantum Theory of Monatomic Ideal Gases*. Second Paper. Sitzber. Kgl. Preuss. Akad. Wiss. (1925).
- [Eis04] J. P. Eisenstein and A. H. MacDonald. *Bose-Einstein condensation of excitons in bilayer electron systems*. Nature **432**, 691–6 (2004).
- [Ell57] R. J. Elliott. *Intensity of Optical Absorption by Excitons*. Phys. Rev. **108**, 1384 (1957).
- [Ens96] J. R. Ensher, D. S. Jin, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell. *Bose-Einstein Condensation in a Dilute Gas : Measurement of Energy and Ground-State Occupation*. Phys. Rev. Lett. **77**, 4984 (1996).
- [Fan06] W. J. Fan, J. B. Xia, P. A. Agus, S. T. Tan, S. F. Yu, and X. W. Sun. *Band parameters and electronic structures of wurtzite ZnO and ZnO/MgZnO quantum wells*. J. Appl. Phys. **99**, 013702–4 (2006).
- [Fau08] S. Faure, T. Guillet, P. Lefebvre, T. Bretagnon, and B. Gil. *Comparison of strong coupling regimes in bulk GaAs, GaN, and ZnO semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B **78**, 235323–7 (2008).
- [Fau09] S. Faure, C. Brimont, T. Guillet, T. Bretagnon, B. Gil, F. Medard, D. Lagarde, P. Disseix, J. Leymarie, J. Zuniga-Perez, M. Leroux, E. Frayssinet, J. C. Moreno, F. Semond, and S. Bouchoule. *Relaxation and emission of Bragg-mode and cavity-mode polaritons in a ZnO microcavity at room temperature*. Appl. Phys. Lett. **95**, 121102–3 (2009).
- [Fis88] Daniel S. Fisher and P. C. Hohenberg. *Dilute Bose gas in two dimensions*. Phys. Rev. B **37**, 4936 (1988).
- [Fis95] T. A. Fisher, A. M. Afshar, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, J. S. Roberts, G. Hill, and M. A. Pate. *Electric-field and temperature tuning of exciton-photon coupling in quantum microcavity structures*. Phys. Rev. B **51**, 2600 (1995).

- [For93] E. Fortin, S. Fafard, and A. Mysyrowicz. *Exciton transport in Cu₂O : Evidence for excitonic superfluidity?* Phys. Rev. Lett. **70**, 3951 (1993).
- [Gat06] R. Gati, B. Hemmerling, J. Folling, M. Albiez, and M. K. Oberthaler. *Noise Thermometry with Two Weakly Coupled Bose-Einstein Condensates.* Phys. Rev. Lett. **96**, 130404–4 (2006).
- [Gil97a] B. Gil and O. Briot. *Internal structure and oscillator strengths of excitons in strained alpha -GaN.* Phys. Rev. B **55**, 2530 (1997).
- [Gil97b] B. Gil, S. Clur, and O. Briot. *The exciton-polariton effect on the photoluminescence of GaN on sapphire.* Solid State Communications **104**, 267–2 (1997).
- [Gil01] B. Gil. *Oscillator strengths of A, B, and C excitons in ZnO films.* Phys. Rev. B **64**, 201310 (2001).
- [Gre02] M. Greiner, O. Mandel, T. Esslinger, T. W. Hansch, and I. Bloch. *Quantum phase transition from a superfluid to a Mott insulator in a gas of ultracold atoms.* Nature **415**, 39– (2002).
- [Gri96] A. Griffin. *Conserving and gapless approximations for an inhomogeneous Bose gas at finite temperatures.* Phys. Rev. B **53**, 9341 (1996).
- [Han77] E. Hanamura and H. Haug. *Condensation effects of excitons.* Physics Reports **33**, 209–2 (1977).
- [Hau93] H. Haug and S. W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors.* World Scientific Publishing Company, 1993.
- [Hel03] D. Hellweg, L. Cacciapuoti, M. Kottke, T. Schulte, K. Sengstock, W. Ertmer, and J. J. Arlt. *Measurement of the Spatial Correlation Function of Phase Fluctuating Bose-Einstein Condensates.* Phys. Rev. Lett. **91**, 010406 (2003).
- [Hen08] A.-L. Henneghien. *Analyse des propriétés optiques de zno en vue de l’obtention du couplage fort dans les microcavités.* Master’s thesis, Université Blaise Pascal, 2008.
- [Hüm73] K. Hümmer. *Interband Magnetoreflexion Of ZnO-based.* Phys. Stat. Sol. (b) **56**, 2 (1973).
- [Hoh67] P. C. Hohenberg. *Existence of Long-Range Order in One and Two Dimensions.* Phys. Rev. **158**, 383 (1967).
- [Hop58] J. J. Hopfield. *Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals.* Phys. Rev. **112**, 1555 (1958).
- [Hou94] 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).
- [Hou96] R. Houdré, R. P. Stanley, and M. Ilegems. *Vacuum-field Rabi splitting in the presence of inhomogeneous broadening : Resolution of a homogeneous linewidth in an inhomogeneously broadened system.* Phys. Rev. A **53**, 2711 (1996).

- [Hou00] R. Houdré, C. Weisbuch, R. P. Stanley, U. Oesterle, and M. Ilegems. *Non-linear Emission of Semiconductor Microcavities in the Strong Coupling Regime*. Phys. Rev. Lett. **85**, 2793 (2000).
- [Hua00] R. Huang, F. Tassone, and Y. Yamamoto. *Experimental evidence of stimulated scattering of excitons into microcavity polaritons*. Phys. Rev. B **61**, R7854 (2000).
- [I.76] Yudson V. I. and Lozovik Y. E. *A new mechanism for superconductivity : pairing between spatially separated electrons and holes*. Soviet Physics - JETP **44**, 389–3 (1976).
- [Ima96] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau, and Y. Yamamoto. *Nonequilibrium condensates and lasers without inversion : Exciton-polariton lasers*. Phys. Rev. A **53**, 4250 (1996).
- [Jak98] D. Jaksch, C. Bruder, J. I. Cirac, C. W. Gardiner, and P. Zoller. *Cold Bosonic Atoms in Optical Lattices*. Phys. Rev. Lett. **81**, 3108 (1998).
- [Joh08] R. Johne, D. D. Solnyshkov, and G. Malpuech. *Theory of exciton-polariton lasing at room temperature in ZnO microcavities*. Appl. Phys. Lett. **93**, 211105–3 (2008).
- [Kai06] R. Idrissi Kaitouni, O. El Daif, A. Baas, M. Richard, T. Paraiso, P. Lugan, T. Guillet, F. Morier-Genoud, J. D. Ganiere, J. L. Staehli, V. Savona, and B. Deveaud. *Engineering the spatial confinement of exciton polaritons in semiconductors*. Phys. Rev. B **74**, 155311–8 (2006).
- [Kan56] E.O. Kane. *Energy band structure in p-type germanium and silicon*. Journal of Physics and Chemistry of Solids **1**, 82– (1956).
- [Kas06] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymanska, R. Andre, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, and Le Si Dang. *Bose-Einstein condensation of exciton polaritons*. Nature **443**, 409–4 (2006).
- [Kas07] J. Kasprzak, R. Andre, Le Si Dang, I. A. Shelykh, A. V. Kavokin, Yuri G. Rubo, K. V. Kavokin, and G. Malpuech. *Build up and pinning of linear polarization in the Bose condensates of exciton polaritons*. Phys. Rev. B **75**, 045326–5 (2007).
- [Kas08] J. Kasprzak, D. D. Solnyshkov, R. Andre, Le Si Dang, and G. Malpuech. *Formation of an Exciton Polariton Condensate : Thermodynamic versus Kinetic Regimes*. Phys. Rev. Lett. **101**, 146404–4 (2008).
- [Kav03a] A. Kavokin, G. Malpuech, and F. P. Laussy. *Polariton laser and polariton superfluidity in microcavities*. Physics Letters A **306**, 187–1 (2003).
- [Kav03b] A. V. Kavokin and G. Malpuech. *Cavity Polaritons*, volume Vol. 32. Thin Films and Nanostructures (Elsevier, Amsterdam), 2003.
- [Kav07] A. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, and F. P. Laussy. *Cavity Polaritons*. Thin Films and Nanostructures (Elsevier, Amsterdam), 2007.

- [Kel68] L. V. Keldysh and A. N. Kozlov. *Collective Properties of Excitons in Semiconductors*. Sov. Phys. JETP **27**, 5 (1968).
- [Kir97] M. Kira, F. Jahnke, S. W. Koch, J. D. Berger, D. V. Wick, T. R. Nelson, G. Khitrova, and H. M. Gibbs. *Quantum Theory of Nonlinear Semiconductor Microcavity Luminescence Explaining "Boser" Experiments*. Phys. Rev. Lett. **79**, 5170 (1997).
- [Kit98] C. Kittel. *Physique de l'état solide*. Dunod, 7ème édition edition, 1998.
- [Koi00] Z. G. Koinov. *Bose-Einstein condensation of excitons in a single quantum well*. Phys. Rev. B **61**, 8411 (2000).
- [Kos73] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless. *Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems*. Journal of Physics C : Solid State Physics **6**, 1181–12 (1973).
- [Kri06] D. N. Krizhanovskii, D. Sanvitto, A. P. D. Love, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker, and J. S. Roberts. *Dominant Effect of Polariton-Polariton Interactions on the Coherence of the Microcavity Optical Parametric Oscillator*. Phys. Rev. Lett. **97**, 097402–4 (2006).
- [Kuh81] R. Kuhnert, R. Helbig, and K. Hümmer. *Photoluminescence of ZnO single crystals : Influence of $\langle I \rangle k \langle I \rangle$ -linear interaction and non-analytic long-range exchange on the emission spectrum of the free A-exciton*. Phys. Stat. Sol. (b) **107**, 83– (1981).
- [Lag03] 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).
- [Lag08] K. G. Lagoudakis, M. Wouters, M. Richard, A. Baas, I. Carusotto, R. Andre, Le Si Dang, and B. Deveaud-Pledran. *Quantized vortices in an exciton-polariton condensate*. Nat Phys **4**, 706–7 (2008).
- [Lai07] C. W. Lai, N. Y. Kim, S. Utsunomiya, G. Roumpos, H. Deng, M. D. Fraser, T. Byrnes, P. Recher, N. Kumada, T. Fujisawa, and Y. Yamamoto. *Coherent zero-state and $[pgr]$ -state in an exciton-polariton condensate array*. Nature **450**, 529–5 (2007).
- [Lam02] W. R. L. Lambrecht, A. V. Rodina, S. Limpijumnong, B. Segall, and B. K. Meyer. *Valence-band ordering and magneto-optic exciton fine structure in ZnO*. Phys. Rev. B **65**, 075207 (2002).
- [Lan08] G. Lanty, J. S. Lauret, E. Deleporte, S. Bouchoule, and X. Lafosse. *UV polaritonic emission from a perovskite-based microcavity*. Appl. Phys. Lett. **93**, 081101–3 (2008).
- [Lau04] F. P. Laussy, G. Malpuech, A. Kavokin, and P. Bigenwald. *Spontaneous Coherence Buildup in a Polariton Laser*. Phys. Rev. Lett. **93**, 016402 (2004).
- [Law71] P. Lawaetz. *Valence-Band Parameters in Cubic Semiconductors*. Phys. Rev. B **4**, 3460 (1971).

- [Leg01] A. J. Leggett. *Bose-Einstein condensation in the alkali gases : Some fundamental concepts*. Rev. Mod. Phys. **73**, 307 (2001).
- [Lia68] W. Y. Liang and A. D. Yoffe. *Transmission Spectra of ZnO Single Crystals*. Phys. Rev. Lett. **20**, 59 (1968).
- [Lid02] D. G. Lidzey, A. M. Fox, M. D. Rahn, M. S. Skolnick, V. M. Agranovich, and S. Walker. *Experimental study of light emission from strongly coupled organic semiconductor microcavities following nonresonant laser excitation*. Phys. Rev. B **65**, 195312 (2002).
- [Loz06] Y. Lozovik, A. Semenov, and M. Willander. *Kosterlitz-Thouless phase transition in microcavity polariton system*. JETP Letters **84**, 146–1 (2006).
- [Mal02] 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).
- [Mal07] G. Malpuech, D. D. Solnyshkov, H. Ouerdane, M. M. Glazov, and I. Shelykh. *Bose Glass and Superfluid Phases of Cavity Polaritons*. Phys. Rev. Lett. **98**, 206402–4 (2007).
- [Méd09a] F. Médard, J. Zúñiga-Perez, E. Frayssinet, J.C. Moreno, F. Semond, S. Faure, P. Disseix, J. Leymarie, M. Mihailovic, A. Vasson, T. Guillet, and M. Leroux. *Optical study of bulk ZnO for strong coupling observation in ZnO-based microcavities*. Photonics and Nanostructures - Fundamentals and Applications **7**, 26– (2009).
- [Méd09b] F. Médard, J. Zuniga-Perez, P. Disseix, M. Mihailovic, J. Leymarie, A. Vasson, F. Semond, E. Frayssinet, J. C. Moreno, M. Leroux, S. Faure, and T. Guillet. *Experimental observation of strong light-matter coupling in ZnO microcavities : Influence of large excitonic absorption*. Phys. Rev. B **79**, 125302–5 (2009).
- [Mer66] N. D. Mermin and H. Wagner. *Absence of Ferromagnetism or Antiferromagnetism in One- or Two-Dimensional Isotropic Heisenberg Models*. Phys. Rev. Lett. **17**, 1133 (1966).
- [Mes01] G. Messin, J. Ph. Karr, A. Baas, G. Khitrova, R. Houdré, R. P. Stanley, U. Oesterle, and E. Giacobino. *Parametric Polariton Amplification in Semiconductor Microcavities*. Phys. Rev. Lett. **87**, 127403 (2001).
- [Mih09] M. Mihailovic, A.-L. Henneghien, S. Faure, P. Disseix, J. Leymarie, A. Vasson, D.A. Buell, F. Semond, C. Morhain, and J. Zúñiga Pérez. *Optical and excitonic properties of ZnO films*. Optical Materials **31**, 532–5 (2009).
- [Mül00] M. Müller, J. Bleuse, and R. André. *Dynamics of the cavity polariton in CdTe-based semiconductor microcavities : Evidence for a relaxation edge*. Phys. Rev. B **62**, 16886 (2000).
- [Mos62] S. A. Moskalenko. *Reversible Optico-Hydrodynamic Phenomena a Nonideal Exciton Gas*. Fiz. Tverd. Tela **4**, 2 (1962).

- [Mut97] J. F. Muth, J. H. Lee, I. K. Shmagin, R. M. Kolbas, H. C. Casey, Jr., B. P. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars. *Absorption coefficient, energy gap, exciton binding energy, and recombination lifetime of GaN obtained from transmission measurements*. Appl. Phys. Lett. **71**, 2572–25 (1997).
- [Nak08] M. Nakayama, S. Komura, T. Kawase, and D.G. Kim. *Observation of Exciton Polaritons in a ZnO Microcavity with HfO₂/SiO₂ Distributed Bragg Reflectors*. J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 0937 (2008).
- [Nob04] T. Nobis, E. M. Kaidashev, A. Rahm, M. Lorenz, J. Lenzner, and M. Grundmann. *Spatially Inhomogeneous Impurity Distribution in ZnO Micropillars*. Nano Letters **4**, 797–8 (2004).
- [Nor94] T. B. Norris, J.-K. Rhee, C.-Y. Sung, Y. Arakawa, M. Nishioka, and C. Weisbuch. *Time-resolved vacuum Rabi oscillations in a semiconductor quantum microcavity*. Phys. Rev. B **50**, 14663 (1994).
- [Ono00] R. Onofrio, C. Raman, J. M. Vogels, J. R. Abo-Shaeer, A. P. Chikkatur, and W. Ketterle. *Observation of Superfluid Flow in a Bose-Einstein Condensed Gas*. Phys. Rev. Lett. **85**, 2228 (2000).
- [Ozg05] U. Ozgur, Ya. I. Alivov, C. Liu, A. Teke, M. A. Reshchikov, S. Dogan, V. Avrutin, S.-J. Cho, and H. Morkoc. *A comprehensive review of ZnO materials and devices*. J. Appl. Phys. **98**, 041301–1 (2005).
- [Pau96] S. Pau, H. Cao, J. Jacobson, G. Björk, Y. Yamamoto, and A. Imamoglu. *Observation of a laserlike transition in a microcavity exciton polariton system*. Phys. Rev. A **54**, R1789 (1996).
- [Per05] M. Perrin, P. Senellart, A. Lemaître, and J. Bloch. *Polariton relaxation in semiconductor microcavities : Efficiency of electron-polariton scattering*. Phys. Rev. B **72**, 075340 (2005).
- [Pit03] S. Stringari & L. Pitaevskii. *Bose-Einstein Condensation*. Oxford University Press, USA, 2003.
- [Qar03] 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).
- [Rev08] F. Reveret, P. Disseix, J. Leymarie, A. Vasson, F. Semond, M. Leroux, and J. Massies. *Influence of the mirrors on the strong coupling regime in planar GaN microcavities*. Phys. Rev. B **77**, 195303–8 (2008).
- [Rey99] D. C. Reynolds, D. C. Look, B. Jogai, C. W. Litton, G. Cantwell, and W. C. Harsch. *Valence-band ordering in ZnO*. Phys. Rev. B **60**, 2340 (1999).
- [Ric03] S. Richard, F. Gerbier, J. H. Thywissen, M. Hugbart, P. Bouyer, and A. Aspect. *Momentum Spectroscopy of 1D Phase Fluctuations in Bose-Einstein Condensates*. Phys. Rev. Lett. **91**, 010405 (2003).
- [Ric05a] 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).

- [Ric05b] M. Richard, J. Kasprzak, R. Romestain, R. Andre, and L.S. Dang. *Spontaneous Coherent Phase Transition of Polaritons in CdTe Microcavities*. Phys. Rev. Lett. **94**, 187401–4 (2005).
- [Rit07] S. Ritter, A. Ottl, T. Donner, T. Bourdel, M. Kohl, and T. Esslinger. *Observing the Formation of Long-Range Order during Bose-Einstein Condensation*. Phys. Rev. Lett. **98**, 090402–4 (2007).
- [Sab01] M. Saba, C. Ciuti, J. Bloch, V. Thierry-Mieg, R. Andre, Le Si Dang, S. Kundermann, A. Mura, G. Bongiovanni, J. L. Staehli, and B. Deveaud. *High-temperature ultrafast polariton parametric amplification in semiconductor microcavities*. Nature **414**, 731–7 (2001).
- [Sav95] V. Savona, L. C. Andreani, P. Schwendimann, and A. Quattropani. *Quantum well excitons in semiconductor microcavities : Unified treatment of weak and strong coupling regimes*. Solid State Communications **93**, 733–7 (1995).
- [Sav99] V. Savona, C. Piermarocchi, A. Quattropani, P. Schwendimann, and F. Tassone. *Optical properties of microcavity polaritons*. Phase Transitions **68**, 169–2 (1999).
- [Sav00] 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).
- [Sav01] P. G. Savvidis, C. Ciuti, J. J. Baumberg, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, and J. S. Roberts. *Off-branch polaritons and multiple scattering in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B **64**, 075311 (2001).
- [Sav02] P. G. Savvidis, J. J. Baumberg, D. Porras, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, and J. S. Roberts. *Ring emission and exciton-pair scattering in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B **65**, 073309 (2002).
- [Sav05] V. Savona, P. Schwendimann, and A. Quattropani. *Onset of coherent photoluminescence in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B **71**, 125315– (2005).
- [SC08] F. Stokker-Cheregi, A. Vinattieri, F. Semond, M. Leroux, I. R. Sellers, J. Massies, D. Solnyshkov, G. Malpuech, M. Colocci, and M. Gurioli. *Polariton relaxation bottleneck and its thermal suppression in bulk GaN microcavities*. Appl. Phys. Lett. **92**, 042119–3 (2008).
- [Sch58] A. L. Schawlow and C. H. Townes. *Infrared and Optical Masers*. Phys. Rev. **112**, 1940 (1958).
- [Sei40] F. Seitz. *The Modern Theory of Solids*. McGraw-Hill Book Company, NY, 1940.
- [Sel73] D. D. Sell, S. E. Stokowski, R. Dingle, and J. V. DiLorenzo. *Polariton Reflectance and Photoluminescence in High-Purity GaAs*. Phys. Rev. B **7**, 4568 (1973).
- [Sel06] I. R. Sellers, F. Semond, M. Leroux, J. Massies, P. Disseix, A-L. Henneghien, J. Leymarie, and A. Vasson. *Strong coupling of light with A and B excitons in GaN microcavities grown on silicon*. Phys. Rev. B **73**, 033304–4 (2006).

- [Sem01] F. Semond, D. Schenck, M. Jibard, S. Camou, T. Pastureaud, A. Soufyane, and S. Ballandras. *Epitaxy of AlN and GaN thin films on silicon or sapphire for the development of high frequency SAW devices*. *Annales de Chimie-Science des Matériaux* **26**, 177–1 (2001).
- [Sen99] P. Senellart and J. Bloch. *Nonlinear Emission of Microcavity Polaritons in the Low Density Regime*. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1233 (1999).
- [Sen00] P. Senellart, J. Bloch, B. Sermage, and J. Y. Marzin. *Microcavity polariton depopulation as evidence for stimulated scattering*. *Phys. Rev. B* **62**, R16263 (2000).
- [Ser09] S. Sergent, J.-C. Moreno, E. Frayssinet, S. Chenot, M. Leroux, and F. Semond. *GaN Quantum Dots Grown on Silicon for Free-Standing Membrane Photonic Structures*. *Applied Physics Express* **2**, 0510 (2009).
- [SG07] R. Schmidt-Grund, B. Rheinländer, C. Czekalla, G. Benndorf, H. Hochmut, A. Rahm, M. Lorenz, and M. Grundmann. *ZnO based planar and micropillar resonators*. *Superlattices and Microstructures* **41**, 360–3 (2007).
- [SG08] R. Schmidt-Grund, B. Rheinländer, C. Czekalla, G. Benndorf, H. Hochmuth, M. Lorenz, and M. Grundmann. *Exciton-polariton formation at room temperature in a planar ZnO resonator structure*. *Applied Physics B : Lasers and Optics* **93**, 331–3 (2008).
- [Shi08] R. Shimada, J. Xie, V. Avrutin, U. Ozgur, and H. Morkoç. *Cavity polaritons in ZnO-based hybrid microcavities*. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 011127–3 (2008).
- [Sho50] W. Shockley. *Energy Band Structures in Semiconductors*. *Phys. Rev.* **78**, 173 (1950).
- [Sno90] D. W. Snoke, J. P. Wolfe, and A. Mysyrowicz. *Evidence for Bose-Einstein condensation of a two-component exciton gas*. *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2543 (1990).
- [Sno91] D. W. Snoke, Jia Ling Lin, and J. P. Wolfe. *Coexistence of Bose-Einstein paraexcitons with Maxwell-Boltzmann orthoexcitons in Cu₂O*. *Phys. Rev. B* **43**, 1226 (1991).
- [Sno02a] D. Snoke. *Spontaneous Bose Coherence of Excitons and Polaritons*. *Science* **298**, 1368–13 (2002).
- [Sno02b] D. Snoke, S. Denev, Y. Liu, L. Pfeiffer, and K. West. *Long-range transport in excitonic dark states in coupled quantum wells*. *Nature* **418**, 754–7 (2002).
- [Sno08] D. Snoke. *Polariton condensates : A feature rather than a bug*. *Nat Phys* **4**, 673–6 (2008).
- [SR85] 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).
- [Sta96] R. P. Stanley, R. Houdré, C. Weisbuch, U. Oesterle, and M. Ilegems. *Cavity-polariton photoluminescence in semiconductor microcavities : Experimental evidence*. *Phys. Rev. B* **53**, 10995 (1996).

- [Ste00] 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).
- [Stu62] M. D. Sturge. *Optical Absorption of Gallium Arsenide between 0.6 and 2.75 eV*. Phys. Rev. **127**, 768 (1962).
- [Stu09] C. Sturm, H. Hilmer, R. Schmidt-Grund, and M. Grundmann. *Observation of strong exciton-photon coupling at temperatures up to 410K*. New Journal of Physics **11**, 073044 (2009).
- [Sun08] L. Sun, Z. Chen, Q. Ren, K. Yu, L. Bai, W. Zhou, H. Xiong, Z. Q. Zhu, and X. Shen. *Direct Observation of Whispering Gallery Mode Polaritons and their Dispersion in a ZnO Tapered Microcavity*. Phys. Rev. Lett. **100**, 156403–4 (2008).
- [Syr04] N.N. Syrbu, I.M. Tiginyanu, V.V. Zalamai, V.V. Ursaki, and E.V. Rusu. *Exciton polariton spectra and carrier effective masses in ZnO single crystals*. Physica B : Condensed Matter **353**, 111–1 (2004).
- [Tar00] 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).
- [Tar03] 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).
- [Tas96] 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).
- [Tas97] F. Tassone, C. Piermarocchi, V. Savona, A. Quattropani, and P. Schwendimann. *Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons*. Phys. Rev. B **56**, 7554 (1997).
- [Tek04] A. Teke, Ü. Özgür, S. Doğan, X. Gu, H. Morkoç, B. Nemeth, J. Nause, and H. O. Everitt. *Excitonic fine structure and recombination dynamics in single-crystalline ZnO*. Phys. Rev. B **70**, 195207 (2004).
- [Tho60] D. G. Thomas. *The exciton spectrum of zinc oxide*. Journal of Physics and Chemistry of Solids **15**, 86– (1960).
- [Tre95] A. Tredicucci, Y. Chen, V. Pellegrini, M. Börger, L. Sorba, F. Beltram, and F. Bassani. *Controlled Exciton-Photon Interaction in Semiconductor Bulk Microcavities*. Phys. Rev. Lett. **75**, 3906 (1995).

- [Tsi09] S. I. Tsintzos, P. G. Savvidis, G. Deligeorgis, Z. Hatzopoulos, and N. T. Pelekanos. *Room temperature GaAs exciton-polariton light emitting diode*. Appl. Phys. Lett. **94**, 071109–3 (2009).
- [Uts08] S. Utsunomiya, L. Tian, G. Roumpos, C. W. Lai, N. Kumada, T. Fujisawa, M. Kuwata-Gonokami, A. Loffler, S. Hofling, A. Forchel, and Y. Yamamoto. *Observation of Bogoliubov excitations in exciton-polariton condensates*. Nat Phys **4**, 700–7 (2008).
- [vV06] L. K. van Vugt, S. Ruhle, P. Ravindran, H. C. Gerritsen, L. Kuipers, and D. Vanmaekelbergh. *Exciton Polaritons Confined in a ZnO Nanowire Cavity*. Phys. Rev. Lett. **97**, 147401–4 (2006).
- [Wei92] 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).
- [Yeh88] P. Yeh. *Optical waves in layered media*. Wiley, 1988.
- [Zag01] J. B. Bru & V. A. Zagrebnov. *The Bogoliubov Model of Weakly Imperfect Bose Gas*. Physics Reports **350**, 2 (2001).
- [Zam02] M. Zamfirescu, A. Kavokin, B. Gil, G. Malpuech, and M. Kaliteevski. *ZnO as a material mostly adapted for the realization of room-temperature polariton lasers*. Phys. Rev. B **65**, 161205 (2002).
- [Zhu95] X. Zhu, P. B. Littlewood, M. S. Hybertsen, and T. M. Rice. *Exciton Condensate in Semiconductor Quantum Well Structures*. Phys. Rev. Lett. **74**, 1633 (1995).

Table des figures

1.1	Structure des bandes électroniques de ZnO	15
1.2	Structure et symétrie de bandes du ZnO au point Γ	16
1.3	Schéma des transitions optiques bande à bande dans ZnO en centre de zone de Brillouin.	17
1.4	Spectre d'absorption d'une fine couche de ZnO.	18
1.5	Schéma d'un résonateur Fabry-Perot.	23
1.6	Calcul de la réflectivité d'un miroir de Bragg.	25
1.7	Structure d'une microcavité massive.	26
1.8	Calcul de la réflectivité d'une microcavité $3\lambda/4$ en fonction de la longueur d'onde normalisée.	27
1.9	Distribution du champ électromagnétique du mode de cavité dans la microcavité.	28
1.10	Composition de la LPB en fonction du désaccord.	33
2.1	Courbe de dispersion des polaritons (a) dans un matériau massif (3D) et (b) dans une cavité (2D).	42
2.2	Schéma de la formation d'un condensat de polaritons dans une microcavité sous pompage optique.	44
2.3	Schéma d'un processus paramétrique dans une microcavité.	48
2.4	Mise en évidence de la condensation en $\vec{k} = \vec{0}$ dans une microcavité CdTe [Kas06].	50
2.5	Régimes d'émission du laser à polariton et du laser à photon.	54
2.6	Diagramme de phase des polaritons dans une microcavité ZnO à l'équilibre thermodynamique.	56
2.7	Densité seuil du laser à polaritons dans une microcavité ZnO, dans un modèle hors d'équilibre.	58
3.1	Comparaison des simulations des spectres de réflectivité et de transmission de microcavités de GaAs, GaN et ZnO.	66
3.2	Spectres de réflectivité résolue en angle d'une microcavité λ	68
3.3	Mode propres d'une microcavité λ calculés par le modèle d'oscillateurs couplés.	69
3.4	Comparaison des spectres simulés en matrice de transfert pour des cavités λ de GaAs, GaN et ZnO.	70

3.5	Spectres de réflectivité simulés pour une microcavité λ de ZnO, pour différents élargissements inhomogènes.	74
3.6	Schémas des différentes microcavités réalisées dans le cadre du projet ZOOM.	76
3.7	Schémas des microcavités massives ZnO réalisées par d'autres équipes.	77
3.8	Réflectivité des miroirs $AlN/AlGaN$ et SiN/SiO_2 utilisés dans nos microcavités.	81
3.9	Evolution de l'énergie des excitons en fonction de la contrainte.	84
3.10	Schémas des différents échantillons de couches épaisses de ZnO.	84
3.11	Simulation de la réflectivité de l'échantillon Z302.	85
3.12	Schéma du gradient d'épaisseur le long de la microcavité (vue de côté).	87
3.13	Caractérisation de l'échantillon Z507.	88
3.14	Réflectivité résolue en position de Z507.	89
3.15	Spectres de PL de Z507.	90
3.16	Spectroscopie résolue en angle de l'échantillon Z507, à basse température, mesurée au LASMEA.	93
3.17	Présentation de l'échantillon Z536.	95
3.18	Caractérisation de l'échantillon Z536.	96
3.19	Réflectivité et PL résolue en angle de Z536.	99
3.20	Comparaison au modèle d'oscillateur couplés des spectres expérimentaux de Z536.	100
3.21	Mesures de la réflectivité résolue en angle à température ambiante réalisées au LASMEA. (b) Photoluminescence résolue en angle à température ambiante, mesurée au GES	103
3.22	La microcavité américaine (Shimada <i>et al.</i>).	105
3.23	La microcavité japonaise (Nakayama <i>et al.</i>).	105
3.24	La microcavité allemande (Schmidt-Grund <i>et al.</i>).	106
3.25	La microcavité taiwanaise (Chen <i>et al.</i>).	107
4.1	Exemple de l'influence des fissures.	113
4.2	Cartographie du mode de Bragg.	115
4.3	Cartographie du mode de Bragg de polaritons (point 3).	117
4.4	Cartographie du mode de Bragg de polaritons (point 1 ; cf. section 3.4.1.2).	118
4.5	Cartographie du mode de cavité de polaritons (point 1 ; cf. section 3.4.1.2).	119
4.6	Ajustement lorentzien des pics de PL.	121
5.1	Suppression du bottleneck à température ambiante en variant la puissance d'excitation.	126
5.2	Ajustement des spectres de PL sous excitation au Nd :YAG.	128
5.3	Paramètres des spectres de PL des modes de polaritons.	128
5.4	Représentations schématiques des différents processus de diffusion des polaritons.	129
5.5	Taux d'occupation du mode de Bragg de polaritons.	133

5.6	Spectres de PL en incidence normale pour différentes puissances d'excitation.	134
5.7	Comparaison de la puissance seuil de suppression du bottleneck dans ZnO et GaN.	135
5.8	PL résolue en angle au point 1a.	136
5.9	PL résolue en angle au point 3a.	138
5.10	Transitions observées en PL dans le ZnO.	140
5.11	Décalage de l'énergie des modes en fonction de la puissance d'excitation.	141
5.12	Evolution du taux d'occupation dans les différents modes de polaritons.	143
5.13	Excitation résonante au Ti :Sa.	144
5.14	Evolution des spectres de PL en $\theta = 0^\circ$ en fonction de la puissance d'excitation sous excitation impulsionnelle picoseconde.	145
5.15	Evolution des spectres de PL en micro-photoluminescence.	146
5.16	Comparaison expérience-théorie.	147
5.17	Densité d'excitons créés en fonction de la puissance d'excitation.	149
A.1	Schéma du dispositif de micro-photoluminescence.	156
A.2	Plateforme mécanique solidarissant le cryostat et l'objectif de microscope.	157
A.3	Photographie du cryostat sans fenêtre.	158
A.4	Photographie du goniomètre.	159
A.5	Schéma du dispositif de réflectivité et de photoluminescence résolues en angle.	160
B.1	Seuil de dommage des miroirs SiO_2/SiN_x et SiO_2/Ta_2O_5	164
B.2	Mesure du seuil de dommage de différents miroirs diélectriques.	165

Résumé

Interaction lumière-matière dans les microcavités massives à base de ZnO : Du couplage fort à température ambiante vers le laser à polariton.

Cette thèse est consacrée au couplage fort exciton-photon à température ambiante dans les microcavités massives à base de ZnO élaborées par épitaxie par jets moléculaires sur substrat Si(111). Une étude théorique préliminaire montre que le continuum d'absorption des résonances excitoniques est responsable du fort amortissement observé sur la branche haute de polaritons, sans toutefois affecter la branche basse de polaritons. Le couplage fort à température ambiante du mode de cavité ainsi que des modes de Bragg de la microcavité a ensuite été démontré par spectroscopie résolue en angle. De plus, nous observons la présence d'un goulot d'étranglement (bottleneck) sur le mode de Bragg de polaritons. Ce dernier peut être supprimé en faisant varier la densité d'excitons ou la température. Nous comparons nos résultats expérimentaux aux prévisions théoriques faites en vue de l'obtention d'un régime laser à polaritons.

Mots clefs : Microcavité, semiconducteur, polariton, couplage fort, goulot d'étranglement, ZnO, photoluminescence résolue en angle, réflectivité résolue en angle, micro-photoluminescence.

Abstract

Light-matter interaction in bulk ZnO-based microcavities : from the strong coupling regime at room temperature to the polariton laser.

This thesis is dedicated to the strong coupling regime between excitons and photons at room temperature in bulk ZnO-based microcavities grown on Si (111) substrate by molecular beam epitaxy. A preliminary theoretical study shows that the continuum absorption of excitonic resonances is responsible for the observed strong damping on the upper polariton branch, without affecting the lower polariton branch. The strong coupling regime, at room temperature, of the cavity mode and the Bragg modes of the microcavity is then demonstrated by angle-resolved spectroscopy. Moreover, we observe the presence of a bottleneck on the Bragg mode polariton branch. The latter may be suppressed by increasing the exciton density or the temperature. We compare our experimental results with recent theoretical predictions and discuss the achievement of the polariton laser regime.

Keywords : Microcavity, semiconductor, ZnO, polariton, strong coupling, bottleneck, angle-resolved photoluminescence, angle-resolved reflectivity, micro-photoluminescence.