



Couplage exciton-photon dans les nanostructures semiconductrices à grand gap

Thierry Guillet

► To cite this version:

Thierry Guillet. Couplage exciton-photon dans les nanostructures semiconductrices à grand gap. Autre [cond-mat.other]. Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, 2012. <tel-00816107>

HAL Id: tel-00816107

<https://theses.hal.science/tel-00816107v1>

Submitted on 2 May 2013

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.



HAL Authorization



Université Montpellier 2

Habilitation à Diriger les Recherches

Spécialité : Physique

École Doctorale : Information, Systèmes et Structures (I2S)

Thierry Guillet

Couplage exciton-photon dans les nanostructures semiconductrices à grand gap

Soutenue le 10 décembre 2012 devant le jury composé de :

Mme	Pascale	SÉNELLART	Rapporteur
M	Jean-Michel	GÉRARD	Rapporteur
M	Alexei	KAVOKIN	Rapporteur
M	Roger	GROUSSON	Examineur
M	Benoit	DEVEAUD-PLÉDRAN	Examineur
M	Guillaume	CASSABOIS	Président

Table des matières

Table des matières	1
Introduction	3
1 La boîte quantique unique GaN/AlN	7
1.1 Les boîtes quantiques GaN/AlN	8
1.1.1 Propriétés structurales	8
1.1.2 Champ électrique interne et temps de vie radiatif	10
1.1.3 Tenue en température de la photoluminescence	11
1.1.4 Boîtes polaires et non polaires	12
1.2 Vers la boîte quantique unique	12
1.2.1 Développement expérimental	12
1.2.2 Premiers spectres de boîtes GaN/AlN isolées	14
1.3 Diffusion spectrale	15
1.3.1 Différents régimes de diffusion spectrale	16
1.3.2 Echelles de temps et processus sous-jacents à la diffusion spectrale	17
1.3.3 Elargissement inhomogène des transitions d’une boîte quantique isolée	18
1.4 Structure fine des excitons neutres et chargés	20
1.4.1 Structure fine des excitons dans les boîtes quantiques InAs et CdTe	20
1.4.2 Spectroscopie en polarisation d’une boîte quantique GaN isolée	21
1.4.3 Modélisation des propriétés de polarisation	23
1.4.4 Confrontation du modèle, de l’expérience, et de la littérature	28
1.5 Conclusion	31
1.5.1 Discussion sur la nature, neutre ou chargée, des excitons	31
1.5.2 Perspectives sur les émetteurs quantiques à base de boîtes quantiques GaN	32
2 Résonateurs photoniques GaN/AlN pour l’ultra-violet	35
2.1 Problématique et état de l’art	35
2.1.1 Nano-lasers pour l’ultra-violet	35
2.1.2 Cavités passives pour l’ultra-violet	38
2.1.3 Choix technologiques pour la réalisation de cavités membranaires	38
2.1.4 Cavités à microdisques	40
2.2 Spectroscopie des microdisques AlN/GaN	40
2.2.1 Modélisation des modes d’un microdisque	40
2.2.2 Spectroscopie linéaire des microdisques	42
2.2.3 Émission des microdisques sous forte injection	46
2.2.4 Synthèse	49
2.3 Cavités photoniques membranaires AlN/GaN	50
2.3.1 Classification des cavités photoniques et des modes associés	50
2.3.2 Spectroscopie des cavités hexagonales et linéaires	52
2.3.3 Imagerie des cavités Notomi	56

2.4	Conclusion	60
3	Lasers à polaritons dans les microcavités ZnO	63
3.1	Problématique et état de l'art	63
3.2	Démontrer le couplage fort dans les microcavités ZnO	67
3.2.1	Conception et fabrication de microcavités planaires ZnO	67
3.2.2	Absorption des états de diffusion de l'exciton et amortissement de branche haute polaritonique	69
3.2.3	Modes polaritoniques d'ordre élevé	72
3.3	Laser à gain excitonique	74
3.3.1	Mise en évidence de l'émission laser	74
3.3.2	Interprétation de l'émission laser en couplage faible	76
3.4	Laser à polaritons	78
3.4.1	Une cavité à fort gradient d'épaisseur	78
3.4.2	Démonstration du laser à polaritons	79
3.4.3	Diagramme de phase du laser à polaritons ZnO	81
3.5	Conclusion	83
	Conclusion	85
	Bibliographie	87
	Annexes	103

Introduction

Les interactions entre les électrons et les photons sont au cœur d'échanges croissants entre deux domaines de la physique : l'*opto-électronique*, qui s'intéresse aux dispositifs d'émission, de détection et de conversion de lumière à base de matériaux semiconducteurs, et l'*optique quantique*, historiquement centrée sur l'étude des interactions entre atome et rayonnement. Au cours des dernières décennies, l'opto-électronique a intégré dans des dispositifs, qui fonctionnent à température ambiante, des nanostructures confinant électrons et photons. Pour mieux contrôler à volonté leurs interactions, elle a assimilé des concepts intimement quantiques qui dépassent les approches semi-classiques utilisées pour appréhender les hétéro-jonctions semiconductrices. Dans un cheminement inverse, l'optique quantique a su exploiter les possibilités offertes par les dispositifs semiconducteurs, aux technologies de fabrication très évoluées. Ainsi se sont construits des circuits intégrés pour atomes ("atom chip"), contrôlant la vie quantique d'atomes à très basse température. Les atomes, systèmes-modèles de référence pour réaliser des oscillateurs quantiques en interaction avec les photons, peuvent même être remplacés par des excitations électroniques spécifiques des nanostructures semiconductrices, les *excitons*, qui sont confinés dans des "atomes artificiels", les boîtes quantiques, ou bien forment des gaz quantiques au sein de puits quantiques.

Des démonstrations de principe, initialement réalisées avec des atomes sous ultra-vide à très basse température (quelques μK), ont ainsi pu trouver leurs analogues à l'état solide, fonctionnant à des températures supérieures à celle de l'hélium liquide. L'émission de photons uniques, un par un, ou de paires de photons intriqués, initialement mise en évidence pour des atomes isolés, est désormais réalisée par des boîtes quantiques semiconductrices ; la lumière non-classique ainsi générée est à la base des récents développements de la cryptographie quantique et de la communication quantique, et constitue à long terme l'une des possibilités d'encodage quantique de l'information dans les recherches en cours sur l'informatique quantique. Les microcavités semiconductrices constituent un autre exemple de cette convergence : elles réalisent les conditions de couplage fort entre un oscillateur quantique, l'exciton, et un photon confiné dans la cavité, s'inspirant ainsi des travaux réalisés sur les atomes froids par les prix Nobel 2012, Serge Haroche et David Wineland ; les nouvelles excitations quantiques du système, les *polaritons*, forment des gaz quantiques de bosons très intéressants car ils sont capables de s'accumuler dans des états macroscopiques cohérents appelés condensats de Bose, initialement découverts en refroidissant à des températures sub- μK des gaz denses d'atomes alcalins.

Ces deux exemples constituent le filigrane des travaux présentés dans ce mémoire. Les plus belles réalisations actuelles d'émetteurs de photons uniques ou de condensats de polaritons dans des dispositifs semiconducteurs sont réalisées avec des nanostructures à base de GaAs et ses alliages, dont la maîtrise technologique est aujourd'hui inégalée. Elles se sont émancipées de leurs modèles atomiques originels, intégrant des fonctionnalités toujours plus nombreuses au cœur des échantillons, et donnant naissance à des branches nouvelles au sein de l'électrodynamique quantique et de la physique des gaz quantiques. Leur température de fonctionnement, le plus souvent inférieure à 50 K, est liée aux propriétés intrinsèques des excitons de GaAs. Cependant, elle ne constitue pas une limite infranchissable : un fonctionnement à température ambiante est possible si l'on considère les excitons plus robustes d'autres familles de semiconducteurs comme ZnSe, GaN, ZnO ou CuCl. Ces semiconducteurs "à grand gap" sont au cœur des travaux de

l'équipe de spectroscopie optique des semiconducteurs de notre laboratoire depuis de nombreuses années.

Au cours des neuf dernières années, en tant que maître de conférences de l'Université Montpellier 2, j'ai consacré mes travaux de recherche à étudier des excitons confinés dans les nanostructures quantiques à base de GaN et ZnO, à comprendre et contrôler leur couplage aux photons dans des cavités optiques, et finalement à maîtriser leurs propriétés collectives et non-linéaires. Ce mémoire présente la synthèse de trois problématiques : la spectroscopie fine d'un exciton unique confiné dans une boîte quantique GaN/AlN isolée ; l'intégration de plans denses de boîtes quantiques GaN/AlN au sein de microcavités photoniques, destinées à réaliser des nanolasers ; la démonstration de la condensation des polaritons dans des lasers à polaritons ZnO.

Le premier chapitre est consacré à la boîte quantique GaN/AlN unique, objet de la thèse de Richard Bardoux que j'ai co-encadrée avec Pierre Lefebvre. En isolant l'émission de lumière d'une boîte quantique au sein d'un échantillon, nous nous sommes affranchis des effets de moyenne statistique rencontrés lors de l'étude d'ensembles inhomogènes de boîtes quantiques. Les spectres sont ainsi discrétisés, révélant plus précisément les états propres des excitons confinés dans chaque boîte. Nous avons montré que l'interaction de l'exciton avec l'environnement de la boîte quantique est importante, en particulier avec les charges qui se piègent et se dépiègent à la proximité ou à l'intérieur de la boîte. Nous avons modélisé la structure fine des états propres excitoniques d'une boîte GaN/AlN, et la comparerons à celle de boîtes quantiques d'autres matériaux (InAs, CdSe). Nous concluons en replaçant ces travaux dans la perspective du développement d'émetteurs de lumière non classique fonctionnant à température ambiante.

Dans le second chapitre, nous montrerons comment notre équipe a participé, au sein d'une collaboration réunissant le CRHEA, l'IEF et l'INAC¹, au développement d'une photonique à base de matériaux nitrures dont l'originalité est de s'attaquer à la plage spectrale ultraviolette. Nos travaux de spectroscopie et de modélisation, couplés à d'importants efforts des équipes en charge de la fabrication des nanostructures photoniques, ont abouti à la réalisation de résonateurs de faible volume modal dont les facteurs de qualité figurent à l'état de l'art. Ils ont été réalisés principalement lors du post-doctorat de Meletis Mexis, sous la double responsabilité de Christelle Brimont et moi-même. Les deux approches suivies, les microdisques et les cavités à cristaux photoniques membranaires, sont complémentaires. L'objectif est de réaliser des lasers de taille sub-micronique, les nanolasers. En raison de leur faible volume modal et de la nature des couches actives utilisées, à base d'un faible nombre de boîtes quantiques en résonance avec la cavité, les concepts fondamentaux de l'émission laser sont revisités et soulèvent des questions fondamentales non encore résolues.

Le troisième chapitre présente la démonstration récente de deux mécanismes d'émission laser originaux dans les microcavités à base de ZnO. Ces microcavités planaires en régime de couplage fort ont été développées depuis 2006 au sein d'une collaboration réunissant le CRHEA, le LPN et le LASMEA². Elles possèdent des excitations spécifiques, les polaritons, libres de se propager dans le plan et de former un gaz bi-dimensionnel de bosons. La spécificité de ZnO est de pouvoir maintenir ce régime de couplage fort jusqu'à température ambiante grâce à la grande énergie de liaison de ses excitons. Nous avons tout d'abord démontré, lors de la thèse de Stéphane Faure co-encadrée avec Bernard Gil, que les premières microcavités ZnO fabriquées réalisent le régime de couplage fort, et que les polaritons ainsi créés émettent efficacement de la lumière et interagissent pour assurer leur relaxation. Nous avons ensuite étudié des microcavités de plus grand facteur de

1. CRHEA : Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications (CNRS, Valbonne)

IEF : Institut d'Electronique Fondamentale (Université Paris 13-CNRS, Orsay)

INAC : Institut Nanosciences et Cryogénie, (CNRS-CEA, Grenoble)

2. LPN : Laboratoire Photonique et Nanostructures (CNRS, Marcoussis)

LASMEA : Laboratoire des Sciences et Matériaux pour l'Electronique et d'Automatique (Université Blaise Pascal-CNRS, Clermont-Ferrand)

qualité, i.e. dont les polaritons vivent plus longtemps dans la cavité. Nous y avons mis en évidence deux régimes d'émission laser : le laser à excitons était jusqu'alors inconnu dans les microcavités planaires et controversé dans d'autres types de résonateurs photoniques ; le mécanisme de gain, spécifique aux semiconducteurs II-VI dont fait partie ZnO, y implique les excitons et non le plasma de paires électron-trou comme dans la majorité des lasers à semiconducteurs basés sur des transitions interbandes. De plus, nous avons démontré, pour la première fois jusqu'à température ambiante, le laser à polaritons dans ZnO ; un condensat de polaritons y est formé, dont nous avons étudié la relaxation et le diagramme de phase thermodynamique. Ces résultats seront comparés à ceux obtenus dans les microcavités GaAs, CdTe et GaN, et les spécificités de notre système seront soulignées.

Chapitre 1

La boîte quantique unique GaN/AlN

La spectroscopie de boîtes quantiques uniques, tous matériaux confondus, a apporté des contributions majeures au domaine des hétérostructures de basse dimensionnalité, en permettant dans un premier temps d'accéder à des propriétés intrinsèques des états électroniques d'une boîte isolée, indépendamment de tout effet de moyenne statistique, puis en aboutissant à la conception et la réalisation de nouveaux objets d'étude, basés sur une seule boîte quantique et destinés à produire des états quantiques particuliers de la lumière.

Les études des boîtes quantiques GaN/AlN ont ainsi été d'abord menées sur des ensembles macroscopiques de boîtes, afin de mesurer la dépendance en taille de leur énergie et de leur temps de vie radiatif. Les premières études sur des ensembles de boîtes quantiques GaN (et plus généralement sur les boîtes à base de nitrures, GaN et InGaN), ont permis de mettre en évidence les spécificités de ces matériaux, i.e. l'influence des champs électriques internes sur les fonctions d'onde électroniques. La sélection précise de populations de boîtes quantiques homogènes en taille a en particulier permis à notre équipe d'identifier le régime de déclin mono-exponentiel de la photoluminescence, et de mesurer ainsi rigoureusement le temps de vie radiatif des boîtes quantiques GaN/AlN [Bre06].

L'un des intérêts à isoler une boîte quantique unique réside dans son analogie avec un système atomique, au spectre composé de raies fines associées à ses différents niveaux d'énergie. En raison de la distribution statistique des tailles de boîtes, le détail de ces spectres est malheureusement masqué par l'élargissement inhomogène des transitions lors des études d'ensembles macroscopiques de boîtes quantiques. Ces spectres portent pourtant un grand nombre d'informations : la boîte quantique étant au sein d'une matrice cristalline, ses transitions reflètent l'interaction de ses électrons avec l'environnement, qui se traduit par des effets intrinsèques tels que l'interaction avec les phonons du cristal ou avec les spins des noyaux, et des effets extrinsèques tels que l'interaction avec des charges fluctuantes près de la boîte quantique, voire même la charge/décharge non contrôlée de la boîte quantique elle-même. Les premiers effets font partie du système modèle de la boîte quantique considérée comme un atome artificiel, et la distingue des atomes en phase vapeur, alors que les seconds effets tendent à éloigner les boîtes quantiques réelles du système modèle que nous souhaitons étudier.

Comme pour leurs homologues à base d'arséniures et de tellurures, les travaux à l'échelle de la boîte unique ont alors été développés, au cours de la thèse de Richard Bardoux¹, pour répondre à plusieurs problématiques, qui sont apparues imbriquées au cours du temps :

- isoler le signal/le spectre associé à une unique boîte ;
- approfondir la connaissance des états propres des excitons dans ces boîtes ;
- identifier, puis réduire, l'influence de l'environnement des boîtes sur leur spectroscopie ;
- identifier les états de spin de l'exciton ;
- identifier les états à plusieurs particules ;
- connaître et maîtriser l'état de charge des boîtes.

1. La thèse de R. Bardoux (2004-2007) a été co-dirigée avec Pierre Lefebvre.

Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord la démarche expérimentale qui nous a permis, en 2006, d'isoler le spectre d'une boîte quantique GaN/AlN. L'étude de la diffusion spectrale des transitions optiques a mis en évidence l'importance de l'état de charge de l'environnement proche de chaque boîte sur son spectre d'émission, alors que les effets de clignotement observés sont associés à l'état de charge de la boîte quantique elle-même. La comparaison des spectres d'émission mesurés en polarisation, avec un modèle de la structure fine des excitons neutres et chargés, a enfin confirmé l'importance des effets de charge des boîtes, i.e. la difficulté à observer les états d'exciton neutre.

Nous concluons par une revue de l'état de l'art actuel dans ce domaine, en nous attachant à identifier les preuves irréfutables d'observation d'excitons neutres et des complexes multi-excitoniques associés. Nous comparerons les différentes techniques expérimentales mises en œuvre dans ces travaux, et mettrons en exergue les spécificités intrinsèques des boîtes GaN, les spécificités expérimentales associées et les perspectives de développements.

1.1 Les boîtes quantiques GaN/AlN

Nous allons ici présenter les principales caractéristiques des boîtes quantiques GaN/AlN, en nous concentrant sur les propriétés structurales, électroniques et optiques pertinentes pour la spectroscopie de boîtes quantiques isolées.

1.1.1 Propriétés structurales

Les semiconducteurs de la famille des nitrures (III-N) cristallisent sous deux formes : la phase blende de zinc, de symétrie cubique, est métastable, et la phase wurtzite, de symétrie hexagonale est stable. La très grande majorité des études de spectroscopie ont été menées sur les boîtes quantiques wurtzite, même si nous pouvons noter quelques travaux pionniers sur des boîtes GaN/AlN cubiques, crues à Grenoble sur des pseudo-substrats 3C-SiC [Sim03, Gar05, Lag08].

Dans la phase wurtzite (figure 1.1), l'absence de symétrie entre les axes $+c$ et $-c$ est à l'origine de la *polarisation spontanée* au sein du cristal, propriété majeure des hétérostructures à base de nitrures dont les effets seront détaillés dans la section 1.1.2. Par ailleurs, en l'absence de substrats GaN accessibles, les matériaux semiconducteurs de la famille des nitrures sont le plus souvent déposés par hétéro-épitaxie sur des substrats variés : saphir, Si, SiC, ... Les couches présentent donc une forte contrainte liée à la différence de paramètre de maille entre le substrat et le nitrure, qui induit aussi une *polarisation piézo-électrique* dans les couches car le cristal GaN n'est pas centro-symétrique. Dans les hétérostructures GaN/AlN, cette contrainte et la polarisation piézo-électrique associée ont aussi pour origine la différence de paramètres de maille de 2.4% entre GaN et AlN. La contrainte génère une densité importante de défauts structuraux (dislocations, fautes d'empilement). Les efforts menés ces dix dernières années dans la préparation des couches tampon GaN ou AlN ont permis de diminuer d'un ordre de grandeur la densité de ces défauts, qui reste cependant très supérieure à celle obtenue pour des semiconducteurs homo-épitaxiés. La contrainte modifie enfin la structure de la bande de valence de GaN, et nous présenterons dans la section 1.4.1 son effet sur les règles de sélection en polarisation de la photoluminescence et de l'absorption des boîtes quantiques.

Les échantillons étudiés dans ce mémoire sont crus par épitaxie par jet moléculaire (MBE) sur substrat Si(111). En effet, le choix de F. Semond et N. Grandjean a été en 1999 de tester la viabilité de la croissance d'hétérostructures GaN sur substrat Si, et de les comparer avec les échantillons crus sur substrats saphir et SiC. Même si la densité de défauts structuraux est plus importante sur Si que sur ces autres substrats, de nombreuses études spectroscopiques novatrices ont pu être menées, entre autres avec notre équipe du Groupe d'Etude des Semiconducteurs ; le champ électrique interne aux boîtes quantiques a été mesuré, ainsi que son effet sur leur durée de vie radiative [Bre03]. Nous ne détaillerons pas ici les conditions de croissance mises au point au

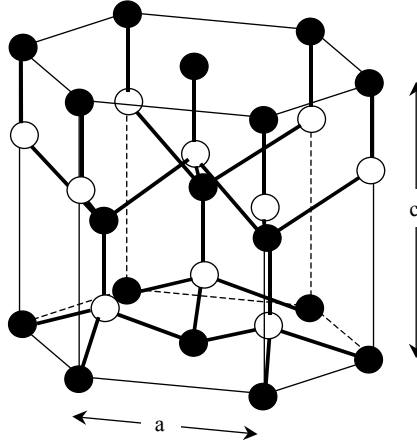


FIGURE 1.1 – Représentation schématique de la structure wurtzite, extraite de [Gal01].

CRHEA, la préparation des substrats et le choix de leur légère désorientation. Ces informations sont présentées, par exemple, dans la thèse de S. Sargent [Ser09a], dont est extraite la figure 1.2 relative à un plan assez dense de boîtes quantiques GaN/AlN. Il a été montré que la densité de boîtes peut être contrôlée par le flux de matière lors de la croissance, et est corrélée à la hauteur et au diamètre des boîtes. En particulier, pour les études de boîtes isolées, des échantillons de faible densité surfacique de boîtes, inférieure à 10^8 cm^{-2} , ont été réalisés (figure 1.2.d), pour lesquels la hauteur moyenne des boîtes est plus faible que dans les échantillons denses (1 nm au lieu de 2 nm). Par ailleurs, nous pouvons noter que le rapport d'aspect des boîtes quantiques est important : d'après les valeurs moyennes mesurées à l'AFM, le diamètre des boîtes est de l'ordre de 10 fois supérieur à leur hauteur. Ceci influe fortement sur la densité d'états confinés par la boîte car le confinement vertical y est beaucoup plus fort que le confinement horizontal. Enfin, l'image TEM (figure 1.2.e) met en évidence la forme de pyramide tronquée des boîtes quantiques.

1.1.2 Champ électrique interne et temps de vie radiatif

Le champ électrique interne, créé au sein des hétérostructures GaN/AlN (puits et boîtes quantiques) par les polarisations spontanée et piézo-électrique, a des conséquences majeures sur la distribution d'énergie des excitons confinés dans les boîtes quantiques et sur leur temps de vie radiatif, i.e. sur leur spectre et leur dynamique temporelle d'émission en photo- et électroluminescence. La modification des états propres en présence d'un champ électrique uniforme, appelée "effet Stark quantique confiné", a été modélisé tout d'abord pour les puits quantiques [Lef02]. Dans les boîtes quantiques, ce modèle est aussi valide étant donné que le confinement vertical est très fort devant le confinement latéral, et que le champ électrique est vertical lui aussi dans le cas des boîtes quantiques crues sur plan c. Dans le cas de paires électron-trou, l'énergie des transitions optiques est diminuée, et les fonctions d'onde des électrons et des trous sont poussées sur les deux faces opposées du puits quantique, comme représenté sur les encarts de la figure 1.3.

Cette séparation des porteurs, rendant les transitions optiques partiellement indirectes dans l'espace réel, se traduit par une augmentation exponentielle du temps de vie radiatif en fonction de la hauteur des boîtes quantiques car celui-ci est inversement proportionnel au recouvrement des fonctions d'onde d'électron et de trou. La détermination des énergies d'émission et des temps de vie radiatifs des boîtes quantiques, puis du champ électrique interne dans les hétérostructures GaN/AlN, s'est avérée très délicate en raison des effets d'écrantage : plus les boîtes quantiques ont une dynamique d'émission lente, plus il est facile de remplir chaque boîte avec un grand

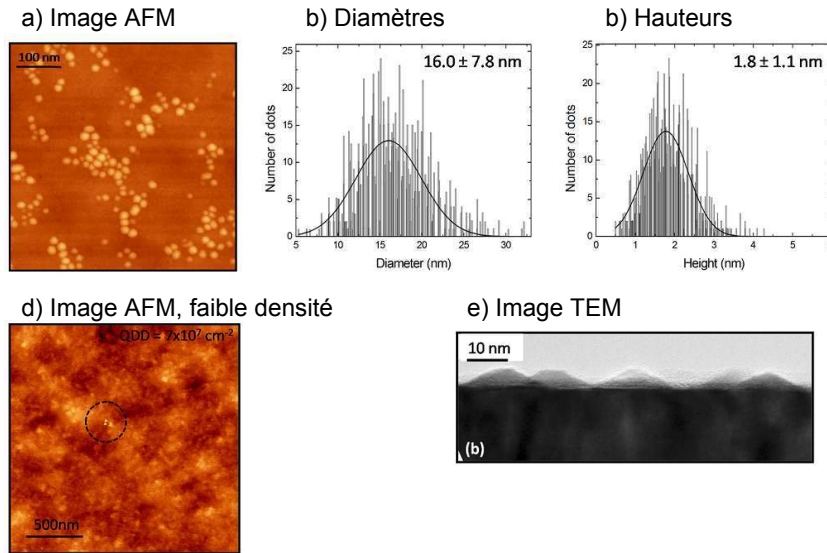


FIGURE 1.2 – a) Image par microscopie à force atomique (AFM) d'un échantillon de boîtes quantiques GaN/AlN non recouvertes, de densité de boîtes de l'ordre de $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$; (b et c) Distributions de diamètres et de hauteurs des boîtes, obtenues par analyse de l'image AFM; (d) Image AFM d'un échantillon de très faible densité de boîtes ($7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$); 2 boîtes voisines sont mises en évidence dans le cercle noir; (e) Image par microscopie électronique en transmission (TEM) de quelques boîtes quantiques GaN/AlN recouvertes d'une barrière AlN. Extraites de [Ser09a].

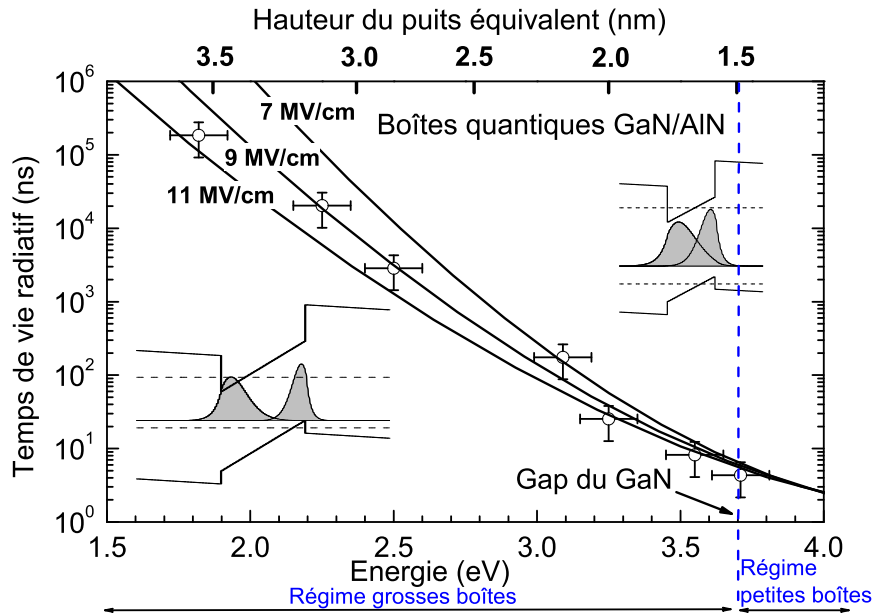


FIGURE 1.3 – Durée de vie radiative en fonction de l'énergie de l'état fondamental de l'exciton dans les boîtes quantiques GaN/AlN. Les points représentent les résultats expérimentaux. Les lignes en trait continu représentent les résultats obtenus par des calculs basés sur le modèle d'effet Stark développé pour les puits quantiques, pour trois valeurs du champ électrique. Les deux schémas en encart représentent les premiers états quantiques de l'électron et du trou ainsi que leurs fonctions d'ondes respectives, calculées pour des puits équivalents de largeurs différentes [Bre06].

nombre de paires électron-trou, et donc de mesurer involontairement des états collectifs des excitations électroniques. Les résultats de la campagne d'expériences menées dans notre équipe par T. Bretagnon, P. Lefebvre et R. Bardoux en 2003-2005 sont présentés sur la figure 1.3. Elle a démontré que les "grosses boîtes" (de hauteur 3 nm, ce qui n'est pas considéré comme des grosses boîtes pour InAs/GaAs) émettent 1.5 eV sous le gap de GaN avec des temps de vie supérieurs à 10 μs , et qu'il faut considérer les "petites boîtes", de hauteur inférieure à 1.5 nm, pour que le confinement quantique domine sur l'effet Stark et que les temps de vie soient courts, inférieurs à 10 ns. Cette étude a permis de déterminer le champ électrique interne dans les hétérostructures GaN/AlN, qui vaut $9.0 \pm 0.5 \text{ MV.cm}^{-1}$ pour un seul plan de boîtes quantiques [Bre06]. Elle a aussi permis de comprendre le régime d'écrantage sous forte excitation, décrit en détail dans la thèse de R. Bardoux [Bar07, chapitre 2.4].

1.1.3 Tenue en température de la photoluminescence

Les hétérostructures à base de nitrures présentent un fort confinement en raison des différences de gap importantes entre matériaux : la barrière d'un puits ou d'une boîte quantique GaN/AlN s'élève à environ 1.7 eV pour les électrons, et 0.7 eV pour les trous. La fuite des porteurs par activation thermique est ainsi fortement inhibée, même à température ambiante. C'est le premier argument utilisé pour expliquer la grande efficacité d'électro- et photo-luminescence des dispositifs à base de nitrures. Néanmoins, d'autres raisons toutes aussi importantes doivent être évoquées : c'est dans les structures à confinement 3D (boîtes quantiques, fluctuations d'interfaces de puits quantiques, voire localisation par le désordre d'alliage dans InGaN) que l'efficacité radiative à température ambiante est la plus forte. En effet, la localisation des porteurs permet de geler leur mouvement dans le plan des couches, et en particulier leur diffusion vers les défauts non-radiatifs. C'est donc par l'amélioration de la qualité des couches-tampon AlN/Si, et en particulier par la réduction de la densité de dislocations, que l'efficacité radiative a pu être augmentée. La figure 1.4 présente les spectres de photoluminescence en fonction de la température pour la dernière génération d'échantillons réalisés par S. Sergent et F. Semond. La perte d'intensité intégrée entre $T = 8 \text{ K}$ et 300 K est seulement de 30%, ce qui atteste que les porteurs sont désormais très efficacement confinés dans les boîtes au cours de leur relaxation, et que la diffusion vers les défauts est bien maîtrisée [Ser09a, Ser09b, Ser11].

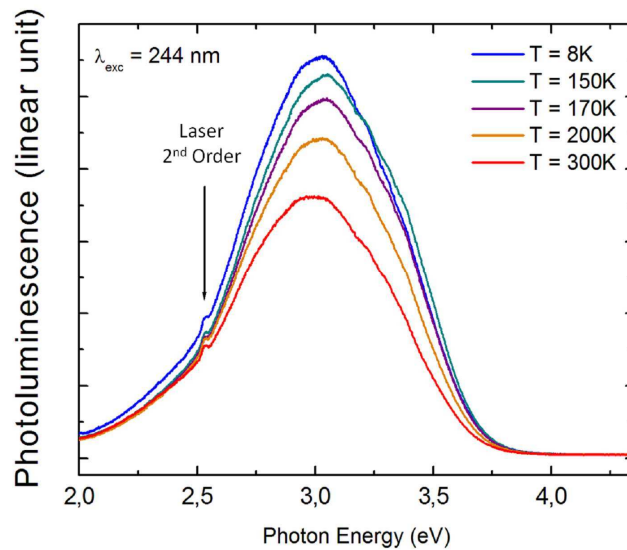


FIGURE 1.4 – Dépendance en température du spectre de photoluminescence de boîtes quantiques GaN/AlN après optimisation de la couche tampon AlN/Si [Ser09a].

1.1.4 Boîtes polaires et non polaires

Nous avons souligné le rôle majeur du champ électrique interne sur les propriétés des excitons confinés dans les boîtes quantiques, et sur les propriétés opto-électroniques des dispositifs associés. Pour les dispositifs d'émission de lumière, la diminution de la force d'oscillateur des boîtes quantiques est préjudiciable à leur efficacité radiative et de nombreuses voies ont été explorées pour réduire, voire annuler, le champ électrique. Une première solution consiste à utiliser des matériaux de symétrie cubique [Sim03, Gar05, Lag08], mais la qualité des couches ainsi réalisées n'a pas pu être suffisamment améliorée pour que cette voie soit poursuivie. Une seconde solution consiste à réduire le champ par effet de super-réseau, avec des barrières fines entre puits/boîtes quantiques [Cor11]. Il est aussi possible de réduire la concentration d'Al dans les barrières, bien que les alliages ternaires soient source de désordre d'alliage et de localisation non maîtrisée [Ser11]. Enfin, étant donné que la polarisation interne est dirigé selon l'axe c des couches, il est possible de choisir des orientations de substrats dites non-polaires (sans polarisation spontanée) [Fou05, Gra07, Rol07], ou semi-polaires (qui permettent de concevoir des hétérostructures dans lesquelles les polarisations spontanée et piézo-électrique sont opposées et se compensent). Ces développements récents sont encourageants mais les travaux de recherche sont encore dominés par des problématiques liées à l'amélioration des matériaux. Dans les études présentées ici, nous nous sommes concentrés sur les boîtes quantiques polaires GaN/AlN crues suivant l'axe c .

1.2 Vers la boîte quantique unique

Au sein de l'équipe "Nanostructures quantiques - Propriétés optiques" du GES, les études de boîtes quantiques uniques GaN formaient le cœur de mon projet de recherche lors de mon recrutement en tant que maître de conférences, et ont débuté en 2003 avec Thierry Taliercio et Pierre Lefebvre. Elles ont donné lieu à un fort développement expérimental, mis en œuvre au cours de la thèse de Richard Bardoux et décrit en détail dans son manuscrit [Bar07, Chapitre 3], avec le concours des ingénieurs de l'équipe, Pierre Valvin pour la conception optique et Sébastien Rousset pour la cryogénie et l'environnement expérimental.

1.2.1 Développement expérimental

L'expérience de micro-photoluminescence a été conçue pour la plage spectrale de l'ultra-violet. Étant donné les très larges spectres d'ensembles de boîtes quantiques GaN, s'étendant en énergie de 2 à 4 eV, la plage spectrale de détection est large, de $\lambda = 300 \text{ nm}$ au visible. Les lasers d'excitation initialement utilisés sont un laser HeCd continu (325 nm) et un laser Argon continu doublé en fréquence (244 nm)². En l'absence d'objectifs réfractifs corrigés des aberrations chromatiques dans cette plage spectrale, la spécificité de notre microscope est d'avoir été conçu autour d'optiques réfléchives. Ces éléments sont indiqués sur la figure 1.5 : un objectif de type Cassegrain porté par la colonne du microscope permet la focalisation sur l'échantillon ; des miroirs sphériques (MS1, MS2) sont utilisés pour le filtrage confocal par le trou (PH2) ; une parabole hors d'axe permet de coupler la lumière collectée au spectromètre Jobin Yvon iHR550, de focale 55 cm et portant 3 réseaux. La simulation complète du microscope par tracé de rayon, menée sous la responsabilité de Pierre Valvin, a en particulier permis d'optimiser la résolution tant en excitation qu'en détection. La résolution du microscope a été mesurée sur un échantillon témoin en présence de la fenêtre du cryostat (qui introduit de fortes aberrations) et est de l'ordre de 1 μm , très supérieure à la limite de diffraction aux longueurs d'onde considérées, mais comparable aux simulations optiques. Le dispositif a été complété en 2009 par un laser continu 266 nm, monomode et de puissance 50 mW (Crylas FQCW 266-50) et un objectif réfractif

2. Merci à Sandrine Juillaguet d'avoir accueilli le microscope et donné accès à son laser lors des premières années.

vicinale de Si(111). L'inclinaison à 5° du plan de croissance donne lieu à des marches de quelques couches atomiques, qui sont des sites préférentiels de nucléation des boîtes quantiques, comme le montre la figure 1.6.a. De plus, dans des conditions standard de croissance, le substrat est en rotation rapide dans la chambre d'évaporation pour garantir une croissance homogène sur toute sa surface ; l'arrêt de la rotation du substrat, lors de la croissance de la couche GaN uniquement, a permis de réaliser un gradient de matière déposée, et donc un gradient de densité de boîtes à la surface de l'échantillon, qui varie entre 10^8 et 10^{10} cm^{-2} .

- Le masquage des échantillons : Afin de réduire le volume excité de l'échantillon, deux approches post-croissance peuvent être mises en œuvre : la réalisation de mésas par lithographie électronique et gravure sèche [Mar94, Kak04, Rol07] ou le dépôt d'un masque métallique percé d'ouvertures sub-microniques [Gam96]. Nous avons opté pour la seconde solution, et développé avec Frédéric Pichot (Salle blanche ATEMI de l'Université Montpellier 2) un procédé de lithographie par nano-sphères de polystyrène [Hay01]. Des nano-sphères sont dispersées à la tournette à la surface de l'échantillon, et partiellement recouvertes par une couche métallique d'aluminium. Par effet d'ombrage, le métal ne se dépose pas sous les sphères, qui sont alors retirées dans un bain de trichloréthylène sous ultrasons. La figure 1.7 montre l'image par microscopie électronique des trous ainsi formés, de diamètre $0,5 \mu\text{m}$ correspondant au diamètre des sphères utilisées.

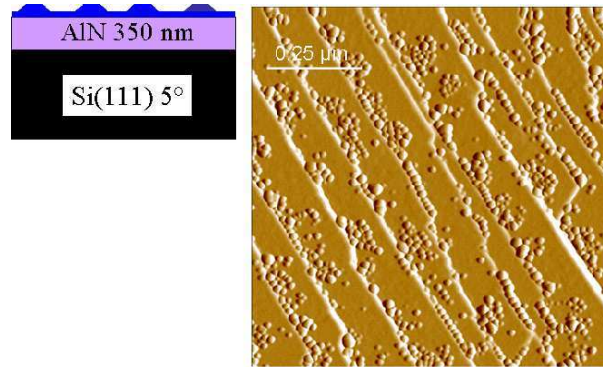


FIGURE 1.6 – Image AFM d'un échantillon de boîtes GaN/AlN crû sur substrat Si incliné, non recouvertes d'AlN. Sa croissance est analogue à celle de l'échantillon A570, dont les boîtes sont recouvertes d'AlN.

1.2.2 Premiers spectres de boîtes GaN/AlN isolées

Entre les premiers essais du dispositif expérimental, sur des échantillons à forte densité, et l'obtention des premiers spectres de boîte unique sur un dispositif optimisé, des échantillons masqués et de densité de boîtes réduite, plus d'une année s'est écoulée. La persévérance de Richard Bardoux lui a permis de progresser sur les différents aspects présentés ci-avant, de deviner l'apparition de raies fines dans les spectres, signatures de boîtes isolées, et d'optimiser les réglages expérimentaux pour réaliser des mesures reproductibles, avec de longs temps d'acquisition, point de départ des études physiques présentées dans la suite de ce chapitre. Parmi les embûches rencontrées, il faut mentionner d'une part les défauts profonds d'AlN, dont le spectre peut être confondu avec celui d'une boîte unique de GaN car il présente en μPL des raies fines autour de 3.2 eV , et d'autre part les difficultés pour trouver une source d'excitation adaptée, combinant une énergie d'excitation suffisante (le laser HeCd à $325 \text{ nm}/3.81 \text{ eV}$ ne permet pas d'exciter efficacement les boîtes GaN), un faisceau de bonne qualité (celui de la 3ème harmonique du laser Titane-Saphir, en forme de bâtonnet, donne lieu à une tache de focalisation de mauvaise qualité), et suffisamment puissante. C'est le laser Argon doublé de l'équipe de Sandrine Juillaguet qui s'est avéré remplir tous ces critères. La figure 1.8 présente la partie haute énergie

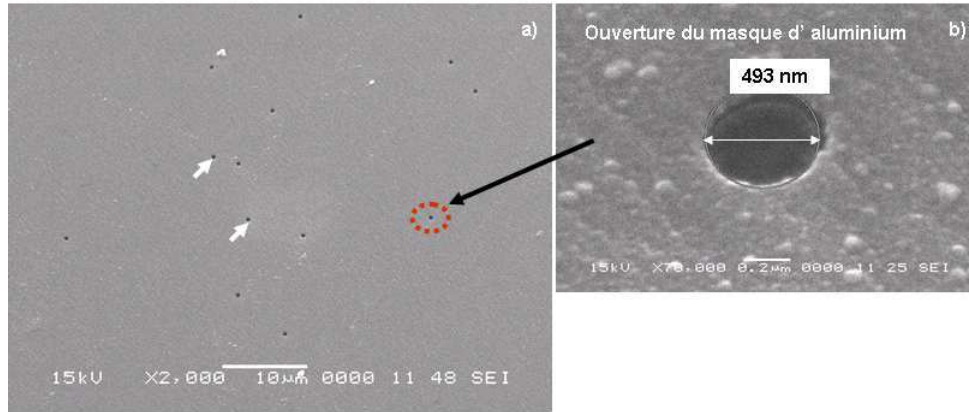


FIGURE 1.7 – (a) Image MEB du masque d'aluminium après retrait des nano-sphères de polystyrène. (b) Agrandissement de l'image (a) autour d'une ouverture du masque.

d'un spectre de μ PL ainsi obtenu. Le rôle du masque est crucial, non seulement pour limiter le nombre de boîtes quantiques excitées, mais aussi pour réduire l'intensité du fond continu sous-jacent aux pics fins, qui provient de la luminescence de boîtes hors du centre du champ de l'objectif mais collectées en raison des aberrations géométriques du microscope.

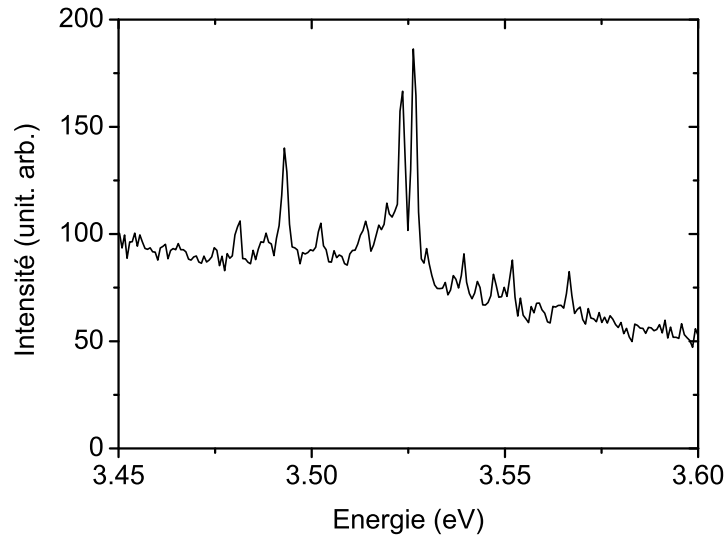


FIGURE 1.8 – Spectre de micro-photoluminescence de l'échantillon A570, collecté à travers un trou du masque ($T = 10\text{ K}$), excitation de densité 2 kW.cm^{-2} à $\lambda = 244\text{ nm}$.

1.3 Diffusion spectrale

Notre étude des boîtes quantiques GaN/AlN a dans un premier temps été consacrée à l'identification et la compréhension de ces processus extrinsèques qui élargissent et font fluctuer le spectre d'une boîte quantique isolée, et empêchent l'étude fine des propriétés des excitons confinés. Deux échantillons sont étudiés, présentés sur la figure 1.9, l'un avec et l'autre sans masque

métallique. Ce travail est décrit en détail dans la référence [Bar06].

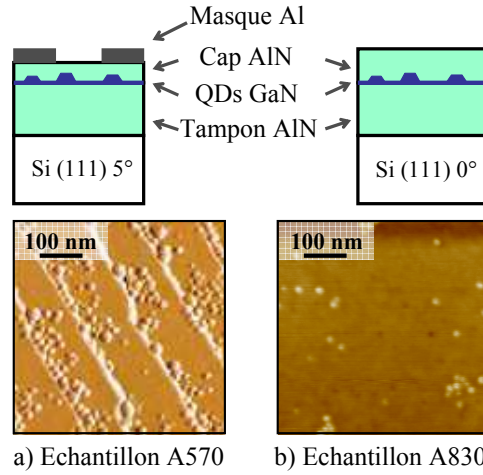


FIGURE 1.9 – Description et image AFM des deux échantillons dont la diffusion spectrale a été étudiée. (a) L'échantillon A570 est crû sur une surface vicinale de Si(111) avec une désorientation de 5° et présente des terrasses; la densité de boîtes quantiques y est modérée, de l'ordre de 10^{10} cm^{-2} ; les boîtes sont recouvertes d'une fine couche de 50 nm d'AlN et d'un masque métallique avec des ouvertures de $0,5 \mu\text{m}$. (b) L'échantillon A830 est crû sur Si(111) sans désorientation, présente un gradient de densité et des zones de très faible densité de boîtes; elles sont recouvertes d'une couche plus épaisse d'AlN (175 nm) et ne nécessite pas de masquage métallique.

Les effets de charge sont bien connus dans le domaine des nanocristaux et boîtes quantiques semiconductrices [Emp96]. Ils se traduisent par des variations d'intensité émise, réversibles (clignotement) ou irréversibles (photo-noircissement), ainsi que par des variations du spectre d'émission (gigue/jitter de la raie d'émission, aussi appelée diffusion spectrale) [Tö0, Rob00, Pac01].

1.3.1 Différents régimes de diffusion spectrale

La figure 1.10.a montre un spectre de μPL de l'échantillon A570, détecté à travers une ouverture du masque métallique de $0,5 \mu\text{m}$. Ce spectre est caractérisé par des raies fines, signatures de la luminescence de boîtes individuelles, superposées à un fond continu qui s'atténue vers les hautes énergies. Ce dernier est attribué aux autres boîtes se situant dans le champ de l'objectif dont la luminescence n'est pas totalement atténuée par le masque d'aluminium. Un long enregistrement (près d'une heure) de l'évolution temporelle de ce spectre (fig. 1.10.b) permet de classer les raies fines en 3 groupes en fonction des corrélations observées dans leurs fluctuations d'énergie et d'intensité. Les raies du groupe A subissent à deux moments différents des fluctuations synchronisées de leur énergie, de l'ordre de 5 meV , qui ne sont pas visibles pour les autres groupes. Les raies du groupe B "clignotent". Enfin les raies du groupe C fluctuent d'environ 3 meV .

Dans un deuxième exemple, mesuré sur l'échantillon A830 à très faible densité de boîtes et sans masque métallique (Fig. 1.11), des sauts discrets de l'énergie d'émission sont observés dans l'évolution temporelle des spectres. Notons ici que l'absence de masque rend l'excitation et la collection de l'émission des boîtes plus efficaces, permettant de réduire d'un facteur 90 la densité d'excitation par le laser pour des temps d'intégration deux fois plus courts. L'écart entre les deux positions de la raie D est de 4 meV .

Nature des raies multiples associées à une boîte quantique isolée L'intérêt, s'il en est un, de la diffusion spectrale, a été de permettre l'association à une même boîte quantique de raies qui lui sont intrinsèques, comme par exemple les transitions d'exciton neutre et de biexciton [Bes01a, Bes02], les excitons construits sur les trous A, B ou C de GaN, voire les

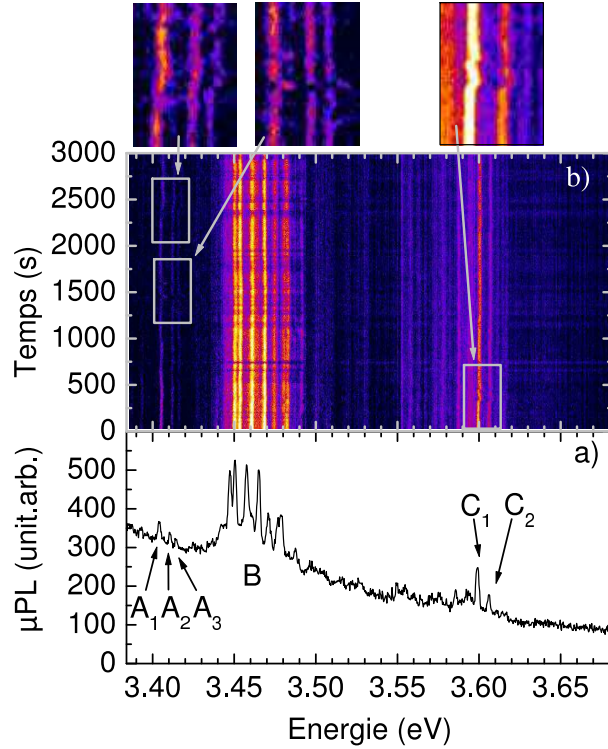


FIGURE 1.10 – (a) Spectre de μPL de l'échantillon A570 résultant de la moyenne de 300 acquisition de 10 s. L'échantillon ($T \approx 10\text{ K}$) est excité par un laser continu Argon doublé à $5,07\text{ eV}$ (244 nm), avec une densité de puissance d'excitation de 2 kW.cm^{-2} . (b) Evolution temporelle de ces spectres par pas de 10 secondes. Le fond sous-jacent aux pics fins est soustrait à tous les spectres pour permettre une meilleure visualisation de la diffusion spectrale. La résolution spectrale est ici de 2 meV .

différents états de charge de la boîte quantique (trion). Les différences d'énergie attendues entre les transitions X , X_2 et X^- (5 à 15 meV dans les boîtes quantiques CdTe) sont liées aux interactions coulombiennes entre charges, de l'ordre de grandeur de l'énergie de liaison excitonique et devraient donc être plus importantes dans les boîtes quantiques GaN/AlN. Nos résultats n'ont pas permis de mettre clairement en évidence de tels complexes excitoniques. Certaines corrélations, par exemple de la raie D_3 spécifiquement corrélée avec la raie D_2 et distante de 50 meV (Fig. 1.11), sont de possibles indications de ces complexes excitoniques, mais ne constituent pas des preuves suffisamment concluantes et convaincantes. En ce qui concerne les excitons A, B et C, l'écart attendu entre leurs transitions est respectivement de 12 et 200 meV , et pourrait permettre l'observation des transitions A et B de l'exciton. Cette question sera débattue dans la section 1.4.

1.3.2 Echelles de temps et processus sous-jacents à la diffusion spectrale

Parmi tous les processus de diffusion spectrale, les deux exemples présentés montrent ceux dont l'échelle de temps est la seconde voire la minute. Les sauts d'énergie (Fig. 1.11) peuvent être associés à la charge/décharge d'un unique piège très proche ($5 - 10\text{ nm}$) de la boîte quantique étudiée. Lorsque ces processus de charge/décharge sont plus rapides que le temps d'acquisition (Fig. 1.10), les raies multiples associées à de tels processus de piégeage à proximité de la boîte quantique apparaissent simultanément dans chaque spectre.

Les glissements continus de l'énergie d'une raie donnée (Fig. 1.10) doivent pour leur part être attribués à une fluctuation continue du champ électrique local, et donc au piégeage d'un nombre plus important de charges qui sont plus éloignées de la boîte quantique ($> 20\text{ nm}$). Par comparaison avec les travaux expérimentaux de Nakaoka *et al.* consacrés à l'effet Stark

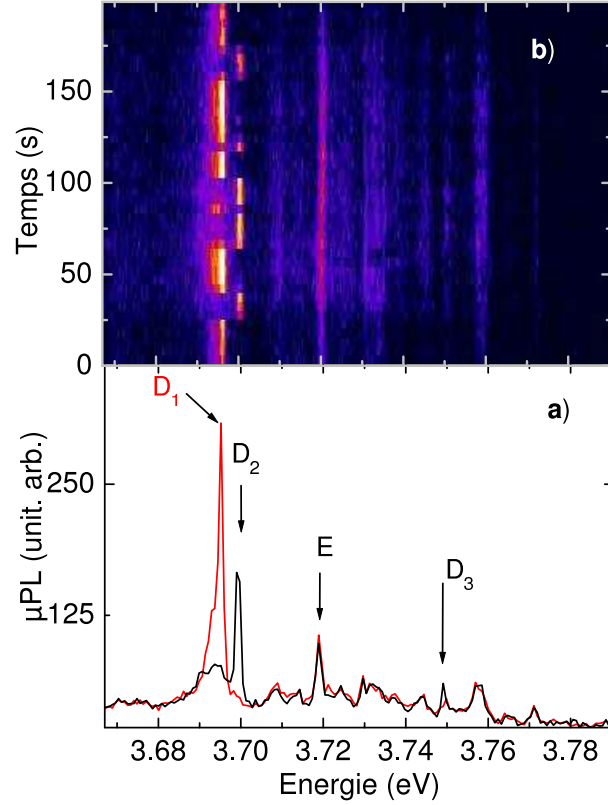


FIGURE 1.11 – (a) Spectres de PL de l'échantillon A830 résultant d'acquisitions de 5 secondes moyennées sur deux types de fenêtres temporelles différentes pour lesquelles la raie d'émission de la boîte D est respectivement en D_1 (spectre rouge) ou en D_2 (spectre noir). La densité de puissance d'excitation est de $P_0=230 \text{ mW cm}^{-2}$. (b) Evolution temporelle de ces spectres par pas de 5 s. La résolution spectrale est ici de 1 meV.

induit par un champ électrique statique, vertical ou latéral, sur des boîtes isolées GaN/AlN [Nak06b, Nak06a], nous pouvons évaluer les fluctuations de champ électrique à la centaine de kV.cm^{-1} . Notons qu'il est dans notre cas peu probable que ces charges soient piégées à la surface de l'échantillon, étant donnée la grande épaisseur de barrière choisie (175 nm pour l'échantillon A830).

Le mécanisme de charge/décharge des pièges peut être lié à la diffusion de charges à l'intérieur du semiconducteur (dans la barrière ou dans la couche de moullage), et être activé thermiquement. Il peut aussi être lié à l'excitation optique réalisée lors des expériences de photoluminescence. L'étude de l'échantillon A830 en fonction de la puissance d'excitation nous a montré que c'est la seconde hypothèse qui est vérifiée : la fréquence des sauts entre les énergies D_1 et D_2 est linéaire sur deux décades avec la densité d'excitation (Fig. 1.12). Les porteurs qui sont impliqués dans le piégeage et la diffusion spectrale ainsi induite sont donc générés optiquement lors de l'excitation. Ceci est peut-être lié à l'énergie élevée des photons d'excitation : même si celle-ci est inférieure au gap de la barrière d'AlN, elle est suffisante pour générer les porteurs dans les états de diffusion ou de couche de moullage des boîtes quantiques, voire dans les états liés d'AlN. Une excitation à plus basse énergie pourrait permettre de limiter cette génération de porteurs isolés, mais elle est trop peu efficace dans le cas des boîtes quantiques polaires.

1.3.3 Elargissement inhomogène des transitions d'une boîte quantique isolée

Les expériences précédentes nous donnent accès aux processus dont la constante de temps est au-delà de la seconde. De nombreux processus de piégeage et de diffusion de charges ont lieu à des échelles de temps plus rapides. Ils donnent principalement lieu, dans les spectres intégrés

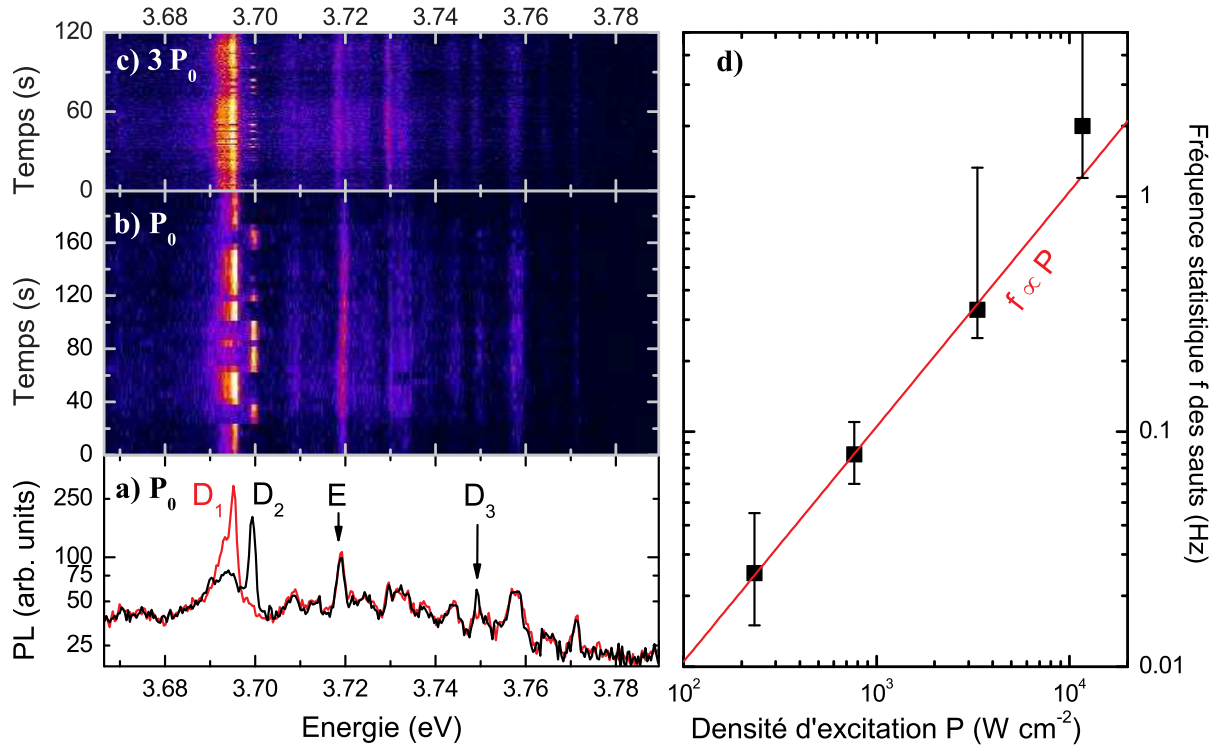


FIGURE 1.12 – (a) Spectres de PL de l'échantillon A830 (cf figure 1.11). La densité de puissance d'excitation est de $P_0 = 230 \text{ mW cm}^{-2}$. (b) et (c) Evolution temporelle des spectres pour une densité d'excitation (b) de P_0 , (c) de $3P_0$. (d) Variation de la fréquence statistique moyenne des sauts discrets de la raie d'émission de la boîte D en fonction de la densité d'excitation. Les axes sont en échelle logarithmique.

sur quelques secondes, à un élargissement inhomogène des transitions des boîtes quantiques. Les études de largeur de raie et de diffusion spectrale sont donc intimement reliées. La table 1.1 donne l'état de l'art des largeurs de raies mesurées sur des boîtes quantiques uniques à base de nitrures au cours des 8 dernières années.

Cette revue montre bien la difficulté d'obtenir des raies fines dans ce système, sachant qu'à basse température la largeur homogène, limitée par les processus d'interaction avec les phonons et les spins du cristal, devrait être inférieure à 0.1 meV . Les largeurs inhomogènes mesurées sont donc la signature de la qualité de l'environnement des boîtes quantiques (probablement de la barrière), mais aussi du mode d'excitation choisi puisque les porteurs piégés sont photo-générés.

L'analyse précise de la nature de l'élargissement d'une raie nécessite la mesure de son profil. Dans le cas des boîtes nitrure, cette étude a été menée par F. Rol *et al.* pour une boîte quantique

Système	Largeur	1er Auteur	Réf.	Lim. Rés.
GaN/AlN polaire	1 meV	R. Bardoux	[Bar06]	Oui
GaN/AlN polaire, mésa	5-10 meV	S. Kako	[Kak04]	Non
GaN/AlN cubique, mésa	2.5 meV	J.P. Garayt	[Gar05]	Non
GaN/AlN non-polaire (a), mésa	0.55 meV	F. Rol	[Rol06]	Non
InGaN/GaN	0.5 meV	R. Seguin	[Seg04]	Oui
InGaN/GaN	0.5 meV	J.H. Rice	[Ric04, Jar07]	Non
InGaN/GaN, pyramide	0.65 meV	P.R. Edwards	[Edw04]	Oui
InGaN/GaN	0.17 meV	K. Sebald	[Seb06]	Oui

TABLE 1.1 – Revue des largeurs inhomogènes de raies mesurées sur des boîtes quantiques uniques à base de nitrures. La dernière colonne indique si la résolution spectrale de l'expérience limite la mesure de cette largeur.

non polaire (plan a) [Rol07]. Il a mis en évidence la transition depuis un régime d'élargissement inhomogène (1.1 meV pour la boîte quantique étudiée) à basse température, vers un régime d'élargissement homogène dominant la contribution inhomogène à partir de 100 K, donnant lieu à une raie lorentzienne assortie d'ailes de phonons analogues à celles observées sur les boîtes quantiques CdTe [Bes01b]. Nous sommes encore loin dans ce système des largeurs atteintes en photoluminescence dans les boîtes InAs/GaAs à basse température, de nature homogène et limitées par l'interaction avec les phonons ou l'environnement [Kam02, Ber06], voire par la seule recombinaison radiative de l'exciton dans les mesures d'absorption [Hög04]. Notons que c'est par des mesures de mélange d'onde, de contrôle cohérent ou d'oscillations de Rabi que la "vraie" largeur homogène du niveau électronique est le plus facilement accessible [Bor01, Mel08, End09, Ram11, Ngu12].

1.4 Structure fine des excitons neutres et chargés

Dans la description simplifiée de la spectroscopie d'une boîte quantique, nous nous intéressons en général à l'effet majeur de confinement quantique, et à ses conséquences sur la fonction enveloppe des porteurs confinés. Nous associons les transitions optiques à l'"exciton de la boîte quantique", oubliant d'une part que nous ne connaissons pas l'état de charge de cette boîte et donc la nature chargée ou non du complexe excitonique qui se recombine ; et d'autre part que l'exciton neutre est un état de paire électron-trou construit sur la base de 2 états d'électrons de conduction (spin $\uparrow$ et $\downarrow$), et de 6 états de trous issus des bandes de valence A, B et C du GaN massif (figure 1.13). Comme dans le GaN massif, la structure fine des excitons dans les boîtes quantiques GaN se décompose donc en 3 types d'excitons (A, B et C), chacun donnant lieu à deux états optiquement actifs (ou "brillants") et deux états optiquement inactifs (ou "sombres", "noirs").

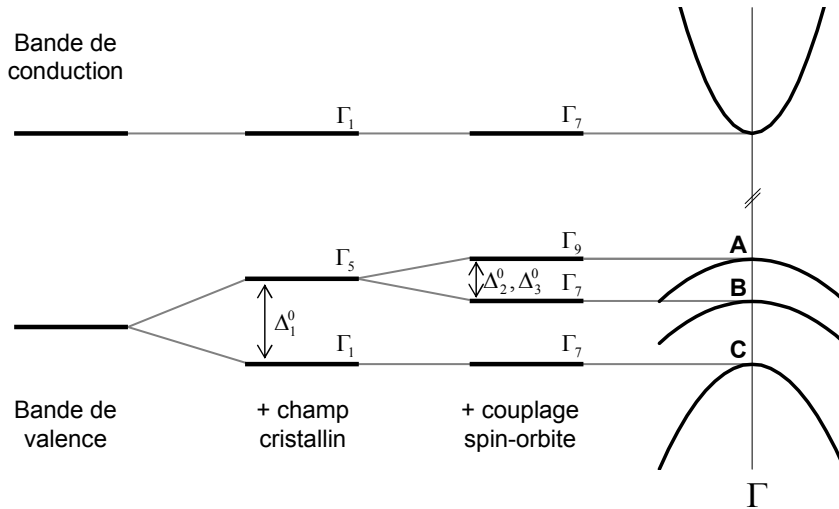


FIGURE 1.13 – Structure de bandes du GaN massif.

Cette section est consacrée à l'étude théorique et expérimentale de cette structure fine, et à la discussion de l'état de charge des boîtes quantiques étudiées en 2006-2008. Cette problématique revêt un intérêt important dans les développements futurs à base de boîtes GaN, du point de vue tant fondamental (biexcitons, émission de photons dégroupés) qu'appliqué (LEDs à lumière polarisée), qui sera discuté en fin de section.

1.4.1 Structure fine des excitons dans les boîtes quantiques InAs et CdTe

La structure fine de l'exciton dans les boîtes quantiques a été mise en évidence en 1996 dans le système GaAs/AlAs [Gam96]. Elle est le reflet de l'anisotropie uniaxiale de forme et/ou de contrainte qui lève la dégénérescence des états brillants de l'exciton via l'interaction coulombienne. La figure 1.14 présente un exemple représentatif de la configuration des boîtes InAs et CdTe. Le spectre de photoluminescence de la boîte est composé d'un doublet radiatif, les deux raies observées ayant des polarisations linéaires croisées et des amplitudes comparables. Les polarisations sont parallèles aux axes cristallographiques $[1\bar{1}0]$ et $[110]$ correspondant au grand axe et au petit axe des boîtes quantiques allongées. L'éclatement des raies, souvent appelé "splitting d'échange", est relié à la force de l'interaction Coulombienne entre électron et trou. Au premier ordre, sa valeur augmente avec l'énergie de liaison dans le matériau considéré : 10 à 150 μeV dans InAs/GaAs [Nab02, Bay02, Ger07], 60 à 590 μeV dans CdTe/ZnTe [Bes00] et 1 meV dans CdSe/ZnSe [Kul99, Pat03].

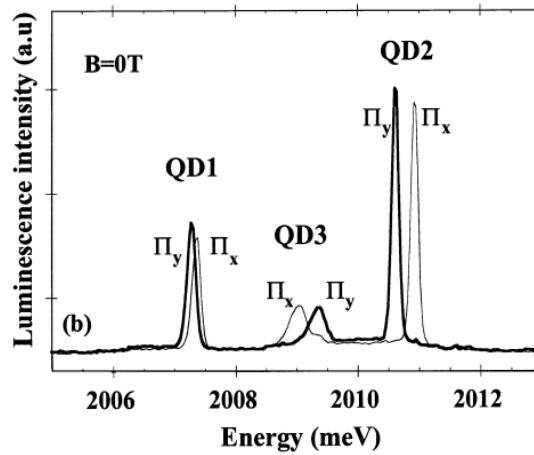


FIGURE 1.14 – Spectres de μPL de trois boîtes quantiques CdTe, détectée dans deux polarisations linéaires croisées, d'après [Bes00].

Le cas des boîtes quantiques GaN se distingue de celles citées précédemment pour deux raisons majeures : d'une part les bandes A et B de GaN sont faiblement séparées (environ 12 meV , reflétant le couplage spin-orbite) alors que les excitons lourds et légers dans les hétérostructures InAs/GaAs sont séparés d'environ 100 meV ; d'autre part l'interaction coulombienne y est beaucoup plus forte, et en particulier le terme d'interaction d'échange. Ces deux termes d'interaction, ainsi que le terme énergétique associé aux anisotropies de forme ou de contrainte des boîtes quantiques, ont alors des amplitudes comparables et leurs effets ne peuvent pas être interprétés hiérarchiquement par perturbation les uns des autres.

Nous présenterons dans cette section les résultats expérimentaux obtenus sur une série de boîtes quantiques isolées, ainsi que les grandes lignes du modèle que nous avons développé pour interpréter les spectres observés. Nous renverrons le lecteur à l'article publié dans Physical Review B pour une présentation approfondie du modèle [Bar08].

1.4.2 Spectroscopie en polarisation d'une boîte quantique GaN isolée

Notre étude a porté sur les boîtes isolées de l'échantillon A830 présentant le meilleur contraste des raies de boîtes isolées. La figure 1.15 présente les spectres résolus en polarisation d'un ensemble de quelques boîtes quantiques présentes sous le spot d'excitation. L'exploitation de la dépendance de l'intensité émise en fonction de l'angle du polariseur s'est avérée complexe en raison des effets de diffusion spectrale décrits à la section précédente. Parmi les raies fines présentes dans les spectres, nombreuses sont celles qui ne suivent pas une dépendance claire

en fonction de l'angle du polariseur. Les séries de spectres ont en particulier être mesurées suivant une séquence aléatoire d'angles pour pouvoir décorrélérer les fluctuations d'intensité liées à des effets électrostatiques dans l'environnement des boîtes et la dépendance intrinsèque en polarisation. Trois raies, notées A, B et C, suivent une dépendance angulaire correspondant à une polarisation linéaire partielle, et peuvent être correctement ajustées par l'équation :

$$I(\theta) = a + b \cos^2(\theta - \theta_0). \quad (1.1)$$

Nous pouvons aussi définir le taux de polarisation des raies :

$$P = \frac{I_{Max} - I_{Min}}{I_{Max} + I_{Min}} = \frac{a}{a + 2b}, \quad (1.2)$$

où I_{max} et I_{min} sont respectivement l'intensité maximale et minimale de la raie en fonction de l'angle de l'analyseur. Pour les boîtes considérées, P est de l'ordre de 60%.

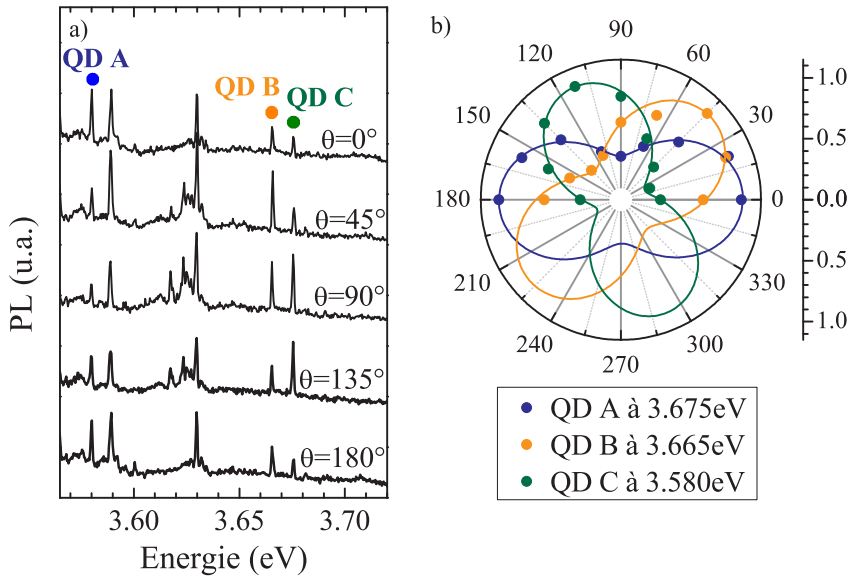


FIGURE 1.15 – a) Spectres de μPL de quelques boîtes quantiques de l'échantillon A830, en fonction de l'angle du polariseur. Les spectres sont décalés verticalement. b) Représentation polaire de l'intensité normalisée de 3 transitions correspondant à 3 boîtes quantiques différentes. Le trait plein présente leur ajustement par la loi 1.1. L'échantillon, à $T = 10\text{ K}$, est excité par le laser argon doublé ($\lambda = 244\text{ nm}$) avec une puissance modérée de l'ordre de 200 W.cm^{-2} . La collection est réalisée par l'objectif Cassegrain 36 $\times$, et analysée par un polariseur de Glan en calcite, puis dépolarisée par une lame d'onde $\lambda/4$ en amont du spectromètre, afin de s'affranchir de sa réponse spectrale. La résolution spectrale est de 1 meV .

En comparaison des résultats obtenus sur les boîtes CdTe (figure 1.14), nous pouvons constater trois points importants :

- Les raies ne sont pas complètement polarisées linéairement ;
- L'angle de polarisation est différent pour chaque raie ;
- Nous n'observons pas de doublet de raies distinctes croisées en polarisation (dans la limite de notre résolution spectrale de 1 meV).

Nous avons étudié une cinquantaine de boîtes quantiques. Parmi elles, seulement 20 raies présentent une polarisation linéaire indiscutable. Le taux de polarisation maximal atteint est de 90%, pour une boîte quantique dont le spectre est particulièrement épuré (figure 1.16). En particulier, lorsque le taux de polarisation est inférieur à 30%, les fluctuations d'intensité sont trop importantes pour conclure sans ambiguïté à une polarisation linéaire. Le nombre de raies polarisées, bien que limité, nous permet de présenter une étude statistique des angles et taux de polarisation, et de tenter de faire le lien entre les propriétés de boîtes isolées mesurées en μPL

et celles d'ensembles macroscopiques de boîtes. Les résultats sont présentés sur la figure 1.17. La distribution des taux de polarisation est relativement uniforme. Celle des angles présente une valeur préférentielle en 0, mais les autres valeurs ne semblent pas particulièrement corrélées.

L'analyse de ces résultats sera présentée après la description du modèle, en section 1.4.4.

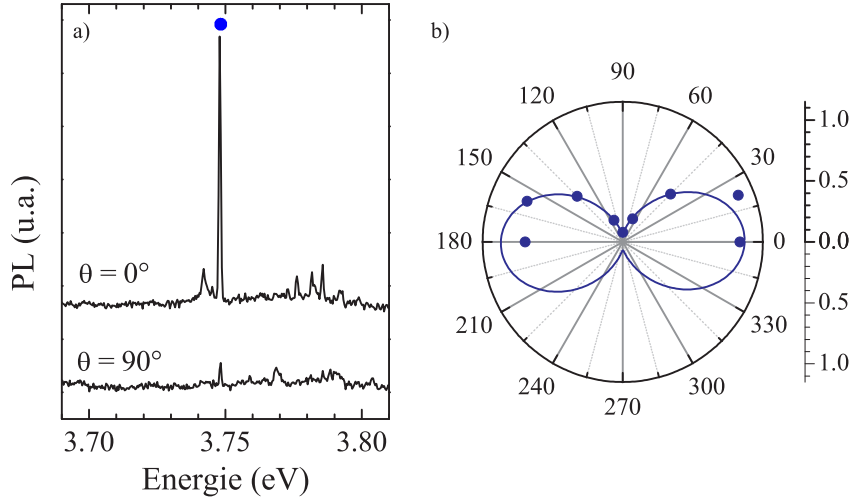


FIGURE 1.16 – a) Spectres de μPL d'une boîte quantique de l'échantillon A830, en fonction de l'angle de l'analyseur. Les spectres sont décalés verticalement. b) Représentation polaire de l'intensité normalisée (points) et son ajustement par la loi 1.1 (trait plein). Le taux de polarisation de la raie est $P = 90\%$.

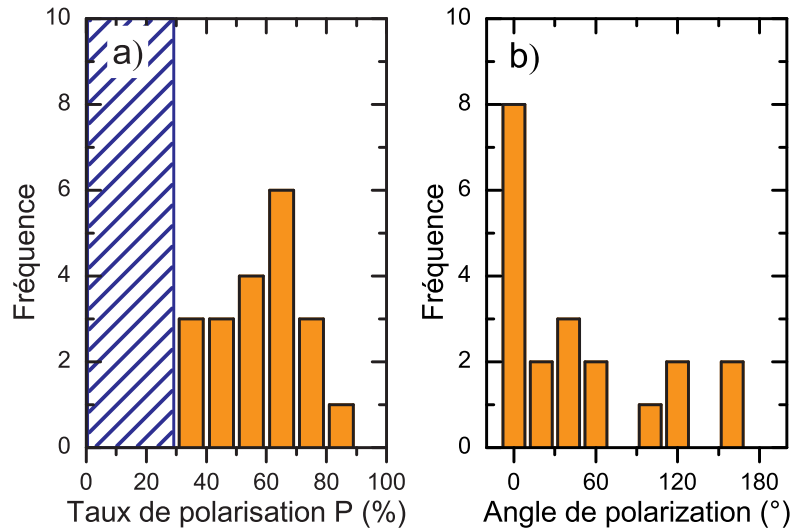


FIGURE 1.17 – a) Distribution statistique des taux de polarisation P des 20 boîtes quantiques dont l'émission est partiellement polarisée linéairement, parmi les 50 boîtes quantiques étudiées; la zone hachurée représente les taux de polarisation pour lesquels une ambiguïté subsiste dans l'interprétation, en raison des fluctuations d'intensité des raies. (b) Distribution statistique des angles de polarisation des mêmes raies.

1.4.3 Modélisation des propriétés de polarisation

Notre modèle a pour objet de calculer les états propres des complexes excitoniques, et est donc adapté au calcul du spectre d'absorption résolu en polarisation d'une boîte quantique. La modélisation de la photoluminescence nécessiterait ensuite de simuler la cinétique des excitons entre les différents états, et ne sera pas abordée en l'absence de données expérimentales don-

nant accès à cette cinétique. La modélisation des complexes excitoniques se décompose en deux étapes :

- Le calcul des états à une particule (électron et trou), i.e. leur fonction d'onde complète en terme de fonction enveloppe mais aussi d'état de spin. Les états de spin ne sont pas purs en raison du confinement 3D de la boîte quantique, qui mélange enveloppe et spin.
- Le calcul des états à 2, 3, 4 particules (exciton, exciton chargé, biexciton, ...) sur la base des états à une particule.

Nous avons choisi, avec Bernard Gil, de construire un modèle complet du point de vue des symétries des états à une particule, mais qualitatif dans la description du confinement quantique. Nous avons ensuite construit les états fondamentaux de l'exciton X^0 et du trion X^- , qui nous sont parus prédominants dans l'analyse de nos résultats expérimentaux. L'originalité de cette approche, purement matricielle, est de mettre en évidence les termes/les symétries qui pilotent les propriétés spectrales, et de permettre ainsi une comparaison simple avec les boîtes quantiques basées sur d'autres matériaux. Le traitement complet du problème, par une approche nécessairement numérique qui masque les paramètres clé du problème, nécessite une modélisation atomique du confinement dans la boîte quantique (modèle **k.p** [And00, Win06, Win07], de liaison fortes [Bae07] ou de pseudo-potentiel [Nar05]). Les états à plusieurs particules doivent ensuite être calculés par la technique d'interaction de configuration [Hu90], qui a en général été mise en œuvre en ne prenant en compte qu'une seule bande de valence dans InAs [Poe07], alors que la proximité des bandes A et B dans GaN rend leur couplage non négligeable. L'étude de Tomić *et al.* [Tom09] traite quant à elle le biexciton dans une boîte GaN par la méthode d'interaction de configuration, en tenant compte des bandes A et B, mais ne présente pas la structure fine des excitons neutres. Ce n'est qu'en 2010 que le problème complet a été traité dans les travaux de C. Kindel *et al.* [Kin10].

Etats à une particule Nous présentons ici un résumé du modèle, décrit en détails dans les références [Bar07, Bar08]. Suivant l'approche de Cho [Cho76], la fonction d'onde des électrons et des trous est dans un premier temps décrite en fonction de paramètres de symétries différentes. Par exemple, pour tenir compte des effets du confinement quantique et de la contrainte, l'énergie des électrons comporte uniquement des termes de symétrie Γ_1 et peut être écrite :

$$\Delta E_c = \hbar^2 \left(\frac{k_z^2}{2m_z^e} + \frac{k_x^2 + k_y^2}{2m_{\parallel}^e} \right) + c_1 \epsilon_{zz} + c_2 (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}), \quad (1.3)$$

où les paramètres c_1 et c_2 sont les potentiels de déformation de la bande de conduction, et m_z^e et $m_{\parallel}^e$ sont les masses effectives suivant l'axe c et perpendiculairement à cet axe. Bien que le vecteur d'onde $\mathbf{k}$ ne soit pas un bon nombre quantique en présence de confinement, nous l'utilisons dans le modèle pour tenir compte de l'ordre de grandeur et de la symétrie du confinement quantique, sachant que ses composantes $k_{x,y,z}$ sont inversement proportionnelles aux dimensions géométriques $L_{x,y,z}$ de la boîte quantique. Notons que les deux états de spin de l'électron ($\uparrow, \downarrow$) sont dégénérés.

La description de la bande de valence est plus complexe, car les termes d'interaction de symétries Γ_5 (liés par exemple à une déformation de cisaillement) et Γ_6 (liés par exemple à une déformation uniaxiale ou à une anisotropie de la boîte dans le plan, $L_x \neq L_y$) entrent en jeu en plus des termes de symétrie Γ_1 (lié à la déformation biaxiale et au confinement isotrope dans le plan de la boîte, $L_z, L_x = L_y$). Il faut aussi tenir compte du champ cristallin et de l'interaction spin-orbite. Au total, peu de termes sont nuls dans l'hamiltonien 6×6 de la bande de valence !

Le résultat le plus connu de ce modèle³ [Ale98] est la dépendance de l'énergie des excitons A, B et C de GaN massif en fonction de la déformation biaxiale, i.e. des termes de symétrie Γ_1 , représentée dans la première colonne de la figure 1.18 et sur la figure 1.19. Les termes

3. D'aucuns l'appellent le "Bernard Gil Plot".

de contrainte uniaxiale et de cisaillement sont ici négligés. Le cercle pointillé à déformation nulle met en exergue l'anticroisement des excitons B et C en raison du couplage spin-orbite, et le croisement des excitons A et B qui ne sont pas couplés. Les trous A, B et C sont chacun dégénérés deux fois. Si les termes d'échange de l'interaction coulombienne sont négligés, les états d'excitons A, B et C sont alors dégénérés 4 fois, chacun des états radiatifs étant couplés à l'une des polarisations (σ^+, σ^-, z) de la lumière avec une force d'oscillateur égale (Figure 1.18, 1ère colonne). Nous constatons par ailleurs que pour des boîtes GaN crues sur une couche tampon épaisse et supposée relaxée d'AlN, les trous A et B sont séparés de $2\Delta_2^0 \approx 12 \text{ meV}$, et le trou C est décalé à plus haute énergie de plus de 200 meV ; de plus le gap excitonique de GaN pour cette contrainte est d'environ 3.7 eV à basse température.

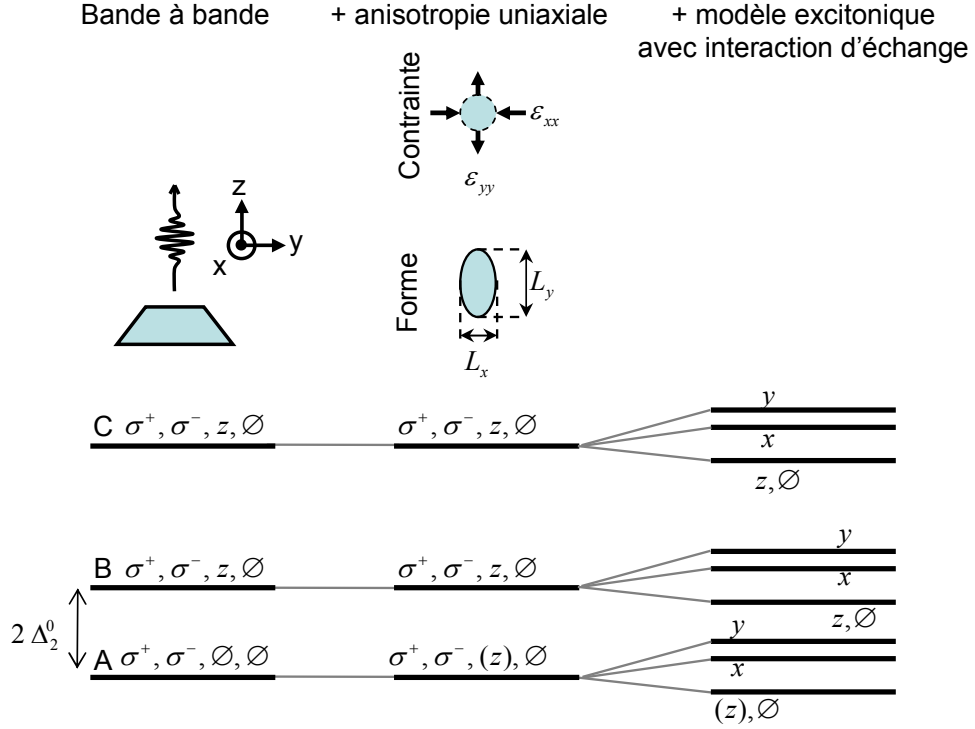


FIGURE 1.18 – Règles de sélection en polarisation des transitions optiques dans les boîtes quantiques GaN. La première colonne représente le cas des transitions bande à bande de boîtes quantiques isotropes, et est identique au cas du GaN massif. Les colonnes suivantes tiennent compte de l'anisotropie uniaxiale des boîtes et des termes d'échange de l'interaction coulombienne.

Tout écart à la "biaxialité" de la contrainte ou de la forme de la boîte quantique complique cette description des états de valence. Nous négligerons ici la possible contrainte de cisaillement dans les boîtes quantiques, pour nous concentrer sur le terme, noté Ξ_{6a} de symétrie uniaxiale Γ_6 . Il est la somme des composantes anisotropes dans le plan (x, y) du confinement ($k_x^2 - k_y^2 \neq 0$, i.e. $L_x \neq L_y$) et de la déformation du cristal ($\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy} \neq 0$) :

$$\Xi_{6a} = \frac{\hbar^2}{2m_{\parallel}^h} (k_x^2 - k_y^2) + D_5(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}), \quad (1.4)$$

où $m_{\parallel}^h$ est la masse effective des trous perpendiculairement à l'axe c et $D_5 \approx 3 \text{ eV}$ est le terme uniaxial du potentiel de déformation [Gra07]. L'effet de ce terme est de mélanger les bandes de valence A, B et C et donc de briser les règles de sélection en polarisation de chaque état d'exciton (Figure 1.18, 2ème colonne). Dans le cas d'hétérostructures GaN/AlN, ce mélange de bandes concerne principalement les excitons A et B car l'écart entre A, B d'une part et C d'autre part est très grand devant tous les termes de couplage. Dans cette limite, l'un des

résultats essentiels de notre modèle est d'avoir mis en évidence de manière analytique que les propriétés de mélange de bande dépendent en fait du paramètre adimensionnel Ξ_{6a}/Δ_2 , que nous appellerons anisotropie normalisée et qui compare le terme d'anisotropie uniaxiale avec l'un des deux termes de l'interaction spin-orbite. Nous reviendrons sur ce résultat dans la discussion des états d'exciton et de trion.

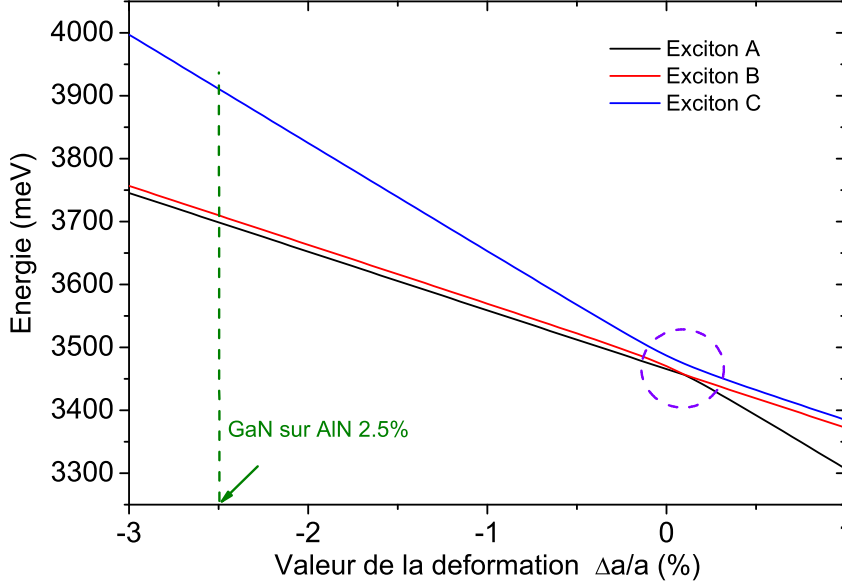


FIGURE 1.19 – Evolution de l'énergie calculée, dans notre modèle, des excitons A, B et C dans une couche mince de GaN en fonction de la contrainte biaxiale appliquée à cette couche.

Le trion X^- Le trion X^- consiste en un trou et deux électrons de spins opposés, dans l'état singulet $((\uparrow, \downarrow) - (\downarrow, \uparrow)) / \sqrt{2}$. C'est l'état à plusieurs particules le plus simple à calculer car les termes d'échange de l'interaction coulombienne, que nous détaillerons dans le cas de l'exciton neutre, s'annulent. Les symétries de ce trion sont donc celles de la bande de valence. Sa recombinaison radiative a pour état final un électron dans l'état fondamental. Nous avons choisi de représenter les résultats du modèle sous forme des spectres d'absorption du trion X^- , sur la figure 1.20. D'après l'équation 1.4, la valeur de 5 meV choisie pour le terme d'anisotropie uniaxiale peut être générée soit par une faible composante anisotrope de la déformation du cristal, de l'ordre de 0.15%, soit par une faible elongation de la boîte quantique dans le plan, de l'ordre de 10%. Ce terme modifie fortement les spectres, en augmentant l'écart entre trions A et B et en opérant un transfert de force d'oscillateur entre ces deux trions. Le taux de polarisation linéaire de chacun des trions A et B est fort, et sa dépendance en fonction de l'anisotropie normalisée Ξ_{6a}/Δ_2 est représentée sur la figure 1.21.

L'exciton neutre Après avoir proprement construit les états d'électron et de trou, nous devons tenir compte du terme d'interaction coulombienne, qui se décompose en un terme direct, donnant lieu à l'énergie de liaison excitonique⁴, et plusieurs termes d'échange. Le terme direct agit comme une correction "rigide", diagonale dans la base des paires électron-trou et identique pour tous les états d'exciton ; il n'influe pas sur les propriétés de polarisation des boîtes quantiques. Dans sa forme la plus générale, l'hamiltonien effectif de l'interaction d'échange

4. Dans le cas d'un confinement 3D des porteurs, il ne s'agit pas à proprement parler d'une énergie de liaison, mais plutôt d'une correction coulombienne à l'énergie de la paire électron-trou confinée.

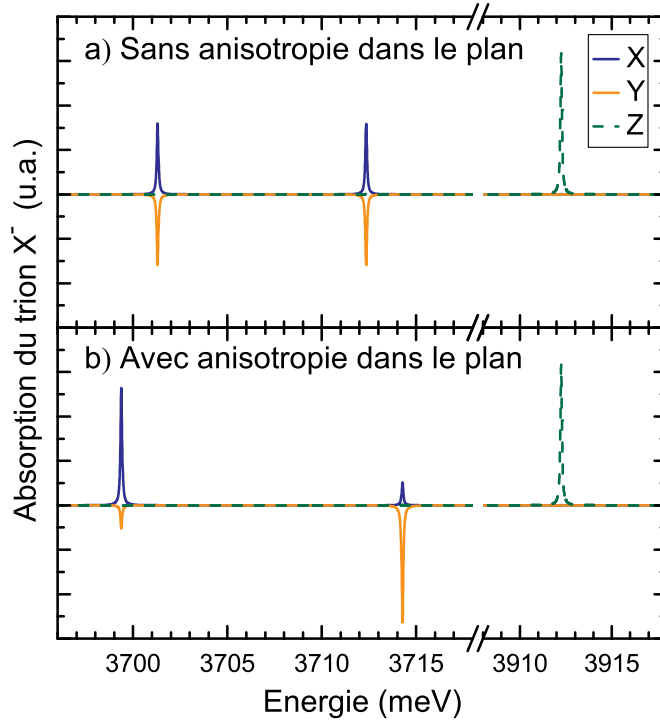


FIGURE 1.20 – Spectre d'absorption du trion X^- dans une boîte quantique initialement chargée négativement, (a) en l'absence d'anisotropie uniaxiale et (b) en présence d'une anisotropie uniaxiale responsable d'un terme $\Xi_{6a} = 5 \text{ meV}$. Les spectres dans les polarisations y sont inversés pour plus de clarté. L'élargissement homogène choisi pour les transitions optiques est de 0.1 meV .

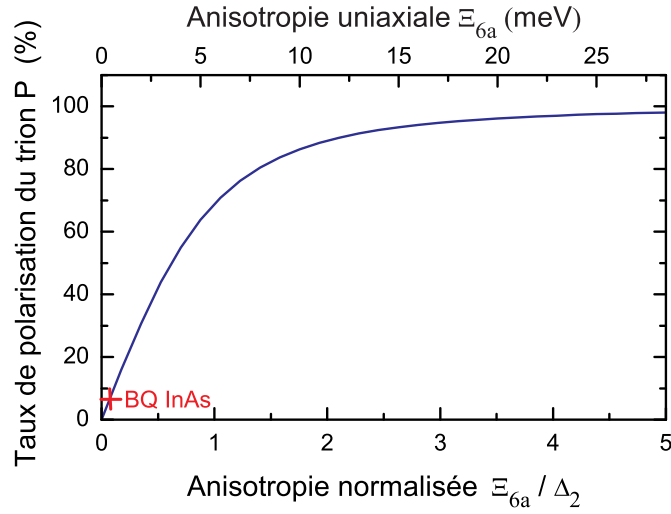


FIGURE 1.21 – Taux de polarisation linéaire de l'absorption du trion X^- en fonction de l'anisotropie uniaxiale. La croix rouge représente le cas d'une boîte quantique InAs "typique" pour la même valeur du terme d'anisotropie.

électron-trou s'écrit [Pik71, Cho75] :

$$\mathcal{H}_{ech} = +\frac{1}{2}\gamma\vec{\sigma}_e \cdot \vec{\sigma}_h + \delta_z J_{z,h}^3 \sigma_z^e + \delta_{x+y} (J_{x,h}^3 \sigma_x^e + J_{y,h}^3 \sigma_y^e) + \delta_{x-y} (J_{x,h}^3 \sigma_x^e - J_{y,h}^3 \sigma_y^e). \quad (1.5)$$

Cet hamiltonien fait intervenir le spin de l'électron $\vec{\sigma}_e$ et le moment total du trou $\vec{J}_h = \vec{L}_h + \vec{\sigma}_h$, somme de son moment cinétique orbital et de son spin. Le premier terme s'appelle l'interaction d'échange à courte portée, et son paramètre γ est proportionnel à la valeur connue

dans le matériau massif (0.6 meV dans GaN [Jul98, Pas01], 64 μ eV dans CdTe, 10 μ eV dans GaAs et seulement 0.3 μ eV dans InAs [Fu99]). Les 3 termes suivants constituent l'interaction d'échange à longue portée, et sont proportionnels au splitting longitudinal-transverse ΔE_{LT} de l'exciton (0.6 meV dans GaN [Hof97], à nouveau très supérieur aux valeurs de CdTe ou InAs). L'effet de l'interaction d'échange est représenté de manière schématique dans la dernière colonne de la figure 1.18.

Les valeurs des 4 paramètres de l'interaction d'échange dépendent finement d'intégrales de recouvrement des fonctions d'onde à une particule et sont donc complexes à calculer. Nous avons par exemple évalué le facteur d'amplification de l'échange à courte portée par le confinement, qui varie de 2 à 6 lorsque l'énergie d'émission de la boîte quantique GaN/AlN varie de 3.6 à 4 eV [Bar07]. L'étude de Kindel *et al.* [Kin10] a confirmé que les splittings d'échange attendus pour les boîtes quantiques GaN sont de l'ordre de 1 à 5 meV, supérieurs d'un ordre de grandeur à ceux des boîtes quantiques CdTe.

L'hamiltonien complet des excitons confinés a été diagonalisé pour différents jeux de paramètres d'anisotropie et d'interaction d'échange. Les résultats les plus significatifs sont présentés sur les spectres d'absorption de l'exciton neutre (figure 1.20) :

- En l'absence d'anisotropie uniaxiale de forme ou de contrainte, le terme anisotrope d'interaction d'échange à longue portée δ_{x-y} induit une levée de dégénérescence des excitons radiatifs (Figure 1.22.c). C'est le mécanisme invoqué dans les boîtes quantiques à base d'InAs et CdTe. Il donne lieu au "splitting de structure fine", et les deux excitons, émettant dans des polarisations linéaires croisées, ont la même force d'oscillateur.
- Le terme d'interaction d'échange à courte portée γ nécessite d'être combiné à une anisotropie uniaxiale de forme ou de contrainte, pour induire lui aussi une levée de dégénérescence des excitons radiatifs (Figure 1.22.b). Les deux excitons, émettant dans des polarisations linéaires pures et croisées, ont des forces d'oscillateur très différentes. Notons que dans les boîtes quantiques InAs et CdTe, dans une interprétation à une seule bande de valence, ce terme d'échange ne contribue pas au splitting du doublet radiatif, mais uniquement au splitting entre états radiatifs et non-radiatifs.
- Les deux effets précédents peuvent se combiner, et donner lieu à une augmentation ou une diminution du splitting de structure fine selon leurs signes respectifs. Ces signes ne sont pas connus a priori [Fav05]. L'effet est d'ailleurs opposé sur les bandes A et B de l'exciton. Les états d'exciton restent purement polarisés, et leurs forces d'oscillateur dépendent uniquement de l'anisotropie uniaxiale.

Quel que soit le terme d'échange qui domine dans l'hamiltonien 1.5, et dans l'approximation déjà décrite pour le trion où la bande de valence C est très éloignée des bandes A et B (comme c'est le cas pour les hétérostructures GaN/AlN), c'est l'anisotropie uniaxiale normalisée Ξ_{6a}/Δ_2 qui gouverne l'amplitude de l'absorption des états d'exciton neutre dans chaque polarisation. Le taux de polarisation P du doublet (chacune des raies étant purement polarisée linéairement) est présenté sur la figure 1.23.a, et reflète simplement le mélange de bande de valence. Notons de plus que la contribution de l'échange courte portée au splitting de structure fine est aussi donné par une loi universelle en fonction de Ξ_{6a}/Δ_2 , représentée sur la figure 1.23.b.

Le principal apport de notre modèle, dans lequel les termes d'échange et de mélange de bande sont traités sur un pied d'égalité et non en perturbation l'un de l'autre, est donc de montrer la spécificité des boîtes quantiques nitrures en regard de leurs homologues InAs et CdTe. La croix rouge sur la figure 1.23 montre l'effet d'une anisotropie uniaxiale identique et importante ($\Xi_{6a} = 10$ meV) dans une boîte InAs, pour laquelle nous devons substituer à Δ_2 l'écart d'énergie entre trous lourds et trous légers $\Delta_{LH-HH} \approx 100$ meV. Le taux de polarisation de l'absorption du doublet radiatif, inférieur à 10%, explique que les deux transitions observées en photoluminescence soient en général d'intensités presque égales. Notons ici la difficulté à comparer les forces d'oscillateur des états propres de l'exciton avec leurs intensités en photoluminescence : la cinétique a un fort effet sur les amplitudes des raies de PL, et la compétition entre relaxation

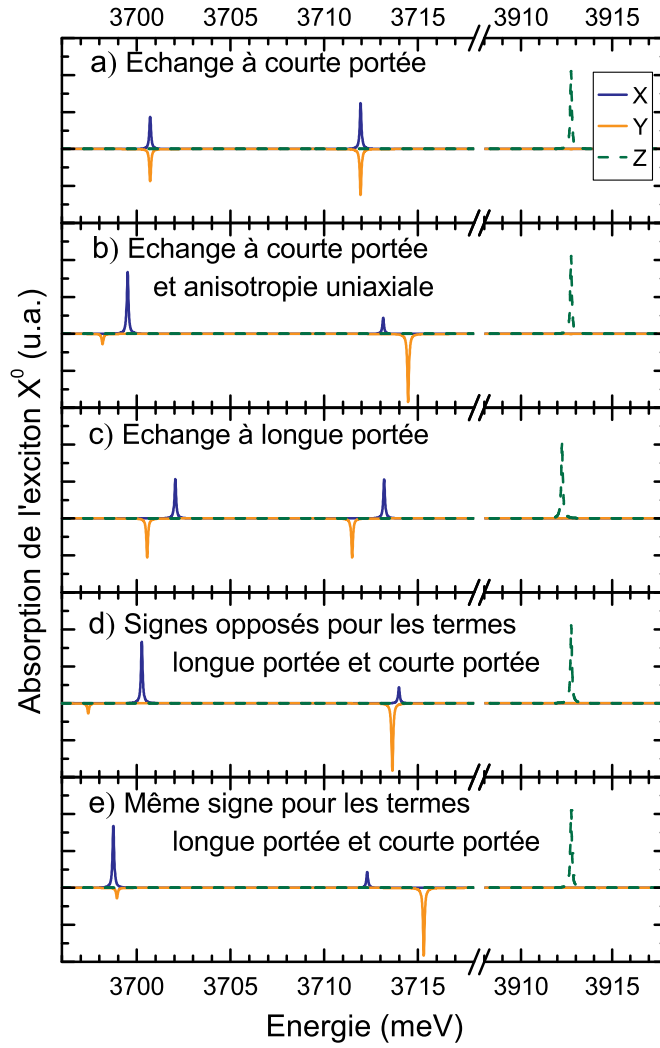


FIGURE 1.22 – Spectre d'absorption de l'exciton neutre X^0 dans une boîte quantique initialement neutre, obtenu en tenant compte des différents termes de l'hamiltonien et de leur combinaison. Les valeurs choisies pour les paramètres sont $\Xi_{6a} = 5 \text{ meV}$ pour l'anisotropie uniaxiale, $\gamma = 1 \text{ meV}$ pour le terme d'échange à courte portée et $\delta_{x-y} = 1 \text{ meV}$ pour le terme anisotrope d'échange à longue portée. Les spectres dans les polarisations y sont inversés pour plus de clarté. L'élargissement homogène choisi pour les transitions optiques est de 0.1 meV .

de spin des porteurs et recombinaison radiative va déterminer si les deux excitons radiatifs sont indépendants (d'intensités reflétant leurs taux de génération respectifs) ou bien à l'équilibre thermodynamique (d'intensités suivant une loi de Boltzmann en fonction du splitting).

1.4.4 Confrontation du modèle, de l'expérience, et de la littérature

Les conclusions principales des expériences présentées précédemment sont que les transitions des boîtes quantiques ne sont que partiellement polarisées linéairement (même si le taux de polarisation peut atteindre 90%) et qu'elles ne semblent pas structurées en doublet. Nous pouvons émettre trois hypothèses sur la nature des excitons en regard de notre modèle :

- L'absence de doublet pourrait être comprise en terme d'excitons neutres dont le splitting de structure fine serait grand devant $k_B T$, i.e. supérieurs à 3 meV . Dans ce cas, correspondant à la figure 1.22.d, la raie excitonique observée en PL -celle de basse énergie- devrait cependant être polarisée à 100%, ce qui n'est pas le cas dans les spectres mesurés ;
- La combinaison des termes d'échange pourrait par ailleurs annuler le splitting de structure fine (dans la limite de notre résolution spectrale de 1 meV pour ces expériences). Dans ce

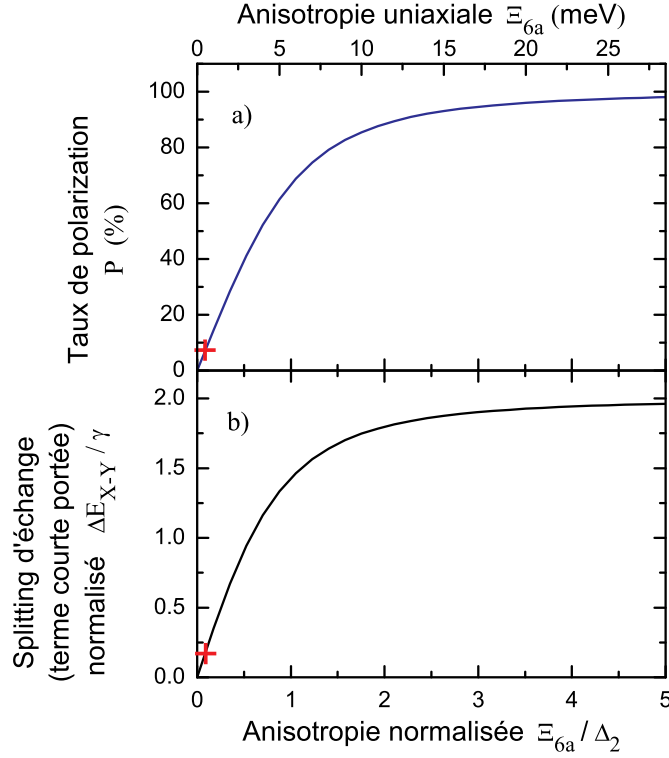


FIGURE 1.23 – Effet de l'anisotropie uniaxiale normalisée sur les deux propriétés de l'exciton neutre qu'elle gouverne : le taux de polarisation linéaire de l'absorption des excitons radiatifs (a), et la contribution du terme d'échange courte portée au splitting de structure fine (b). La croix rouge représente le cas d'une boîte quantique InAs "typique" pour la même valeur du terme d'anisotropie.

cas, correspondant à la figure 1.22.e, nous observerions bien en PL une raie de polarisation linéaire partielle. Cette hypothèse apparaît cependant peu probable car cette compensation ne se réaliserait que de manière exceptionnelle pour quelques boîtes quantiques parmi les 20 étudiées avec succès.

- Les boîtes quantiques pourraient aussi ne pas être neutres, et la photoluminescence serait alors émise par des excitons chargés. Dans le cas de boîtes quantiques chargées avec un seul électron, le trion négatif (figure 1.20.b) émet une raie de polarisation linéaire partielle.

La dernière hypothèse nous paraît la plus probable, et permet d'expliquer l'ensemble de nos résultats expérimentaux. Notons qu'en raison de la barrière AlN très élevée, le contrôle de l'état de charge d'une boîte quantique unique demeure à ce jour un challenge hors de portée, malgré les tentatives du groupe d'Y. Arakawa [Nak06b, Nak06a].

D'après l'équation 1.4, les taux de polarisation mesurés, très variables, peuvent être expliqués par des termes d'anisotropie uniaxiale inférieurs à 10 meV, correspondant à de faibles valeurs de l'élongation des boîtes ($L_y/L_x \approx 1.1$) ou de la déformation uniaxiale ($\epsilon_{yy}/\epsilon_{xx} \approx 0.3\%$, à comparer à la contrainte biaxiale de 2.5%). Ces deux hypothèses ont été invoquées par les deux autres groupes ayant travaillé sur ce sujet à la même période :

- Sur des échantillons de boîtes GaN/AlN sur substrat Si, crues par B. Damilano au CRHEA et analogues à celles que nous avons étudiées, O. Moshe et D. Rich ont montré par cathodoluminescence résolue en polarisation le rôle des fissures sur la contrainte locale et sur la polarisation de l'émission des boîtes quantiques [Mos08]. La densité de boîte étant importante, ce sont des ensembles de boîtes qui sont sondés, avec une très bonne résolution spatiale. Le taux de polarisation de la luminescence varie entre 18% à proximité immédiate des fissures, et 0% à 3 μm des fissures. L'effet de la contrainte est aussi sensible sur l'énergie moyenne d'émission des boîtes, et sur leur temps de vie radiatif [Sar07]. L'en-

semble de ces résultats est analysé dans le cadre d'un modèle bande-à-bande décrivant le confinement des porteurs et le mélange des bandes de valence.

- La seconde étude sur le sujet [Win07], réalisée en cathodoluminescence sur des boîtes quantiques (In,Ga)N/GaN isolées, montre aussi que leur luminescence est polarisée. Selon les boîtes quantiques étudiées, des doublets de raies polarisées à 100% ou des raies polarisées seulement partiellement sont observées en luminescence. Ces résultats sont modélisés dans le cadre d'un modèle bande-à-bande décrivant le confinement des porteurs, le mélange des bandes, et les états à quelques particules par une correction de l'énergie par le terme direct de l'interaction coulombienne (i.e. sans termes d'échange, et sans levée de dégénérescence du doublet radiatif) [Win08]; dans ce modèle, c'est en faisant varier l'élongation L_y/L_x des boîtes quantiques qu'est expliqué le taux de polarisation de la luminescence.

L'étude, expérimentale et théorique, de la levée de dégénérescence du doublet radiatif a pu être menée plus récemment, en 2010, avec des boîtes quantiques GaN/AlN de petite taille et émettant autour de 4 eV [Kin10]. Les doublets ont pu être observés sur un grand nombre de boîtes quantiques, permettant une étude statistique, et les splittings de structure fine mesurés sont importants (entre 2 et 8 meV). Il est noté que les intensités mesurées des deux raies de chaque doublet sont comparables, étayant l'hypothèse que la relaxation de spin des porteurs est plus lente que la recombinaison radiative, et que les intensités reflètent le taux de génération de chaque état d'exciton, indifférenciée en excitation non-résonante. L'extension du modèle de M. Winkelnkemper et A. Schliwa pour traiter la structure fine de l'exciton a été réalisée dans le même article. Les détails de l'implémentation du modèle ne sont pas donnés, mais il semble que l'interaction d'échange soit traitée en perturbation des états à une particule, même si les deux effets ont des échelles d'énergie comparables; il n'est pas précisé si c'est le terme courte portée (spécifique à GaN) ou longue portée de l'échange qui domine. Cette étude prédit des splittings de l'ordre de 1 à 2 meV pour les boîtes quantiques émettant à 3.6 – 3.8 eV que nous avons étudiées.

La levée de dégénérescence du doublet radiatif a aussi été observée en 2011 dans les boîtes quantiques (In,Ga)N/GaN [Aml11a], même si sa valeur (200 μ eV), inférieure à la largeur de raie (1.5 meV), paraît faible et peu dispersée, et nécessiterait une confirmation.

1.5 Conclusion

1.5.1 Discussion sur la nature, neutre ou chargée, des excitons

Revenons à la discussion initiale de cette section, concernant la nature de l'émission des boîtes quantiques, supposée par défaut émaner des excitons. Il apparaît que la preuve la plus irréfutable de l'observation d'excitons neutres X^0 est l'identification en luminescence de doublets radiatifs, constitués de deux raies polarisées linéairement à 100% et, d'après [Kin10], d'intensités comparables. Ceci n'a été démontré que dans les plus petites boîtes quantiques GaN/AlN. Certaines boîtes quantiques (In,Ga)N/GaN (figure 2.b de la référence [Win07], et [Aml11a]) rentrent peut-être aussi dans cette catégorie. Dans ces mêmes études, de nombreuses boîtes présentent des signatures incomplètes : des doublets de raies partiellement polarisées, ou l'absence de doublet.

Une autre signature considérée comme fiable de la nature neutre des excitons est l'observation de bi-excitons. Ceux-ci n'ont pas pu être observés dans nos échantillons, malgré de nombreuses tentatives. Les premières démonstrations [Kak04] ont mis en évidence la dépendance quadratique de son intensité en fonction de la puissance d'excitation, et l'émission en cascade du biexciton puis de l'exciton [Kak06]. L'effet du confinement vertical et latéral des boîtes quantiques a ensuite été montré [Sim08a], l'énergie de liaison étant négative pour les boîtes quantiques les plus hautes en raison du champ électrique qui aligne les dipôles des deux excitons appariés; a contrario, à hauteur fixée, la liaison du biexciton est plus forte si la taille latérale augmente et devient comparable à l'extension dans le plan d'un biexciton de puits quantique. Ces trois

travaux, ainsi que l'étude des biexcitons de boîtes en nanofils [Ren08], n'ont pas abordé la question de la polarisation de l'émission. Les études plus récentes couplant biexciton et polarisation sont plus complexes à analyser [Aml12, Kin09] : l'émission de l'exciton n'y est pas structurée en doublet, mais en une raie fortement polarisée (de l'ordre de 80%) ; la raie associée au biexciton est polarisée de manière colinéaire, comme attendu pour une cascade biexciton-exciton. Aucun des deux critères d'identification de l'exciton neutre X^0 n'est donc vérifié, et l'extension des résultats de la référence [Kin10] aux boîtes émettant à plus basse énergie laisserait supposer, en l'absence de splitting de structure fine mesurable pour l'exciton neutre, une émission non polarisée car les deux raies dégénérées auraient égale intensité. Notons par ailleurs deux points surprenants dans l'étude de S. Amloy *et al.* [Aml11b] : la dépendance de l'énergie de liaison du biexciton en fonction de la taille des boîtes est opposée à celle mise en évidence par D. Simeonov *et al.* ; la dépendance en température du rapport d'intensité entre exciton et biexciton suit une loi d'activation thermique, typique d'un équilibre thermodynamique entre excitons et biexcitons ayant au moins un degré de liberté de translation (fils, puits quantiques), alors que dans les boîtes quantiques pompées à saturation, la cascade d'émission implique que toutes les émissions de biexciton sont suivies d'une émission d'exciton et que les deux raies ont égale intensité. Une hypothèse pouvant expliquer cette situation est le faible confinement latéral, qui transforme probablement nos boîtes quantiques en disques analogues à un puits quantique, ne possédant pas un état fondamental de confinement de l'exciton bien séparé des états excités ; dans ce cadre, plusieurs excitons peuvent co-exister dans la même boîte quantique sans former de biexciton. Cela n'est pas a priori contradictoire avec une dépendance quadratique en puissance et une émission en cascade, ni même avec la présence d'un électron sur-numéraire dans la boîte quantique. Dans les expériences résolues en polarisation, les propriétés de mélange de bande peuvent être analogues à celle d'une boîte à fort confinement, donnant lieu à une polarisation des raies d'émission ; mais la structure fine des excitons et des biexcitons devient beaucoup plus complexe, car son interprétation doit inclure les états excités du confinement dont la séparation avec l'état fondamental est comparable avec les autres couplages en jeu ! Par exemple, cela impliquerait d'étendre notre modèle construit pour l'état fondamental du confinement à plus d'états confinés, passant d'une base excitonique à 12 états à une base à 24, 36, 48 états.

En conclusion, il apparaît que les boîtes quantiques étudiées dans ce chapitre, comme dans la plupart des travaux récemment publiés, sont chargées, et ne permettent pas d'observer en émission les excitons neutres et leur structure fine. Ceci est lié au caractère fortement isolant de la barrière d'AlN, qui rend inefficace l'évacuation des charges par activation thermique même à température ambiante. Seules des boîtes fortement confinantes semblent adaptées à l'étude spectroscopique des excitons neutres.

Notre savoir concernant les problématiques soulevées dans l'introduction de ce chapitre a progressé. Isoler une boîte quantique par microscopie est devenu aisé grâce aux développements expérimentaux. L'influence de l'environnement, identifiée par les expériences de diffusion spectrale, a pu être réduite, et les spectres de l'échantillon A830 sont par exemple plus épurés que ceux des premières générations d'échantillons. Les largeurs de raies mesurées sur ces boîtes quantiques sont limitées par la résolution du dispositif en 2006, et à l'état de l'art pour ce système. Les états de spin de l'exciton et la spectroscopie des excitons chargées ont été modélisés et comparés à ceux d'autres matériaux semiconducteurs, permettant une analyse éclairée des résultats expérimentaux. Le défi principal reste à ce jour le contrôle de l'état de charge des boîtes quantiques, pour permettre de réaliser la spectroscopie des différents complexes excitoniques.

1.5.2 Perspectives sur les émetteurs quantiques à base de boîtes quantiques GaN

L'originalité des boîtes quantiques GaN/AlN par rapport à leurs homologues InAs et CdTe est la robustesse de leur confinement, qui laisse présager le maintien de propriétés quantiques intéressantes jusqu'à température ambiante. Ceci constitue un fort intérêt du point de vue

fondamental. La tenue en température de l'intensité d'émission, jusqu'à température ambiante, est remarquable. Cependant à l'échelle de la boîte quantique unique, il reste des obstacles à franchir tant du point de vue de la maîtrise de l'environnement des boîtes (diffusion spectrale) que de leur interaction avec la matrice (élargissement et réplcation de raie par les phonons) pour pouvoir exploiter l'émission d'une boîte isolée jusqu'à température ambiante. Les plus hautes températures atteintes sont à ce jour de 140 K [Rol07] et 200 K [Kak06]. Le contrôle de l'état de charge de la boîte quantique reste de plus un challenge important, car le gap d'AlN rend inefficace les jonctions Schottky pour injecter des porteurs à la demande [Nak06a].

Du point de vue des débouchés de ces dispositifs, les applications proposées en cryptographie quantique sont, avouons-le, peu réalistes car la plage d'émission des boîtes quantiques, dans le proche ultra-violet, est incompatible avec l'utilisation de fibres optiques en télécommunication. De plus, si l'émission de photons dégroupés par des boîtes GaN et (In,Ga)N a été démontrée [San05, Jar09], l'évolution vers des protocoles plus complexes nécessitant des paires de photons intriqués en polarisation semble difficile. Elle nécessite en effet de contrôler d'une part la dégénérescence du doublet radiatif en annulant le splitting de structure fine et d'autre part l'anisotropie uniaxiale pour que les deux états radiatifs aient la même force d'oscillateur ; ce double contrôle est d'autant plus délicat qu'il dépend du mélange des bandes de valence A et B, trop proches en énergie ; si dans les boîtes InAs et CdTe le confinement permet d'augmenter l'écart entre excitons lourds et légers, il n'est en effet d'aucun effet sur les bandes A et B de GaN, de masses effectives identiques.

Les applications aux dispositifs d'émission de lumière sont eux beaucoup plus réalistes. Le contrôle de la contrainte permet par exemple de réaliser des émetteurs incohérents de lumière partiellement polarisée linéairement [Mos11], voire dans le futur totalement polarisée. Ces dispositifs permettraient de se substituer à l'utilisation de polariseurs pour filtrer (et perdre la moitié de la lumière émise) des émetteurs non polarisés. Une autre application possible concerne les nano-sources et capteurs opto-électroniques pour la plage bleu-ultra-violet, en couplant les boîtes quantiques à des structures photoniques. L'étude de ces nanostructures fait l'objet du prochain chapitre.

Chapitre 2

Résonateurs photoniques GaN/AlN pour l’ultra-violet

Dans le domaine de l’optoélectronique, le mariage des concepts les plus avancés des nanostructures semiconductrices et de la nano-photonique apparaît naturellement comme prometteur. Néanmoins, si nous prenons l’exemple des lasers semiconducteurs, un grand nombre d’applications sont simplement réalisées sur la base de lasers à barreau, de longueur millimétrique, et dont la couche active est constituée de matériau massif adapté à la plage de longueur d’onde ciblée. Dans le domaine des sources pour l’ultra-violet, les diodes électroluminescentes et les diodes laser mises sur le marché au cours des dernières années sont ainsi conçues sur des géométries simples et des couches actives d’alliages ternaires (Al,Ga)N de composition adaptée. Le développement de résonateurs nano-photoniques pour l’ultra-violet doit donc répondre à des problématiques spécifiques. Dans la première section de ce chapitre, nous nous proposerons donc de cerner les débouchés prometteurs de tels résonateurs, leurs perspectives d’applications et les nouveaux objets d’études fondamentales qu’ils rendront possibles.

Depuis 2009, nous avons réalisé et étudié des résonateurs membranaires de faible volume modal pour le proche ultra-violet, à base de matériaux nitrures, au sein d’un projet collaboratif¹ mené avec les équipes de F. Semond au CRHEA (Valbonne), P. Boucaud à l’IEF (Orsay) et B. Gayral à l’INAC (Grenoble). Notre objectif est le développement de briques de base de photonique pour l’ultra-violet et, dans un premier temps, la démonstration d’un laser à cavité photonique dont la couche active est constituée de boîtes quantiques GaN/AlN. Les sections 2 et 3 seront consacrées à l’étude de deux types de résonateurs : les microdisques et les cavités photoniques membranaires.

2.1 Problématique et état de l’art

2.1.1 Nano-lasers pour l’ultra-violet

La photonique pour les émetteurs nitrures Les semiconducteurs à base de nitrures se sont imposés comme les matériaux dominants dans le secteur des sources de lumière (diodes électroluminescentes (LED) et diodes laser (LD)) pour la plage spectrale s’étendant de l’ultra-violet au vert. L’apport de la photonique au développement de telles diodes concerne principalement l’extraction de lumière dans les LEDs, qui est un problème central car la lumière émise par les boîtes ou puits quantiques est fortement réfléchi au dioptré semiconducteur-air. L’amélioration du couplage entre l’émetteur et l’extérieur de l’échantillon peut être améliorée en utilisant la diffraction par un cristal photonique [Dav05, Dav06]. Néanmoins, ces travaux ont montré que le gain d’extraction par la photonique est comparable à celui obtenu par facettage des diodes et/ou par dépoli des surfaces.

1. Cette collaboration s’est construite autour du projet Sinphoni (2009-2011), coordonné par F. Semond.

Parallèlement à ces forts débouchés industriels, de nombreux travaux ont été consacrés au développement de sources moins conventionnelles de lumière ultra-violette, basées sur des géométries et des modes photoniques variés :

- Modes Fabry-Perot dans les microcavités planaires [Kak02, AV03a, Chr08, Hig08, Fau09b, Gui11b] (cf chapitre 3) ou de nanofils [Joh02, Gra05, Zim10]
- Modes de galerie de microfils [Sun08] et de microdisques [Cha99, Cho06, Sim07, Tam07]
- Modes de cavité au sein de cristaux photoniques membranaires [Ode04, Cho05, Ari07, Lu08b, Che10, Wu11, Ser12a, Ser12b, VT12]
- Modes photoniques localisés au sein de poudre, de guides d'onde ou d'ensembles de nanocolonnes, donnant lieu à un effet de laser aléatoire [Fal09b, Dup10, Bar11]

Les enjeux des nanolasers L'ensemble de ces nanostructures photoniques (hormis les cavités planaires) ont en commun un faible volume modal et un grand facteur de qualité. Le fort confinement des modes photoniques, dans un volume de quelques $(\lambda/2n)^3$ (où n désigne l'indice de réfraction du matériau), permet de réaliser différents régimes de couplage entre l'émetteur et le mode photonique :

- en **régime de couplage faible**, l'émission de photons par les émetteurs est irréversible, et la probabilité d'émission radiative, décrite par la règle d'or de Fermi, est identique à celle obtenue pour les mêmes émetteurs dans un échantillon planaire, en l'absence de structuration du champ électromagnétique. La discrétisation des modes photoniques au sein de la cavité permet cependant d'augmenter le facteur de couplage β entre l'émetteur et le mode d'intérêt, qui mesure la proportion de photons émis vers ce mode parmi tous les photons émis par l'émetteur. Ce facteur β est inférieur à 0.1% dans les lasers à cavité étendue, et peut atteindre 10 à 20% dans les micropiliers et les microdisques [Ulr07, Wit11], voire 90% dans les cavités photoniques membranaires [Nom07]. La condition nécessaire à ce régime est le fort confinement des modes photoniques.
- en **régime d'effet Purcell**, cas particulier du régime de couplage faible, l'émission de photons par les émetteurs est irréversible, mais la probabilité d'émission radiative, toujours décrite par la règle d'or de Fermi, est augmentée d'un facteur de Purcell F_p par rapport aux mêmes émetteurs dans un échantillon planaire [Gér98]. Ce facteur, qui mesure l'exaltation du couplage radiatif entre l'exciton et le photon, peut être calculé simplement en fonction du volume modal V_{eff} et du facteur de qualité Q du mode photonique [Gay01] :

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q(\lambda/n)^3}{V_{eff}}, \quad (2.1)$$

et peut atteindre des valeurs élevées (plusieurs dizaines) car il est proportionnel à Q . En plus du fort confinement optique, la seconde condition nécessaire pour réaliser ce régime est donc l'obtention d'un fort facteur de qualité pour le résonateur optique.

- en **régime de couplage fort**, le couplage radiatif entre l'exciton et le photon est plus fort que tous les couplages de ces deux particules avec l'environnement extérieur. La règle d'or de Fermi ne s'applique plus et le système à deux niveaux réalise des oscillations de Rabi. La force de ce couplage se mesure par le dédoublement de Rabi Ω entre les deux nouveaux états propres du système, qui est très faible dans le cas d'une boîte quantique unique couplée à une nanocavité, de l'ordre de 100 μeV [Rei04, Yos04, Pet05]. Pour une boîte quantique couplée avec un mode discret d'une microcavité optique, ce régime de couplage fort ne sera observé que si l'oscillation de Rabi est plus rapide que tous les phénomènes susceptible de briser cette évolution cohérente, tels que l'échappement du photon de la cavité, l'émission spontanée de l'exciton dans les autres modes ou la décohérence excitonique. Notons que le dédoublement de Rabi est très inférieur à celui qui caractérise le couplage fort dans les microcavités planaires (chapitre 3) car un seul état d'exciton est couplé à la cavité.

La frontière entre ces trois régimes n'est pas abrupte, et leur compréhension doit se concevoir dans le cadre théorique de l'électrodynamique quantique en cavité [And99]. En particulier, la

démonstration récente (et d'interprétation controversée) d'un laser à boîte quantique unique en régime de couplage fort réunit des figures de mérite exceptionnelles : $V_{eff} = 0.7(\lambda/n)^3$, $Q = 20000$, $\Omega = 68 \mu\text{eV}$ [Nom10].

Nous voyons ici que les "**nano-lasers**", à base de cavités de dimensions de l'ordre du micron, diffèrent des lasers "macroscopiques" non seulement par leur taille, mais aussi par les principes physiques qui régissent leur fonctionnement. Nous pouvons distinguer deux axes d'études dans les travaux récents :

- Les démonstrations sur cavités à boîte unique sont réalisées en couplant de manière déterministe une seule boîte, isolée au sein d'un plan de très faible densité, à un mode de cavité d'énergie ajustée à celle de l'exciton [Bad05, Dou08]. Elles constituent des systèmes-modèles idéaux pour sonder l'électrodynamique quantique en cavité.
- Les dispositifs intégrant au sein de la cavité des plans denses de boîtes quantiques, dans une approche plus traditionnelle pour réaliser un laser, tirent partie des deux premiers régimes énoncés ci-dessus pour abaisser le seuil du laser en comparaison d'une cavité macroscopique de couche active et de finesse identiques, et pour réduire son temps de réponse [Alt06]. Seulement quelques unes des boîtes quantiques sont alors couplées au mode de cavité. Les travaux consacrés à l'émission spontanée et stimulée d'une assemblée de boîtes légèrement hors résonance avec le mode photonique sont aujourd'hui en plein essor, tant du point de vue expérimental (sur le système InAs/GaAs, à basse température) [Hen05, Str06, Suf09] que théorique [Auf08, Str11, Lau11]. La démonstration de nanolasers à boîtes quantiques InAs fonctionnant à température ambiante a été réalisée sous pompage optique [Ide05], et plus récemment sous injection électrique [Mun12] ; dans ce cas, le lien entre les mécanismes mis en évidence à basse température et le fonctionnement réel du laser à haute température reste inexploré.

C'est dans cette deuxième perspective que s'inscrivent nos travaux sur les cavités photoniques à boîtes quantiques GaN/AlN. Notre système physique n'a à ce jour pas les qualités requises pour envisager, à court terme, d'étudier le régime de couplage fort entre une boîte isolée et une cavité. Il permet par contre de coupler des émetteurs excitoniques, qui conservent leurs propriétés radiatives et un fort confinement quantique jusqu'à température ambiante, à des modes photoniques de haut facteur de qualité.

Les applications potentielles des nanolasers pour l'UV Les applications des nano-lasers doivent être envisagées avec discernement. L'abaissement potentiel du seuil d'émission laser est un atout majeur de ces dispositifs. Cependant, le faible volume de la cavité, et donc la faible densité d'états des émetteurs couplés à la cavité, en font des lasers de faible puissance (de l'ordre du μW en mode continu). De plus, leur coût est plus élevé que les lasers à barreaux ou même à cavité verticale (VCSEL) émettant aux mêmes longueurs d'onde. Leur intégration en membrane en fait des lasers adaptés pour l'optique intégrée, pour lesquelles de faibles puissances suffisent, avec des applications envisagées dans le traitement tout optique de l'information, la communication quantique, même si l'infra-rouge est appelé à rester la plage spectrale de prédilection pour de tels dispositifs. Plus réaliste est leur utilisation en tant que sources pour des micro-capteurs (microfluidique, analyse d'air), car la plage spectrale ultra-violette, mal couverte actuellement, correspond au spectre d'absorption de nombreuses molécules organiques.

Les couches actives pour progresser vers l'UV Plusieurs types de couches actives à base de nitrures sont couramment intégrées dans des structures photoniques. La totalité des démonstrations d'émission laser sont basées sur une couche active en GaN massif [Cha06, Lai07, Lin11] ou sur une membrane en GaN massif intégrant une couche active à multi-puits quantiques In-GaN/GaN [Cho05, Mat08, Lu08a, Che10, Wu11, Lin11, VT12, Lu12b]. Ces dispositifs émettent donc au voisinage de 360 nm pour les premiers, et dans le bleu-violet pour les seconds. Pour

étendre la plage spectrale accessible plus loin dans l'ultra-violet, il est nécessaire d'utiliser des hétérostructures GaN/AlN. Les boîtes quantiques GaN/AlN, choisies dans nos travaux et dans ceux du Pr. Arakawa [Ari07], présentent une émission efficace jusqu'à 300 nm, y compris à température ambiante (cf section 1.1.3), et constituent donc des émetteurs bien adaptés a priori.

2.1.2 Cavités passives pour l'ultra-violet

Nous avons décrit les enjeux associés aux nano-lasers, couplant des émetteurs (par exemple des boîtes quantiques) à des cavités photoniques. Le développement de cavités passives (sans émetteurs) de faible volume modal, et plus généralement de cristaux photoniques à base de nitrures, présente aussi de nombreux intérêts. En effet, les cristaux photoniques les plus avancés sont aujourd'hui réalisés en silicium, GaAs ou GaP, et ne sont donc adaptés qu'à la plage spectrale infra-rouge. Ils permettent de réaliser de nombreux dispositifs fonctionnant aux longueurs d'onde de télécommunication [Noz12]. GaN est transparent jusqu'à 380 nm, et AlN l'est jusqu'à 270 nm, ouvrant la voie à des applications dans le visible et le proche ultra-violet. La grande sensibilité des résonances photoniques aux surfaces du semiconducteur permet d'imaginer des capteurs de très petit volume utile, au sein de cavités ou en structures plus complexes d'optique intégrée dites de "Lab-on-chip" [Cra06].

Par ailleurs, l'équipe de théoriciens de notre laboratoire a ces dernières années proposé d'utiliser cette grande plage de transparence pour la génération de seconde harmonique par ingénierie de l'accord de phase entre les ondes à 800 nm et 400 nm se propageant dans un cristal photonique [Cen07, Cir09]. Ces concepts ont fait l'objet d'une démonstration expérimentale de la génération de seconde harmonique, au laboratoire, dans des géométries non guidées à base de cristaux 1D et 2D [Tor04, Tor05, Coq05]. La fabrication de ces cristaux photoniques avec des motifs de petites dimensions est actuellement mieux maîtrisée que celle de verres non-linéaires tels que *KTP* ou *LiNbO₃* [Mol10] ; lorsque ces cristaux sont structurés pour réaliser l'accord de phase en optique guidée, ce sont des motifs microniques qui sont utilisés, de période grande devant la longueur d'onde, réalisant des inversions de polarisation périodiques [Can05, Ili08]. Notons que cette dernière approche a aussi été implémentée sur GaN [Cho03, Pez08].

La maîtrise de briques de base de photonique pour les nitrures ouvre donc des perspectives variées, qui dépassent la thématique des nano-lasers pour l'ultra-violet présentée dans ce chapitre.

2.1.3 Choix technologiques pour la réalisation de cavités membranaires

Après croissance de la couche mince incluant les émetteurs et la réalisation du motif photonique, la réalisation de membranes photoniques nécessite une attaque sélective de la couche immédiatement sous la membrane (couche tampon sacrificielle ou substrat). Le choix de ce procédé d'attaque sélective est central dans la conception d'ensemble du protocole de fabrication. Pour les membranes en GaN incluant des puits quantiques InGaN, c'est un super-réseau InGaN sur substrat saphir qui est le plus souvent utilisé comme couche sacrificielle, et attaqué par gravure photo-électro-chimique (PEC, cf figure 2.1.a). Sur substrat SiC, l'équipe du Pr. Arakawa utilise une technique originale de gravure PEC du substrat SiC (figure 2.1.b) ; la membrane ainsi libérée se courbe sous l'effet de la contrainte compressive et s'éloigne du substrat (si elle ne casse pas ...). Elle vient aussi de proposer une méthode alternative de report de substrat [Ser12b].

Dans nos travaux, l'idée de F. Semond a été d'utiliser la gravure humide HNA², de grande sélectivité entre Si(111) et AlN, pour libérer la membrane (figure 2.2). Cette technique a récemment été reprise par l'équipe de N. Grandjean à Lausanne [VT12]. Nous allons ici étudier et comparer deux types de structuration des motifs photoniques, réalisées par S. Sargent au CRHEA pour les croissances et les gravures humides, et D. Néel à l'IEF pour les lithographies et les gravures sèches :

2. HNA : mélange d'acide fluorhydrique et d'acide nitrique dilué dans de l'acide acétique [Ser10].

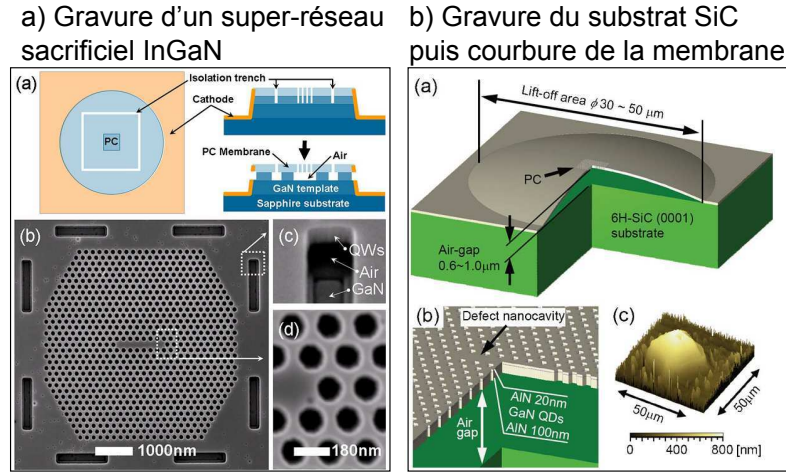


FIGURE 2.1 – Procédés de sous-gravure utilisés pour libérer la membrane photonique de son substrat. a) Gravure photo-électro-chimique d'un super-réseau InGaN, dont l'épaisseur contrôle la distance entre membrane et substrat dans le dispositif (d'après [Cho05] ; b) Gravure photo-électro-chimique très peu profonde du substrat SiC ; c'est la courbure de la couche de nitrure en compression sur SiC qui éloigne la membrane du substrat (d'après [Ari07]).

- dans l'approche dite "bottom-up", la lithographie électronique et la gravure sèche du substrat Si permet de définir le motif photonique avant croissance conforme d'AlN, qui reproduit avec des flancs assez verticaux le motif défini sur Si (brevet du CRHEA et de l'IEF [Dav09]) ;
- dans l'approche dite "top-down", plus classique, la croissance des couches de nitrures est réalisée sur un substrat Si non structuré, et le motif photonique est réalisé par lithographie électronique puis gravure sèche de la membrane et du substrat.

La réalisation des cristaux photoniques, en particulier dans l'approche bottom-up, est présentée en détail dans la thèse de S. Sergent [Ser09a].

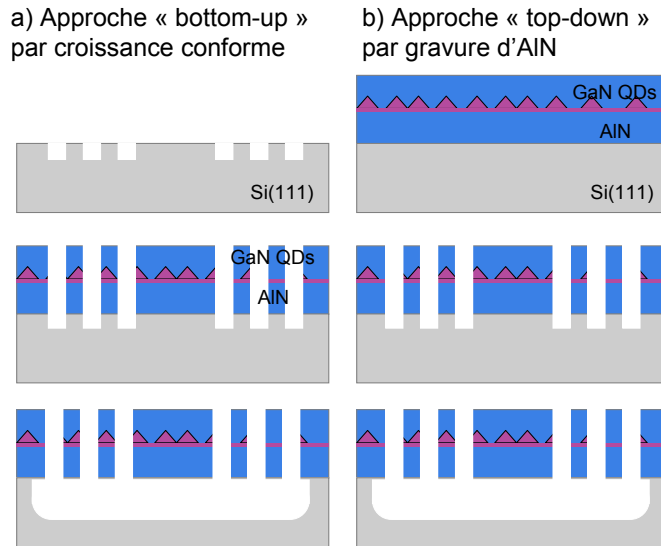


FIGURE 2.2 – Les deux approches utilisées pour réaliser les cristaux photoniques étudiés. a) Gravure peu profonde du Si(111) selon le motif défini par la lithographie électronique, puis croissance conforme d'AlN et des boîtes quantiques reproduisant ce motif, et enfin sous-gravure HNA du Si à travers les trous du cristal photonique ; b) Croissance "classique" d'AlN et des boîtes quantiques sur Si(111), puis gravure sèche de l'ensemble des couches selon le motif défini par la lithographie électronique, et enfin sous-gravure HNA du Si.

2.1.4 Cavités à microdisques

Les microdisques constituent une alternative intéressante aux cavités à cristal photonique, car ils sont plus simples à réaliser. Ils ne permettent cependant pas la même ingénierie des modes optiques que les cristaux photoniques. Ils possèdent des modes sur tout le spectre, comme détaillé à la section 2.2.1, au lieu d'un mode de cavité fondamental assorti de modes excités comme dans les cavités à cristal photonique. Nous l'utiliserons comme un avantage pour sonder le couplage des émetteurs aux modes optiques, même si c'est à terme un inconvénient pour réaliser un laser mono-mode. Par ailleurs, l'émission de lumière se fait par la tranche sur tout le pourtour du disque, et la collection de lumière, tant pour la spectroscopie que pour les applications envisageables, est peu efficace. Il est possible d'introduire un défaut sur le microdisque pour rendre son émission plus directionnelle, mais cela détériore en général le facteur de qualité [Che03]. Notons l'approche proposée récemment de forme de Limaçon, qui permet d'améliorer la directionnalité tout en conservant un facteur de qualité élevé [Wie08, Yi09].

Dans le domaine des nitrures, les microdisques ont été étudiés dans plusieurs groupes, avec des facteurs de qualité atteignant 2000 à 4000. Comme dans le cas des cavités membranaires, les couches actives sont généralement constituées de GaN massif [Cho06] ou de puits quantiques InGaN/GaN [Che03, Hab04, Sim07, Sim08b, Tam07, Tam09], permettant d'atteindre l'émission laser. L'injection électrique a été réalisée sur de tels microdisques, avec la démonstration de LED à microdisques, mais leur facteur de qualité est trop faible pour permettre de réaliser une diode laser [Tri08]. Les travaux que nous présentons ici sont les seuls sur des microdisques AlN, avec des boîtes quantiques GaN comme couche active, présentant des modes dans le proche ultra-violet.

2.2 Spectroscopie des microdisques AlN/GaN

L'étude des microdisques AlN à boîtes quantiques GaN/AlN nécessite de définir les modes propres du champ électromagnétique -les modes de galerie-, présentés dans la première section ci-après. Nous présenterons ensuite la mesure et l'analyse des modes de galerie en régime de faible excitation, reliant la finesse des modes observés à la qualité du procédé technologique de fabrication des microdisques et aux propriétés diélectriques de la couche active. Nous rechercherons enfin des signatures d'effets non-linéaires dans les spectres mesurés sous forte excitation.

2.2.1 Modélisation des modes d'un microdisque

Un microdisque est constitué d'un disque de rayon R , et d'épaisseur h , d'un matériau transparent pour la longueur d'onde de propagation de la lumière, et entouré d'un matériau de plus faible indice (en général de l'air) pour que la lumière y soit guidée. La figure 2.3.a présente l'un des microdisques AlN sur substrat Si étudié dans cette section. La propagation de la lumière au sein d'un microdisque est expliquée par la réflexion totale en incidence rasante au pourtour du disque, comme représenté schématiquement sur la figure 2.3.b. Elle est analogue à la propagation d'ondes acoustiques au sein des célèbres "galeries des soupirs", justifiant ainsi le nom de "Whispering Gallery Mode" (WGM) donné en anglais aux modes de galerie. Le disque est posé sur un pied, ici en silicium, dont le diamètre est suffisamment petit pour ne pas absorber la lumière se propageant "dans la galerie".

Nous avons suivi le traitement détaillé du problème des modes de galerie dans le formalisme des équations de Maxwell présenté dans la thèse d'E. Peter [Pet06]. Le confinement du champ électromagnétique dans un microdisque peut être traité de manière analytique dans le cadre de l'approximation des modes de galerie, consistant à séparer les modes guidés TE et TM. Cette séparation est exacte dans un guide d'onde planaire, mais devient une approximation dans un microdisque de diamètre fini, valable lorsque $R \gg \lambda/n$, où λ désigne la longueur d'onde de la lumière et n l'indice de réfraction du matériau. Dans ce cas, le champ électromagnétique $\vec{E}$

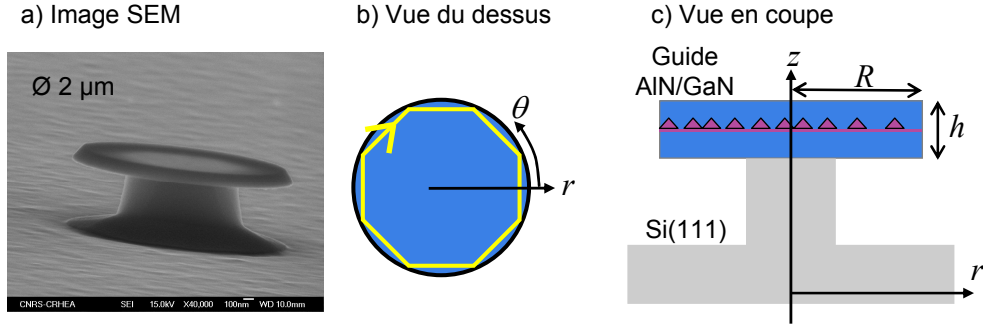


FIGURE 2.3 – a) Image de microscopie électronique à balayage d'un microdisque de diamètre $2 \mu\text{m}$ de l'échantillon A1497, constitué d'un guide d'AlN d'épaisseur 110 nm incluant 4 plans de boîtes quantiques GaN/AlN séparés de 10 nm [Mex11a, Mex11b]; b) et c) Représentation schématique du microdisque. Les rayons en jaune illustrent le mode de galerie confiné par la réflexion totale interne dans le disque.

devient séparable en (r, θ, z) et le problème devient scalaire. Le champ électromagnétique d'un mode TE0 peut ainsi être décrit par la seule composante radiale du champ électrique :

$$E_r(r, \theta, z) = E_0 J_m \left(\frac{\omega}{c} n_{eff} r \right) e^{jm\theta} f(z) \quad (2.2)$$

pour $r \leq R$, où $f(z)$ est la solution du problème du guide d'onde infini dans le mode TE0, n_{eff} est l'indice effectif de propagation dans le plan de ce mode guidé TE0 et J_m désigne la fonction de Bessel de première espèce et d'ordre m . $\hbar\omega$ est l'énergie du mode de galerie. A l'extérieur du disque ($r > R$), le champ décroît exponentiellement. A l'intérieur, la composante orthoradiale E_θ est inférieure d'un facteur de l'ordre de m à la composante radiale E_r , et la composante verticale E_z du champ électrique est nulle pour les modes TE. Cela justifie l'image physique d'une onde guidée se propageant en boucle dans la galerie du microdisque.

Les modes du microdisques sont indexés par trois paramètres : l'indice du mode guidé (TE0, TM0, TE1, ...), l'ordre radial n désignant le nombre de lobes de la fonction de Bessel en fonction de r , et l'ordre azimutal m égal à la moitié du nombre de lobes du champ électrique en fonction de θ . Le spectre des modes de galerie pouvant se propager dans le disque est discret. Dans la limite des grandes valeurs de m , le champ électrique s'annule en $r = R$ et les énergies des modes sont bien approximées par les solutions de l'équation $E_r(R) = 0$, soit $J_m(\omega n_{eff} R/c) = 0$. Les différentes solutions $\omega_{n,m}$ correspondent aux différents ordres radiaux n des modes optiques, illustrés par la figure 2.4 pour un disque de diamètre $2 \mu\text{m}$.

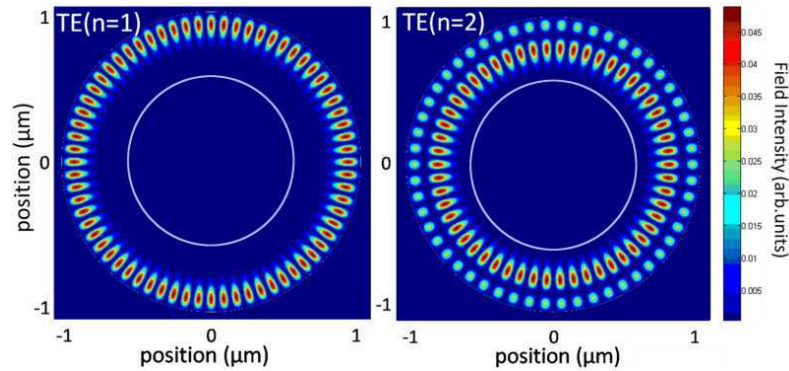


FIGURE 2.4 – Modes TE0 d'ordre radial $n = 1$ et $n = 2$ d'un microdisque de rayon $R = 1.03 \mu\text{m}$, et d'ordre azimutal $m = 33$ et 27 . Le cercle blanc représente le pied du microdisque.

2.2.2 Spectroscopie linéaire des microdisques

Dispositif expérimental La photoluminescence des microdisques a été étudiée avec le dispositif de μ PL. Avec M. Mexis³ et C. Brimont, nous avons modifié la collection de lumière pour l'adapter à la spécificité des microdisques, i.e. l'émission par la tranche. Les microdisques sont excités à 300 K, sans cryostat, en incidence normale par le laser continu à 266 nm (Crylas FQCW 266-50). Une lentille de collection de focale 40 mm couple la lumière émise par la tranche du microdisque à une fibre optique multimode en silice fondue, de diamètre 50 ou 200 μ m, dans une configuration $2f - 2f$. La fibre est couplée à la seconde entrée du spectromètre iHR 550, permettant de comparer les spectres obtenus en collection par la face et par la tranche.

Peigne de modes d'un microdisque AlN/GaN De nombreux microdisques ont été étudiés, qui diffèrent par leur diamètre, et le nombre et la densité des plans de boîtes quantiques qu'ils intègrent. Dans ce mémoire, nous avons choisi de nous concentrer sur le cas représentatif d'un "petit" et d'un "grand" microdisque d'AlN, de diamètres 2 et 5 μ m, intégrant 4 plans de boîtes quantiques GaN/AlN similaires à celles présentées sur la figure 1.2.

La figure 2.5 présente les spectres de deux microdisques de l'échantillon A1497 décrit sur la figure 2.3 [Mex11a, Mex11b]. Ils sont constitués de pics fins superposés à un spectre large, identique à celui des boîtes nues en échantillon planaire. Les pics sont associés aux modes de galerie du microdisque, qui découplent très efficacement la luminescence des boîtes quantiques vers l'extérieur du microdisque. Les pics sont en général beaucoup plus contrastés en détection par la tranche que par la surface, car les modes de galerie se propagent puis se découplent par effet tunnel dans le plan du microdisque.

3. Post-doctorant au sein de notre équipe de janvier 2010 à décembre 2011, principalement sur l'étude des structures photoniques dans l'UV.

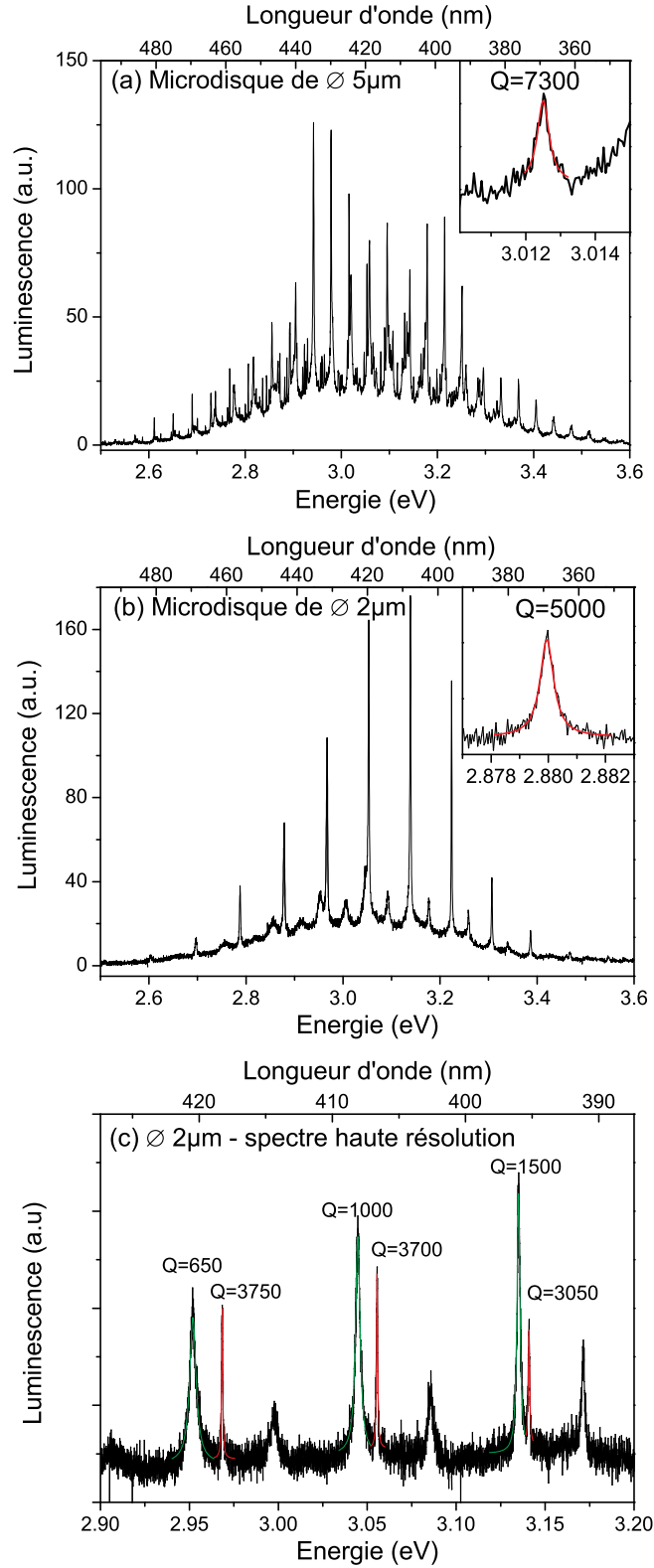


FIGURE 2.5 – Spectres d'émission de microdisques de l'échantillon A1497 de diamètres (a) 5 μ m et (b) 2 μ m, collectés par la tranche à 300 K, mesuré au réseau 1200 traits/mm. Les microdisques sont excités par le laser continu à 266 nm, avec une puissance de l'ordre de 1 $kW.cm^{-2}$. Le spectre (c) est mesuré sur le même microdisque de diamètre 2 μ m avec le réseau 3600 traits/mm, et corrigé du décalage du mode en fonction du temps (cf texte), pour permettre de déterminer la largeur spectrale des modes par ajustement par une lorentzienne (traits pleins). Les ajustements de modes d'ordre radial $n = 1$ (resp. $n = 2$) sont représentés en rouge (resp. vert).

Nous pouvons noter la périodicité des pics observés sur chacun des deux microdisques. Les modes les plus intenses sont régulièrement espacés, et correspondent à une famille de modes de même ordre radial et d'ordres azimutaux successifs. Ces modes sont visibles sur tout le spectre d'émission des boîtes quantiques, et nous profitons ici de la grande largeur inhomogène de ce spectre. En effet, les modes de galerie de microdisques sont en général sondés par la transmission d'une lumière blanche portée par une fibre optique ou un guide d'onde en couplage évanescent avec le disque [Cai00]. Lorsque des émetteurs ont été insérés dans le microdisque, la plage spectrale accessible a été restreinte à 3% de l'énergie des modes pour des microdisques à puits quantiques InP/InGaAs [McC92] ou dopés à l'erbium [Kip06], et jusqu'à 6% pour des microdisques InAs/GaAs sur miroirs de Bragg [Jon10]. Dans notre cas, les modes de galerie peuvent être mesurés sur une plage spectrale de 1 eV, soit 30% de l'énergie médiane d'émission. Nous pouvons noter que de telles séries de modes équidistants n'avaient pas pu être observés sur les microdisques GaN à puits quantiques InGaN étudiés jusqu'à présent [Che03, Hab04, Cho06, Sim07, Tam07], limitant les possibilités d'analyse de ces modes.

La séparation entre modes de galerie de même ordre radial, appelée intervalle spectral libre (ISL), a été comparée avec le résultat du calcul analytique présenté au paragraphe 2.2.1, dans le cas du microdisque de diamètre $2\ \mu\text{m}$ (figure 2.6.b). Nous avons considéré dans le modèle un microdisque en AlN, d'épaisseur $110\ \text{nm}$ égale à l'épaisseur nominale du guide d'onde. Pour reproduire la variation de l'ISL en fonction de l'énergie, nous avons tenu compte de la dépendance spectrale de l'indice d'AlN [AV03b]. Le seul paramètre ajustable pour reproduire les ISLs des deux premiers modes radiaux est le diamètre du microdisque, dont la valeur ajustée ($2.06\ \mu\text{m}$) est très proche de la valeur nominale confirmée par microscopie électronique.

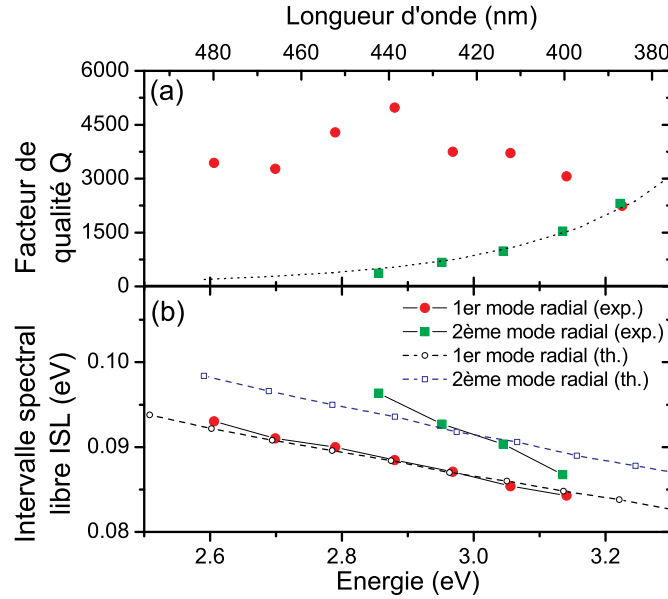


FIGURE 2.6 – Facteur de qualité (a) et intervalle spectral libre (b) mesurés pour les deux premiers modes radiaux du microdisque de diamètre $2\ \mu\text{m}$ présenté sur la figure 2.5. L'intervalle spectral libre déduit du modèle de la section 2.2.1 est représenté en ligne tiretée pour un microdisque de diamètre $2.06\ \mu\text{m}$. La ligne pointillée sur le panneau a) est proportionnelle au recouvrement du 2nd mode radial avec le piédestal du microdisque (cf texte).

Facteur de qualité Les facteurs de qualité de chaque mode de galerie sont estimés en ajustant le pic correspondant par une raie lorentzienne (figure 2.5). Pour les facteurs de qualité supérieurs à 3000, nous avons utilisé le réseau 3600 traits/mm du spectromètre. Lors des acquisitions, nous avons observé un léger décalage des pics au cours du temps, d'autant plus important que la puissance d'excitation est élevée. La largeur mesurée est donc plus faible pour de petits

temps d'intégration que pour de longs temps d'intégration. Afin d'obtenir des spectres avec un bon rapport signal à bruit, nous avons donc effectué des séries de spectres de courtes durées d'intégration. Nous avons ensuite calculé la moyenne de ces spectres en les corrigeant chacun du décalage, ajustable et supposé linéaire avec le temps, de manière à minimiser la valeur de la largeur de raie. Les spectres présentés en inserts des figures 2.5.a) et b), ainsi que la figure 2.5.c), présentent le résultat de ce traitement de données.

Les valeurs des facteurs de qualité mesurés, comprises entre 3000 et 5000 pour les modes d'ordre $n = 1$ du microdisque de $2 \mu m$ et atteignant 7300 pour le microdisque de $5 \mu m$, sont élevées. Si elles n'atteignent pas les valeurs-records ($Q \approx 10^5$) atteintes dans les microdisques en silice [Bor05], elles sont légèrement supérieures à celles mesurées dans les microdisques GaN/InGaN, (jusqu'à 4000 [Hab04, Sim08b]). Plus intéressante est la dépendance spectrale du facteur de qualité des modes, analysée pour le disque de $2 \mu m$ car il présente des familles de modes clairement identifiées. Elle nous permet d'évaluer les contributions respectives des trois types de processus limitant le facteur de qualité de modes photoniques :

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{rad}} + \frac{1}{Q_{diff}} + \frac{1}{Q_{abs}} \quad (2.3)$$

- Q_{rad} mesure les pertes radiatives liées à la géométrie de la cavité photonique. Pour un microdisque, Q_{rad} croît exponentiellement avec l'ordre azimutal m [McC92], et vaut de l'ordre de 10^4 (resp. 10^8) pour les microdisques de $2 \mu m$ (resp. $5 \mu m$) que nous avons étudiés.
- Q_{diff} mesure les pertes par diffusion de lumière, liée à des imperfections des faces du microdisque et en particulier de son pourtour. La rugosité de la périphérie du disque, mesurée par S. Sergent, est faible pour les microdisques définis par lithographie électronique comme celui étudié ici : $\sigma_r = 2 \pm 1 \text{ nm}$. D'après les modèles développés récemment pour l'étude des microdisques Si [Bor05], la valeur de Q_{diff} associée est supérieure à 10^4 [Ser09a].
- Q_{abs} désigne les pertes par absorption du microdisque. Si le matériau constituant le guide d'onde possède un coefficient d'absorption α , alors $Q_{abs} = 2\pi n_{eff}/\alpha\lambda$ [Slu93]. Dans notre cas, en négligeant les processus d'absorption de surface qui sont difficiles à quantifier, l'absorption de volume peut être liée à la présence des boîtes quantiques et à la fuite du mode de galerie dans le piédestal de Si. Ce terme doit présenter une forte dépendance spectrale en comparaison des deux précédents.

Nous interprétons les valeurs de Q pour le mode $n = 1$, présentées sur la figure 2.6.a), de la manière suivante : en-dessous de 3 eV , le facteur de qualité est relativement constant autour de 4000, et est limité par les termes radiatifs et de diffusion de lumière. Au-delà de 3 eV , Q décroît jusqu'à 2000 en raison de l'absorption des boîtes quantiques. Cette tendance a été observée sur plusieurs microdisques à boîtes GaN d'échantillons différents.

Le comportement du mode $n = 2$ est plus original, puisqu'il montre une augmentation du facteur de qualité avec l'énergie qui est incompatible avec une interprétation basée sur l'absorption des boîtes GaN. Il reflète en fait la superposition entre ce mode de galerie et le piédestal de Si : la figure 2.3.b,c) montre que le diamètre du pied de Si n'est pas assez petit pour prévenir tout recouvrement avec les modes $n = 2$. Ce recouvrement est d'autant plus important que la longueur d'onde de la lumière est élevée, i.e. à basse énergie. La courbe en pointillé sur la figure 2.6.a) montre la valeur de ce recouvrement, à une constante multiplicative près⁴, qui est superposée avec les valeurs mesurées. C'est donc l'absorption du Si qui limite le facteur de qualité des modes $n = 2$ de ce microdisque. Notons que cela n'est pas le cas du microdisque de diamètre $5 \mu m$, pour lequel nous observons de nombreuses familles de modes d'ordre radiaux plus élevés, à tel point qu'il devient difficile d'identifier les familles de modes de même ordre radial.

4. Le calcul quantitatif du facteur de qualité en fonction de l'énergie des modes et du diamètre du pied de Si nécessiterait une modélisation par éléments finis, de type FDTD, que nous n'avons pas développée.

Microdisques AlGa_{0.5}N à boîtes quantiques GaN Au cours du séjour de S. Sergent⁵ au L2C, nous avons étudié des microdisques contenant un ou plusieurs plans de boîtes quantiques, au sein d'un guide d'onde AlN ou Al_{0.5}Ga_{0.5}N. Le spectre d'un microdisque Al_{0.5}Ga_{0.5}N de diamètre 2 μm est présenté sur la figure 2.7. A puissance d'excitation comparable, l'énergie d'émission des boîtes quantiques est centrée à 3.4 eV au lieu de 3 eV pour les microdisques GaN/AlN. Ceci est interprété par la diminution du champ piézo-électrique lorsque la concentration d'Al dans la barrière des boîtes quantiques diminue [Ser09a]. Nous pouvons à nouveau identifier les modes d'ordre radial $n = 1$ et 2 du microdisque, et évaluer leurs facteurs de qualité. Pour les modes de basse énergie, nous mesurons des facteurs de qualité de l'ordre de 1500. Ceux-ci sont présumés dépendre principalement de la diffusion de lumière, i.e. de la qualité du procédé de fabrication. Cependant la rugosité des flancs, mesurée par S. Sergent, est comparable dans les deux types de microdisques, et nous pensons que l'absorption sous le gap de l'alliage Al_{0.5}Ga_{0.5}N, plus forte que dans AlN en raison du désordre d'alliage [Bru97], limite le facteur de qualité des modes même à basse énergie. A plus haute énergie, le facteur de qualité se dégrade plus rapidement que dans les microdisques AlN, et devient inférieur à 1000 pour des énergies supérieures à 3.3 eV, reflétant l'absorption des boîtes quantiques sur le flanc haute énergie de leur spectre de luminescence.

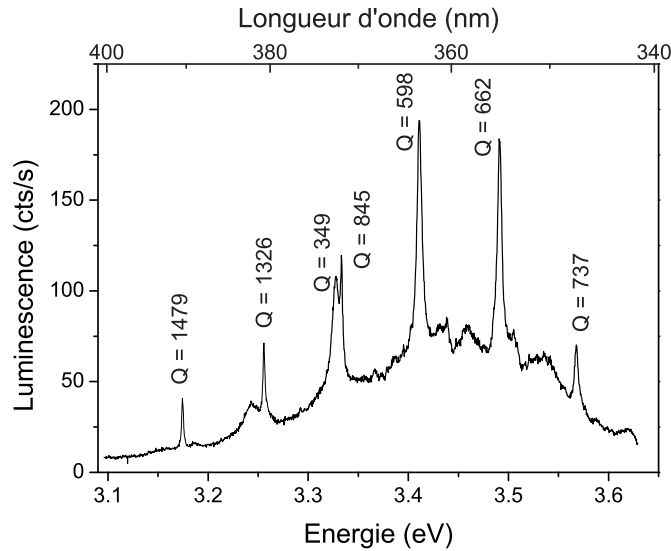


FIGURE 2.7 – Spectre d'émission d'un microdisque en Al_{0.5}Ga_{0.5}N contenant des boîtes quantiques GaN (échantillon A1287), de diamètre 2 μm . Le microdisque est excité par le laser continu à 266 nm, avec une puissance de l'ordre de 1 kW.cm^{-2} . L'émission est collectée par la tranche à 300 K, et mesurée au réseau 1200 traits/mm.

2.2.3 Émission des microdisques sous forte injection

L'un des objectifs de nos travaux est la réalisation d'un nano-laser à base de boîtes quantiques GaN/AlN. Des études sous fortes injections ont donc été menées sur les différents types de microdisques réalisés, de manière à mesurer et analyser leurs propriétés non-linéaires. L'excitation continue, seule disponible en 2010-2011 sur notre dispositif de μPL , a dans un premier temps été utilisée pour pomper les boîtes quantiques. La figure 2.8 présente l'évolution du spectre de luminescence des microdisques lorsque la puissance d'excitation varie de 5 ordres de grandeur, à 300 K. Nous observons que le peigne de mode du microdisque reste inchangé, sans modification notable de facteur de qualité ni décalage spectral. En particulier, nous n'observons pas l'émergence brutale d'un ou quelques modes de galerie, qui serait la signature d'un effet laser.

5. Doctorant au CRHEA sous la direction de F. Semond, il a pris part aux études de spectroscopie optique lors de son séjour au sein de notre équipe en janvier 2010.

Par contre, l'émission des boîtes quantiques évolue fortement en raison de l'écrantage du champ piézo-électrique dans les boîtes quantiques. D'après le modèle développé au sein de l'équipe par Richard Bardoux, Thierry Bretagnon et Pierre Lefebvre [Bar07, Chapitre 2], le décalage vers le bleu de l'émission, depuis 2.8 eV vers 3.5 eV, permet d'estimer que la densité de porteurs à la plus forte puissance d'excitation est supérieure à 10^{13} cm^{-2} . Cette estimation, valide pour un simple plan de boîtes quantiques GaN/AlN au sein d'une barrière très épaisse, doit être considérée avec précaution dans le cas des microdisques. Cependant, étant donné la densité de boîtes quantiques de l'ordre de 10^{11} cm^{-2} par plan de boîtes, nous avons probablement généré plusieurs dizaines de paires électron-trou par boîte. Cette forte densité de porteurs est surprenante si on se réfère à la situation dans un puits quantique sans champ électrique. Elle est due à la grande durée de vie radiative des boîtes quantiques les plus épaisses, même en situation d'écrantage, qui donne lieu à un remplissage de grosses boîtes beaucoup plus important que celui des petites boîtes pour un taux de génération donné. Il est donc possible que les boîtes les plus petites -celles émettant au-dessus de 3.6 eV, possédant de la force d'oscillateur et susceptibles de participer au gain (cf figure 1.3)- ne soit pas peuplées de plus d'une paire électron-trou par boîte⁶.

Pour augmenter le gain potentiel de nos couches actives, F. Semond a optimisé la croissance de boîtes quantiques plus petites et plus denses. Ces nouveaux microdisques ont pu être étudiés dans un régime d'injection encore plus fort que les précédents suite à l'installation sur le dispositif de μPL d'un laser impulsif à 266 nm. Nous présentons les résultats obtenus pour un microdisque contenant 12 plans de boîtes quantiques, excité ou bien par le laser continu, ou bien par des impulsions de forte énergie, de durée 400 ps et de fréquence 4 kHz (figure 2.9). Nous observons que l'énergie d'émission moyenne en excitation continue est décalée vers les hautes énergies d'environ 0.4 eV, attestant de la présence de plus petites boîtes quantiques. En excitation impulsif, la densité de porteurs est augmentée par rapport à la plus forte puissance accessible en excitation continue ; le spectre est centré à 3.85 eV et présente des modes de galerie visibles jusqu'à 4 eV, soit 310 nm. Les facteurs de qualité mesurés sur ce microdisque atteignent 4000 à 3.3 eV, et diminuent à plus haute énergie (1000 à 3.6 eV et 500 à 3.8 eV). L'aspect général des spectres confirme a priori l'hypothèse énoncée ci-dessus d'une modulation du spectre des boîtes quantiques, qui se décale lorsque la densité de porteurs augmente, par un peigne de mode indépendant de la puissance d'excitation. Cependant, la série de spectres en fonction de l'énergie des impulsions présentée sur la figure 2.10, jusqu'aux puissances les plus élevées accessibles sans endommager le microdisque, montre que le spectre est en fait très structuré. Celui-ci présente en particulier des pics fins comme celui identifié à 3.84 eV de facteur de qualité $Q = 1600$, dont il est difficile d'affirmer s'il apparaît à forte excitation ou s'il pré-existait mais n'était pas visible en raison du bruit des mesures⁷.

Même si nous n'observons pas d'émission laser, i.e. un gain supérieur aux pertes radiatives de la cavité, nous avons recherché des signatures du gain dans les spectres présentés :

- Dans la partie haute énergie du spectre, pour laquelle le facteur de qualité est déterminé par l'absorption des boîtes quantiques, le gain se traduirait par une diminution de cette absorption jusqu'à éventuellement atteindre la condition de transparence [Ros98, Chapitre 13.6]. L'augmentation associée du facteur de qualité en fonction du pompage a été observée dans les nano-lasers à base de boîtes quantiques InAs [Gay99, Hen05], y compris dans des nano-cavités ne donnant pas lieu à l'émission laser. Nous n'avons pas observé de telle augmentation de Q en excitation continue, et les prémisses de structuration du spectre à forte excitation impulsif sont pour l'instant difficiles à analyser.
- Lorsque pour un mode photonique donné, l'émission stimulée accélère la recombinaison

6. Dans un laser à puits quantique, le plasma électron-trou est à l'origine du gain et il faut donc élever le niveau de Fermi pour atteindre l'émission laser. Au contraire, il n'est pas nécessaire a priori d'injecter plusieurs paires électron-trou par boîte quantique dans les lasers à boîtes quantiques [Bim00].

7. Il ne nous a pas été possible de réaliser des acquisitions longues à la plus forte puissance d'excitation, car le microdisque s'est progressivement dégradé.

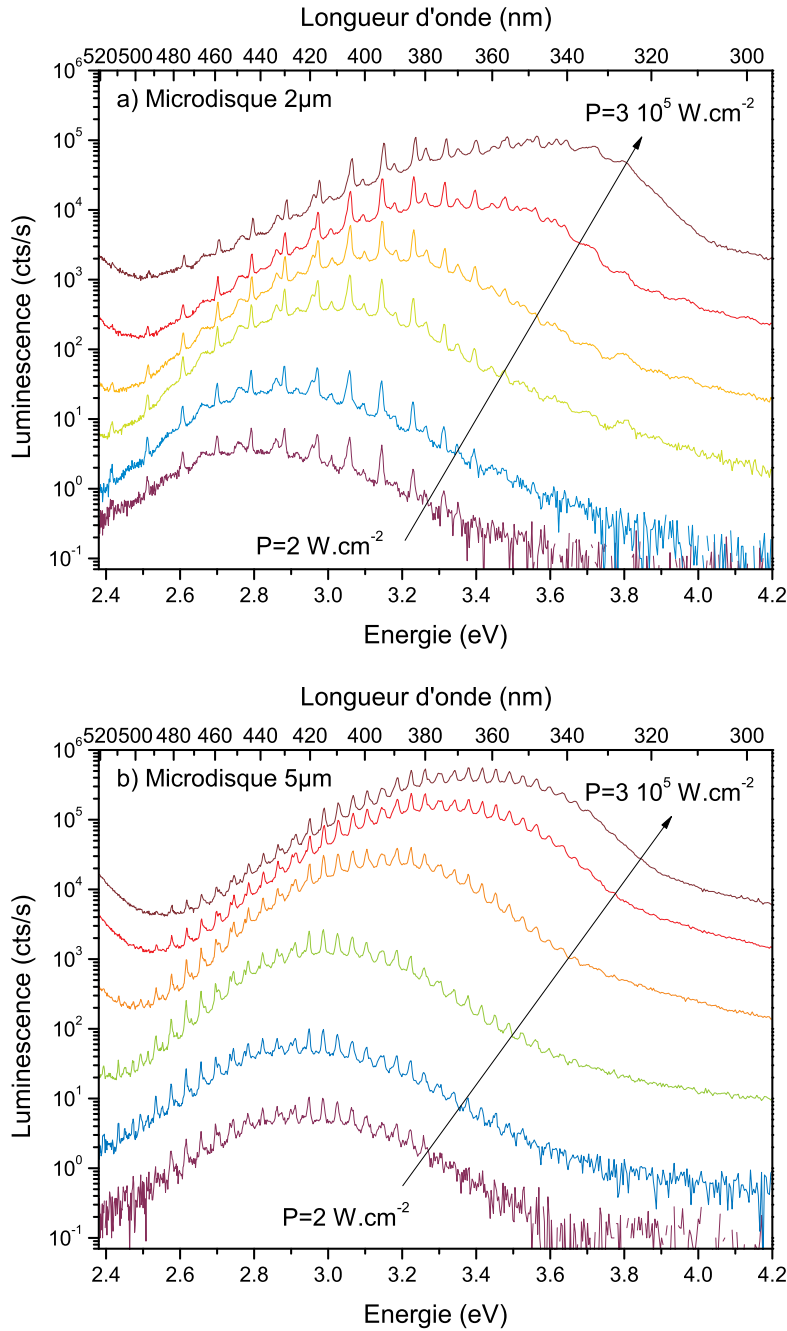


FIGURE 2.8 – Spectre d'émission des deux microdisques de diamètre 2 et 5 μm présentés sur la figure 2.5. Le microdisque est excité par le laser continu à 266 nm. La puissance d'excitation varie par décade dans la plage indiquée. L'émission est collectée par la tranche à 300 K, et mesurée au réseau 1200 traits/mm.

radiative et augmente sa probabilité en comparaison de celle des boîtes quantiques hors-résonance avec un mode, le rapport entre le signal de ce mode et le fond sous-jacent augmente. C'est ainsi que le gain peut être mesuré par la méthode d'Hakki-Paoli dans les lasers à cavité Fabry-Perot [Hak75]. Dans nos spectres, présentés en échelle logarithmique sur la figure 2.8, le rapport pic à fond des modes est remarquablement constant en fonction de la puissance d'excitation, montrant l'absence d'émission stimulée.

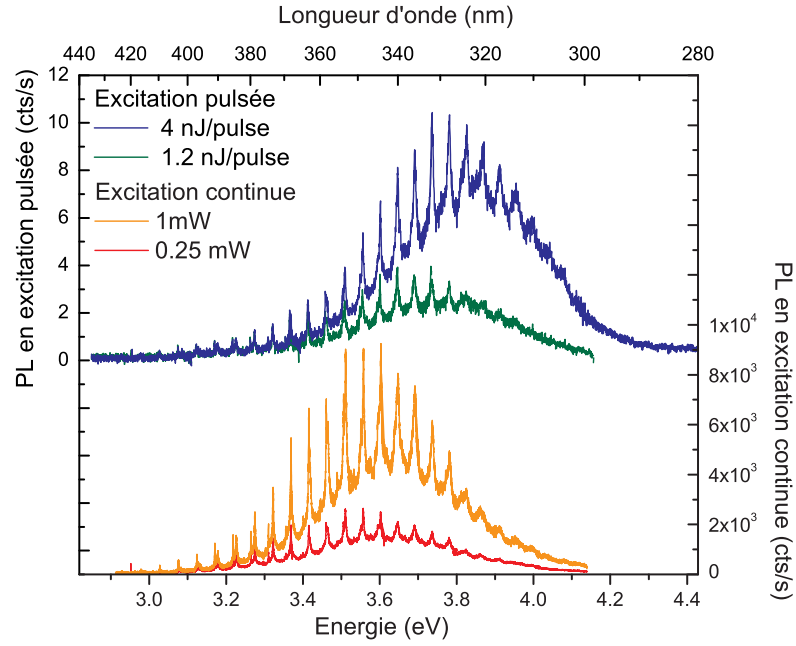


FIGURE 2.9 – Spectre d'émission d'un microdisque de diamètre $3.6 \mu m$ contenant 12 plans de boîtes quantiques GaN/AlN. Le microdisque est excité à $T = 300 K$ par les lasers continu et impulsionnel. L'émission est collectée par la tranche et analysée avec le réseau 1200 traits/mm.

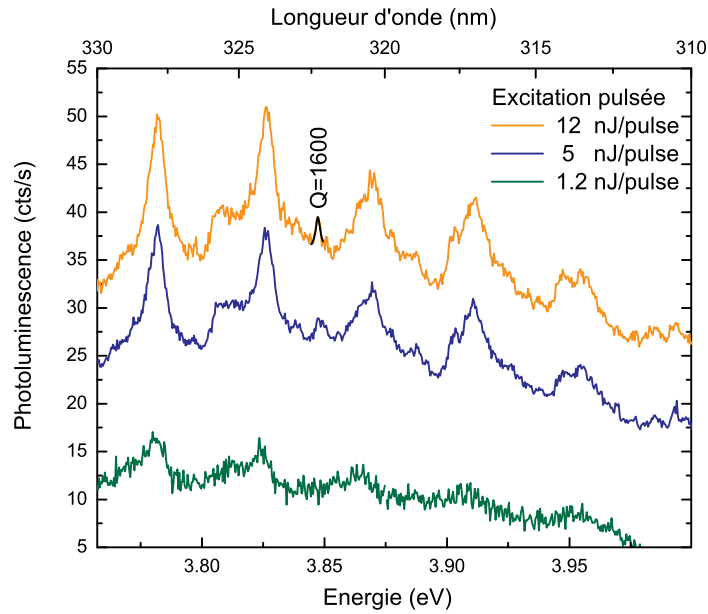


FIGURE 2.10 – Spectre d'émission du microdisque étudié à la figure 2.9 en fonction de l'énergie des impulsions d'excitation, dans la plage spectrale haute énergie. Les structures du spectre entre les modes de galerie les plus intenses sont reproductibles et ne correspondent pas à du bruit lié à l'acquisition du signal.

2.2.4 Synthèse

La spectroscopie linéaire des microdisques nous a permis d'établir la grande qualité du procédé technologique de fabrication (lithographie électronique et attaque RIE), avec des facteurs de qualité records pour des résonateurs photoniques dans le violet et le proche ultra-violet. L'analyse complète des facteurs de qualité de chaque famille de modes de galerie a donné accès aux processus physiques les limitant. La modélisation de l'intervalle spectral libre, par un trai-

tement analytique du confinement cylindrique de la lumière au sein d'un guide d'onde planaire, a permis l'identification complète des modes de galerie. Elle a aussi démontré que les propriétés diélectriques des microdisques sont essentiellement celles de l'AlN du guide d'onde. La partie imaginaire de l'indice effectif du guide, qui reflète l'absorption des boîtes de GaN et de la barrière d'AlN, est tout de même sensible à haute énergie et est responsable de la diminution observée du facteur de qualité.

Sous forte injection, nous sommes capable de générer une densité surfacique de porteurs importante, mais notre compréhension de l'effet Stark nous a enseigné que les porteurs se concentrent principalement dans les plus grosses boîtes quantiques, qui ne possèdent pas de force d'oscillateur. Notre interprétation de la non-observation d'une émission laser est donc la suivante : des modes optiques sont observés en résonance avec les petites boîtes quantiques, émettant au-delà de 3.6 eV, mais le nombre de boîtes résonantes avec ces modes est trop faible pour générer un gain exploitable. Les progrès réalisés pour obtenir des boîtes plus petites ont été notables, mais devront être poursuivis pour augmenter le gain spectral.

Cette interprétation est confirmée par la modélisation plus précise du seuil de nos nanolasers, tenant en particulier compte de l'effet Purcell, réalisée par B. Gayral au sein de notre collaboration, et présentée pour le cas d'une cavité à cristal photonique à la fin de la référence [Née11]. En tenant compte du temps de vie des porteurs dans nos boîtes quantiques, pour un facteur de qualité 4000, nous estimons atteindre un facteur de Purcell intéressant dans nos microdisques (estimé supérieur à 1, mais non encore mesuré) ; par contre, le nombre de boîtes quantiques résonantes avec un mode et nécessaires pour permettre l'effet laser dans une cavité est probablement de 10 à 100, alors que nous l'estimons entre 1 et 5 dans nos échantillons.

L'obtention de l'effet laser est donc aujourd'hui conditionnée à une amélioration des propriétés de gain de la couche active à boîtes quantiques GaN/AlN, concernant la densité de boîtes quantiques et le nombre de plans de boîtes insérées dans la membrane, la réalisation de boîtes quantiques plus petites en moyenne et la réduction de la largeur inhomogène de l'émission.

2.3 Cavités photoniques membranaires AlN/GaN

L'étude des cavités photoniques membranaires nécessite de présenter en préambule la classification et la structure de leurs modes optiques, qui feront l'objet de la première section de cette partie. Nous présenterons ensuite la mesure et l'analyse des modes photoniques, et nous relierons comme dans le cas des microdisques la finesse des modes observés à la qualité du procédé de fabrication. Nous montrerons l'apport des techniques d'imagerie de μ PL à l'identification et la visualisation des modes.

Les études sous forte excitation des cavités photoniques membranaires ont été moins riches d'enseignement que celles réalisées sur les microdisques, en raison de la plus grande sensibilité de ces structures aux forts flux d'excitation, mais aussi parce que les peignes de modes associés aux microdisques permettent de mieux sonder tout le spectre des boîtes quantiques en régime non-linéaire. Le choix a donc été fait de ne pas présenter ces études dans le cas des cavités photoniques.

2.3.1 Classification des cavités photoniques et des modes associés

Structure de bande d'un cristal photonique 2D infini Comme dans le cas des microdisques, les cristaux photoniques membranaires reposent sur le confinement de la lumière selon l'axe vertical, dans un guide d'onde d'épaisseur commensurable avec la demi-longueur d'onde de la lumière. Dans le plan du guide, un réseau périodique 2D d'indice de réfraction, correspondant le plus souvent à un réseau de trous à travers la membrane, structure les modes optiques en bandes. De manière analogue au cas des électrons se propageant dans le potentiel périodique des ions d'un cristal, le théorème de Bloch permet de définir les modes photoniques par leur indice

de bande n , leur vecteur d'onde $\vec{k}$ dans la première zone de Brillouin, et leur fonction d'onde de Bloch $\vec{E}_{n,\vec{k}}(\vec{r})$ à l'intérieur de la maille du cristal photonique.

Pour les cristaux photoniques à réseau triangulaire étudiés au sein de notre collaboration, la première zone de Brillouin est hexagonale et la structure de bande est traditionnellement représentée par la dispersion d'énergie des modes selon les trois côtés $\Gamma - K$, $\Gamma - M$ et $K - M$ de la zone de Brillouin irréductible (figure 2.11). Ce motif de cristal photonique permet d'ouvrir un gap en polarisation TE, dont la largeur est petite ($0.023 a/\lambda$) en raison du faible contraste d'indice entre AlN et l'air. Il n'y a pas de gap en polarisation TM. Les modes situés en-dessous du cône de lumière (indiqué en traits tiretés) sont les *modes guidés*, parfaitement confinés dans la membrane et donc sans perte dans le cas d'un cristal idéal. Les modes situés au-dessus du cône de lumière sont les *modes radiatifs*, et sont couplés aux ondes planes se propageant dans l'air.

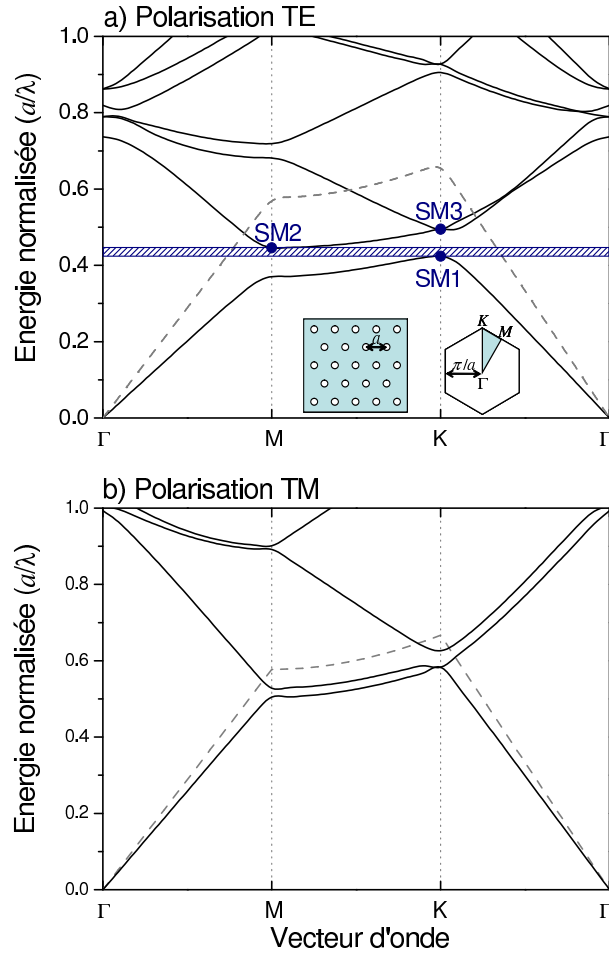


FIGURE 2.11 – Dispersion des modes photoniques au sein d'un cristal photonique membranaire en AlN, avec un réseau triangulaire de trous, en polarisation TE (a) et TM (b). Le calcul a été réalisé par la méthode de décomposition en ondes planes par D. Néel et X. Checoury (IEF). Les paramètres sont l'épaisseur $e = 70 \text{ nm}$ de la membrane, le diamètre des trous relatif à la période du réseau $r/a = 0.294$, et l'indice effectif des modes guidés dans la membrane $n_{eff} = 1.8$. Le gap photonique ouvert en polarisation TE est représenté par le rectangle hachuré, et les extrémas de bande autour du gap par des cercles. Le cône de lumière dans l'air est indiqué par la ligne tiretée. En insert de (a) sont présentés le réseau triangulaire de trous, la zone de Brillouin hexagonale, et sa partie irréductible (triangle bleu).

Modes résonants dans les cristaux photoniques Deux approches peuvent être poursuivies pour créer des modes résonants au sein d'un cristal photonique : l'optimisation de la dispersion

des bandes au voisinage des points de haute symétrie (Γ , K ou M) pour que la vitesse de groupe y soit minimale (i.e. une singularité de la densité d'états au voisinage de l'énergie de ces "modes lents") [Bab08], ou bien la création de défauts dans le cristal 2D, donnant lieu à des modes de cavités (i.e. une discrétisation de la densité d'états des modes optiques). Les deux approches ont permis de réaliser des lasers à cristaux photoniques à émission par la surface (PCSEL), et sont par exemple comparées dans la référence [Let05]. Ces types de structures sont présentés sur la figure 2.12, en mettant l'accent sur la dimensionnalité des modes concernés : 2D pour les modes lents au sein de cristaux sans défauts, 0D pour les modes de cavité de géométrie hexagonale (Hx) ou linéaire (Lx). Le cas plus complexe des cavités dites "Notomi", du nom de leur inventeur [Kur06], est aussi présenté : le mode de cavité 0D est créé au sein d'un guide d'onde 1D, de manière à rendre le confinement "plus doux" et ainsi augmenter le facteur de qualité du mode, comme présenté en détail dans la section 2.3.3.

Toutes les structures présentées sur cette figure sont le fruit de la collaboration entre le CRHEA (croissance), l'IEF (modélisation, lithographie et attaque), et l'INAC et le L2C pour la spectroscopie optique. Il faut souligner la finesse des détails du motif lithographié sur le substrat de silicium, et ensuite reproduit par croissance conforme d'AlN sur Si. Les périodes et rayons des trous sont en effet deux à trois fois plus petits que pour les cristaux photoniques Si, GaP ou GaAs optimisés pour le proche infra-rouge. Nous présenterons dans les prochaines sections les résultats les plus importants que nous avons obtenus, démontrant la fabrication de cavités à l'état de l'art en termes de facteurs de qualité, et comparant les deux approches mises en œuvre successivement dans le projet et décrites sur la figure 2.2.

2.3.2 Spectroscopie des cavités hexagonales et linéaires

Première génération de cavités bottom-up Pour illustrer la structuration des modes 2D et 0D au sein d'un cristal photonique incluant une cavité, la figure 2.13 présente les spectres de trois cavités hexagonales H1, H2 et H3 de tailles croissantes [Gui12b]. Dans cet échantillon réalisé en 2009 au début de notre collaboration, et étudié au L2C avec S. Rennesson⁸, les paramètres ($a = 170 \text{ nm}$ et $r/a = 0.29$) du cristal photonique 2D ont été optimisés par l'IEF de manière à obtenir le gap photonique le plus large possible (190 meV) autour de 3.1 eV , soit $\lambda = 400 \text{ nm}$. L'épaisseur du guide d'onde en AlN ($e = 70 \text{ nm}$) garantit un confinement vertical monomode. La membrane comprend deux plans de boîtes quantiques GaN/AlN, l'un optiquement actif au milieu du guide et l'autre en surface, destiné aux mesures de caractérisation. La structure de bandes de ce cristal photonique est celle présentée sur la figure 2.11. Les cavités H2 et H3 sont dites modifiées, car le diamètre de la rangée de trous entourant la cavité a été réduit (15 nm mesuré au lieu de 50 nm pour les autres trous), suivant ainsi la technique désormais populaire développée dans le groupe du professeur S. Noda pour améliorer le facteur de qualité de la cavité [Aka03]. Notons que le diamètre des trous en surface de la membrane d'AlN est plus petit que celui des trous réalisés dans le substrat Si, en raison de la croissance latérale d'AlN qui accompagne la croissance verticale dite conforme. La fabrication des échantillons et leur caractérisation est présentée en détail dans la thèse de S. Sergent [Ser09a, Chapitre 4].

Les spectres des trois cavités H1, H2 et H3 sont constitués de pics fins associés aux modes photoniques, superposés au spectre large d'émission à 300 K des boîtes quantiques, comme dans le cas des microdisques. Trois des modes observés (SM1-3) sont communs à tous les dispositifs réalisés sur la base du même cristal photonique 2D, mais avec des cavités de géométries différentes ; leurs énergies (2.90 , 3.09 et 3.28 eV) coïncident avec les modes lents identifiés dans la structure de bande du cristal 2D sans cavité autour des points M et K (figure 2.11). Ils sont la signature de l'existence d'extremas de bandes conformes au modèle, et donc de l'ouverture du gap photonique. Pour les cavités de taille supérieur ou égale à H2, des modes additionnels sont observés. Ils sont nombreux et peu distincts sur la cavité H3, mais bien contrastés sur la cavité

8. Stagiaire de 3ème année de licence en juin et juillet 2009.

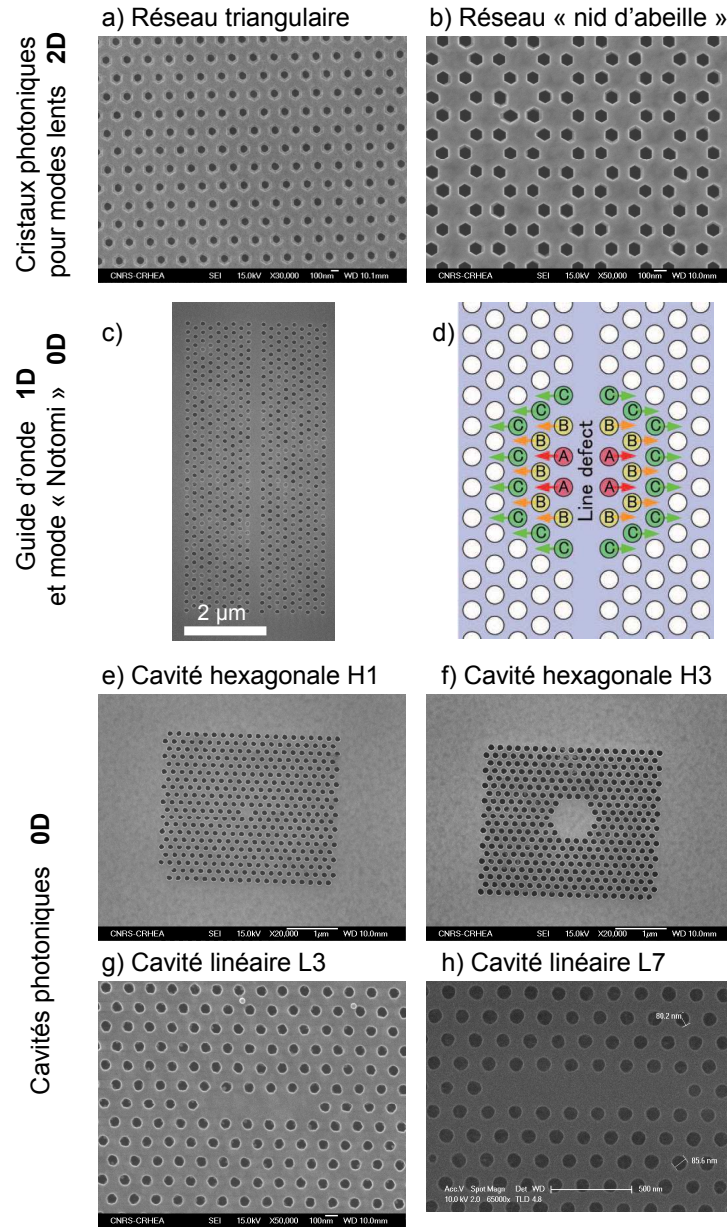


FIGURE 2.12 – Classification des modes de cristaux photoniques membranaires étudiés. Images de microscopie électronique d'échantillons réalisés par le CRHEA et l'IEF et étudiés au L2C. a) et b) Modes lents 2D (échantillons A1558 et A1537, approche bottom-up); c) Mode guidé 1D et mode confiné 0D de type "Notomi" (échantillon A1507, approche top-down); d) Schéma d'une cavité "Notomi", d'après [Kur06]; e) et f) Cavités hexagonales (échantillon A1383, approche bottom-up); g) et h) Cavités linéaires (échantillons A1581, approche bottom-up, et A1718, approche top-down).

H2. Ils sont associés aux modes de cavité 0D confinés dans le défaut généré au sein du cristal 2D. Ils sont spécifiques à chaque cavité. Dans ce premier échantillon étudié, les facteurs de qualité sont peu élevés, et atteignent $Q = 350$ pour les cavités les plus réussies. Nous supposons qu'ils sont limités par l'irrégularité des trous, visible sur les images de microscopie électronique, et par le profil incliné des flancs des trous qui induit un couplage entre modes confinés TE et modes propagatifs TM.

Seconde génération de cavités bottom-up L'augmentation du facteur de qualité des cavités membranaires a été le fruit d'un long travail de fabrication, de caractérisation structurale et

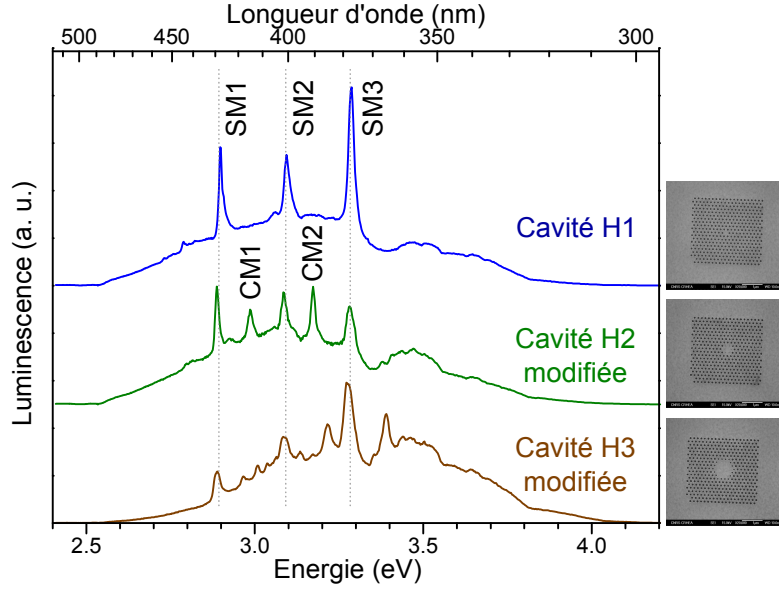


FIGURE 2.13 – Spectres de μ PL de trois cavités hexagonales de tailles différentes, au sein de cristaux photoniques 2D identiques (échantillon A1383, approche bottom-up). L'émission est collectée par la surface à 300 K. Les cavités sont excitées par la troisième harmonique du laser titane-saphir (impulsions de 2 ps et de fréquence 82 MHz) avec une puissance de l'ordre de 100 W.cm^{-2} . Les images de microscopie électronique des trois cavités sont juxtaposées aux spectres.

d'imagerie électronique des membranes réalisées, puis de spectroscopie systématique des cavités. Du point de vue de la maîtrise des gravures dans l'approche bottom-up, la présence d'éléments d'AlN a été identifiée sous la membrane, qui provenaient d'une croissance sur l'intérieur des trous réalisés dans le silicium. S. Sergent a donc divisé la croissance en deux étapes sur le substrat préalablement gravé ; une première couche de 15 nm d'AlN est déposée, suivie de la sous-gravure par voie humide (HNA) du silicium ; la membrane est alors complétée par 85 nm d'AlN. La membrane, d'épaisseur $e = 100 \text{ nm}$, est plus épaisse que pour l'échantillon de première génération, et inclut deux plans de boîtes quantiques séparés d'une barrière de 10 nm. Du point de vue de la conception des motifs photoniques, nous avons opté pour des cavités linéaires L3, L5, L7 dont les deux trous situés de part et d'autre de la ligne de défaut sont légèrement décalés latéralement.

Les spectres de deux cavités de l'échantillon A1581 sont présentés sur la figure 2.14, pour deux valeurs proches du paramètre r/a [Née11]. Les spectres font apparaître le mode de cavité (CM1), dont le facteur de qualité vaut 1800 dans le cas $r/a = 0.23$, ainsi que deux modes lents 2D (SM1, SM2) associés aux bords de bande du cristal photonique et de moindre facteur de qualité (270). Le facteur de qualité est plus faible ($Q=1170$) pour la cavité avec $r/a = 0.25$. Pour optimiser le facteur de qualité, le décalage d des trous au bord du défaut a été varié, et nous présentons ici les cavités de paramètre $d/a = 0.2$ qui ont donné les meilleurs modes de cavité. Les simulations FDTD montrent que le facteur de qualité du mode fondamental de la cavité dépend très fortement de ces deux paramètres, et est optimal pour $r/a = 0.23$ (cf insert) et $d/a = 0.2$, en accord avec les résultats expérimentaux⁹. La différence d'un facteur 2.5 entre le facteur de qualité nominal ($Q=4810$) et la valeur mesurée ($Q=1800$) est encourageante, et montre que les imperfections du procédé de fabrication ne détériorent pas irrémédiablement le mode de cavité.

9. Les amplitudes des pics sur les spectres simulés par FDTD, en plaçant un point source au centre de la cavité et en détectant à la normale de l'échantillon, ne peuvent se comparer directement avec les spectres de photoluminescence.

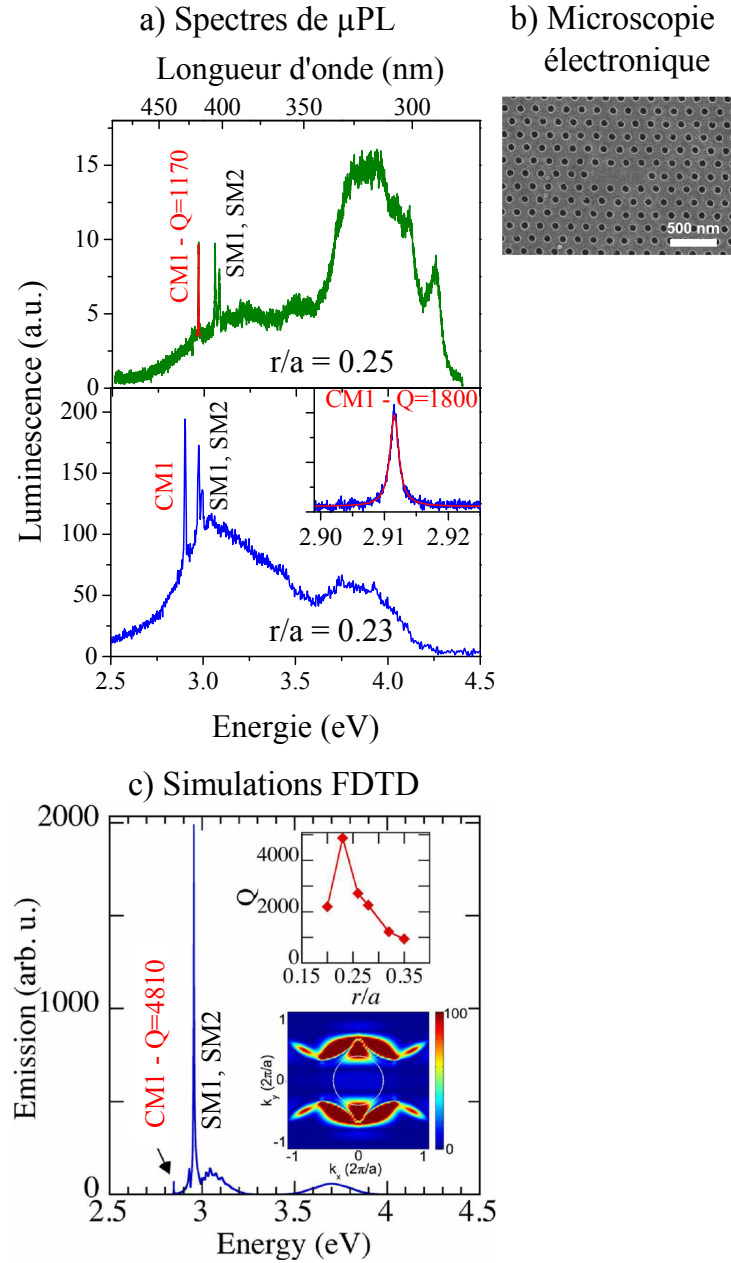


FIGURE 2.14 – a) Spectres de μ PL de deux cavités linéaires L3 (échantillon A1581, approche bottom-up), pour deux valeurs du paramètre r/a . L'émission est collectée par la surface à 300 K. Les cavités sont excitées par le laser continu à 266 nm, avec une puissance de l'ordre de 1 kW.cm^{-2} . b) Image de microscopie électronique de la cavité pour $r/a = 0.23$. c) Spectre simulé par FDTD de la cavité L3 modifiée pour $r/a = 0.23$ (IEF, d'après [Née11]) ; en inserts, dépendance du facteur de qualité en fonction de r/a d'après les simulations, et transformée de Fourier spatiale du mode confiné CM1 (le cercle blanc indique le cône de lumière).

Comparaison avec les cavités top-down D. Néel a pu en 2011 optimiser la lithographie des motifs de cristaux photoniques sur AlN, puis leur gravure sèche, pour réaliser des échantillons dans l'approche top-down (figure 2.2). Nous avons alors été en mesure de comparer les deux protocoles de fabrication. Il est néanmoins difficile d'obtenir au sein d'une série les cavités de meilleurs facteurs de qualité, i.e. dont les trous sont de forme la plus régulière et les surfaces sont les plus lisses, pour les mêmes paramètres géométriques dans les deux approches. Ce sont donc plutôt les facteurs de qualité "typiques" que nous comparons ici.

La figure 2.15 montre le spectre d'une cavité L7 réalisée par l'approche top-down. Par com-

paraison avec les autres cavités présentes sur cet échantillon, nous pouvons identifier deux modes de cavité 0D (CM1 et CM2), ainsi que les modes lents 2D (SM1), délocalisés sur tout le cristal. Notons que deux modes sont ici confinés dans le défaut, qui est plus long que celui des cavités L3. Le facteur de qualité du mode fondamental de la cavité est de 1000, et celui du mode d'ordre supérieur de 650. Notons que le mode lent SM1 présente aussi un bon facteur de qualité ($Q=550$), attestant l'homogénéité du motif 2D dans la zone sondée. Ces chiffres sont comparables à ceux mesurés pour les échantillons réalisés dans l'approche bottom-up, montrant que les deux protocoles ont aujourd'hui atteint une maturité analogue.

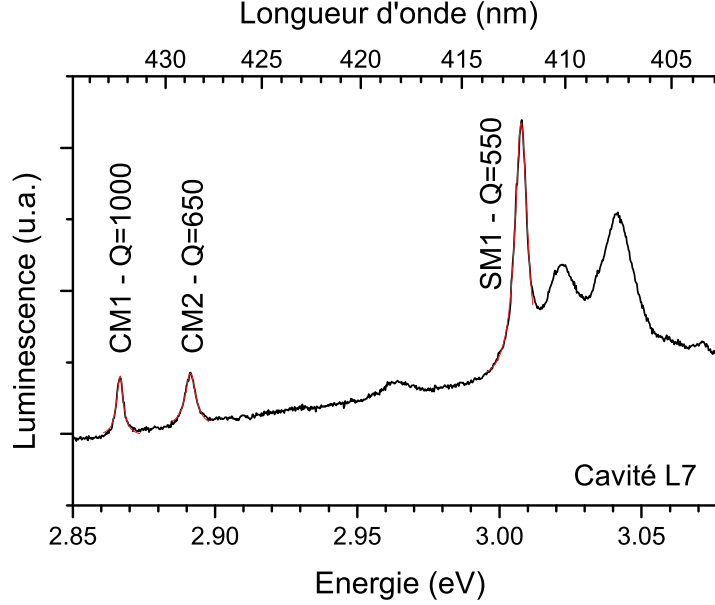


FIGURE 2.15 – Spectre de μ PL d'une cavité linéaire L7 (échantillon A1719, approche top-down), de paramètres $r/a = 0.35$ et $d/a = 0.2$. L'émission est collectée par la surface à 300 K. Les cavités sont excitées par le laser continu à 266 nm, avec une puissance de l'ordre de 300 W.cm^{-2} .

2.3.3 Imagerie des cavités Notomi

Conception des cavités de type "Notomi" L'augmentation du facteur de qualité des cavités de cristaux photoniques membranaires nécessite de bien comprendre les causes de fuite des photons de la cavité. Comme dans le cas des microdisques (Eq. 2.3), elles sont la somme des pertes radiatives intrinsèques liées à la géométrie utilisée, des pertes par diffusion de lumière en raison de la rugosité ou de l'irrégularité des trous, et des pertes par absorption liées à la couche active. Les deux premiers termes sont particulièrement sensibles à l'amplitude du champ électromagnétique aux interfaces AlN/air : de manière analogue à la comparaison entre un puits rectangulaire et un puits gaussien pour des électrons confinés, plus le confinement du mode de cavité est abrupte, plus la distribution du champ électromagnétique dans ce mode comporte des composantes à grand vecteur d'onde, des amplitudes élevées à l'interface et une grande pénétration dans la barrière, ce qui est préjudiciable au facteur de qualité. Cette analyse a été tout d'abord exploitée dans les cavités Hx et Lx modifiées en déplaçant les trous périphériques à la cavité, et en réduisant leur diamètre, pour augmenter Q [Aka03]. Elle a été approfondie par E. Kuramochi et ses co-auteurs, qui ont proposé dans les cavités dites "Notomi" un confinement "doux" des photons au sein d'un guide d'onde 1D dont une courte portion a été faiblement élargie (cf figure 2.12.c,d) [Kur06] ; ceux-ci ont montré que le facteur de qualité est d'autant plus élevé que le déplacement des trous $d_{A,B,C}$ est faible, sans pour autant augmenter de manière forte le volume de la cavité.

Cette approche a été mise en œuvre avec succès dans nos cristaux photoniques. L'étude présentée dans la référence [SG12] démontre que nous avons pu atteindre des facteurs de qualité plus élevés que dans les cavités linéaires : $Q = 4400$ et 2300 à 395 nm et 358 nm . En analysant une série de cavités en fonction du paramètre de déplacement d (échantillon A1507, approche top-down), et en comparant les modes identifiés aux simulations FDTD réalisées à l'IEF, D. Sam-Giao et B. Gayral ont pu mettre en évidence les modes pairs et impairs du guide d'onde, et leurs homologues confinés dans la cavité. L'observation des modes impairs est originale, et rendue possible par notre utilisation d'émetteurs internes aux membranes photoniques. En effet, les modes Notomi ont jusqu'à présent été sondés par couplage évanescent avec un guide d'onde voisin ou une fibre optique [Kur06], et ce couplage est nul avec les modes impairs. Ces modes sont par contre visibles en champ lointain, et détectés par nos dispositifs de μPL . Le progrès, important en terme de facteur de qualité en comparaison des cavités L3, s'accompagne d'une augmentation du volume modal des modes confinés : $V = 2.2(\lambda/n)^3$ au lieu de $V = 0.8(\lambda/n)^3$.

Identification des modes de cavité Nous proposons ici une étude complémentaire sur l'imagerie des modes 0D et 1D des cavités Notomi, sur un échantillon plus récent (A1718, approche top-down). L'imagerie est en effet un aspect important de toutes les études présentées dans ce chapitre. Pour obtenir un bon contraste des modes de cavité par rapport au signal des boîtes quantiques non couplées, le spot d'excitation doit être bien aligné et adapté spatialement au mode photonique considéré, et la collection de l'émission doit être particulièrement soignée. C'est la microscopie confocale qui permet d'obtenir la meilleure sélectivité spatiale. Au lieu d'utiliser un trou (pinhole) de quelques dizaines de microns dans un plan image de l'échantillon, nous avons préféré utiliser la fente du spectromètre et les pixels du détecteur CCD pour assurer le filtrage spatiale dans les directions horizontale et verticale. Dans cette configuration confocale originale, la maîtrise des aberrations optiques de notre microscope nous permet désormais d'atteindre une résolution de l'ordre de $0.5 \mu\text{m}$.

La figure 2.16 présente les spectres d'une cavité de type Notomi lorsque le faisceau laser d'excitation est focalisé au centre de la cavité ou aux extrémités du guide d'onde, comme indiqué sur l'image de microscopie électronique. Les modes de basse énergie sont observés spécifiquement au centre de l'échantillon, et sont attribués aux modes 0D confinés dans la cavité. Les pics de la plage spectrale $3.18 - 3.2 \text{ eV}$ sont observés sur toute la longueur du guide d'onde 1D, et sont attribués aux modes guidés. Ils forment un spectre discret en raison de la longueur finie du guide, mais ne correspondent pas exactement aux modes Fabry-Perot attendus pour un guide idéal de longueur finie en raison de la présence de la cavité et d'une légère dissymétrie visible sur la cartographie de leur intensité, plus importante à droite qu'à gauche. Enfin, à $3.26 - 3.27 \text{ eV}$, ce sont les modes 0D de la cavité dont la fonction d'onde est impaire en y qui sont visibles, comme discuté dans l'étude [SG12].

Cette classification des modes confinés et guidés est confirmée par l'étude de la série de cavités basées sur le même cristal photonique, mais dont le décalage d des trous au centre du guide d'onde, i.e. la profondeur du confinement des modes 0D, varie. Le cas $d = 0 \text{ nm}$ correspond au guide d'onde 1D non perturbé, dont le spectre ne présente pas de pic dans la plage spectrale des modes 0D. Comme attendu, les modes de cavité voient leur énergie décroître lorsque d augmente et que le confinement est plus fort. Notons que leurs facteurs de qualité varient ici entre 2300 et 2800 , et sont légèrement inférieurs aux meilleures valeurs que nous avons mesurées dans ce type de cavité ($Q = 4400$ [SG12]).

Confinement 0D et désordre 1D La cartographie des différents modes identifiés sur la figure 2.17 permet de mieux comprendre leur nature. La coupe spectrale de ces cartes en $y = 0$ est présentée pour trois cavités de la série sur la figure 2.18.

Dans le guide d'onde non perturbé, les modes ne sont pas délocalisés sur toute la longueur du guide, mais sont localisés sur des distances de l'ordre du micron. Cela reflète probablement le

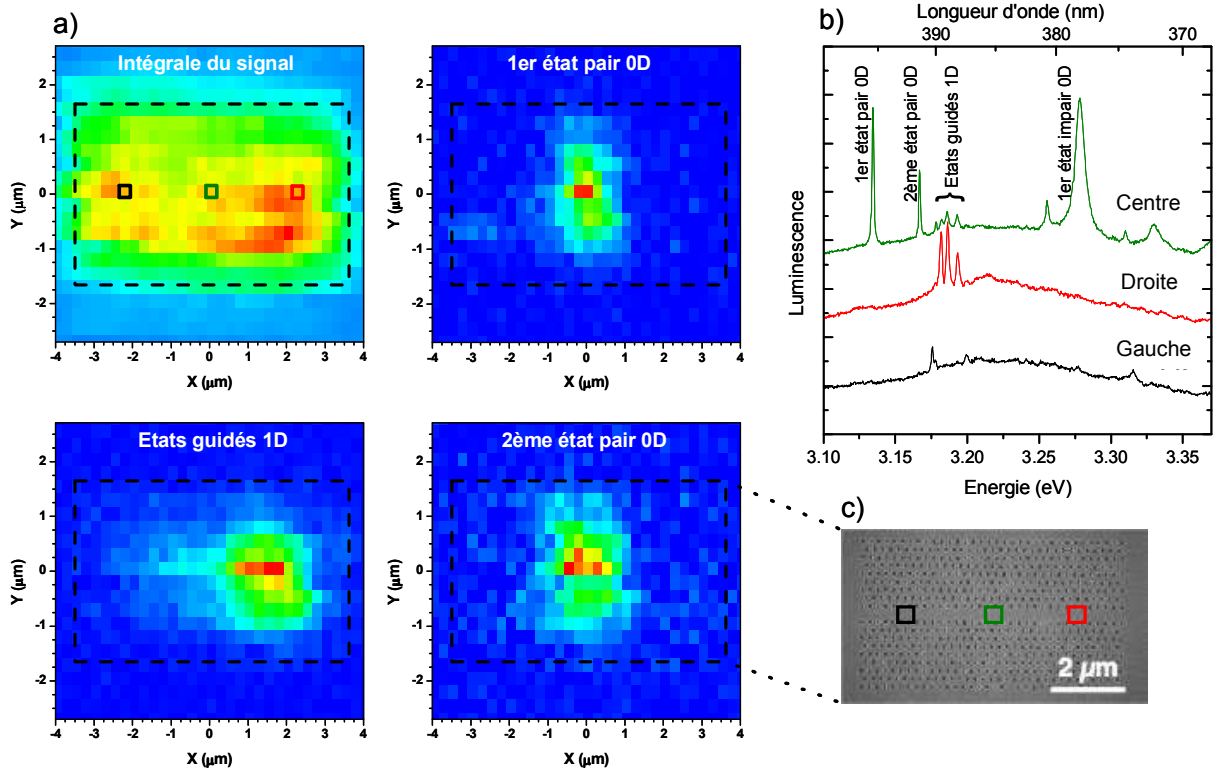


FIGURE 2.16 – a) Cartographie de photoluminescence par balayage d'excitation par pas de $0.25 \mu\text{m}$, en configuration confocale, d'une cavité de type Notomi de l'échantillon A1718 (Paramètres : $a = 150 \text{ nm}$, $d = 12 \text{ nm}$, $r/a = 0.25$). Les images en fausse couleur présentent respectivement l'intégrale du signal de photoluminescence mesuré, et le signal associé aux différents pics identifiés à droite. La cavité est excitée par le laser continu à 266 nm , avec une puissance de l'ordre de 1 kW.cm^{-2} . b) Spectres de photoluminescence mesurés en trois points du guide 1D, indiqués par les carrés de couleur sur les autres panneaux. c) Image de microscopie électronique de l'une des cavités de l'échantillon.

désordre du cristal photonique, i.e. les inhomogénéités de taille et de positionnement des trous qui délimitent le guide d'onde. La dissymétrie identifiée dans la cartographie d'intensité de ces modes apparaît plus clairement. Ce léger désordre explique aussi que les modes 1D ne sont pas les mêmes sur les cavités d'une même série en fonction de d .

Dans le second guide présenté, la cavité ($d = 3 \text{ nm}$) confine un mode 0D pair. Deux modes sont observés symétriquement à $1.5 \mu\text{m}$ de part et d'autre de la cavité et ne sont donc pas des modes excités de la cavité. Les modes impairs de la cavité et du guide, au-dessus de 3.27 eV , présentent la même distribution spatiale d'intensité que les états pairs.

Dans le troisième guide, la cavité ($d = 6 \text{ nm}$) confine aussi un mode 0D, légèrement décalé par rapport au centre du guide, et des modes à 3.165 eV et 3.177 eV sont observés à proximité du centre. Cette cavité a fait l'objet de simulations FDTD par D. Néel et P. Boucaud, présentées sur la figure 2.19. La structure nominale ne présente qu'un seul mode confiné dans la cavité, et des états délocalisés sur le guide à plus haute énergie. Les modes à 3.165 eV et 3.177 eV doivent donc être attribués à des états confinés additionnels induits par le faible désordre des trous au voisinage immédiat de la cavité. Notons que la distribution spatiale du signal de μPL confocale n'est pas comparable directement à la distribution du champ électromagnétique simulé. En effet, nous ne sondons pas directement la fonction d'onde des modes photoniques, contrairement aux mesures effectuées en microscopie optique en champ proche (SNOM) en excitation résonante, qui sont directement sensibles à leur partie évanescente. En μPL , après excitation des boîtes quantiques, leur luminescence peut se propager à l'intérieur de la membrane, au sein des différents modes optiques, puis être diffusée et collectée par le microscope. La configuration confocale limite ces

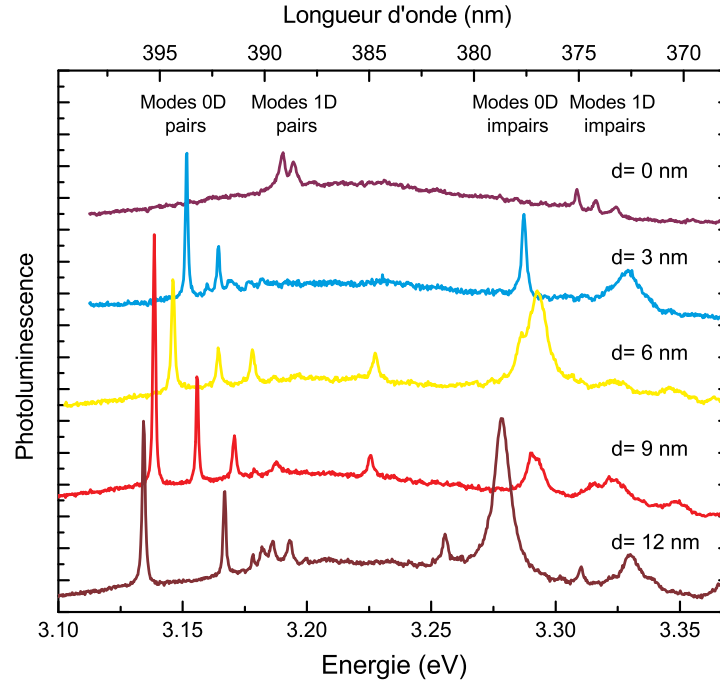


FIGURE 2.17 – Série de spectres de photoluminescence en microscopie confocale au centre des cavités en fonction de la profondeur du confinement des modes 0D. Le paramètre d de déplacement des trous au centre du guide Notomi (figure 2.12.c,d) varie de 0 à 12 nm, tout en gardant constants les autres paramètres géométriques du cristal photonique.

effets de propagation et cette sensibilité à la diffusion, mais ne les élimine pas complètement.

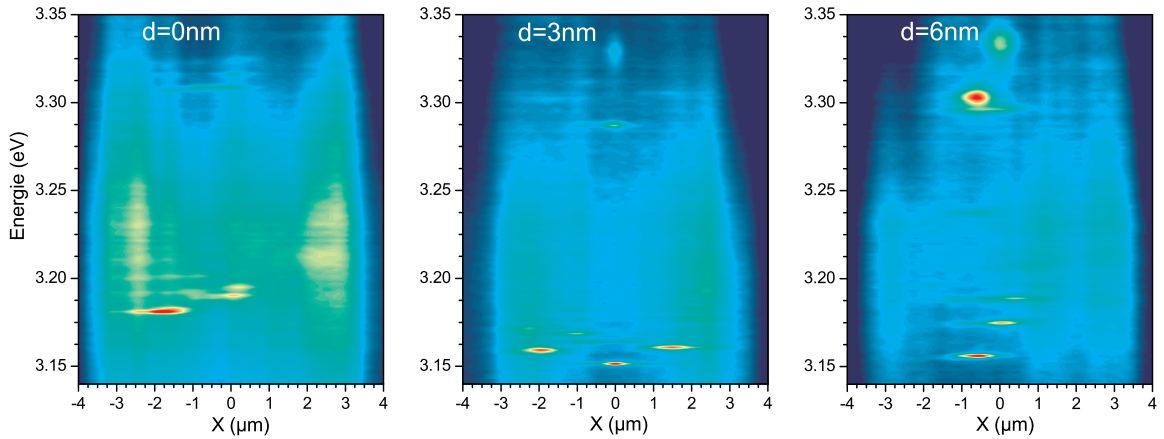


FIGURE 2.18 – Coupes spectrales suivant x des cartographies de photoluminescence, pour 3 cavités de la série présentée sur la figure 2.17.

Synthèse La comparaison des résultats d'imagerie et des simulations FDTD des cavités de type Notomi nous permet donc de mieux identifier la nature des modes propres photoniques. L'étude du guide non perturbé, sans cavité, montre un léger désordre le long du guide, et une localisation plutôt qu'une bande de modes 1D. Dans l'axe du guide, le confinement induit par le décalage des trous crée des modes 0D bien confinés, dont l'énergie est conforme à celle prédite par les simulations FDTD. En plus de la localisation des modes 1D du guide, le désordre induit dans certaines cavités ($d = 6$ et 9 nm), des modes confinés 0D additionnels. L'imagerie apporte des

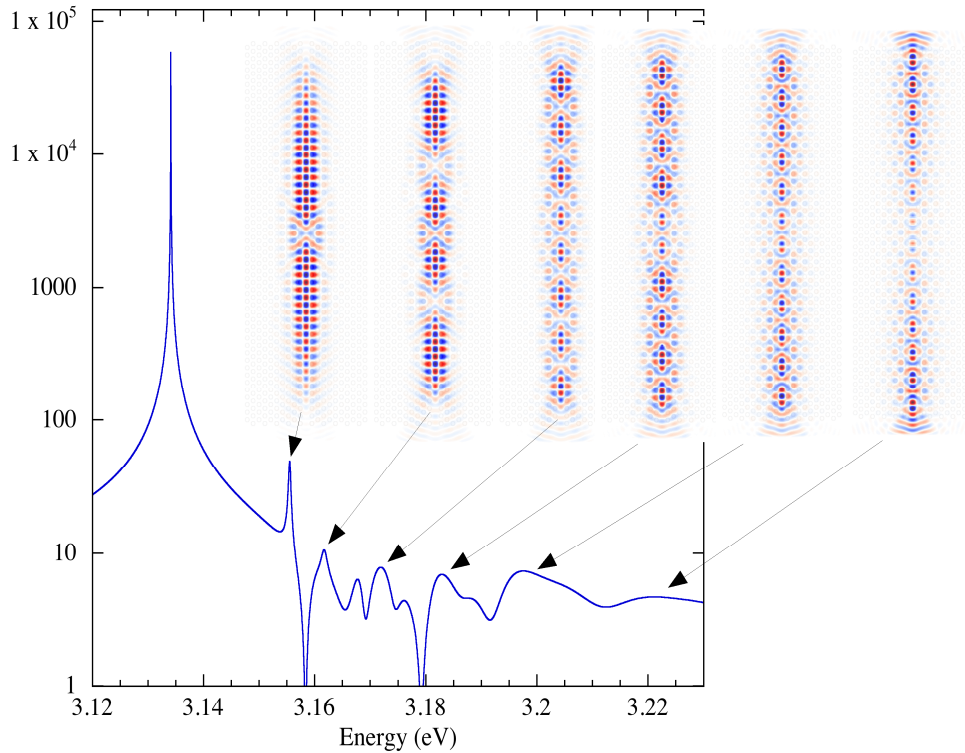


FIGURE 2.19 – Simulation par éléments finis à 3D (FDTD) du spectre d’une cavité de type Notomi analogue à celles étudiées dans cette section, pour un déplacement $d = 6 \text{ nm}$. Les diagrammes présentent la distribution de la composante H_z du champ électromagnétique de chaque mode propre. D’après D. Néel et P. Boucaud.

informations complémentaires aux spectres mesurés en centre de cavité, et permet une meilleure analyse des modes propres de chaque cristal photonique.

2.4 Conclusion

Les travaux présentés dans ce chapitre ont été effectués depuis 2009 au sein d’une collaboration très enrichissante. Ils sont le fruit de nombreux échanges, donnant lieu à plusieurs générations d’échantillons, fabriquées et caractérisées pour optimiser la conception photonique et le protocole de fabrication. Ils sont aussi le fruit du travail consciencieux et collaboratif des jeunes chercheurs des 4 laboratoires concernés : Sylvain Sergent et Delphine Néel pour la conception et la fabrication des échantillons (et plus récemment Junaebur Rashid), Diane Sam-Giao et Meletis Mexis pour la spectroscopie optique. Les spectres présentés dans ce chapitre ne sont que la partie émergée du travail de Meletis au cours de ses deux ans de post-doctorat sous la responsabilité de Christelle Brimont et moi-même.

Notre collaboration a ainsi pu poser les bases d’une photonique UV à base de matériaux nitrures, dont la maîtrise est avérée par les facteurs de qualité des résonateurs réalisés, qui sont à l’état de l’art en 2012 : $Q = 7300$ dans les microdisques, et $Q = 4400$ (resp. 2300) à 395 nm (resp 358 nm) dans les cavités de cristaux photoniques membranaires. Pour ces dernières, trois publications très récentes présentent des facteurs de qualité légèrement meilleurs (5200 et 6300) [VT12, Ser12a, Ser12b].

Nous avons à cette occasion fait évoluer notre microscope, initialement destiné à exciter efficacement un nano-objet individuel dans l’UV et en collecter la luminescence, et désormais optimisé pour réaliser l’imagerie de ces nano-objets, par balayage de l’excitation ou par imagerie de l’émission. L’effort a aussi porté sur l’efficacité des campagnes d’expérience, pour prévenir les dommages subis par les dispositifs sous excitation laser et obtenir des ensembles complets et

cohérents de résultats expérimentaux sur chaque cavité permettant une analyse physique fine.

Ces résultats ont fait l'objet de modélisation, par des modèles analytiques au L2C lorsque cela est possible (comme dans le cas des microdisques), et par l'IEF lorsque des méthodes numériques de type FDTD sont requises (dans le cas des cavités photoniques). Le très bon accord entre modèles et résultats expérimentaux a permis de qualifier les protocoles de fabrication, qui produisent des échantillons conformes aux caractéristiques nominales choisies à la conception. Il a aussi permis d'étudier le rôle des processus intrinsèques (absorption par la couche active dans les microdisques) et extrinsèques (rugosité des trous dans les cavités photoniques hexagonaux et linéaires, et désordre dans les cavités de type Notomi).

Les perspectives de ces travaux sont à court terme le travail sur la couche active pour atteindre une émission laser dans l'ultra-violet. Dans ce domaine en forte compétition, les démonstrations d'effet laser ont toutes été réalisées dans le bleu-violet (puits et boîtes quantiques InGaN/GaN) ou à l'énergie du gap de GaN (370 nm). Pour relever le défi des plus courtes longueurs d'onde, la couche active à boîtes GaN/AlN constitue une très bonne candidate, mais doit encore être optimisée en terme de largeur inhomogène d'émission et de taille de boîtes. Les longueurs d'onde de résonance des modes de cavités photoniques doivent de plus être portées plus loin dans l'UV (358 nm actuellement) pour être accordées à l'émission des petites boîtes GaN, qui présentent les forces d'oscillateur les plus élevées.

A moyen terme, nous avons désormais la possibilité d'envisager des travaux originaux sur des cavités passives ou actives, profitant en particulier de la transparence de nos couches actives dans toute la plage visible : génération d'harmoniques, capteurs, tels que présentés au paragraphe 2.1.2.

Chapitre 3

Lasers à polaritons dans les microcavités ZnO

ZnO est un matériau semiconducteur à grand gap aux propriétés excitoniques particulièrement intéressantes. Ses excitons possèdent en effet une grande énergie de liaison et une grande force d'oscillateur, qui en font sur le papier un candidat idéal pour réaliser le couplage fort exciton-photon et explorer des régimes de fort couplage dans ce qu'il convient aujourd'hui d'appeler la "polaritonique", l'étude des propriétés collectives des polaritons de microcavité. Les démonstrations de couplage fort, dans des résonateurs photoniques de géométries variées en ZnO massif, ont été nombreuses ces quatre dernières années. Plusieurs mécanismes d'émission laser y ont été observés, qui soulignent les spécificités de ce matériau en comparaison de GaAs, GaN et des semiconducteurs organiques. La première section de ce chapitre sera donc consacrée à l'état de l'art des microcavités ZnO, des effets non-linéaires qui y sont observés, et des problématiques qui motivent nos travaux.

Nous survolerons ensuite la route suivie pour réaliser des cavités ZnO en régime de couplage fort. Ces travaux ont été réalisés au sein d'une collaboration réunissant J. Zúñiga-Pérez, F. Semond, M. Leroux et J.Y. Duboz au CRHEA (Valbonne), S. Bouchoule au LPN (Marcoussis) pour la fabrication des échantillons, l'équipe de J. Leymarie au LASMEA (Clermont-Ferrand) et notre équipe au GES/L2C pour la spectroscopie optique (en particulier C. Brimont)¹. Ils sont présentés en détail dans la thèse de Stéphane Faure². Nous soulèverons en particulier la question de la démonstration du régime de couplage fort, dont les signatures sont plus complexes à mettre en évidence que pour les microcavités GaAs et CdTe.

Nous avons mis en évidence en 2011-2012, au cours du post-doctorat de M. Mexis, deux régimes d'émission laser dans nos microcavités en couplage fort : le laser à gain excitonique, à désaccord très négatif, est spécifique à notre système et fera l'objet de la troisième section de ce chapitre ; le laser à polaritons, observé sur deux cavités de facteurs de qualité 450 et plus récemment 2600, nous a permis d'atteindre l'objectif majeur de notre projet collaboratif et ouvre des perspectives intéressantes ; il sera présenté dans la quatrième section.

3.1 Problématique et état de l'art

La physique des polaritons de cavité Depuis la découverte du couplage fort exciton-photon par C. Weisbuch en 1992 [Wei92], les microcavités semiconductrices constituent un laboratoire de l'électrodynamique quantique en cavité à l'état solide. Ce régime apparaît lorsque le couplage entre les excitons (en général au sein d'un puits quantique) et les photons (confinés dans

1. Cette collaboration s'est construite autour du projet ZOOM (2007-2009), que j'ai coordonné, et au sein du réseau européen Clermont4 (2009-2012) coordonné par A. Kavokin.

2. La thèse de S. Faure (2006-2009) a été co-dirigée avec Bernard Gil.

la cavité) est plus fort que tous les autres couplages de ces deux excitations avec leur environnement. Les nouveaux états propres du système couplé, les polaritons, sont des bosons aux propriétés collectives excitantes, comme en témoignent les nombreuses réalisations qui ont éclos lors des vingt dernières années. Tout d'abord inspirées par l'optique non-linéaire, avec l'étude des processus paramétriques [Bau00, Sab01, Kun03], les recherches se sont ensuite orientées vers les analogies entre gaz de polaritons et gaz d'atomes froids, et la possibilité de réaliser à l'état solide des états macroscopiques cohérents, les condensats de polaritons, aux propriétés remarquables. Ces condensats peuvent être créés spontanément, par condensation de Bose-Einstein (ou le plus souvent par condensation de Kosterlitz-Thouless) [Kas06b], ou bien par excitation cohérente via un faisceau laser résonant, permettant de comprendre leur thermodynamique, leur cohérence spatiale et temporelle, leurs excitations élémentaires qui révèlent leur superfluidité, leur polarisation de spin, ... [Kav06, Dev07, Den10].

Le laser à polaritons La plupart des démonstrations que nous venons de citer ont été réalisées à basse température (typiquement 10 K) sur des microcavités GaAs, de très bons facteur de qualité de l'ordre de 10^4 , incluant des puits quantiques InGaAs de grande finesse spectrale : ces microcavités constituent le système-modèle de référence, aux qualités inégalées. Pour étendre les possibilités, et en particulier la force du couplage et la plage de température accessible, les regards se sont tournés vers d'autres matériaux semiconducteurs dont la maîtrise technologique n'est pas aussi grande : par ordre de force de couplage exciton-photon, CdTe [Dan98, Kas06b], CdSe [Seb11], GaN [AV03a, Chr07, Chr08], ZnO et les semiconducteurs organiques [Lid98, KC08, KC10]. Dans les trois derniers systèmes, l'émission cohérente des condensats de polaritons a été démontrée jusqu'à température ambiante, ouvrant de nouvelles perspectives. Notons que le paysage s'élargit désormais aux microcavités CuCl [Ooh08]. Les facteurs de qualité des modes de cavités y sont généralement modérés, variant de 100 pour les premières générations de cavité [Shi08, Fau09b] à 4000 pour les plus élaborées [Chr06], et la durée de vie des polaritons y est pour l'instant trop courte pour permettre des expériences de manipulation du condensat. Ces dispositifs sont regroupés sous le terme générique de "**lasers à polaritons**", indépendamment de la nature précise de la transition thermodynamique sous-jacente à l'émission laser car cette transition reste souvent difficile à établir, en particulier à haute température ; elle n'a été jusqu'à présent analysée via son diagramme de phase que dans le cas des microcavités à multi-puits quantiques GaN [But09, Lev10].

L'enjeu des recherches s'étend alors aux dispositifs opto-électroniques : l'un des objectifs actuels de la communauté est par exemple la réalisation d'un laser à polaritons sous injection électrique, après la récente démonstration d'une diode à polaritons [Tsi08]. Du point de vue des processus physiques mis en œuvre, et indépendamment de toute considération technologique, le seuil du laser à polaritons est en effet plus faible que le seuil du laser à cavité verticale à puits quantique (VCSEL) car la densité de porteurs dans le puits y est plus faible [Baj08]. Le laser à polariton est donc à la fois un dispositif potentiel et la brique de base des expériences fondamentales de manipulation des condensats.

Intérêt des lasers à polaritons ZnO Les régimes de fonctionnement (température et densité de porteurs) ont été simulés pour différents matériaux (figure 3.1), montrant que ZnO est le semiconducteur inorganique (hormis CuCl) dont les lasers à polaritons possèdent théoriquement la plus grande stabilité en température. Ceci est lié aux figures de mérite des excitons de ZnO, comparées dans la table 3.1 avec ceux de GaAs et GaN : ils présentent les plus grandes énergies de liaison et forces d'oscillateur. Ces deux propriétés se traduisent respectivement par une plus grande robustesse des excitons à forte densité, et la possibilité de réaliser des condensats à forte connotation excitonique, comme nous le montrerons dans la section 3.4. D'autre part, ZnO étant un matériau II-VI aux excitons très polaires, l'interaction de Fröhlich entre excitons et phonons LO y est forte, et nous verrons qu'elle permet une relaxation efficace et la génération de

	Energie de liaison $Ry^*(meV)$	Splitting longitudinal-transverse $\hbar\omega_{LT}(meV)$	Couplage exciton-photon $\Omega(meV)$
GaAs	4.8	0.08 (X_{HH})	5-10
GaN	25	4.7 ($X_A + X_B$)	30-60
ZnO	60	6.3 ($X_A + X_B$)	60-200

TABLE 3.1 – Propriétés des excitons de différents matériaux semiconducteurs [Law71, Sel73, Gil97a, Gil97b, Zam02, Syr04].

condensats de désaccord très négatif, i.e. très photoniques. Ces aspects soulignent l'intérêt des microcavités à base de ZnO, même en comparaison des microcavités à base de GaN, plus matures jusqu'à aujourd'hui. La maîtrise prochaine des microcavités incluant des puits quantiques ZnO/ZnMgO au lieu de l'actuelle couche active en ZnO massif renforcera cet intérêt, même si leur élargissement inhomogène ne permet pas aujourd'hui d'atteindre l'émission laser en régime de couplage fort [Hal11, Kal11]. C'est en 2011 et 2012 que plusieurs groupes, incluant le nôtre, ont publié les premières démonstrations de laser à polaritons dans ZnO [Gui11b, Fra12, Lu12a], qui feront l'objet de la section 3.4.

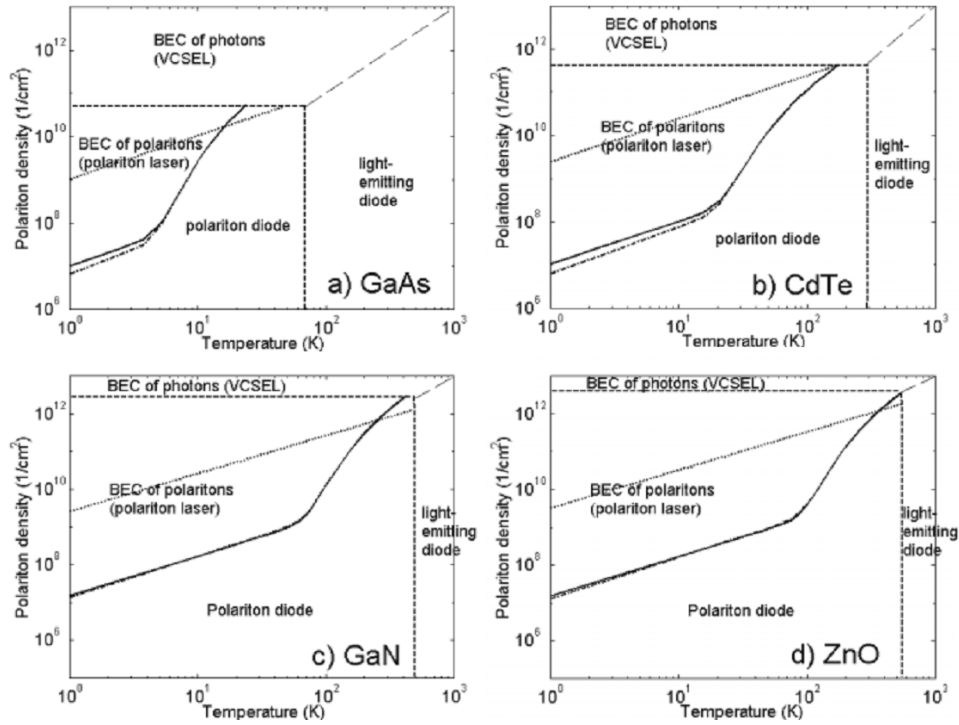


FIGURE 3.1 – Diagramme de phase de microcavités GaAs (a), CdTe (b), GaN (c), et ZnO (d). La ligne en trait plein montre la concentration critique de polaritons pour la condensation de Bose, calculée dans le cadre d'un modèle de gaz de Bose quasi-2D infini en interactions (d'après [Mal03]). Ce modèle simplifié, qui suppose en particulier des polaritons à l'équilibre thermodynamique, permet une comparaison qualitative des différents matériaux.

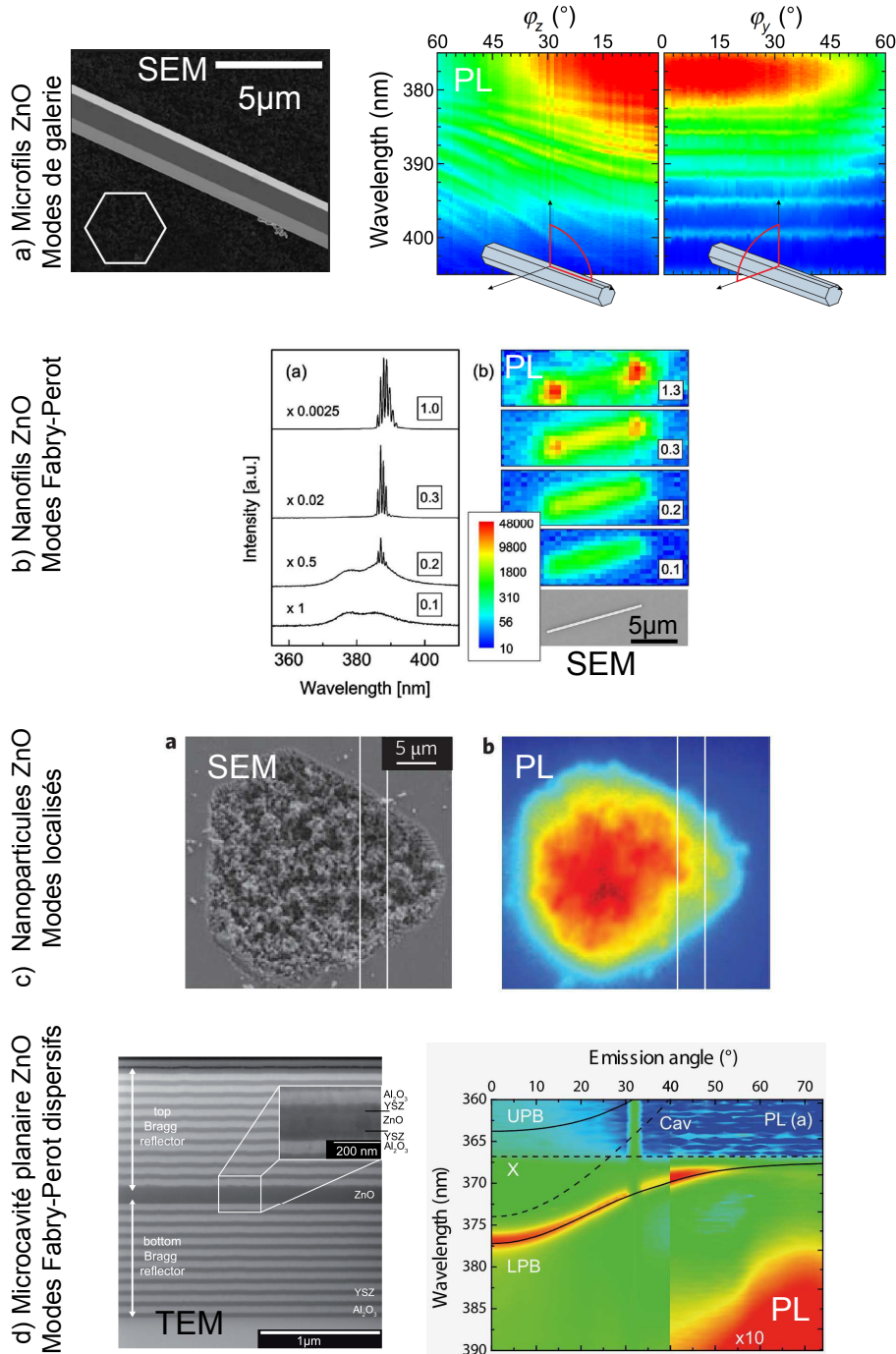


FIGURE 3.2 – Classification des résonateurs à base de ZnO massif et présentant une émission laser. Images de microscopie électronique et photoluminescence résolue spatialement ou en angle. a) Microfils [Die11]; b) Nanofils [Zim10]; c) Poudre de nanoparticules sub-longueur d'onde [Fal09b]; d) Microcavité planaire [Stu09].

Les résonateurs photoniques ZnO Comme dans le cas des résonateurs à base de boîtes et puits quantiques nitrures étudiés au chapitre précédent, la problématique du couplage exciton-photon dans ZnO a suscité des travaux dans des géométries très variées (figure 3.2), auxquelles sont associées plusieurs types de modes propres photoniques :

- dans les microfils de ZnO, de diamètre de l'ordre de quelques λ/n , les photons sont guidés en **modes de galerie** de fort facteur de qualité ; à la différence des microdisques, les photons peuvent se propager le long du microfil et chaque mode de galerie présente une

- dispersion 1D selon cet axe [Sun08, Sun09, Sun10, Cze08, Stu09, Stu11, Tri11, Tri12].
- dans les nanofils de ZnO, de diamètre proche de $\lambda/2n$, analogues à une fibre optique monomode, les photons se propagent dans des modes guidés et c'est la réflexion aux extrémités du nanofil qui donne lieu à des **modes Fabry-Perot**. La longueur du nanofil est en général de plusieurs microns, et l'ordre d'interférence de ces modes Fabry-Perot est de quelques dizaines voire centaines [vV06, Zim08, Fal08, Fal09a, Urs09, Zim10, Ver12]. Dans le régime de diamètres intermédiaires, les modes Fabry-Perot et les modes de galerie peuvent aussi co-exister [Die11].
 - dans les poudres de nanoparticules sub-longueur d'onde de ZnO, les modes photoniques se construisent par les diffusions multiples de la lumière sur les particules, donnant lieu à des **modes faiblement localisés** [Fal09b].
 - dans les microcavités planaires ZnO, les **modes Fabry-Perot** ont un ordre d'interférence faible et présentent une dispersion 2D [Nak08, SG08, Shi08, Fau09b].
 - le contrôle du couplage exciton-photon dans des cristaux photoniques ZnO a été proposé récemment [Sol11], mais n'a pas été mis en œuvre expérimentalement à ce jour.

Nous pouvons distinguer les résonateurs fortement multi-modes (nano-fils de ZnO, poudres de nanoparticules), qui permettent de sonder les non-linéarités optiques sur l'ensemble du spectre d'émission de ZnO, et les résonateurs à un ou quelques modes photoniques (micro-fils, micro-cavités), plus proches du système-modèle polaritonique couplant un exciton et un seul photon. Notons néanmoins que dans toutes les démonstrations citées ci-dessus, et dans les travaux présentés ici, l'intervalle spectral libre entre modes photoniques ne peut être amené aux valeurs requises pour entrer dans un régime contrôlé de couplage entre l'exciton de ZnO et un seul mode photonique. En effet, le couplage exciton-photon atteint des valeurs de 50 à 200 meV, supérieures à la différence d'énergie entre modes de galerie (typiquement 20 à 100 meV [Sun08]) mais aussi comparable à la largeur de la bande interdite de certains miroirs de Bragg (DBR) (300 meV pour les miroirs DBR GaN/AlGaIn [Shi08]). Il est dès lors délicat de parvenir à réaliser un système polaritonique simple, "monomode", et la compétition entre branches polaritoniques est un problème transverse à tous les travaux actuellement publiés.

La nature du gain dans les lasers à base de ZnO Outre les débats sur la démonstration du laser à polaritons dans les microcavités et certains microfils ZnO, dont nous ferons état dans la section 3.4, la nature du gain dans les autres résonateurs fait aujourd'hui l'objet d'une controverse [Kli07, Ver12]. En effet tous les résonateurs ZnO de volume suffisant sont capables d'émission laser lorsqu'ils sont excités optiquement avec des lasers de pompe suffisamment puissants [Fal08, Cze08, Dai09, Dup10, Zim10]. De nombreux auteurs attribuent cette émission laser à un gain excitonique, tandis que d'autres pensent qu'il est associé au gain "classique" via un plasma électron-trou. Notons le flou des arguments généralement employés dans ces démonstrations : certains utilisent une détermination de la densité de porteurs au seuil qui présente une très grande incertitude, et est comparée à la densité de Mott à laquelle les excitons s'ionisent en électrons et en trous ; d'autres identifient des signatures spectrales plus convaincantes de la stabilité des excitons à partir de l'analyse de l'intervalle spectral libre des modes Fabry-Perot, à l'instar de l'analyse présentée au chapitre 2.2.3, montrant une forte dépendance avec la température [Zim10, Ver12]. Nous présenterons dans la section 3.3 notre apport dans le cas des microcavités planaires, et reviendrons sur l'analyse des résultats de la littérature.

3.2 Démontrer le couplage fort dans les microcavités ZnO

3.2.1 Conception et fabrication de microcavités planaires ZnO

Au sein de la collaboration réunissant le CRHEA, le LPN, le LASMEA et le GES/L2C, notre stratégie a été de faire progresser la qualité et la complexité des miroirs qui définissent la cavité,

tout en préservant la qualité cristalline de la couche active ZnO (figure 3.3). Cette démarche nous a amenés à privilégier dans un premier temps les miroirs de Bragg AlN/AlGaIn comme miroirs inférieurs, qui permettent une reprise d'épitaxie de ZnO sur AlN de très bonne qualité telle que développée au CRHEA par F. Semond et J. Zúñiga-Pérez. Le miroir supérieur, métallique dans les premières cavités, a été rapidement remplacé par des miroirs diélectriques réalisés par S. Bouchoule au LPN ; ce dernier doit en particulier présenter une très faible absorption dans l'ultra-violet, depuis l'énergie des excitons ZnO jusqu'à celle du laser d'excitation à 266 nm.

Cette approche ZnO/AlN, que nous appelons "semi-hybride", a aussi été suivie par les groupes d'H. Morkoç [Shi08] et W.F. Hsieh [Che09]. En raison du faible contraste d'indice entre AlN et AlGaIn, et de la forte contrainte entre couches, la réalisation des DBRs avec plus de 10 paires est difficile. Les facteurs de qualité ainsi obtenus étaient de l'ordre de 150 en 2008-2009. L'équipe de N. Grandjean a pour cela développé des miroirs nitrures quaternaires, accordés en maille, permettant d'augmenter le nombre de paires et d'atteindre les meilleurs facteurs de qualité sur la base de ces miroirs, jusqu'à 4000 [Chr06].

D'autres groupes ont choisi une approche "tout oxyde", dans laquelle les très bons miroirs diélectriques amorphes développés depuis de longues années pour les traitements réfléchissants ($\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ou ZrO_2/MgO) ont rapidement donné lieu à de bonnes cavités ($Q=450$ en 2008) [Nak08, SG08] ; l'inconvénient de cette approche est que le ZnO est déposé sur un DBR amorphe et la couche active est fortement poly-cristalline.

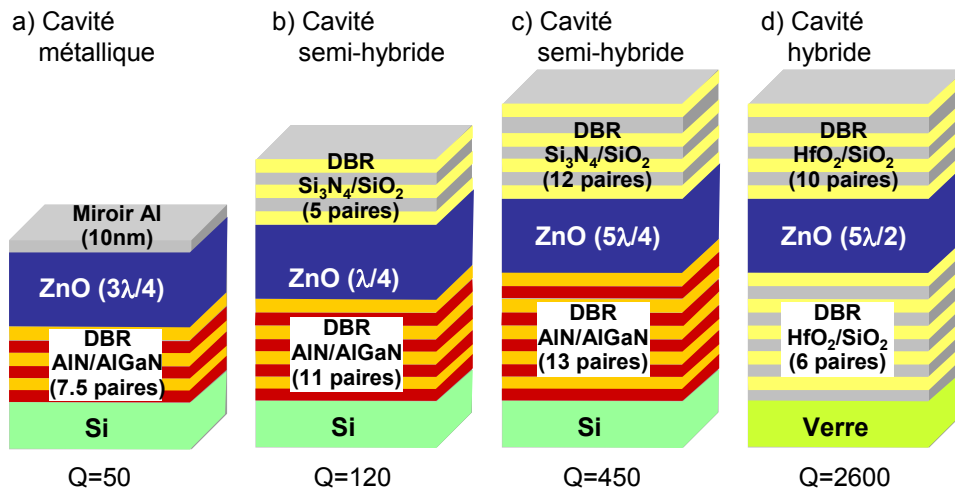


FIGURE 3.3 – Principales microcavités réalisées et étudiées au sein de la collaboration. a) Microcavité à miroir inférieur nitrure et miroir supérieur métallique (Z507) [Méd09, Fau09a] ; b) et c) Microcavité "semi-hybride" à miroir inférieur nitrure et miroir supérieur diélectrique (Z536 [Fau09a, Fau09b] et Z739C [Gui11a, Gui11b]) ; d) Microcavité "hybride" à miroirs de Bragg diélectriques (ZFeng1).

Dans les premières générations de cavités, les dédoublements de Rabi sont de l'ordre de 30 à 80 meV, et dépendent essentiellement de l'épaisseur de la cavité de ZnO. Nous avons en particulier pu mettre en évidence l'efficacité de l'émission et de la relaxation non-linéaire des polaritons dans la cavité semi-hybride Z536 ; ce résultat est présenté en détail dans la thèse de Stéphane Faure et ne sera pas présenté dans ce chapitre [Fau09a]. Nos efforts portés sur l'amélioration des miroirs de Bragg ont permis d'atteindre en 2010 un facteur de qualité de 450 dans cette approche "semi-hybride", pour la microcavité Z739C présentée dans les sections suivantes (figure 3.3.c). Cette valeur nous apparaît comme la limite supérieure qui peut être atteinte pour ce type de cavité.

La dernière génération de microcavités, dans l'approche "hybride" (figure 3.3.d), a été conçue en partant du constat que l'utilisation de deux miroirs diélectriques était nécessaire pour faire progresser le facteur de qualité, imposant un report et une attaque du substrat pour déposer le DBR inférieur. Ce procédé technologique a été développé par Sophie Bouchoule, tout d'abord sur

des structures ZnO/AlN/Si analogues aux cavités "semi-hybrides" (résultats non présentés ici), puis avec Feng Li (CRHEA) sur des substrats commerciaux de ZnO nouvellement disponibles. L'échantillon ZFeng1, étudié en détail dans la section 3.4, est ainsi obtenu en déposant un DBR $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ d'excellente qualité sur un substrat ZnO ; l'échantillon est ensuite reporté sur un substrat en verre ; le substrat est alors aminci par polissage et attaque chimique jusqu'à une épaisseur inférieure au micron ; le second miroir diélectrique $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ est alors déposé, complétant la cavité. Cette microcavité réunit donc les avantages des microcavités "tout-oxyde", i.e. leurs très bons DBRs, et des microcavités épitaxiées, i.e. une excellente qualité cristalline de ZnO.

Ces échantillons sont le fruit du travail de conception, de croissance, de salle blanche et de caractérisation de l'ensemble des membres de la collaboration. La progression du facteur de qualité a été la clé pour démontrer des effets novateurs dans ces cavités. Il sera néanmoins difficile de poursuivre cette progression suivant la "loi de Moore" que révèle la figure 3.3 pour la période 2008-2012 !

3.2.2 Absorption des états de diffusion de l'exciton et amortissement de branche haute polaritonique

Le régime de couplage fort entre excitons et photons est traditionnellement démontré par la mesure de l'anti-croisement des modes excitoniques et photoniques lorsqu'ils sont amenés en résonance. Les mesures peuvent être menées soit en fonction de l'épaisseur de la cavité, soit en fonction de l'angle d'incidence à épaisseur fixée ; dans les deux cas, l'énergie des modes propres est identifiée en fonction du désaccord exciton-photon $\delta = E_{cav} - E_X$. Deux techniques spectroscopiques sont couramment utilisées : la réflectivité, sensible à tous les états propres de la microcavité, et la photoluminescence, sensible uniquement aux états de basse énergie ayant une composante excitonique. Une fois les branches basses et hautes du polariton identifiées, la comparaison de leurs dispersions avec un modèle d'oscillateurs couplés (l'exciton et le photon) permet de déduire le dédoublement de Rabi propre à la cavité étudiée.

Dès les premières cavités réalisées en 2008 (figure 3.3.a), l'identification des branches polaritoniques dans les spectres de réflectivité en angle s'est avérée délicate. Sur la figure 3.4, extraite de la thèse de François Médard (LASMEA), la branche basse polaritonique et les transitions A, B et C des excitons de ZnO sont bien marquées dans les spectres de réflectivité résolue en angle, mais la branche haute est "molle" dans la cavité $\lambda/4$ et absente dans la cavité $3\lambda/4$ ³.

Pour comprendre la nature des états propres dans les microcavités ZnO, nous avons avec S. Faure modélisé les spectres et les états propres des microcavités en tenant compte ou non du continuum d'états de diffusion de l'exciton [Fau08, Fau09a]. A titre pédagogique, nous avons comparé les résultats obtenus pour trois cavités analogues à base de GaAs, GaN et ZnO massif, d'épaisseur L_{cav} égale à leur longueur d'onde de résonance dans le matériau et de facteurs de qualité identiques $Q_{cav} = 200$ pour le mode de cavité et $Q_X = 300$ pour le mode d'exciton (figure 3.5). Notons que ces résultats ne sont pas représentatifs des microcavités à puits quantiques les plus fréquemment réalisées dans GaAs et GaN, mais correspondent aux études plus rares sur cavités massives [Tre95, AV03a, But06, Sel06]. Les spectres ont été simulés par l'algorithme des matrices de transfert, en tenant compte des excitons $1s$ et $2s$ associés à chaque bande de valence (A, B, C), considérés comme des oscillateurs classiques, et éventuellement des états de diffusion de l'exciton au-dessus du gap⁴. Dans le cas de la microcavité GaAs, l'anticroisement du mode de cavité avec l'exciton $1s$ est visible autour de 12° , et légèrement perturbé par la présence de l'exciton $2s$. La branche haute est clairement identifiée à grand angle et haute énergie. La figure

3. En raison des relations de phase à la réflexion entre AlN et ZnO, l'épaisseur de la couche active de ZnO est un multiple impair de $\lambda/4$.

4. Notre modèle de la réponse diélectrique de la couche active en tenant compte des états de diffusion donne un résultat identique à celui obtenu dans le cadre du modèle analytique d'Elliott [Ell57]. L'absorption correspondante est représentée sur la figure 3.6.a-c.

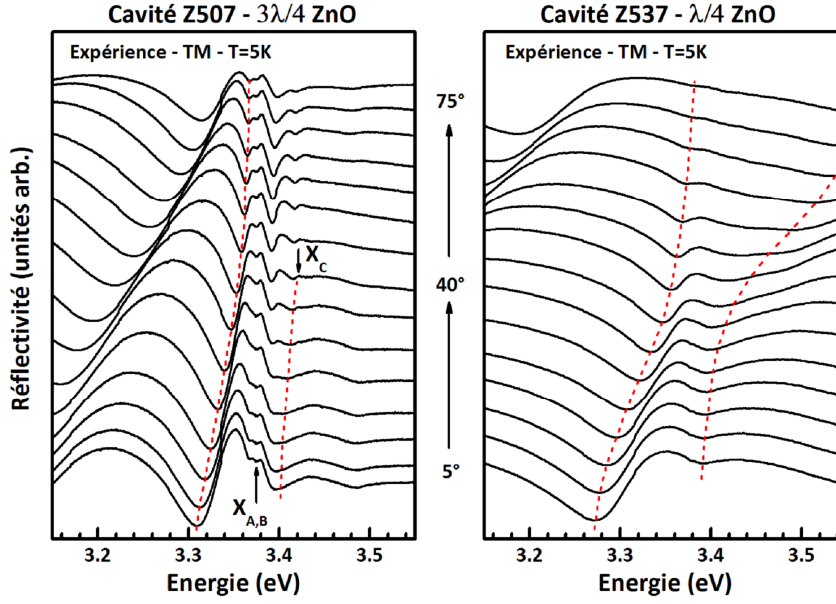


FIGURE 3.4 – Spectres de réflectivité résolue en angle à basse température ($T=5\text{K}$) en polarisation TM pour des cavités d'épaisseurs optiques $3\lambda/4$ et $\lambda/4$. Les pointillés rouges pointent les branches polaritoniques basse et haute. D'après [Méd09, Méd10]

d'anti-croisement est similaire dans le cas de GaN, mais une branche intermédiaire apparaît en raison du couplage aux états A et B de l'exciton. Dans le cas de ZnO, l'augmentation de la force d'oscillateur est sensible et se traduit par une augmentation du dédoublement de Rabi; mais la branche haute est beaucoup moins marquée que pour GaAs et GaN.

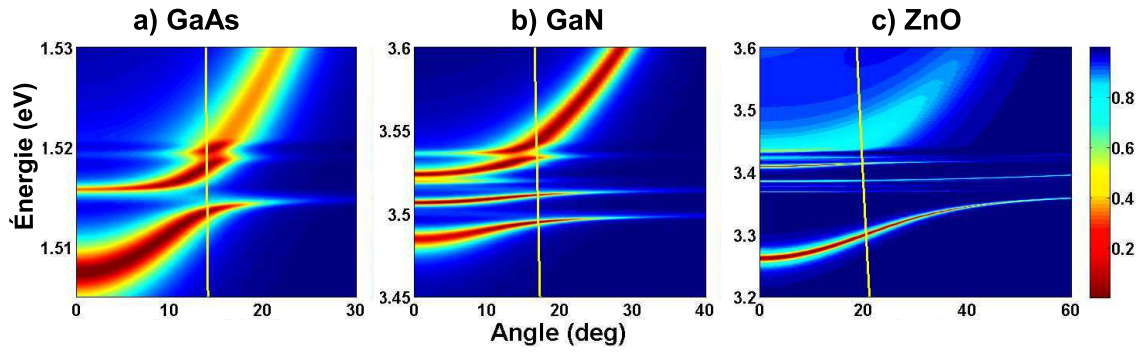


FIGURE 3.5 – Spectres de réflectivité résolue en angle d'une microcavité de couche active en semiconducteur massif et d'épaisseur λ , à désaccord nul et pour un facteur de qualité $Q = 200$. a) GaAs, b) GaN et c) ZnO. Les spectres sont simulés par méthode des matrices de transfert en polarisation TE. L'absorption de la couche active tient compte des excitons $1s$ et $2s$ construits sur les différentes bandes de valence de chaque matériau, ainsi que du continuum des états de diffusion de l'exciton au-dessus du gap. La ligne jaune représente les états ayant le même vecteurs d'onde.

Les résultats de ce modèle sont présentés avec plus de détails sur la figure 3.6, en se concentrant sur le cas de l'incidence normale. Pour chaque matériau, les panneaux du milieu et du bas comparent les spectres obtenus en tenant compte ou non du continuum d'états de diffusion dans la réponse diélectrique de la couche active. L'effet de ce continuum est drastique sur la branche haute polaritonique dans ZnO, car l'absorption du continuum $\alpha(E_g)$ est forte à l'échelle de l'épaisseur de la cavité; le produit $\alpha(E_g)L_{cav}$ vaut en effet 0.2 pour la cavité de GaAs, 1.8 pour celle de GaN et 3.7 pour celle de ZnO. La structure asymétrique à haute énergie dans le

spectre de réflectivité ne se retrouve pas dans son spectre de transmission et n'est pas corrélée en énergie avec la branche haute calculée en ne tenant pas compte du continuum.

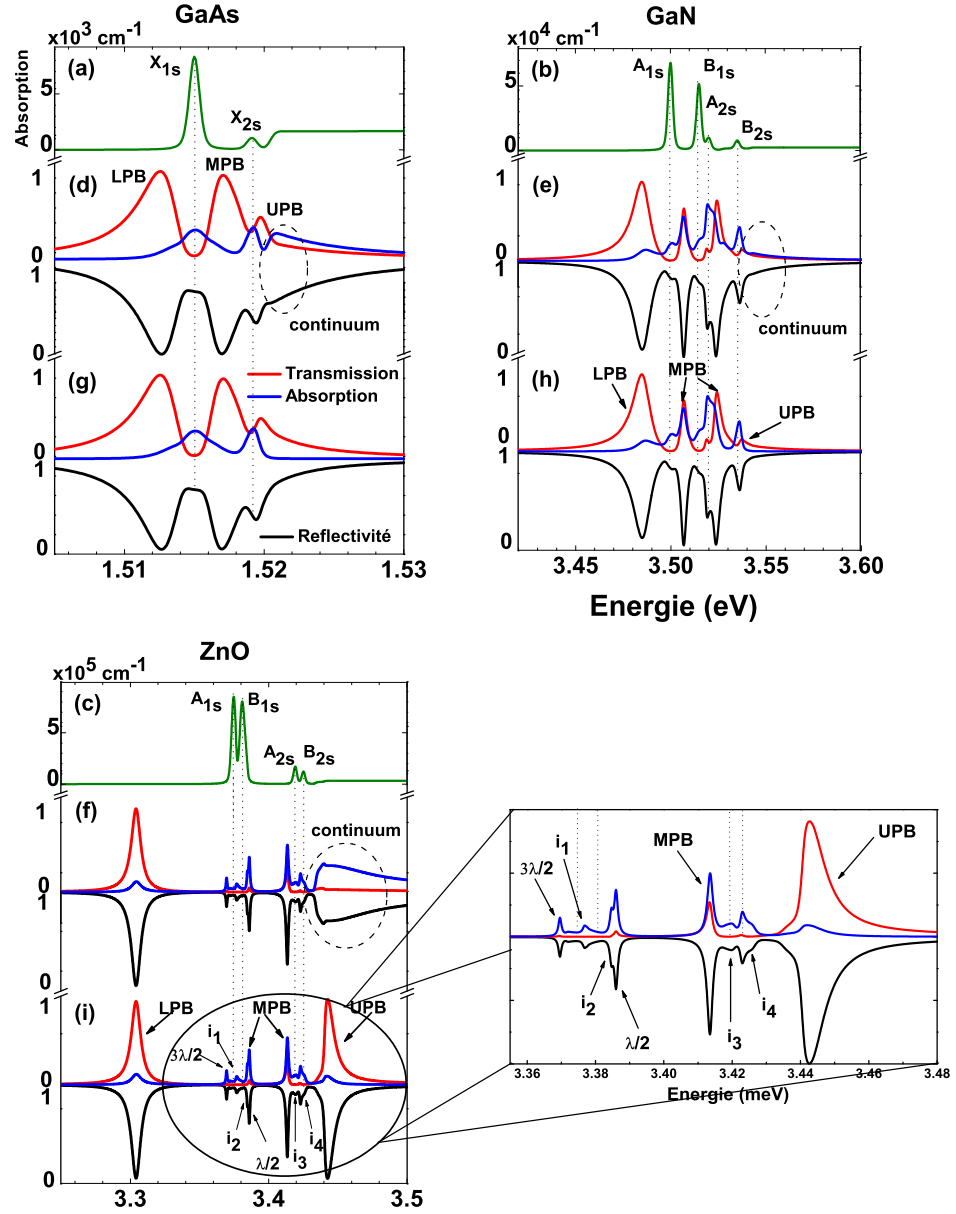


FIGURE 3.6 – Comparaison des spectres simulés en matrice de transfert pour des cavités λ de GaAs, GaN et ZnO. (a-c) Coefficient d'absorption montrant les résonances excitoniques, indiquées par des lignes pointillées sur les autres panneaux; (d-i) Spectres de réflectivité, transmission et absorption d'une cavité, calculés lorsque le continuum d'états de diffusion de l'exciton est pris en compte (d-f) ou non (g-i).

Ces résultats ont été confirmés, dans la même étude, par le calcul des états propres de la microcavité par le modèle d'oscillateurs couplés [Sav95] modifié en incluant les états de diffusion. Dans le cas de la microcavité ZnO, nous retrouvons que le polariton bas est un état bien défini,

qui s'écrit comme attendu $|LPB\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|X\rangle + |\nu\rangle)$ avec $|X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|A_{1s}\rangle + |B_{1s}\rangle)$ car la différence d'énergie de 6 meV entre excitons A et B est petite devant le dédoublement de Rabi $\Omega = 120$ meV. Par contre, la branche haute est totalement amortie par les états du continuum, et il n'y a pas d'état propre de la forme $\frac{1}{\sqrt{2}}(|X\rangle - |\nu\rangle)$ comme dans le cas de la microcavité GaAs.

Revenant à l'interprétation des spectres expérimentaux présentés sur la figure 3.4, en particulier pour la microcavité $3\lambda/4$, nous ne pouvons donc pas attribuer la structure peu marquée à haute énergie à la branche haute polaritonique ; elle reflète plutôt l'absorption incohérente du continuum d'états de diffusion. L'estimation du dédoublement de Rabi des microcavités ZnO est donc plus complexe que pour les matériaux à force d'oscillateur plus faible, et nécessite une comparaison fine des modèles de matrice de transfert et d'oscillateurs couplés. L'amortissement de la branche haute polaritonique n'enlève rien aux propriétés de la branche basse polaritonique qui constitue une superposition cohérente robuste des états d'exciton et de photon.

3.2.3 Modes polaritoniques d'ordre élevé

Dans le zoom des spectres simulés pour la microcavité ZnO (figure 3.6.i), des modes "exotiques" sont identifiés. Certains d'entre eux ("i1" à "i4") correspondent aux résonances visibles dans le spectre d'absorption ; ils ont été observés et modélisés dans les microcavités à base de semiconducteurs organiques [Agr03], dont les excitons possèdent aussi une grande force d'oscillateur. Ces résonances sont dénommées "excitons incohérents".

Pour d'autres modes (notés $\lambda/2$ et $3\lambda/2$), le tracé de la distribution spatiale du champ électrique montre que leur nombre de lobes à l'intérieur de la cavité, i.e. leur ordre d'interférence, n'est pas celui de la cavité nominale. Ils apparaissent en raison de la grande variation de l'indice de réfraction de ZnO autour de la résonance excitonique. En effet, la relation liant la longueur d'onde λ des modes Fabry-Perot à l'épaisseur d_{ZnO} de la cavité s'écrit :

$$n_{ZnO}(\lambda)d_{ZnO} = \frac{P}{2}\lambda, \quad (3.1)$$

où P est l'ordre d'interférence. La figure 3.7.a montre que l'indice de réfraction de ZnO massif varie d'un facteur supérieur à 2 à proximité de la transition excitonique. L'équation précédente possède donc plusieurs solutions d'ordres P différents pour une épaisseur de cavité donnée. Ces modes sont clairement visibles dans les spectres de réflectivité simulés en fonction de l'épaisseur (figure 3.7.b) et s'infléchissent fortement à l'approche de la résonance excitonique.

Nous avons observé en 2011 ces modes d'ordre élevé lors de l'étude de la microcavité semi-hybride Z739C (figure 3.3.c). En raison de la grande réflectivité du miroir de Bragg supérieur, les spectres de réflectivité de cette microcavité sont difficile à exploiter [Méd10]. C'est en photoluminescence résolue en angle que les branches polaritoniques ont été identifiées (figure 3.8.a), puis comparés aux résultats de simulations de matrice de transfert (figure 3.8.b) et du modèle d'oscillateurs couplés (figure 3.8.a) [Gui12a]. Le dédoublement de Rabi pour le mode $5\lambda/4$ vaut dans cette cavité $\Omega = 120$ meV, et le facteur de qualité mesuré en μPL , $Q = 450$, est proche de la valeur nominale prévue par les simulations ($Q = 500$). Le point étudié ici est à désaccord négatif $\delta = -\Omega$. Les spectres présentent près de $\theta = 0^\circ$ une branche à une énergie légèrement inférieure à celle des excitons ZnO, avec une légère dispersion angulaire, qui n'est pas prédite par le modèle d'oscillateurs couplés. Nous avons conclu de la comparaison avec les simulations de matrice de transfert qu'elle est associée au mode polaritonique d'ordre $7\lambda/4$, suivant les prédictions que nous avons formulées en 2008. Ce mode est visible jusqu'à $T = 240$ K dans les spectres de photoluminescence mais n'est plus distingué à température ambiante [Gui11a].

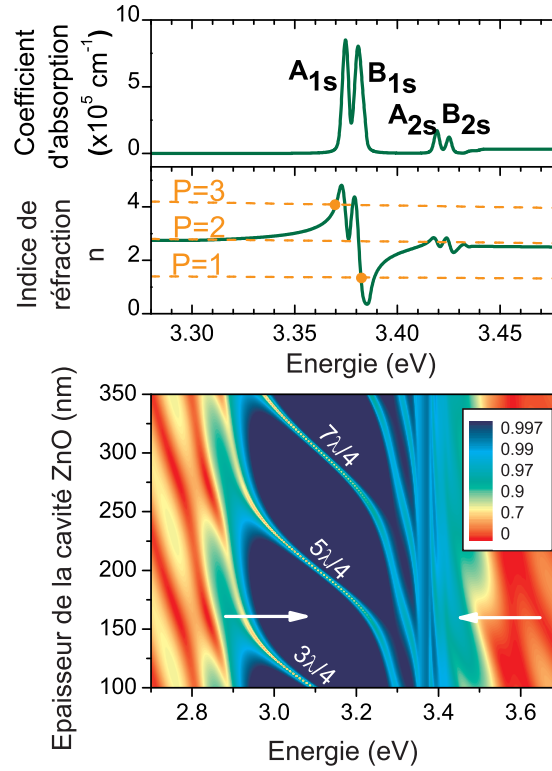


FIGURE 3.7 – (a) Coefficient d'absorption et indice de réfraction du ZnO massif à $T = 10 \text{ K}$ pour un élargissement homogène de 5 meV ; la condition de résonance des modes de cavités est indiquée en pointillés pour différents ordres P d'interférence. (b) Dépendance du spectre de réflectivité d'une microcavité analogue à celle présentée sur la figure 3.3.c en fonction de l'épaisseur de la cavité ZnO, obtenu par simulations de matrices de transfert en incidence normale. L'équation 3.1 devient pour cette cavité $n(\lambda) d_{\text{ZnO}} = (P + 1/2)\lambda/2$. La flèche indique l'épaisseur de la cavité Z739C au point étudié pour observer le laser à excitons.

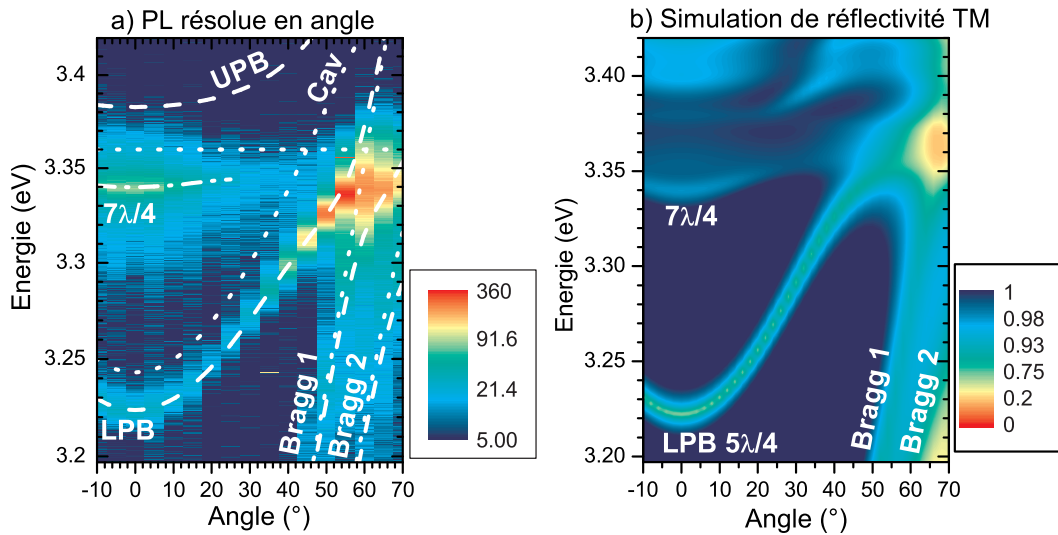


FIGURE 3.8 – (a) Spectres de photoluminescence résolue en angle de la cavité semi-hybride Z739C (figure 3.3.c) mesurés à $T = 80 \text{ K}$ et $\delta = -\Omega$. La cavité est excitée par le laser OPO ns (impulsions de 3 ns à 3.78 eV , $P = 0.4 \text{ J.cm}^{-2}$ par impulsion) dans le régime des faibles puissances d'excitation en comparaison des études présentées à la section 3.3. Les traits tiretés présentent les résultats du modèle d'oscillateurs couplés ajusté aux spectres expérimentaux, et les traits pointillés correspondent à l'énergie des modes non couplés d'exciton et de photon. (b) Simulation de la réflectivité en angle de la même cavité, en polarisation TM.

Les modes d'ordre élevé sont donc une signature de la grande force d'oscillateur des excitons dans ZnO massif. Le même effet se traduit aussi dans d'autres résonateurs ZnO : dans les nanofils de ZnO (figure 3.2.b) qui forment des cavités Fabry-Perot d'ordre plus élevé ($P \approx 50$), Zimmler *et al.* ont observé une forte diminution de l'intervalle spectral libre au voisinage immédiat de l'énergie des excitons, qui atteint un facteur 4 à $T = 100\text{ K}$ [Zim10] et reflète la variation abrupte de l'indice de réfraction.

De manière plus générale, nous voyons ici que le modèle d'oscillateurs couplés, qui traite le couplage exciton-photon en perturbation sur les modes d'exciton et de photon nus, est utilisé au-delà de sa limite de validité. D'une part, les modes photoniques sont distordus par la réponse diélectrique des excitons de ZnO ; cet aspect est bien pris en compte dans les simulations par matrices de transfert. D'autre part, comme l'ont montré les travaux théoriques de D. Citrin et J. Khurgin, les excitons $1s$ sont déformés par l'interaction avec les photons, qui renforce leur énergie de liaison [Cit03] ; cet aspect est souvent pris en compte par l'ajustement des forces d'oscillateur des excitons dans les simulations de matrices de transfert. Un cadre théorique qui décrive rigoureusement les états propres des polaritons pour des excitons de grande force d'oscillateur fait aujourd'hui défaut, pour aller au-delà d'un traitement auto-consistant. Ces renforcements des interactions ne font qu'amplifier les qualités des polaritons dans les microcavités ZnO : la robustesse à forte densité de porteurs est améliorée ; le gaz quantique de polaritons est mieux isolé des autres excitations du système ; il est enfin mieux isolé de son environnement, comme l'atteste par exemple la diminution de l'élargissement homogène des excitons en couplage fort dans des microfils ZnO [Tri11, Tri12].

3.3 Laser à gain excitonique

Pour étudier les propriétés non-linéaires de la microcavité présentée sur la figure 3.8, nous l'avons excitée en résonance avec le premier minimum de réflectivité sur le flanc haute énergie de la bande interdite (3.78 eV), avec un laser à oscillateur paramétrique de forte puissance crête, accordable dans l'ultra-violet (Opotek Vibrant UV-HE-LD, pompé par la 3ème harmonique d'un laser YAG ; impulsions de 3 ns à une fréquence de répétition de 10 Hz). L'échantillon est monté au sein d'un cryostat à doigt froid, sur l'axe optique d'un goniomètre. Le signal est collecté dans un angle solide réduit (2°), couplé à une fibre optique et analysé par le spectromètre Jobin Yvon iHR550 [Fau09a]. Cette configuration expérimentale présente l'avantage de donner accès à une plage angulaire plus étendue que les mesures effectuées en μPL dans le plan de Fourier (section 3.4). Elle est de plus requise en raison du faible taux de répétition de notre OPO : à densité surfacique d'excitation donnée, les mesures ne peuvent être effectuées que sur un spot large, de diamètre $50\mu m$, pour que le signal soit suffisamment intense pour être mesuré sur notre détecteur CCD.

3.3.1 Mise en évidence de l'émission laser

La figure 3.9 présente les spectres mesurés en incidence normale en fonction de l'énergie des impulsions, à désaccord négatif $\delta = -\Omega$ et à $T = 80\text{ K}$. A la puissance la plus faible (P_0), le spectre est analogue à celui observé en excitation continue (non présenté ici). Il est composé de la transition du polariton bas $5\lambda/4$, du pic fin et intense du mode de polariton $7\lambda/4$ décrit précédemment, et d'une transition plus faible à l'énergie des excitons libres. A partir de la puissance $2P_0$, une nouvelle transition notée G apparaît à 3.305 eV , et se décale progressivement jusqu'à 3.28 eV à $7P_0$. A partir de $3P_0$, une raie supplémentaire (L) apparaît à l'énergie du mode de cavité non couplé, et augmente de deux décades pour une augmentation d'un facteur 3 de la puissance d'excitation. Elle est la signature de l'émission de laser de la microcavité, en régime de couplage faible.

Les mesures angulaires permettent de mieux interpréter nos résultats (figure 3.10). A faible

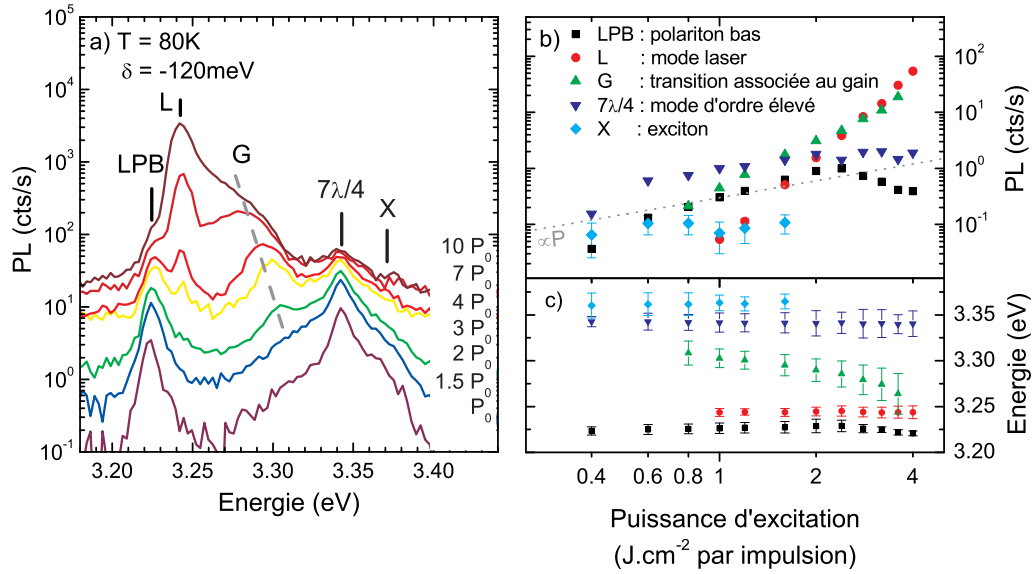


FIGURE 3.9 – (a) Spectres de photoluminescence mesurés en incidence normale, pour la cavité semi-hybride Z739C (figure 3.3.c), à $T = 80\text{ K}$ et $\delta = -\Omega$, en fonction de la puissance d'excitation par le laser OPO ns ($P_0 = 0.4\text{ J.cm}^{-2}$ par impulsion). (b,c) Amplitude et énergie des différentes transitions observées. La largeur des transitions, ajustées par des gaussiennes sur chaque spectre, est indiquée sous forme de barres d'erreur.

puissance, nous voyons que la relaxation des polaritons le long de la branche basse LPB n'est pas efficace, les polaritons étant bloqués à haute énergie et grand vecteur d'onde (50°); c'est l'effet de goulot d'étranglement ("Bottleneck") bien connu dans toutes les microcavités, et que nous avons aussi identifié en 2009 sur une microcavité ZnO de moindre facteur de qualité [Fau09b]. Lorsque la densité de polaritons augmente, les interactions exciton-exciton favorisent cette relaxation. La raie G , bien visible à $P = 3P_0$, apparaît comme un trait horizontal dans les images résolues en angle, montrant le caractère non-dispersif de la transition associée; les différents modes polaritoniques, via leur composante photonique, assurent simplement l'extraction de lumière à l'énergie de cette transition. Le mode laser L , visible à $P = 10P_0$, suit pour sa part la dispersion du mode de cavité, confirmant notre interprétation de laser en couplage faible.

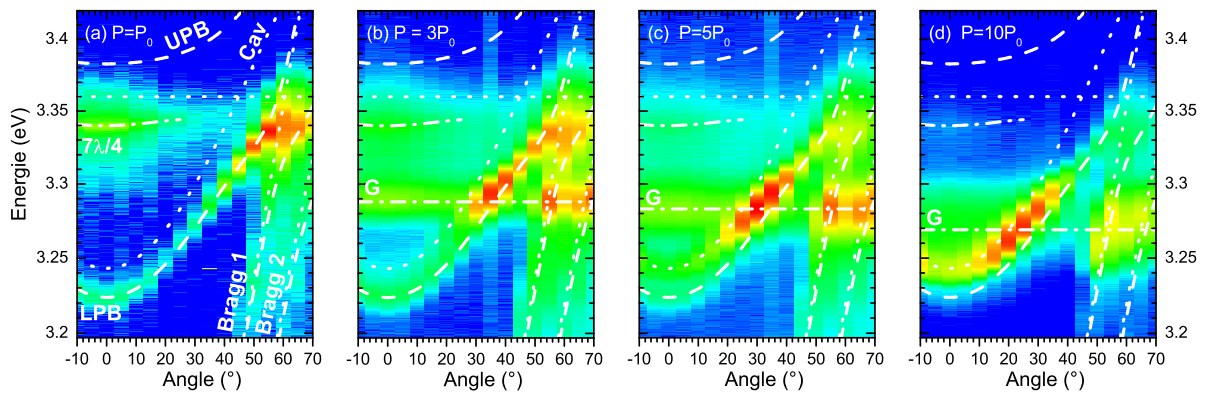


FIGURE 3.10 – Photoluminescence résolue en angle pour 4 puissances de la série d'expériences présentées sur la figure 3.9. Les traits tiretés indiquent les modes de polariton déduits du modèle d'oscillateur couplé (selon la figure 3.8.a), et les traits pointillés les modes non couplés.

Dépendance en température Pour compléter l'ensemble de résultats présentés sur le laser à gain excitonique, la figure 3.11 montre la comparaison entre différents désaccords et différentes

températures. Nous observons qu'à désaccord fortement négatif ($\delta = -160$ meV, $T = 80$ K), la transition G est toujours présente mais ne donne pas lieu à l'émission laser. Par contre, les résultats obtenus à $\delta = -120$ meV et $T = 240$ K sont tout à fait analogues à ceux obtenus à 80 K; la transition $7\lambda/4$ y est observée, attestant de la force d'oscillateur et du faible élargissement de la transition excitonique de ZnO à cette température; à nouveau, l'émission laser a lieu à l'énergie du mode de cavité non couplée, en régime de couplage faible. Enfin, à 300 K, l'émission laser a aussi lieu à l'énergie de la cavité, mais le faible rapport signal à bruit ne nous permet pas de distinguer les éventuelles transitions G et $7\lambda/4$. La synthèse de cet ensemble de résultats est présentée en fonction de la température, pour un même point de l'échantillon, sur la figure 3.12. La dépendance en température de la transition G est très proche de la bande P identifiée dans les travaux antérieurs sur l'émission stimulée dans ZnO massif. Cette dernière est attribuée aux collisions exciton-exciton à basse température et faible densité d'excitons, puis au gain dans le plasma électron-trou à plus forte densité; K. Klinghsirn a proposé en 2007 une revue détaillée de ces travaux [Kli07].

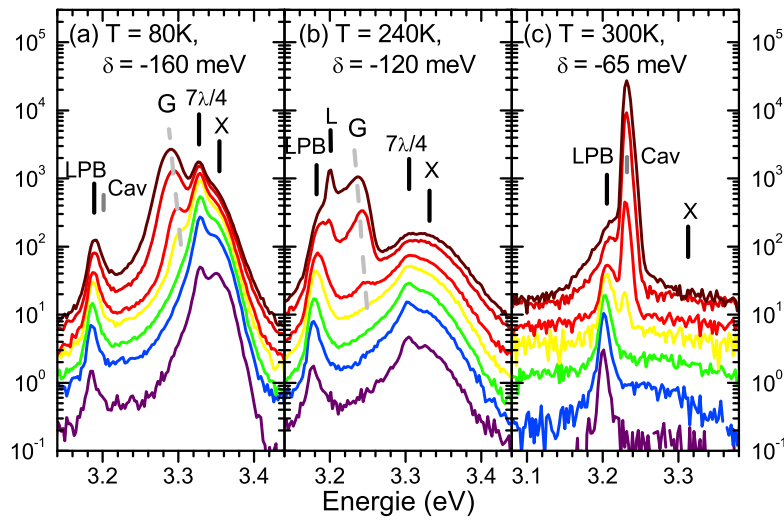


FIGURE 3.11 – Effet de la température et du désaccord sur la dépendance en puissance des spectres de photoluminescence mesurés en 0° . Les puissances et les annotations des modes sont identiques à celles de la figure 3.9.

3.3.2 Interprétation de l'émission laser en couplage faible

Nous avons largement parcouru l'espace des désaccords négatifs et des températures. En-dessous de 240 K, la transition G est systématiquement observée à forte excitation, qu'il y ait émission laser ou non. Nous observons simultanément la présence de la transition $7\lambda/4$ qui atteste de la robustesse de l'exciton dans ce régime d'excitation. Nous en concluons que la densité de porteurs est inférieure à la densité de Mott de ZnO, et que les excitons ne sont pas ionisés en un plasma électron-trou. La transition G est donc associée à la bande P des collisions inélastiques exciton-exciton. Le processus de collision est le suivant : deux excitons dans l'état $1s$ entrent en collision coulombienne, dont l'état final est un exciton dans un état excité ($2s$, ..., voire un état de diffusion de l'exciton) et un photon d'énergie inférieure à celle de l'exciton. Ce processus est renforcé dans les semiconducteurs II-VI (CdSe, ZnO, ZnSe) et a été étudié de manière approfondie dans les années 1960-1970 [AlG69, Hön76].

A forte excitation et jusqu'à 240 K, deux situations sont observées : ou bien le désaccord est trop négatif, éloignant le mode de cavité de la bande P , et la cavité reste en couplage fort, sans émission laser (figure 3.11.a); ou bien le désaccord est moins négatif et l'émission laser a lieu, mais s'accompagne de la rupture du couplage fort. Ce n'est pas par ionisation des

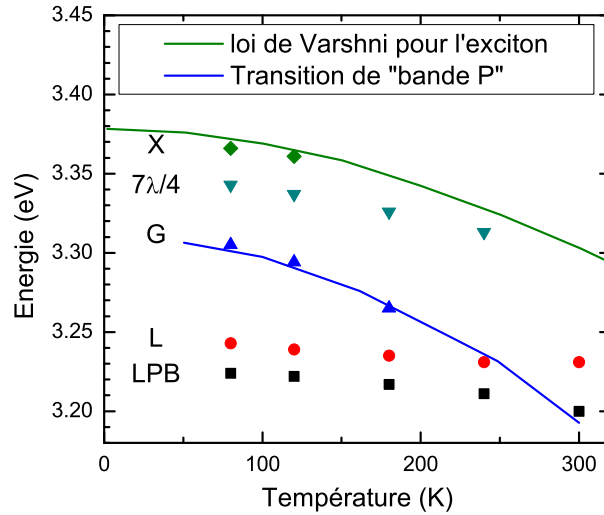


FIGURE 3.12 – Energie des transitions observées en fonction de la température : LPB, mode laser (L), transition (G), mode de polariton $7\lambda/4$ et exciton (X). La loi de Varshni pour les excitons dans ZnO est indiquée en trait plein, ainsi que la dépendance en température de la bande P d'après la référence [Kli07].

excitons que le couplage fort est brisé, mais plus probablement par le déphasage additionnel des excitons qu'induit le nouveau processus de collisions. Ce mécanisme est observé jusqu'à 240 K. A 300 K, l'émission laser observée se fait en couplage faible, mais nous ne pouvons conclure sur l'implication des excitons dans le gain de la cavité [Gui11a, Gui12a].

Mécanismes de gain dans les lasers ZnO Comme évoqué dans la problématique de ce chapitre, la nature du gain dans les lasers à ZnO massif est l'objet d'une controverse. Les différences entre un gain médié par les collisions inélastiques exciton-exciton et un gain associé au plasma électron-trou sont difficiles à identifier dans les spectres des lasers, et l'argument le plus fréquemment utilisé repose sur la comparaison de la densité estimée des porteurs avec la densité de Mott dans ZnO ; cette comparaison est peu convaincante étant donnée la grande incertitude expérimentale sur les estimations de densité de porteurs, et la grande incertitude théorique sur la valeur précise de la densité de Mott. Deux articles récents sont consacrés à la démonstration de la non-implication des excitons dans le gain et l'émission laser à température ambiante [Kli07, Ver12]. Cependant, à basse température, la robustesse des excitons dans le régime d'émission laser est attestée par la variation de l'intervalle spectral libre des modes laser à proximité de la transition excitonique dans les travaux de M. Zimmler et F. Capasso [Zim08, Zim10] sur les nanofils ZnO. Nous pensons donc que dans ce système comme dans le nôtre, c'est bien un gain excitonique à basse température (et jusqu'à 240 K dans notre cavité) qui est à l'origine de l'émission laser.

Comparaison avec les microcavités GaAs L'émission laser en couplage faible dans les microcavités GaAs est le plus souvent associée au gain via le plasma électron-trou. Lorsque le système est en régime de couplage faible sous le seuil d'émission laser (par exemple à température ambiante), le dispositif est appelé VCSEL (Vertical Cavity Surface Emitting Laser). Lorsque la cavité est en régime de couplage fort sous le seuil, alors deux transitions sont observées : le seuil d'émission de type laser à polaritons, en couplage fort, est suivi d'un second seuil laser associé à la rupture du couplage fort [Baj07, Baj08] ; il est alors impropre de parler de VCSEL. A basse température, la transition vers le couplage faible est attribuée à la transition de Mott ; certains travaux récents remettent en cause cette interprétation sur la base d'estimations de la densité de porteurs [Kam12], et proposent que les excitons ne soient pas ionisés en électrons et trous

pour ce second seuil. Ces résultats restent pour l'instant assez différents des nôtres car nous n'observons jamais de double seuil dans nos cavités, même dans les cas de laser à polaritons traités dans la section qui suit, et les processus de collision exciton-exciton ne sont pas connus pour générer un gain exploitable dans GaAs et ses hétérostructures.

3.4 Laser à polaritons

La démonstration du laser à polaritons dans nos microcavités s'est faite en deux temps. En 2011, la microcavité semi-hybride Z739C, de facteur de qualité 450, a tout d'abord été étudiée en μPL avec une source laser impulsionnelle nanoseconde de fréquence de répétition plus élevée que notre laser OPO (8.52 kHz au lieu de 10 Hz), lors d'une visite au sein du groupe de N. Grandjean à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne. Confirmant les résultats obtenus dans la section 3.3 à désaccord négatif, nous avons observé l'émission laser de la microcavité en régime de couplage faible de 10 K à 200 K . Les spectres ainsi mesurés sont plus fins qu'en macro-photoluminescence en l'absence d'élargissement inhomogène. Par contre, à désaccord nul, et pour une température $T = 120$ K , un point de l'échantillon a été identifié, pour lequel l'émission laser a indubitablement lieu à l'énergie même de la branche basse polaritonique, i.e. en couplage fort. Le laser à polaritons était ainsi démontré dans une microcavité ZnO, même si la plage de paramètres de fonctionnement (δ, T) de ce laser se réduit à un unique point : ($\delta = -18 \pm 5$ $meV, T = 120$ K). Ces travaux, menés avec J. Levrat, G. Rossbach et R. Butté, font l'objet de la référence [Gui11b].

Le facteur de qualité de nos microcavités semi-hybrides apparaît comme le facteur limitant pour élargir cette plage de fonctionnement. En 2012, c'est la réussite de l'une des approches de microcavités hybrides explorées par J. Zúñiga-Pérez et S. Bouchoule qui a permis de réaliser une cavité en régime de couplage fort avec un temps de vie des polaritons plus important ($Q = 2600$). Cette cavité, décrite à la section 3.2 (figure 3.3.d), est le fruit du travail de Feng Li, doctorant au CRHEA, qui a ensuite séjourné deux fois à Montpellier pour en étudier la spectroscopie avec M. Mexis puis O. Kamoun⁵. Nous présentons ici les résultats obtenus sur cette dernière cavité, et en particulier la mesure du diagramme de phase du laser à polaritons.

3.4.1 Une cavité à fort gradient d'épaisseur

La spécificité de la microcavité ZFeng1 est que la couche active n'est pas réalisée par épitaxie mais est obtenue par polissage mécanique et chimique d'un substrat ZnO. L'épaisseur de la couche active à l'échelle de l'échantillon n'est donc pas contrôlée : il ne reste plus de ZnO dans certaines zones de l'échantillon, et dans les zones utiles, l'épaisseur varie de manière importante sur quelques dizaines de microns. La rugosité, mesurée par microscopie à force atomique au CRHEA, est par contre très faible (0.9 nm RMS sur 2×2 μm^2).

La figure 3.13 présente la cartographie de balayage d'excitation le long du gradient de la microcavité à $T = 300$ K . Les différentes branches polaritoniques, associées à des ordres d'interférence P différents, sont observés en photoluminescence. Des mesures analogues ont été menées à 10 K et 100 K , mais leur interprétation est complexe car les branches polaritoniques proches de l'énergie des excitons sont alors masquées par l'émission des excitons liés aux donneurs D_X^0 de ZnO. Nous remarquons que chaque branche s'incurve à l'approche de l'énergie des excitons dans ZnO, ce qui constitue une signature du couplage fort. La courbure des dispersions angulaires des polaritons, qui seront présentées dans les figures suivantes pour différents désaccords, montre une variation d'un facteur 5 de la masse effective des polaritons entre les désaccords positifs et négatifs, i.e selon qu'ils sont légers comme des photons ou lourds comme des excitons. Il est difficile de produire pour cet échantillon les preuves "traditionnelles" du couplage fort :

5. Olfa Kamoun a effectué son stage de master dans notre équipe, et sa thèse (2011-2013) est réalisée en co-tutelle avec S. Jaziri, de l'Université El Manar de Tunis.

l'épaisseur de la couche active de ZnO est telle que la branche haute polaritonique n'existe pas (cf section 3.2.2) ; le fort gradient d'épaisseur rend impossible toute mesure des dispersions en macro-photoluminescence, au goniomètre (spot d'excitation de diamètre $20\ \mu\text{m}$) ; nous sommes donc limités par l'ouverture angulaire de notre objectif de microscope ($20\times$, $NA\ 0.4$) dans les mesures de dispersions angulaires, dont l'inflexion devient marquée hors de la plage angulaire mesurée (au-delà de 40°). C'est donc sur les simulations par matrice de transfert, effectuées sur les miroirs diélectriques et la cavité complète, que repose notre modélisation des branches polaritoniques, à l'instar des travaux réalisés sur les microfils de ZnO [Sun08, Stu09, Tri12].

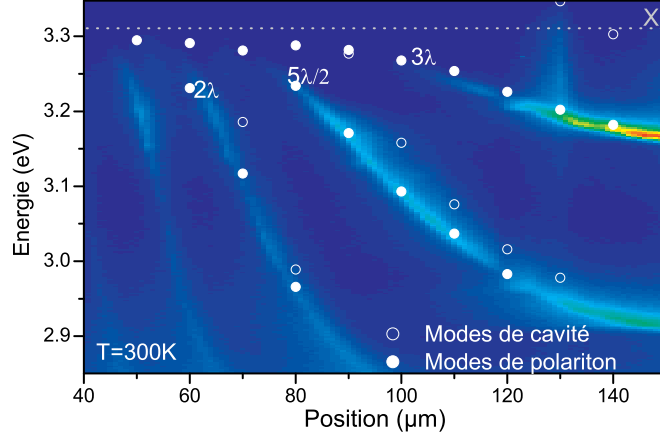


FIGURE 3.13 – Cartographie des modes de la cavité hybride ZFeng1. Photoluminescence résolue spatialement par balayage de l'excitation par pas de $1\ \mu\text{m}$, à $T = 300\ \text{K}$. La cavité est excitée par le laser continu à $266\ \text{nm}$, avec une puissance de l'ordre de $1\ \text{kW.cm}^{-2}$. Les points indiquent les résultats de la simulation par matrice de transfert des énergies des branches polaritoniques (D'après L. Orosz, LASMEA). L'épaisseur de la cavité augmente de 160 à $500\ \text{nm}$ dans la zone étudiée, et le dédoublement de Rabi déterminé par les simulations varie de 200 à $250\ \text{meV}$.

3.4.2 Démonstration du laser à polaritons

Notre dispositif expérimental de μPL a été complété en 2012 par un laser impulsionnel sub-nanoseconde à $266\ \text{nm}$ analogue à celui utilisé à l'EPFL. Sa fréquence de répétition de $4\ \text{kHz}$ permet de détecter la photoluminescence d'une zone de la cavité de l'ordre du micron, en μPL , avec notre spectromètre et sa CCD, ce qui n'était pas possible à la fréquence laser de $10\ \text{Hz}$. Les impulsions sont plus courtes que celles générées par notre OPO ($400\ \text{ps}$ au lieu de $3\ \text{ns}$), mais restent plus longues que le temps de vie des excitons ($50\ \text{ps}$) et des polaritons ($\approx 1\ \text{ps}$) : l'excitation peut être considérée comme quasi-continue.

L'émission laser en régime de couplage fort a pu être observée de 10 à $300\ \text{K}$ dans la microcavité ZFeng1, pour des désaccords positifs comme négatifs, dans les zones suffisamment épaisses de la cavité (modes 2λ à 3λ). Nous avons choisi de présenter ici en détail les spectres obtenus à température ambiante et à désaccord nul pour un mode 3λ (figure 3.14). Sous le seuil, l'émission de la cavité est uniquement constituée par la raie de la branche basse LPB ($3.186\ \text{eV}$). Un pic fin apparaît à ($3.19\ \text{eV}$), $4\ \text{meV}$ au-dessus de l'énergie du LPB à partir de $P_{thr} = 0.6\ \text{nJ}$, qui augmente de 3 ordres de grandeur et s'affine d'un facteur 10 entre P_{thr} et $2\ P_{thr}$. Le pic est alors constitué de deux modes très proches en énergie. Au-delà de $3\ P_{thr}$, de nouveaux modes laser apparaissent à plus haute énergie dans le spectre. La distribution angulaire de l'émission de la cavité est mesurée en imageant l'espace de Fourier (i.e. le plan de Fourier arrière de l'objectif) sur la fente d'entrée du spectromètre. Elle est présentée sur la figure 3.15. Sous le seuil, les polaritons ne relaxent pas totalement jusque $k = 0$, en raison de l'effet Bottleneck. La condensation s'effectue donc dans un régime hors d'équilibre. Au seuil, la dispersion du mode laser est plate, reflétant son caractère fortement localisé, de manière

analogue aux condensats observés dans les microcavités CdTe [Kri09]. La largeur angulaire de l'émission est de 13° à mi-hauteur, ce qui correspond à une longueur de localisation de l'ordre de $0.25 \mu\text{m}$. Nous interprétons donc les deux modes séparés de 2 meV observés dès le seuil comme deux états localisés de condensats voisins, générés sous le spot d'excitation.

La figure 3.14.c présente le décalage vers les hautes énergies du pic du polariton du bas, qui atteint 8 meV au seuil. Cette valeur est très faible devant le dédoublement de Rabi de la microcavité au point étudié ($\Omega = 230 \text{ meV}$). D'après nos simulations, le désaccord de la cavité y est presque nul ($\delta = -8 \text{ meV}$), et aucune émission n'est observée à l'énergie du mode de cavité à 3.302 eV . Il n'y a aucun doute que l'émission laser se fait en régime de couplage fort, et la valeur relative du décalage vers le bleu est un ordre de grandeur plus faible que dans les autres démonstrations de laser à polaritons ZnO publiées en 2012 [Fra12, Lu12a]. De plus, l'émission laser provient de $k = 0$: la condensation se fait sur l'état fondamental du système, même si le condensat n'est pas à l'équilibre thermodynamique avec les polaritons de la branche basse.

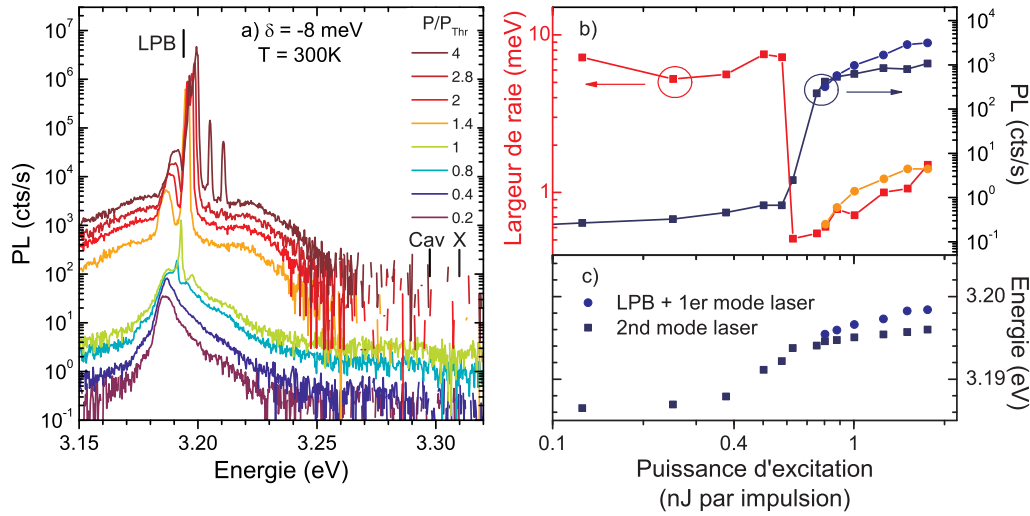


FIGURE 3.14 – (a) Spectres de photoluminescence mesurés sans sélection angulaire, pour la cavité hybride ZFeng1 (figure 3.3.d), à $T = 300 \text{ K}$ et $\delta = -8 \text{ meV}$ (désaccord presque nul), en fonction de la puissance d'excitation par le laser ns ($\lambda = 266 \text{ nm}$, impulsions de 400 ps à 4 kHz , $P_{thr} = 0.6 \text{ nJ}$, soit environ 0.06 J.cm^{-2} par impulsion). Les énergies des modes de cavité et d'exciton non couplés sont indiquées par des traits verticaux, ainsi que celle de la branche LPB. La structure à 3.188 eV dans les spectres aux 4 plus fortes puissances est un artefact (ghost) du spectromètre. (b,c) Amplitude, largeur et énergie des modes observés (LPB sous le seuil, et deux modes laser au-dessus du seuil). Les largeurs de raie sont mesurées avec les réseaux 1200 et 3600 traits/mm au-dessous et au-dessus du seuil.

3.4.3 Diagramme de phase du laser à polaritons ZnO

Le seuil d'émission laser a pu être mesuré pour les modes de polaritons $5\lambda/2$ et 3λ , qui présentent la plage de désaccord et de température de fonctionnement la plus large. Il est reporté sur la figure 3.16, et nous permet de construire le diagramme de phase de ce laser à polaritons. Les mesures sont très reproductibles lorsque le point d'étude est déplacé le long du gradient d'épaisseur, et les courbes ainsi obtenues sont remarquablement ordonnées. La détermination du désaccord $\delta = E_{Cav} - E_X$ de chaque point expérimental est délicate à désaccord positif car l'ajustement du modèle d'oscillateurs couplés présente une grande incertitude. C'est pourquoi nous préférons présenter nos mesures en fonction de l'énergie de la branche de polaritons, $E_{LPB} - E_X$, relative à celle de l'exciton pour s'affranchir de son décalage en fonction de T .

A 300 K , la situation de désaccord nul présentée sur la figure 3.14 correspond au seuil minimal du laser à polaritons. Lorsque l'échantillon est refroidi jusqu'à 10 K , le désaccord optimal devient positif, et le seuil à l'optimum diminue d'un facteur 5 par rapport à 300 K .

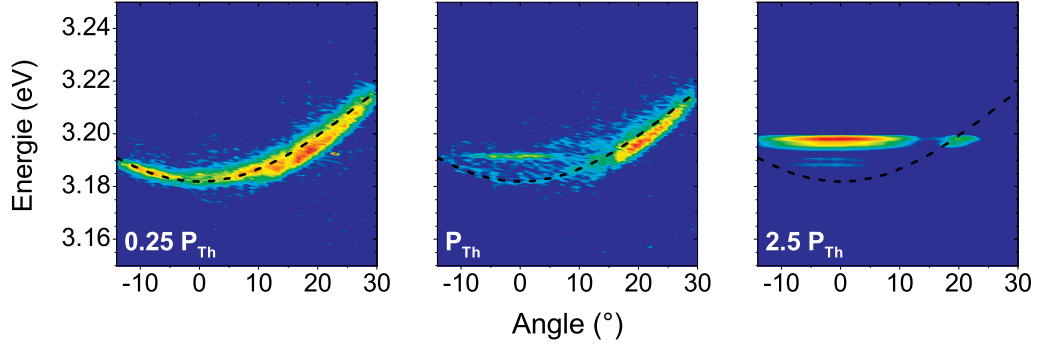


FIGURE 3.15 – Images de Fourier de l'émission des polaritons, correspondant aux spectres présentés sur la figure 3.14. La dispersion angulaire des polaritons obtenue par le modèle d'oscillateurs couplés est indiquée en pointillé. L'échantillon est incliné de 12° par rapport à l'axe optique de l'objectif de microscope pour donner accès à des angles plus élevés.

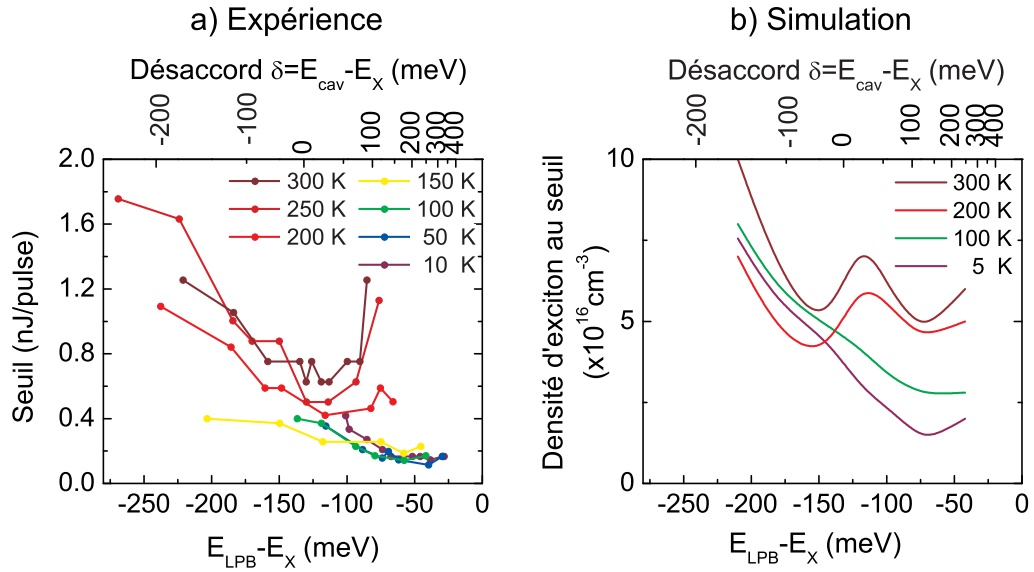


FIGURE 3.16 – Diagramme de phase du laser à polariton ZnO. a) Seuil laser mesuré en fonction de l'énergie du polariton LPB et de la température. Les désaccords indiqués sur l'axe supérieur sont estimés par le modèle d'oscillateurs couplés, et présentent une incertitude importante pour les désaccords positifs supérieurs à $+100 \text{ meV}$. b) Densité d'excitons au seuil obtenues dans un modèle cinétique semi-classique (d'après les simulations réalisées par D. Solnyshkov et G. Malpuech).

Comparaison au modèle cinétique Ces résultats ont pu être comparés à un modèle cinétique basé sur la résolution de l'équation de Boltzmann pour le gaz d'excitons et de polaritons. Les différences entre l'étude menée par D. Solnyshkov et G. Malpuech (LASMEA) et notre système physique doivent être soulignées : le modèle ne tient compte que d'une seule branche polaritonique ; il s'intéresse au régime stationnaire ; le temps de vie des excitons est pris constant, indépendant de la température et égal à 50 ps d'après des mesures de photoluminescence résolue en temps que nous avons réalisées à basse température à Montpellier.

Le modèle prédit en fonction de la température une augmentation du seuil et un décalage du minimum depuis les désaccords positifs vers les désaccords légèrement négatifs, qui s'accorde bien avec les grandes tendances observées dans nos mesures. Il prédit aussi un double minimum du seuil en fonction du désaccord, en raison du rôle central joué par la relaxation par phonons LO dans ZnO ($\hbar\omega_{LO} = 71 \text{ meV}$) : les minima correspondent aux énergies de polaritons égales à $E_X - \hbar\omega_{LO}$ et $E_X - 2\hbar\omega_{LO}$. Dans nos mesures, pour une température donnée, la plage de

désaccord donnant lieu à l'émission laser ne permet pas de sonder les deux minima en raison de la compétition entre les multiples branches polaritoniques. Par exemple, à $T = 100\text{ K}$, le seuil est minimal pour $E_{LPB} - E_X = -70\text{ meV}$ puis augmente lorsque l'énergie de la branche de polaritons diminue ; une nouvelle branche polaritonique, à plus haute énergie, entre alors en compétition avec celle étudiée, et va rentrer en régime d'émission laser. C'est donc parce que le modèle ne considère qu'une seule branche de polaritons qu'il met nettement en évidence le double minimum lié à la relaxation par émission de phonons LO. Nos mesures présentent aussi une signature de cet effet : nous passons d'un désaccord optimal tel que $E_{LPB} = E_X - \hbar\omega_{LO}$ en-dessous de 150 K à un optimum tel que $E_{LPB} = E_X - 2\hbar\omega_{LO}$ entre 200 K et 300 K .

Du régime photonique au régime excitonique La figure 3.17 présente deux désaccords extrêmes que nous avons pu atteindre, et la modélisation par le modèle d'oscillateurs couplés de leur dispersion angulaire.

Dans le cas du laser à polaritons à forte composante photonique, l'image de Fourier⁶ sous le seuil montre que les polaritons sont localisés, et que deux états proches de $k = 0$ sont excités ; un dédoublement de la dispersion angulaire est même perceptible à 15° . Les polaritons relaxent difficilement vers le bas de la branche, et un maximum d'émission est observé à 30° . L'augmentation de l'émission au seuil est importante (un facteur 10^4), et le laser à polaritons est multimode dès le seuil. La modélisation en terme d'oscillateurs couplés est simple à ajuster, et nous indique que le désaccord $\delta = -95\text{ meV}$ correspond à une composante photonique de 70%.

Pour la présentation du laser à polaritons à forte composante excitonique, nous avons choisi le cas d'un mode d'ordre inférieur (1.5λ) observé à basse température (100 K). La courbure de la branche polaritonique sous le seuil est très faible. Les polaritons relaxent presque jusqu'en $k = 0$. L'augmentation du signal au seuil, d'un facteur 400, est beaucoup plus faible qu'en désaccord négatif, ce qui constitue une seconde signature de la relaxation efficace des polaritons. La modélisation en termes d'oscillateurs couplés est ici plus complexe car nous ne connaissons pas l'énergie de la branche polaritonique de basse énergie. Sa valeur est en effet hors de la plage spectrale mesurée, i.e. inférieure à 3.1 eV ; l'éloignement de cette branche nous permet d'atteindre une forte composante excitonique pour la LPB (77%).

Comparaison avec les autres lasers à polaritons Nous avons ici réalisé un laser à polaritons dont la plage de fonctionnement est aussi large que celle de la microcavité CdTe étudiée à Grenoble et Lausanne [Kas06a, Fig. 6.7] [Kas06b]. La composante excitonique estimée à désaccord positif est la même pour les deux cavités (77%) ; à désaccord négatif, les composantes photoniques sont comparables (74% dans CdTe, 70% dans ZnO). Les valeurs obtenues dans les microcavités GaAs sont aussi très proches (70% [Den10, Fig. 12] [Rou09]). Dans les microcavités GaN, la plage de désaccord accessible est très différente, depuis des valeurs légèrement négatives ($\delta = -\Omega/4$ soit une composante excitonique de 38%) jusqu'à des valeurs extrêmement négatives ($\delta = -3\Omega$ soit une composante photonique de 97.5%) [Lev10, Fig. 8].

Le type de transition thermodynamique associée à l'émission laser est un sujet très débattu dans la communauté des microcavités. Dans notre cas, le fort gradient et la localisation observée dans le régime photonique nous amènent à conclure que nous observons une condensation dans l'espace réel : l'invariance par translation dans le plan de la microcavité n'est pas satisfaite. La perturbation de la densité d'états 2D par le désordre rend aussi difficile l'analyse de la distribution de population des polaritons le long de la branche ; l'analyse des images de Fourier ne permet pas de conclure qu'ils sont en équilibre thermodynamique, même à désaccord positif. C'est la comparaison du diagramme de phase mesuré avec le modèle cinétique qui permet,

6. Notons qu'à température ambiante, les mesures sont réalisées en inclinant fortement l'échantillon pour accéder à la plage angulaire la plus large possible ; ceci n'est pas possible avec le cryostat en raison de la contrainte imposée par la distance de travail de notre objectif.

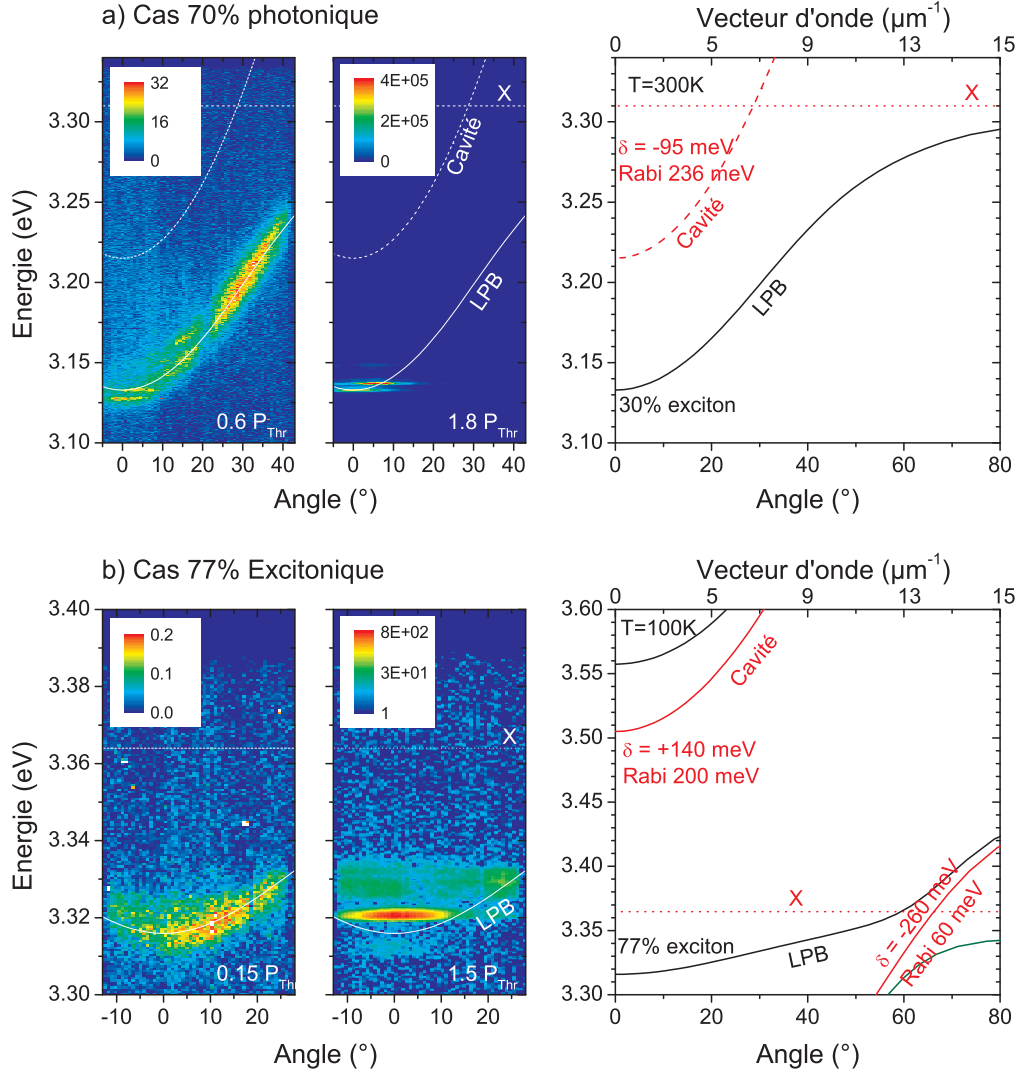


FIGURE 3.17 – Images de Fourier de l’émission des polaritons sous le seuil et au-dessus du seuil. a) Cas très photonique (cavité 3λ , $T = 300\text{ K}$). b) Cas très excitonique (cavité 2λ , $T = 100\text{ K}$). Les échelles de couleur indiquent l’intensité de photoluminescence en coups/s. Le panneau de droite présente la modélisation par des oscillateurs couplés associée.

comme dans le cas des microcavités GaN [Lev10], de conclure que la condensation des polaritons est gouvernée par la cinétique de relaxation et d’interaction à fort désaccord négatif, et par la thermodynamique du gaz de polaritons à désaccord positif ; le désaccord au seuil minimal marque la frontière entre ces deux régimes de condensation.

3.5 Conclusion

La thématique des polaritons de microcavités ZnO, initiée en 2006 ex nihilo, a aujourd’hui atteint un point de développement intéressant et prometteur. L’investissement important porté pendant les premières années sur la conception, la fabrication et la caractérisation des premières générations de microcavités, a abouti à la réalisation de cavités de facteur de qualité élevé (450 puis 2600) qui ont ouvert la voie à des études physiques avancées. Cette réussite est le fruit d’une collaboration forte et suivie entre les quatre laboratoires impliqués. Au GES/L2C, les bases de nos travaux de spectroscopie et de modélisation ont été posées pendant la thèse de Stéphane Faure, avec le développement de dispositifs expérimentaux et de simulations numériques dédiés.

Avec Christelle Brimont, j'ai ensuite poursuivi ce projet au cours de longues campagnes expérimentales destinées à explorer de manière extensive l'espace des phases de chaque microcavité, son désordre et ses qualités. L'exploitation et la synthèse des résultats expérimentaux se sont avérées complexes, aboutissant dans un premier temps à la compréhension du mécanisme de gain dans le laser à excitons, puis à la démonstration du laser à polaritons. Le post-doctorat de Meletis Mexis a permis d'approfondir notre compréhension des mécanismes d'émission laser, et de mieux contrôler les conditions expérimentales favorables à la condensation et à sa mise en évidence. Les efforts de développement expérimental liés à ce projet ont été complémentaires à ceux mis en œuvre pour l'étude des cavités photoniques, avec en particulier l'imagerie mixte de l'émission en champ proche et en champ lointain.

Dans l'analyse de nos résultats, nous avons mis l'accent sur les spécificités des microcavités ZnO en regard de leurs homologues GaAs, CdTe et GaN. La structure des modes de cavité est marquée par l'impact des excitons sur la réponse diélectrique du ZnO massif, qui ne peut être traité en perturbation d'une cavité "transparente". Des modes additionnels non observés dans d'autres types de microcavités apparaissent, rendant le système polaritonique multimode. La compétition entre ces modes est souvent défavorable à la condensation car elle multiplie les chemins de relaxation au lieu de les concentrer vers un seul état final. Ces modes sont par contre utiles en tant que signatures de la robustesse des excitons sous forte excitation : ils n'existent que si la singularité excitonique dans la réponse diélectrique est marquée, c'est-à-dire que les excitons n'ont donc subi ni une ionisation, ni même un déphasage collisionnel excessif.

Le laser à excitons nous a amenés à explorer les travaux consacrés il y a quarante ans aux processus d'émission et de gain dans les gaz d'excitons et les plasmas électrons-trous. La bande P , induite à basse température par les collisions exciton-exciton et exaltée dans les matériaux semiconducteurs II-VI, a été observée et corrélée avec l'émission laser en régime de couplage faible. Nous avons observé les signatures spectroscopiques de ce mécanisme de gain jusqu'à 240 K. Nous proposons une analyse de la nature de l'émission laser dans les résonateurs ZnO en régime de couplage faible (nanofils, microfils) et un éclairage nouveau sur le débat animé qui lui est consacré dans la littérature.

Nous avons enfin démontré la faisabilité d'un laser à polaritons à base de ZnO fonctionnant jusqu'à température ambiante. Au-delà de ce résultat marquant, c'est la large accordabilité atteinte avec la microcavité la plus récente qui ouvre des voies intéressantes. Elle a tout d'abord permis d'explorer le diagramme de phase du laser à polaritons ZnO. Le rôle du désordre le rapproche de celui démontré dans CdTe, même si nous n'avons pas à ce jour réuni toutes les signatures d'une condensation en Bose-Einstein à l'équilibre thermodynamique au point de fonctionnement optimal de la cavité. Il faut noter la similitude, au sens mathématique du terme, des paramètres associés (dédoublage de Rabi, plage de désaccord et de température accessible), qui sont dix fois plus grands dans ZnO que dans CdTe. Le diagramme de phase met en évidence les régimes thermodynamique et cinétique de condensation des polaritons.

Les perspectives d'étude portent désormais sur la propagation et la manipulation des condensats de polaritons, que ce soit sur des condensats robustes réalisés à désaccord optimal ou sur des condensats fortement excitoniques ou photoniques, aux extrémités de la plage d'accordabilité. Dans l'échantillon le plus récent, nous attendons que la propagation du condensat soit fortement marquée par le gradient local d'épaisseur. Nous souhaitons ensuite mettre en évidence le rôle de la dimensionalité des polaritons sur la transition de phase à la condensation. Nous projetons d'étudier de nouvelles microcavités sans gradient d'épaisseur, telles que la densité d'états des polaritons soit réellement 2D, à base de ZnO massif ou de puits quantiques ZnO/ZnMgO. C'est dans ce régime que les excitations élémentaires du condensat peuvent être observées et analysées en détail. D'autres microcavités, structurées dans le plan, permettront de confiner les polaritons dans des grandes boîtes quantiques (0D) ou dans des fils (1D). Enfin, le régime fortement multimode dans des cavités d'ordre d'interférence élevé peut être exploité pour réaliser des expériences d'optique non-linéaire originales entre condensats de branches polaritoniques différentes.

Conclusion

Dans ce mémoire, j'ai exposé les résultats des projets de recherche que j'ai menés depuis mon arrivée à l'Université Montpellier 2, au sein de l'équipe "Nanostructures quantiques - spectroscopie optique" du Groupe d'Etude des Semiconducteurs, nouvellement intégré au Laboratoire Charles Coulomb. Ces projets se sont inscrits dans l'orientation globale prise par notre équipe, d'étudier les nanostructures semiconductrices à grand gap comme des émetteurs quantiques aux propriétés originales, au-delà de la simple approche visant à qualifier la qualité des matériaux qui les constituent. Nous avons en particulier développé des projets centrés sur l'intégration de ces émetteurs au sein de résonateurs photoniques (microcavités planaires, microdisques, cavités à membrane de cristaux photoniques), et construit des collaborations avec les principaux laboratoires français impliqués dans cette thématique. Ce mariage de nanostructures quantiques GaN et ZnO avec la photonique a été rendu possible par les progrès réalisés au cours des dix dernières années dans la croissance et la structuration en salle blanche des matériaux semiconducteurs à grand gap. Il a ouvert des perspectives nouvelles inspirées de l'optique quantique et des développements récents réalisés dans les nanostructures à base de GaAs, système-modèle de référence.

Ces projets ont été rendus possibles par des collaborations de long terme, des interactions fortes et régulières entre les équipes impliquées dans la croissance et la fabrication des échantillons, et celles impliquées dans la conception, la caractérisation puis la spectroscopie avancée, pour aboutir à d'excellents échantillons et démontrer des effets originaux. Pour notre part, profitant de la complémentarité entre les membres de l'équipe, nous avons développé une plate-forme de spectroscopie basée sur la micro-photoluminescence dans l'ultra-violet, de plus en plus perfectionnée. Nous avons ainsi accédé aux différentes facettes de la spectroscopie des excitons, des photons et des polaritons confinés dans les nanostructures, chaque thèse apportant de nouvelles fonctionnalités au dispositif. En parallèle avec cette activité expérimentale, nous avons développé les outils théoriques, le plus souvent analytiques, qui sont requis pour affiner notre compréhension des phénomènes physiques étudiés, et nous nous sommes appuyés sur nos collaborations lorsque des modèles plus quantitatifs sont apparus nécessaires. Cette complémentarité entre la conception des échantillons, leur caractérisation, leur spectroscopie et leur modélisation, a constitué un ensemble très formateur pour les doctorants et post-doctorants que j'ai encadrés avec mes collègues, et pour ceux que j'aurai le plaisir d'encadrer dans le futur.

Nos travaux sur les excitons confinés dans une boîte quantique GaN (chapitre 1) ont montré que les fluctuations de charge dans l'environnement des boîtes quantiques élargissent les spectres de boîtes uniques. Ces fluctuations sont photo-induites et sont dues au caractère très isolant de la barrière AlN. L'étude statistique de la polarisation d'émission de boîtes uniques a mis en évidence le rôle majeur joué par le mélange des bandes de valence, spécifique aux semiconducteurs de symétrie wurtzite. Un modèle analytique simple nous a permis d'analyser ces résultats, mais aussi d'éclairer les travaux plus récents d'autres équipes sur la structure fine des excitons dans les boîtes GaN. Dans les échantillons étudiés en 2004-2008, nous avons conclu que les boîtes quantiques sont chargées, et que l'émission est associée à des trions. Le contrôle de la charge des boîtes quantiques constitue aujourd'hui un défi majeur pour poursuivre les travaux sur la spectroscopie des états propres de l'exciton et des complexes excitoniques dans les boîtes GaN.

Ces boîtes quantiques, intégrées dans des résonateurs photoniques (chapitre 2), se sont révélées être des émetteurs très efficaces jusqu'à température ambiante. Elles ont dans un premier temps permis d'étudier la spectroscopie des résonateurs, leurs modes propres et leurs facteurs de qualité. Disposées en plans denses au sein des cavités, elles sont désormais étudiées en tant que couches actives pour atteindre l'émission laser dans la plage spectrale ultra-violet. C'est dans les microdisques que nos derniers résultats sous forte injection sont les plus encourageants, mais les prémisses d'effets non-linéaires sont pour l'instant observés juste avant le seuil d'endommagement des microdisques. Néanmoins, nous disposons désormais de cavités photoniques à l'état de l'art dans l'ultra-violet, qui nous permettront des développements dépassant la seule thématique des nanolasers.

Les microcavités planaires en régime de couplage fort (chapitre 3) incluent pour leur part une couche active de ZnO massif, dont les excitons ont une grande force d'oscillateur. Au sein de notre collaboration, nous avons su améliorer la qualité des microcavités, et progressivement augmenter leur facteur de qualité et leur dédoublement de Rabi. Dans la dernière cavité ZnO étudiée, nous avons mis en évidence le régime de laser à polaritons pour une large gamme de températures (jusqu'à température ambiante) et de désaccord exciton-photon (i.e. de composition exciton-photon du condensat de polaritons). Ceci constitue une réussite majeure de ce projet et ouvre la voie à des travaux plus poussés de manipulation et de propagation du condensat. Dans une microcavité de facteur de qualité intermédiaire, nous avons observé une émission laser en couplage faible mais basée sur un gain excitonique, dont nous avons démontré les signatures spectroscopiques.

L'ensemble de mes travaux montre les progrès réalisés pour mettre en œuvre et comprendre le couplage exciton-photon dans les nanostructures à base de semiconducteurs à grand gap. Celles-ci, conçues et réalisées avec nos collaborateurs français, et dont la spectroscopie a été étudiée dans notre laboratoire, démontrent des spécificités qui dépassent la seule augmentation de leur température de fonctionnement jusqu'à la température ambiante. Les forces d'oscillateurs décuplées qui les caractérisent, ainsi que leurs énergies de liaison et d'interaction excitonique, bousculant les hiérarchies entre interactions propres à GaAs, modifient le paysage de l'interaction exciton-photon, les frontières entre régimes de couplage faible et de couplage fort, entre gaz d'excitons et plasma d'électrons et de trous. Dans les microcavités ZnO, le modèle de l'oscillateur quantique couplé aux modes propres d'une cavité presque transparente touche ainsi ses limites ; la rupture du couplage fort n'y procède pas nécessairement de l'ionisation des excitons, mais peut aussi être dû aux fortes interactions exciton-exciton qui dans certains cas fournissent un mécanisme de gain efficace. Dans les boîtes quantiques GaN/AlN, le faible couplage spin-orbite impose de tenir compte des multiples bandes de valence pour modéliser la structure fine des excitons et des complexes excitoniques, débouchant sur des propriétés de polarisation originales.

C'est dans les questions restées ouvertes et soulevées dans ce mémoire que se dessinent les perspectives de mes futures recherches. En insérant des boîtes quantiques isolées au sein de cavités planaires de faible facteur de qualité et contrôlées électriquement, nous pourrions mieux collecter leur émission et étudier la structure de spin de l'exciton dans une boîte quantique GaN/AlN, ainsi que ses différents états de charge. Dans les cavités photoniques de facteur de qualité élevé, le régime inédit de couplage entre quelques émetteurs quantiques de grande force d'oscillateur et un mode photonique devra être mieux compris pour maîtriser la réalisation de nano-lasers à boîtes quantiques GaN. Enfin, profitant du savoir-faire acquis pour générer des condensats de polaritons ZnO, je souhaite étudier le rôle de la dimensionalité du gaz de polaritons sur la transition de phase à la condensation en observant sa dynamique, ses excitations élémentaires, et en identifiant les spécificités associées aux grandes interactions polariton-polariton inhérentes à ZnO.

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).
- [Aka03] Yoshihiro Akahane, Takashi Asano, Bong-Shik Song, and Susumu Noda. *High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal*. Nature **425**, 944–9 (2003).
- [Ale98] A. Alemu, B. Gil, M. Julier, and S. Nakamura. *Optical properties of wurtzite GaN epilayers grown on A-plane sapphire*. Phys. Rev. B **57**, 37 (1998).
- [AlG69] Claude Benoit A la Guillaume, Jean-Marie Debever, and Frank Salvan. *Radiative Recombination in Highly Excited CdS*. Phys. Rev. **177**, 567 (1969).
- [Alt06] Hatice Altug, Dirk Englund, and Jelena Vuckovic. *Ultrafast photonic crystal nanocavity laser*. Nat Phys **2**, 484–4 (2006).
- [Aml11a] S. Amloy, Y. T. Chen, K. F. Karlsson, K. H. Chen, H. C. Hsu, C. L. Hsiao, L. C. Chen, and P. O. Holtz. *Polarization-resolved fine-structure splitting of zero-dimensional InGa_N excitons*. Phys. Rev. B **83**, 201307 (2011).
- [Aml11b] S. Amloy, K. H. Yu, K. F. Karlsson, R. Farivar, T. G. Andersson, and P. O. Holtz. *Size dependent biexciton binding energies in GaN quantum dots*. Appl. Phys. Lett. **99**, 251903–3 (2011).
- [Aml12] S. Amloy, K. F. Karlsson, T. G. Andersson, and P. O. Holtz. *On the polarized emission from exciton complexes in GaN quantum dots*. Appl. Phys. Lett. **100**, 0219 (2012).
- [And99] Lucio Claudio Andreani, Giovanna Panzarini, and Jean-Michel Gérard. *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : Theory*. Phys. Rev. B **60**, 13276–132 (1999).
- [And00] A. D. Andreev and E. P. O'Reilly. *Theory of the electronic structure of GaN/AlN hexagonal quantum dots*. Phys. Rev. B **62**, 15851–158 (2000).
- [Ari07] M. Arita, S. Ishida, S. Kako, S. Iwamoto, and Y. Arakawa. *AlN air-bridge photonic crystal nanocavities demonstrating high quality factor*. Appl. Phys. Lett. **91**, 051106–3 (2007).
- [Auf08] Alexia Auffèves, Benjamin Besga, Jean-Michel Gérard, and Jean-Philippe Poizat. *Spontaneous emission spectrum of a two-level atom in a very-high-Q cavity*. Phys. Rev. A **77**, 063833 (2008).
- [AV03a] 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**, 1533 (2003).
- [AV03b] N. Antoine-Vincent, F. Natali, M. Mihailovic, A. Vasson, J. Leymarie, P. Disseix, D. Byrne, F. Semond, and J. Massies. *Determination of the refractive indices of AlN, GaN, and Al_xGa_{1-x}N grown on (111)Si substrates*. J. Appl. Phys. **93**, 5222–52 (2003).
- [Bab08] Toshihiko Baba. *Slow light in photonic crystals*. Nat Photon **2**, 465–4 (2008).

- [Bad05] Antonio Badolato, Kevin Hennessy, Mete Atatüre, Jan Dreiser, Evelyn Hu, Pierre M. Petroff, and Atac Imamoglu. *Deterministic Coupling of Single Quantum Dots to Single Nanocavity Modes*. Science **308**, 1158–11 (2005).
- [Bae07] N. Baer, S. Schulz, P. Gartner, S. Schumacher, G. Czycholl, and F. Jahnke. *Influence of symmetry and Coulomb correlation effects on the optical properties of nitride quantum dots*. Phys. Rev. B **76**, 075310 (2007).
- [Baj07] Daniele Bajoni, Pascale Senellart, Aristide Lemaître, and Jacqueline Bloch. *Photon lasing in GaAs microcavity : Similarities with a polariton condensate*. Phys. Rev. B **76**, 201305 (2007).
- [Baj08] Daniele Bajoni, Pascale S enellart, Esther Wertz, Isabelle Sagnes, Audrey Miard, Aristide Lemaître, and Jacqueline Bloch. *Polariton Laser Using Single Micropillar GaAs-GaAlAs Semiconductor Cavities*. Phys. Rev. Lett. **100**, 047401 (2008).
- [Bar06] R. Bardoux, T. Guillet, P. Lefebvre, T. Taliercio, T. Bretagnon, S. Rousset, B. Gil, and F. Semond. *Photoluminescence of single GaN/AlN hexagonal quantum dots on Si(111) : Spectral diffusion effects*. Phys. Rev. B **74**, 1953 (2006).
- [Bar07] Richard Bardoux. *Spectroscopie de boîtes quantiques individuelles GaN/AlN en phase hexagonale*. Thèse de doctorat, Université Montpellier 2, 2007.
- [Bar08] R. Bardoux, T. Guillet, B. Gil, P. Lefebvre, T. Bretagnon, T. Taliercio, S. Rousset, and F. Semond. *Polarized emission from GaN/AlN quantum dots : Single-dot spectroscopy and symmetry-based theory*. Phys. Rev. B **77**, 235315 (2008).
- [Bar11] R. Bardoux, A. Kaneta, M. Funato, K. Okamoto, Y. Kawakami, A. Kikuchi, and K. Kishino. *Single mode emission and non-stochastic laser system based on disordered point-sized structures : toward a tuneable random laser*. Opt. Express **19**, 9262–92 (2011).
- [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).
- [Bay02] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer. *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B **65**, 1953 (2002).
- [Ber06] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassaboies, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, and J. M. Gérard. *Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot*. Nature Physics **2**, 7 (2006).
- [Bes00] L. Besombes, L. Marsal, K. Kheng, T. Charvolin, Le Si Dang, A. Wasiela, and H. Mariette. *Fine structure of the exciton in a single asymmetric CdTe quantum dot*. J. Cryst. Growth **214**, 742 – 7 (2000).
- [Bes01a] L. Besombes. *Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques de semiconducteurs II-VI*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 2001.
- [Bes01b] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*. Phys. Rev. B **63**, 1553 (2001).
- [Bes02] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. *Few-particle effects in single CdTe quantum dots*. Phys. Rev. B **65**, 1213 (2002).
- [Bim00] D. Bimberg, M. Grundmann, F. Heinrichsdorff, N.N. Ledentsov, V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, M.V. Maximov, Y.M. Shernyakov, B.V. Volovik, A.F. Tsatsulnikov, P.S. Kopev, and Zh.I. Alferov. *Quantum dot lasers : breakthrough in optoelectronics*. Thin Solid Films **367**, 235–2 (2000).

- [Bor01] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg. *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots*. Phys. Rev. Lett. **87**, 157401 (2001).
- [Bor05] Matthew Borselli, Thomas Johnson, and Oskar Painter. *Beyond the Rayleigh scattering limit in high-Q silicon microdisks : theory and experiment*. Opt. Express **13**, 1515–15 (2005).
- [Bre03] T. Bretagnon, S. Kalliakos, P. Lefebvre, P. Valvin, B. Gil, N. Grandjean, A. Dussaigne, B. Damilano, and J. Massies. *Time dependence of the photoluminescence of GaN/AlN quantum dots under high photoexcitation*. Phys. Rev. B **68**, 2053 (2003).
- [Bre06] T. Bretagnon, P. Lefebvre, P. Valvin, R. Bardoux, T. Guillet, T. Taliercio, B. Gil, N. Grandjean, F. Semond, B. Damilano, A. Dussaigne, and J. Massies. *Radiative lifetime of a single electron-hole pair in GaN/AlN quantum dots*. Phys. Rev. B **73**, 1133 (2006).
- [Bru97] D. Brunner, H. Angerer, E. Bustarret, F. Freudenberg, R. Hopler, R. Dimitrov, O. Ambacher, and M. Stutzmann. *Optical constants of epitaxial AlGaIn films and their temperature dependence*. J. Appl. Phys. **82**, 5090–50 (1997).
- [But06] R. Butté, G. Christmann, E. Feltn, JF Carlin, M. Mosca, M. Ilegems, and N. Grandjean. Phys. Rev. B **73**, (2006).
- [But09] Raphaël Butté, Jacques Levrat, Gabriel Christmann, Eric Feltn, Jean-François Carlin, and Nicolas Grandjean. *Phase diagram of a polariton laser from cryogenic to room temperature*. Phys. Rev. B **80**, 233301 (2009).
- [Cai00] Ming Cai, Oskar Painter, and Kerry J. Vahala. *Observation of Critical Coupling in a Fiber Taper to a Silica-Microsphere Whispering-Gallery Mode System*. Phys. Rev. Lett. **85**, 74– (2000).
- [Can05] C. Canalias, V. Pasiskevicius, M. Fokine, and F. Laurell. *Backward quasi-phase-matched second-harmonic generation in submicrometer periodically poled flux-grown KTiOPO₄*. Appl. Phys. Lett. **86**, 1811 (2005).
- [Cen07] Emmanuel Centeno, Didier Felbacq, and David Cassagne. *All-Angle Phase Matching Condition and Backward Second-Harmonic Localization in Nonlinear Photonic Crystals*. Phys. Rev. Lett. **98**, 263903 (2007).
- [Cha99] Seongsik Chang, Nathan B. Rex, Richard K. Chang, Gabel Chong, and Louis J. Guido. *Stimulated emission and lasing in whispering-gallery modes of GaN microdisk cavities*. Appl. Phys. Lett. **75**, 166–1 (1999).
- [Cha06] Li-Ming Chang, Chia-Hung Hou, Yu-Chen Ting, Chii-Chang Chen, Che-Lung Hsu, Jenq-Yang Chang, Chien-Chieh Lee, Guan-Ting Chen, and Jen-Inn Chyi. *Laser emission from GaN photonic crystals*. Appl. Phys. Lett. **89**, 0711 (2006).
- [Che03] G. D. Chern, H. E. Tureci, A. Douglas Stone, R. K. Chang, M. Kneissl, and N. M. Johnson. *Unidirectional lasing from InGaIn multiple-quantum-well spiral-shaped micropillars*. Appl. Phys. Lett. **83**, 1710–17 (2003).
- [Che09] Jun-Rong Chen, Tien-Chang Lu, Yung-Chi Wu, Shiang-Chi Lin, Wei-Rein Liu, Wen-Feng Hsieh, Chien-Cheng Kuo, and Cheng-Chung Lee. *Large vacuum Rabi splitting in ZnO-based hybrid microcavities observed at room temperature*. Appl. Phys. Lett. **94**, 061103–3 (2009).
- [Che10] S. W. Chen, T. C. Lu, Y. J. Hou, T. C. Liu, H. C. Kuo, and S. C. Wang. *Lasing characteristics at different band edges in GaN photonic crystal surface emitting lasers*. Appl. Phys. Lett. **96**, 071108–3 (2010).
- [Cho75] K. Cho, S. Suga, W. Dreybrodt, and F. Willmann. *Theory of degenerate 1s excitons in zinc-blende-type crystals in a magnetic field : Exchange interaction and cubic anisotropy*. Phys. Rev. B **11**, 1512–15 (1975).

- [Cho76] K. Cho. *Unified theory of symmetry-breaking effects on excitons in cubic and wurtzite structures*. Phys. Rev. B **14**, 4463–44 (1976).
- [Cho03] Aref Chowdhury, Hock M. Ng, Manish Bhardwaj, and Nils G. Weimann. *Second-harmonic generation in periodically poled GaN*. Appl. Phys. Lett. **83**, 1077–10 (2003).
- [Cho05] Y.-S. Choi, K. Hennessy, R. Sharma, E. Haberer, Y. Gao, S. P. DenBaars, S. Nakamura, E. L. Hu, and C. Meier. *GaN blue photonic crystal membrane nanocavities*. Appl. Phys. Lett. **87**, 2431 (2005).
- [Cho06] H. W. Choi, K. N. Hui, P. T. Lai, P. Chen, X. H. Zhang, S. Tripathy, J. H. Teng, and S. J. Chua. *Lasing in GaN microdisks pivoted on Si*. Appl. Phys. Lett. **89**, 211101–3 (2006).
- [Chr06] G. Christmann, D. Simeonov, R. Butté, E. Feltn, J. F. Carlin, and N. Grandjean. *Impact of disorder on high quality factor III-V nitride microcavities*. Appl. Phys. Lett. **89**, 2611 (2006).
- [Chr07] S. Christopoulos, G. Baldassarri Hoyer von Högersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Christmann, R. Butté, E. Feltn, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. *Room-Temperature Polariton Lasing in Semiconductor Microcavities*. Phys. Rev. Lett. **98**, 126405–4 (2007).
- [Chr08] Gabriel Christmann, Raphael Butté, Eric Feltn, Jean-Francois Carlin, and Nicolas Grandjean. *Room temperature polariton lasing in a GaN/AlGaIn multiple quantum well microcavity*. Appl. Phys. Lett. **93**, 051102–3 (2008).
- [Cir09] Cristian Ciraci and Emmanuel Centeno. *Focusing of Second-Harmonic Signals with Nonlinear Metamaterial Lenses : A Biphononic Microscopy Approach*. Phys. Rev. Lett. **103**, 063901 (2009).
- [Cit03] D. S. Citrin and J. B. Khurgin. *Microcavity effect on the electron-hole relative motion in semiconductor quantum wells*. Phys. Rev. B **68**, 205325 (2003).
- [Coq05] Dominique Coquillat, Gabriele Vecchi, Carlo Comaschi, Andrea Marco Malvezzi, Jeremi Torres, and Marine Le Vassor d’Yerville. *Enhanced second- and third-harmonic generation and induced photoluminescence in a two-dimensional GaN photonic crystal*. Appl. Phys. Lett. **87**, 1011 (2005).
- [Cor11] P. Corfdi, J. Levrat, A. Dussaigne, P. Lefebvre, H. Teisseyre, I. Grzegory, T. Suski, J.-D. Ganière, N. Grandjean, and B. Deveaud-Plédran. *Intrinsic dynamics of weakly and strongly confined excitons in nonpolar nitride-based heterostructures*. Phys. Rev. B **83**, 245326 (2011).
- [Cra06] Harold Craighead. *Future lab-on-a-chip technologies for interrogating individual molecules*. Nature **442**, 387–3 (2006).
- [Cze08] Christian Czekalla, Chris Sturm, Rudiger Schmidt-Grund, Bingqiang Cao, Michael Lorenz, and Marius Grundmann. *Whispering gallery mode lasing in zinc oxide microwires*. Appl. Phys. Lett. **92**, 241102–3 (2008).
- [Dai09] J. Dai, C. X. Xu, R. Ding, K. Zheng, Z. L. Shi, C. G. Lv, and Y. P. Cui. *Combined whispering gallery mode laser from hexagonal ZnO microcavities*. Appl. Phys. Lett. **95**, 1911 (2009).
- [Dan98] Le Si Dang, D. Heger, R. André, F. Boeuf, and R. Romestain. *Stimulation of Polariton Photoluminescence in Semiconductor Microcavity*. Phys. Rev. Lett. **81**, 3920 (1998).
- [Dav05] A. David, C. Meier, R. Sharma, F. S. Diana, S. P. DenBaars, E. Hu, S. Nakamura, C. Weisbuch, and H. Benisty. *Photonic bands in two-dimensionally patterned multi-mode GaN waveguides for light extraction*. Appl. Phys. Lett. **87**, 1011 (2005).
- [Dav06] Aurélien David. *High-efficiency GaN-based light-emitting diodes : Light extraction by photonic crystals and microcavities*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, University of California-Santa Barbara, 2006.

- [Dav09] Sylvain David, Philippe Boucaud, and Fabrice Semond. Method for obtaining a structured material with through openings. in particular nitrides of type iii semiconductors structured according to photonic crystal patterns, Brevet, 2009.
- [Den10] Hui Deng, Hartmut Haug, and Yoshihisa Yamamoto. *Exciton-polariton Bose-Einstein condensation*. Rev. Mod. Phys. **82**, 1489 (2010).
- [Dev07] B. Deveaud, editor. *Physics of Semiconductor Microcavities*. Wiley, 2007.
- [Die11] C P Dietrich, M Lange, C Sturm, R Schmidt-Grund, and M Grundmann. *One- and two-dimensional cavity modes in ZnO microwires*. New Journal of Physics **13**, 1030 (2011).
- [Dou08] A. Dousse, L. Lanco, J. Suffczynski, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaître, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch, and P. Sénellart. *Controlled Light-Matter Coupling for a Single Quantum Dot Embedded in a Pillar Microcavity Using Far-Field Optical Lithography*. Phys. Rev. Lett. **101**, 267404 (2008).
- [Dup10] P.-H. Dupont, C. Couteau, D. J. Rogers, F. Hosseini Teherani, and G. Lerondel. *Waveguiding-assisted random lasing in epitaxial ZnO thin film*. Appl. Phys. Lett. **97**, 261109–3 (2010).
- [Edw04] P. R. Edwards, R. W. Martin, I. M. Watson, C. Liu, R. A. Taylor, J. H. Rice, J. H. Na, J. W. Robinson, and J. D. Smith. *Quantum dot emission from site-controlled InGa_N/Ga_N micropillar arrays*. Appl. Phys. Lett. **85**, 4281–42 (2004).
- [Ell57] R. J. Elliott. *Intensity of Optical Absorption by Excitons*. Phys. Rev. **108**, 1384 (1957).
- [Emp96] S. A. Empedocles, D. J. Norris, and M. G. Bawendi. *Photoluminescence Spectroscopy of Single CdSe Nanocrystallite Quantum Dots*. Phys. Rev. Lett. **77**, 38 (1996).
- [End09] Alexandre Enderlin, Marco Ravaro, Valia Voliotis, Roger Grousson, and Xue-Lun Wang. *Coherent control of a semiconductor qubit in the strong coupling regime : Impact of energy and phase relaxation mechanisms*. Phys. Rev. B **80**, 085301 (2009).
- [Fal08] Johannes Fallert, Felix Stelzl, Huijuan Zhou, Anton Reiser, Klaus Thonke, Rolf Sauer, Claus Klingshirn, and Heinz Kalt. *Lasing dynamics in single ZnO nanorods*. Opt. Express **16**, 1125–11 (2008).
- [Fal09a] J. Fallert, R. J. B. Dietz, H. Zhou, J. Sartor, C. Klingshirn, and H. Kalt. *Lasing in single ZnO nanorods after fs- and ns-pulsed excitation*. Phys. Status Solidi (c) **6**, 449–4 (2009).
- [Fal09b] Johannes Fallert, Roman J. B. Dietz, Janos Sartor, Daniel Schneider, Claus Klingshirn, and Heinz Kalt. *Co-existence of strongly and weakly localized random laser modes*. Nat Photon **3**, 279–2 (2009).
- [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).
- [Fau09a] S. Faure. *Interaction lumière-matière dans les microcavités massives à base de ZnO : du couplage fort à température ambiante vers le laser à polariton*. Thèse de doctorat, Université Montpellier 2, 2009.
- [Fau09b] S. Faure, C. Brimont, T. Guillet, T. Bretagnon, B. Gil, F. Médard, D. Lagarde, P. Disseix, J. Leymarie, J. Zúñiga-Pérez, M. Leroux, E. Frayssinet, J. C. Moreno, F. 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).
- [Fav05] I. Favero. *Décohérence, symétrie et relaxation de spin dans les boîtes quantiques semiconductrices*. Thèse de doctorat, Université Paris VI, 2005.

- [Fou05] S. Founta, F. Rol, E. Bellet-Amalric, J. Bleuse, B. Daudin, B. Gayral, H. Mariette, and C. Moisson. *Optical properties of GaN quantum dots grown on nonpolar (11-20) SiC by molecular-beam epitaxy*. Appl. Phys. Lett. **86**, 1719 (2005).
- [Fra12] Helena Franke, Chris Sturm, Rüdiger Schmidt-Grund, Gerald Wagner, and Marius Grundmann. *Ballistic propagation of exciton-polariton condensates in a ZnO-based microcavity*. New Journal of Physics **14**, 0130 (2012).
- [Fu99] Huaxiang Fu, Lin-Wang Wang, and Alex Zunger. *Excitonic exchange splitting in bulk semiconductors*. Phys. Rev. B **59**, 5568 (1999).
- [Gal01] M. Gallart. *Dynamique de recombinaison excitonique dans les puits GaN/AlGaIn*. Thèse de doctorat, Université Montpellier II, 2001.
- [Gam96] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park. *Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots*. Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996).
- [Gar05] J.P. Garayt, J.M. Gérard, F. Enjalbert, L. Ferlazzo, S. Founta, E. Martinez-Guerrero, F. Rol, D. Araujo, R. Cox, B. Daudin, B. Gayral, Le Si Dang, and H. Mariette. *Study of isolated cubic GaN quantum dots by low-temperature cathodoluminescence*. Physica E **26**, 203–2 (2005).
- [Gay99] B. Gayral, J. M. Gérard, A. Lemaitre, C. Dupuis, L. Manin, and J. L. Pelouard. *High-Q wet-etched GaAs microdisks containing InAs quantum boxes*. Appl. Phys. Lett. **75**, 1908–19 (1999).
- [Gay01] B. Gayral. *Controlling spontaneous emission dynamics in semiconductor micro cavities*. Ann. Phys. Fr. **26**, 1–1 (2001).
- [Ger07] B. D. Gerardot, S. Seidl, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, D. Granados, J. M. Garcia, K. Kowalik, O. Krebs, K. Karrai, A. Badolato, and P. M. Petroff. *Manipulating exciton fine structure in quantum dots with a lateral electric field*. Appl. Phys. Lett. **90**, 041101–3 (2007).
- [Gil97a] B. Gil and A. Alemu. *Optical anisotropy of excitons in strained GaN epilayers grown along the [1010] direction*. Phys. Rev. B **56**, 124 (1997).
- [Gil97b] Bernard Gil, Sandra Clur, and Olivier Briot. *The exciton-polariton effect on the photoluminescence of GaN on sapphire*. Solid State Communications **104**, 267–2 (1997).
- [Gra05] Silvija Gradecak, Fang Qian, Yat Li, Hong-Gyu Park, and Charles M. Lieber. *GaN nanowire lasers with low lasing thresholds*. Appl. Phys. Lett. **87**, 173111–3 (2005).
- [Gra07] Holger T. Grahn. *Optical polarization anisotropies in GaN films for different nonpolar orientations*. Phys. Stat. Sol. (b) **244**, 1839–18 (2007).
- [Gui11a] T. Guillet, C. Brimont, P. Valvin, B. Gil, T. Bretagnon, F. Médard, M. Mihailovic, J. Zúñiga-Pérez, M. Leroux, F. Semond, and S. Bouchoule. *Laser emission with excitonic gain in a ZnO planar microcavity*. Appl. Phys. Lett. **98**, 211105–3 (2011).
- [Gui11b] T. Guillet, M. Mexis, J. Levrat, G. Rossbach, C. Brimont, T. Bretagnon, B. Gil, R. Butté, N. Grandjean, L. Orosz, F. Reveret, J. Leymarie, J. Zúñiga-Pérez, M. Leroux, F. Semond, and S. Bouchoule. *Polariton lasing in a hybrid bulk ZnO microcavity*. Appl. Phys. Lett. **99**, 1611 (2011).
- [Gui12a] T. Guillet, C. Brimont, P. Valvin, B. Gil, T. Bretagnon, F. Médard, M. Mihailovic, J. Zúñiga-Pérez, M. Leroux, F. Semond, and S. Bouchoule. *Non-linear emission properties of ZnO microcavities*. Phys. Stat. Sol. (c) **9**, 1225–12 (2012).
- [Gui12b] T. Guillet, M. Mexis, S. Sergent, D. Néel, S. Rennesson, C. Brimont, T. Bretagnon, B. Gil, D. Sam-Giao, B. Gayral, F. Semond, M. Leroux, S. David, X. Checoury, and P. Boucaud. *High quality factor photonic resonators for nitride quantum dots*. Phys. Status Solidi B **249**, 449–4 (2012).

- [Gér98] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg. *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity*. Phys. Rev. Lett. **81**, 11 (1998).
- [Hab04] E. D. Haberer, R. Sharma, C. Meier, A. R. Stonas, S. Nakamura, S. P. DenBaars, and E. L. Hu. *Free-standing, optically pumped, GaN/InGaN microdisk lasers fabricated by photoelectrochemical etching*. Appl. Phys. Lett. **85**, 5179–51 (2004).
- [Hak75] Basil W. Hakki and Thomas L. Paoli. *Gain spectra in GaAs double - heterostructure injection lasers*. J. Appl. Phys. **46**, 1299–13 (1975).
- [Hal11] S. Halm, S. Kalusniak, S. Sadofev, H.-J. Wunsche, and F. Henneberger. *Strong exciton-photon coupling in a monolithic ZnO/(Zn,Mg)O multiple quantum well microcavity*. Appl. Phys. Lett. **99**, 1811 (2011).
- [Hay01] Christy L. Haynes and Richard P. Van Duyne. *Nanosphere Lithography : A versatile Nanofabrication Tool for studies of size-dependent nanoparticles optics*. J. Phys. Chem. B **419**, 5 (2001).
- [Hen05] J. Hendrickson, B. C. Richards, J. Sweet, S. Mosor, C. Christenson, D. Lam, G. Khitrova, H. M. Gibbs, T. Yoshie, A. Scherer, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe. *Quantum dot photonic-crystal-slab nanocavities : Quality factors and lasing*. Phys. Rev. B **72**, 193303 (2005).
- [Hig08] Yu Higuchi, Kunimichi Omae, Hiroaki Matsumura, and Takashi Mukai. *Room-Temperature CW Lasing of a GaN-Based Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser by Current Injection*. Appl. Phys. Exp. **1**, 1211 (2008).
- [Hof97] A. Hoffmann. *Dynamics of excited states in GaN*. Mater. Sci. Eng. B **43**, 1 (1997).
- [Hu90] Y. Z. Hu, M. Lindberg, and S. W. Koch. *Theory of optically excited intrinsic semiconductor quantum dots*. Phys. Rev. B **42**, 1713–17 (1990).
- [Hög04] Alexander Högele, Stefan Seidl, Martin Kroner, Khaled Karrai, Richard J. Warburton, Brian D. Gerardot, and Pierre M. Petroff. *Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot*. Phys. Rev. Lett. **93**, 217401 (2004).
- [Hön76] B. Hönerlage, C. Klingshirn, and J. B. Grun. *Spontaneous emission due to exciton-electron scattering in semiconductors*. Phys. Stat. Sol. (b) **78**, 599–6 (1976).
- [Ide05] Toshihide Ide, Toshihiko Baba, Jun Tatebayashi, Satoshi Iwamoto, Toshihiro Nakaoka, and Yasuhiko Arakawa. *Room temperature continuous wave lasing in InAs quantum-dot microdisks with air cladding*. Opt. Express **13**, 1615–16 (2005).
- [Ili08] Rumen Iliew, Christoph Etrich, Thomas Pertsch, and Falk Lederer. *Slow-light enhanced collinear second-harmonic generation in two-dimensional photonic crystals*. Phys. Rev. B **77**, 115124 (2008).
- [Jar07] Anas F. Jarjour, Rachel A. Oliver, Abbes Tahraoui, Menno J. Kappers, Colin J. Humphreys, and Robert A. Taylor. *Control of the Oscillator Strength of the Exciton in a Single InGaN-GaN Quantum Dot*. Phys. Rev. Lett. **99**, 197403 (2007).
- [Jar09] Anas F. Jarjour, Rachel A. Oliver, and Robert A. Taylor. *Nitride-based quantum dots for single photon source applications*. Phys. Stat. Sol. (a) **206**, 2510–25 (2009).
- [Joh02] Justin C. Johnson, Heon-Jin Choi, Kelly P. Knutsen, Richard D. Schaller, Peidong Yang, and Richard J. Saykally. *Single gallium nitride nanowire lasers*. Nat Mater **1**, 106–1 (2002).
- [Jon10] B. D. Jones, M. Oxborrow, V. N. Astratov, M. Hopkinson, A. Tahraoui, M. S. Skolnick, and A. M. Fox. *Splitting and lasing of whispering gallery modes in quantum dot micropillars*. Opt. Express **18**, 22578–225 (2010).
- [Jul98] M. Julier, J. Campo, B. Gil, J. P. Lascaray, and S. Nakamura. *Determination of the spin-exchange interaction constant in wurtzite GaN*. Phys. Rev. B **57**, 67 (1998).

- [Kak02] S. Kako, T. Someya, and Y. Arakawa. *Observation of enhanced spontaneous emission coupling factor in nitride-based vertical-cavity surface-emitting laser*. Appl. Phys. Lett. **80**, 722–7 (2002).
- [Kak04] S. Kako, K. Hoshino, S. Iwamoto, S. Ishida, and Y. Arakawa. *Exciton and biexciton luminescence from single hexagonal GaN/AlN self-assembled quantum dots*. Appl. Phys. Lett. **85**, (2004).
- [Kak06] Satoshi Kako, Charles Santori, Katsuyuki Hoshino, Stephan Gotzinger, Yoshihisa Yamamoto, and Yasuhiko Arakawa. *A gallium nitride single-photon source operating at 200K*. Nat Mater **5**, 887–8 (2006).
- [Kal11] S. Kalusniak, S. Sadofev, S. Halm, and F. Henneberger. *Vertical cavity surface emitting laser action of an all monolithic ZnO-based microcavity*. Appl. Phys. Lett. **98**, 011101–3 (2011).
- [Kam02] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassaboiss, C. Delalande, Ph. Roussignol, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel, and J. M. Gérard. *Line narrowing in single semiconductor quantum dots : Toward the control of environment effects*. Phys. Rev. B **66**, 041306 (2002).
- [Kam12] Elena Kammann, Hamid Ohadi, Maria Maragkou, Alexey V Kavokin, and Pavlos G Lagoudakis. *Crossover from photon to exciton-polariton lasing*. New Journal of Physics **14**, 1050 (2012).
- [Kas06a] J. Kasprzak. *Condensation of exciton polaritons*. Thèse de doctorat, Université J. Fourier - Grenoble 1, 2006.
- [Kas06b] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymanska, R. André, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, and Le Si Dang. *Bose-Einstein condensation of exciton polaritons*. Nature (London) **443**, 409–4 (2006).
- [Kav06] A Kavokin, J. Baumberg, G Malpuech, and F. Laussy. *Microcavities*. Oxford Science Publications, 2006.
- [KC08] S Kéna-Cohen, M. Davanço, and S. R. Forrest. *Strong Exciton-Photon Coupling in an Organic Single Crystal Microcavity*. Phys. Rev. Lett. **101**, 116401 (2008).
- [KC10] S. Kéna-Cohen and S.R. Forrest. *Room-temperature polariton lasing in an organic single-crystal microcavity*. Nat. Photon. **4**, 371–3 (2010).
- [Kin09] Christian Kindel, Satoshi Kako, Takeshi Kawano, Hiroaki Oishi, and Yasuhiko Arakawa. *Collinear Polarization of Exciton/Biexciton Photoluminescence from Single Hexagonal GaN Quantum Dots*. Jpn. J. Appl. Phys. **48**, 04C116 (2009).
- [Kin10] C. Kindel, S. Kako, T. Kawano, H. Oishi, Y. Arakawa, G. Hönig, M. Winkelnkemper, A. Schliwa, A. Hoffmann, and D. Bimberg. *Exciton fine-structure splitting in GaN/AlN quantum dots*. Phys. Rev. B **81**, 241309 (2010).
- [Kip06] T. J. Kippenberg, J. Kalkman, A. Polman, and K. J. Vahala. *Demonstration of an erbium-doped microdisk laser on a silicon chip*. Phys. Rev. A **74**, 051802 (2006).
- [Kli07] Claus Klingshirn, Robert Hauschild, Johannes Fallert, and Heinz Kalt. *Room-temperature stimulated emission of ZnO : Alternatives to excitonic lasing*. Phys. Rev. B **75**, 115203 (2007).
- [Kri09] D. N. Krizhanovskii, K. G. Lagoudakis, M. Wouters, B. Pietka, R. A. Bradley, K. Guda, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, B. Deveaud-Plédran, M. Richard, R. André, and Le Si Dang. *Coexisting nonequilibrium condensates with long-range spatial coherence in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. B **80**, 045317 (2009).
- [Kul99] V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kümmell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi, and D. Hommel. *Fine Structure of Biexciton Emission in Symmetric and Asymmetric CdSe/ZnSe Single Quantum Dots*. Phys. Rev. Lett. **82**, 1780–17 (1999).

- [Kun03] S. Kundermann, M. Saba, C. Ciuti, T. Guillet, U. Oesterle, J. L. Staehli, and B. Deveaud. *Coherent Control of Polariton Parametric Scattering in Semiconductor Microcavities*. Phys. Rev. Lett. **91**, 107402 (2003).
- [Kur06] Eiichi Kuramochi, Masaya Notomi, Satoshi Mitsugi, Akihiko Shinya, Takasumi Tanabe, and Toshifumi Watanabe. *Ultrahigh-Q photonic crystal nanocavities realized by the local width modulation of a line defect*. Appl. Phys. Lett. **88**, 0411 (2006).
- [Lag08] D. Lagarde, A. Balocchi, H. Carrère, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, S. Founta, and H. Mariette. *Room-temperature optical orientation of the exciton spin in cubic GaN/AlN quantum dots*. Phys. Rev. B **77**, 041304 (2008).
- [Lai07] Chun-Feng Lai, Peichen Yu, Te-Chung Wang, Hao-Chung Kuo, Tien-Chang Lu, Shing-Chung Wang, and Chao-Kuei Lee. *Lasing characteristics of a GaN photonic crystal nanocavity light source*. Appl. Phys. Lett. **91**, 041101–3 (2007).
- [Lau11] F. P. Laussy, A. Laucht, E. del Valle, J. J. Finley, and J. M. Villas-Bôas. *Luminescence spectra of quantum dots in microcavities. III. Multiple quantum dots*. Phys. Rev. B **84**, 195313 (2011).
- [Law71] P. Lawaetz. *Valence-Band Parameters in Cubic Semiconductors*. Phys. Rev. B **4**, 3460–34 (1971).
- [Lef02] P. Lefebvre, S. Anceau, P. Valvin, T. Taliercio, L. Konczewicz, T. Suski, S. P. Lepkowski, H. Teisseyre, H. Hirayama, and Y. Aoyagi. *Time-resolved spectroscopy of (Al,Ga,In)N based quantum wells : Localization effects and effective reduction of internal electric fields*. Phys. Rev. B **66**, 195330 (2002).
- [Let05] Xavier Letartre, Christelle Monat, Christian Seassal, and Pierre Viktorovitch. *Analytical modeling and an experimental investigation of two-dimensional photonic crystal microlasers : defect state (microcavity) versus band-edge state (distributed feedback) structures*. J. Opt. Soc. Am. B **22**, 2581–25 (2005).
- [Lev10] Jacques Levrat, Raphaël Butté, Eric Feltn, Jean-François Carlin, Nicolas Grandjean, Dmitry Solnyshkov, and Guillaume Malpuech. *Condensation phase diagram of cavity polaritons in GaN-based microcavities : Experiment and theory*. Phys. Rev. B **81**, 125305 (2010).
- [Lid98] D. G. Lidzey, D. D. C. Bradley, M. S. Skolnick, T. Virgili, S. Walker, and D. M. Whittaker. *Strong exciton-photon coupling in an organic semiconductor microcavity*. Nature **395**, 53– (1998).
- [Lin11] Cheng-Hung Lin, Jyh-Yang Wang, Cheng-Yen Chen, Kun-Ching Shen, Dong-Ming Yeh, Yean-Woei Kiang, and C C Yang. *A GaN photonic crystal membrane laser*. Nanotechnology **22**, 0252 (2011).
- [Lu08a] Tien-Chang Lu, Shih-Wei Chen, Li-Fan Lin, Tsung-Ting Kao, Chih-Chiang Kao, Peichen Yu, Hao-Chung Kuo, Shing-Chung Wang, and Shanhui Fan. *GaN-based two-dimensional surface-emitting photonic crystal lasers with AlN/GaN distributed Bragg reflector*. Appl. Phys. Lett. **92**, 011129–3 (2008).
- [Lu08b] Tien-Chang Lu, Chih-Chiang Kao, Hao-Chung Kuo, Gen-Sheng Huang, and Shing-Chung Wang. Appl. Phys. Lett. **92**, (2008).
- [Lu12a] Tien-Chang Lu, Ying-Yu Lai, Yu-Pin Lan, Si-Wei Huang, Jun-Rong Chen, Yung-Chi Wu, Wen-Feng Hsieh, and Hui Dengmé. *Room temperature polariton lasing vs. photon lasing in a ZnO-based hybrid microcavity*. Opt. Express **20**, 5530–55 (2012).
- [Lu12b] Yu-Jung Lu, Jisun Kim, Hung-Ying Chen, Chihhui Wu, Nima Dabidian, Charlotte E. Sanders, Chun-Yuan Wang, Ming-Yen Lu, Bo-Hong Li, Xianggang Qiu, Wen-Hao Chang, Lih-Juann Chen, Gennady Shvets, Chih-Kang Shih, and Shangjr Gwo. *Plasmonic Nanolaser Using Epitaxially Grown Silver Film*. Science **337**, 450–4 (2012).

- [Mal03] Guillaume Malpuech, Alexey Kavokin, and Fabrice P. Laussy. *Polariton Bose condensation in microcavities*. Phys. Stat. Sol. (a) **195**, 568–5 (2003).
- [Mar94] J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard. *Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs*. Phys. Rev. Lett. **73**, 716 (1994).
- [Mat08] Hideki Matsubara, Susumu Yoshimoto, Hirohisa Saito, Yue Jianglin, Yoshinori Tanaka, and Susumu Noda. *GaN Photonic-Crystal Surface-Emitting Laser at Blue-Violet Wavelengths*. Science **319**, 445–4 (2008).
- [McC92] S. L. McCall, A. F. J. Levi, R. E. Slusher, S. J. Pearton, and R. A. Logan. *Whispering-gallery mode microdisk lasers*. Appl. Phys. Lett. **60**, 289–2 (1992).
- [Mel08] R. Melet, V. Voliotis, A. Enderlin, D. Roditchev, X. L. Wang, T. Guillet, and R. Grousson. *Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime*. Phys. Rev. B **78**, 073301 (2008).
- [Mex11a] M. Mexis, S. Sergent, T. Guillet, C. Brimont, T. Bretagnon, B. Gil, F. Semond, M. Leroux, D. Néel, S. David, X. Chécoury, and P. Boucaud. *High quality factor nitride-based optical cavities : microdisks with embedded GaN/Al(Ga)N quantum dots*. Opt. Lett. **36**, 2203–22 (2011).
- [Mex11b] M. Mexis, S. Sergent, T. Guillet, C. Brimont, T. Bretagnon, B. Gil, F. Semond, M. Leroux, D. Néel, S. David, X. Chécoury, and P. Boucaud. *High quality factor of AlN microdisks embedding GaN quantum dots*. Phys. Status Solidi C **8**, 2328–23 (2011).
- [Mol10] P. Molina, M. O. Ramirez, B. J. Garcia, and L. E. Bausa. *Directional dependence of the second harmonic response in two-dimensional nonlinear photonic crystals*. Appl. Phys. Lett. **96**, 261111–3 (2010).
- [Mos08] O. Moshe, D. H. Rich, B. Damilano, and J. Massies. *Effect of uniaxial stress on the polarization of light emitted from GaN/AlN quantum dots grown on Si(111)*. Phys. Rev. B **77**, 155322 (2008).
- [Mos11] O Moshe, D H Rich, B Damilano, and J Massies. *Polarized light from excitonic recombination in selectively etched GaN/AlN quantum dot ensembles on Si(111)*. J. Phys. D : Appl. Phys. **44**, 5051 (2011).
- [Mun12] M. Munsch, J. Claudon, N. S. Malik, K. Gilbert, P. Grosse, J.-M. Gerard, F. Albert, F. Langer, T. Schlereth, M. M. Pieczarka, S. Hofling, M. Kamp, A. Forchel, and S. Reitzenstein. *Room temperature, continuous wave lasing in microcylinder and microring quantum dot laser diodes*. Appl. Phys. Lett. **100**, 0311 (2012).
- [Méd09] F. Médard, J. Zúñiga-Pérez, 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).
- [Méd10] François Médard. *Conception et spectroscopie de microcavités à base de ZnO en régime de couplage fort pour l’obtention d’un laser à polaritons*. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2010.
- [Nab02] Y. Nabetani, T. Ishiakaawa, S. Noda, and A. Sasaki. *Raman coherence beats from entangled polarization Eigenstates in InAs quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **88**, 2236 (2002).
- [Nak06a] T. Nakaoka, S. Kako, and Y. Arakawa. *Quantum confined Stark effect in single self-assembled GaN/AlN quantum dots*. Physica E **32**, 1 (2006).
- [Nak06b] T. Nakaoka, S. Kako, and Y. Arakawa. *Unconventional quantum-confined Stark effect in a single GaN quantum dot*. Phys. Rev. B **73**, 1213 (2006).

- [Nak08] Masaaki Nakayama, Shingo Komura, Toshiki Kawase, and DaeGwi Kim. *Observation of Exciton Polaritons in a ZnO Microcavity with HfO₂/SiO₂ Distributed Bragg Reflectors*. J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 0937 (2008).
- [Nar05] Gustavo A. Narvaez, Gabriel Bester, and Alex Zunger. *Excitons, biexcitons, and trions in self-assembled (In,Ga)As/GaAs quantum dots : Recombination energies, polarization, and radiative lifetimes versus dot height*. Phys. Rev. B **72**, 245318 (2005).
- [Ngu12] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, Ph. Roussignol, C. Diederichs, and G. Cassabois. *Optically Gated Resonant Emission of Single Quantum Dots*. Phys. Rev. Lett. **108**, 057401 (2012).
- [Nom07] Masahiro Nomura, Satoshi Iwamoto, Naoto Kumagai, and Yasuhiko Arakawa. *Temporal coherence of a photonic crystal nanocavity laser with high spontaneous emission coupling factor*. Phys. Rev. B **75**, 195313 (2007).
- [Nom10] M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Ota, and Y. Arakawa. *Laser oscillation in a strongly coupled single-quantum-dot-nanocavity system*. Nat Phys **6**, 279–2 (2010).
- [Noz12] Kengo Nozaki, Akihiko Shinya, Shinji Matsuo, Yasumasa Suzaki, Toru Segawa, Tomonari Sato, Yoshihiro Kawaguchi, Ryo Takahashi, and Masaya Notomi. *Ultralow-power all-optical RAM based on nanocavities*. Nat. Photon. **6**, 248–2 (2012).
- [Née11] D. Néel, S. Sergent, M. Mexis, D. Sam-Giao, T. Guillet, C. Brimont, T. Bretagnon, F. Semond, B. Gayral, S. David, X. Checoury, and P. Boucaud. *AlN photonic crystal nanocavities realized by epitaxial conformal growth on nanopatterned silicon substrate*. Appl. Phys. Lett. **98**, 2611 (2011).
- [Ode04] T. N. Oder, K. H. Kim, J. Y. Lin, and H. X. Jiang. *III-nitride blue and ultraviolet photonic crystal light emitting diodes*. Appl. Phys. Lett. **84**, 466–4 (2004).
- [Ooh08] Goro Oohata, Takashi Nishioka, Daegwi Kim, Hajime Ishihara, and Masaaki Nakayama. *Giant Rabi splitting in a bulk CuCl microcavity*. Phys. Rev. B **78**, 233304 (2008).
- [Pac01] M. Pacheco and Z. Barticevic. *Optical response of a quantum dot superlattice under electric and magnetic fields*. Phys. Rev. B **64**, 0334 (2001).
- [Pas01] P. P. Paskov, T. Paskova, P. O. Holtz, and B. Monemar. *Spin-exchange splitting of excitons in GaN*. Phys. Rev. B **64**, 1152 (2001).
- [Pat03] B. Patton, W. Langbein, and U. Woggon. *Trion, biexciton, and exciton dynamics in single self-assembled CdSe quantum dots*. Phys. Rev. B **68**, 1253 (2003).
- [Pet05] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard, and J. Bloch. *Exciton-Photon Strong-Coupling Regime for a Single Quantum Dot Embedded in a Microcavity*. Phys. Rev. Lett. **95**, 067401 (2005).
- [Pet06] Emmanuel Peter. *Couplage fort exciton-photon pour une boîte quantique de GaAs en microdisque*. Thèse de doctorat, Université Paris XI, 2006.
- [Pez08] S. Pezzagna, J. Brault, M. Leroux, J. Massies, and M. de Micheli. *Refractive indices and elasto-optic coefficients of GaN studied by optical waveguiding*. J. Appl. Phys. **103**, 1231 (2008).
- [Pik71] Sov. Phys. JETP **33**, (1971).
- [Poe07] E. Poem, J. Shemesh, I. Marderfeld, D. Galushko, N. Akopian, D. Gershoni, B. D. Gerardot, A. Badolato, and P. M. Petroff. *Polarization sensitive spectroscopy of charged quantum dots*. Phys. Rev. B **76**, 2353 (2007).
- [Ram11] A. J. Ramsay, T. M. Godden, S. J. Boyle, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, Achanta Venu Gopal, A. M. Fox, and M. S. Skolnick. *Effect of detuning on the phonon induced dephasing of optically driven InGaAs/GaAs quantum dots*. J. Appl. Phys. **109**, 1024 (2011).

- [Rei04] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel. *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*. Nature **432**, 197–2 (2004).
- [Ren08] Julien Renard, Rudeesun Songmuang, Catherine Bougerol, Bruno Daudin, and Bruno Gayral. *Exciton and Biexciton Luminescence from Single GaN/AlN Quantum Dots in Nanowires*. Nano Lett. **8**, 2092–20 (2008).
- [Ric04] J. H. Rice, J. W. Robinson, A. Jarjour, Robert A. Taylor, Rachel A. Oliver, G. Andrew D. Briggs, Menno J. Kappers, and Colin J. Humphreys. *Temporal variation in photoluminescence from single InGaN quantum dots*. Appl. Phys. Lett. **84**, 41 (2004).
- [Rob00] H. D. Robinson and B. B. Goldberg. *Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots*. Phys. Rev. B **61**, 50 (2000).
- [Rol06] F. Rol, B. Gayral, S. Founta, B. Daudin, J. Eymery, H. Mariette, Le Si Dang, and D. Peyrade. *Optical properties of single non-polar GaN quantum dots*. Phys. Stat. Sol. b **243**, 16 (2006).
- [Rol07] F. Rol, S. Founta, H. Mariette, B. Daudin, Le Si Dang, J. Bleuse, D. Peyrade, J.-M. Gérard, and B. Gayral. *Probing exciton localization in nonpolar GaN/AlN quantum dots by single-dot optical spectroscopy*. Phys. Rev. B **75**, 125306 (2007).
- [Ros98] E. Rosencher and B. Vinter. *Optoélectronique*. Masson, 1998.
- [Rou09] Georgios Roumpos, Chih-Wei Lai, T. C. H. Liew, Yuri G. Rubo, A. V. Kavokin, and Yoshihisa Yamamoto. *Signature of the microcavity exciton-polariton relaxation mechanism in the polarization of emitted light*. Phys. Rev. B **79**, 195310 (2009).
- [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).
- [San05] Charles Santori, Stephan Gotzinger, Yoshihisa Yamamoto, Satoshi Kako, Katsuyuki Hoshino, and Yasuhiko Arakawa. *Photon correlation studies of single GaN quantum dots*. Appl. Phys. Lett. **87**, 051916–3 (2005).
- [Sar07] G. Sarusi, O. Moshe, S. Khatsevich, D. H. Rich, and B. Damilano. *Microcrack-induced strain relief in GaN/AlN quantum dots grown on Si(111)*. Phys. Rev. B **75**, 075306 (2007).
- [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 Comm. **93**, 733–7 (1995).
- [Seb06] K. Sebald, H. Lohmeyer, J. Gutowski, T. Yamaguchi, and D. Hommel. *Micro-photoluminescence studies of InGaN/GaN quantum dots up to 150 K*. Phys. Stat. Sol. (b) **243**, 1661–16 (2006).
- [Seb11] K. Sebald, Trichet, A., Richard, M., Dang, L. S., Seyfried, M., Klembt, S., Kruse, C., and Hommel, D. *Optical polariton properties in ZnSe-based planar and pillar structured microcavities*. Eur. Phys. J. B **84**, 381–3 (2011).
- [Seg04] R. Seguin, S. Rodt, A. Strittmatter, L. Reissmann, T. Bartel, A. Hoffmann, D. Bimberg, E. Hahn, and D. Gerthsen. *Multi-excitonic complexes in single InGaN quantum dots*. Appl. Phys. Lett. **84**, 40 (2004).
- [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**, 4568–45 (1973).
- [Sel06] IR Sellers, F Semond, M Leroux, J Massies, P Disseix, AL 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**, 0333 (2006).

- [Ser09a] S. Sergent. *Fabrication and study of nitride-based photonic nanocavities containing GaN quantum dots for UV emitters integrated on silicon*. Thèse de doctorat, Université de Nice-Sophia Antipolis, 2009.
- [Ser09b] Sylvain Sergent, Jean-Christophe Moreno, Eric Frayssinet, Sébastien Chenot, Mathieu Leroux, and Fabrice Semond. *GaN Quantum Dots Grown on Silicon for Free-Standing Membrane Photonic Structures*. *Appl. Phys. Exp.* **2**, 0510 (2009).
- [Ser10] S. Sergent, J. C. Moreno, E. Frayssinet, Y. Laaroussi, S. Chenot, J. Renard, D. Sam-Giao, B. Gayral, D. Néel, S. David, P. Boucaud, M. Leroux, and F. Semond. *GaN quantum dots in (Al,Ga)N-based Microdisks*. *Journal of Physics : Conference Series* **210**, 0120 (2010).
- [Ser11] S. Sergent, B. Damilano, T. Huault, J. Brault, M. Korytov, O. Tottereau, P. Venegues, M. Leroux, F. Semond, and J. Massies. *Study of the growth mechanisms of GaN/(Al, Ga)N quantum dots : Correlation between structural and optical properties*. *J. Appl. Phys.* **109**, 053514–6 (2011).
- [Ser12a] S. Sergent, M. Arita, S. Kako, S. Iwamoto, and Y. Arakawa. *High-Q (> 5000) AlN nanobeam photonic crystal cavity embedding GaN quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 1211 (2012).
- [Ser12b] S. Sergent, M. Arita, S. Kako, K. Tanabe, S. Iwamoto, and Y. Arakawa. *High-Q AlN photonic crystal nanobeam cavities fabricated by layer transfer*. *Appl. Phys. Lett.* **101**, 101106–4 (2012).
- [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*. *Appl. Phys. B* **93**, 331–3 (2008).
- [SG12] D. Sam-Giao, D. Néel, S. Sergent, B. Gayral, M. J. Rashid, F. Semond, J. Y. Duboz, M. Mexis, T. Guillet, C. Brimont, S. David, X. Checoury, and P. Boucaud. *High quality factor AlN nanocavities embedded in a photonic crystal waveguide*. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 1911 (2012).
- [Shi08] R. Shimada, J. Xie, V. Avrutin, U. Özgür, and H. Morkoç. *Cavity polaritons in ZnO-based hybrid microcavities*. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 0111 (2008).
- [Sim03] J. Simon, N. T. Pelekanos, C. Adelmann, E. Martinez-Guerrero, R. André, B. Daudin, Le Si Dang, and H. Mariette. *Direct comparison of recombination dynamics in cubic and hexagonal GaN/AlN quantum dots*. *Phys. Rev. B* **68**, 035312 (2003).
- [Sim07] D. Simeonov, E. Feltin, H.-J. Buhlmann, T. Zhu, A. Castiglia, M. Mosca, J.-F. Carlin, R. Butté, and N. Grandjean. *Blue lasing at room temperature in high quality factor GaN/AlInN microdisks with InGaIn quantum wells*. *Appl. Phys. Lett.* **90**, 061106–3 (2007).
- [Sim08a] D. Simeonov, A. Dussaigne, R. Butté, and N. Grandjean. *Complex behavior of biexcitons in GaN quantum dots due to a giant built-in polarization field*. *Phys. Rev. B* **77**, 075306 (2008).
- [Sim08b] D. Simeonov, E. Feltin, A. Altoukhov, A. Castiglia, J.-F. Carlin, R. Buttée, and N. Grandjean. *High quality nitride based microdisks obtained via selective wet etching of AlInN sacrificial layers*. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 171102–3 (2008).
- [Slu93] R. E. Slusher, A. F. J. Levi, U. Mohideen, S. L. McCall, S. J. Pearton, and R. A. Logan. *Threshold characteristics of semiconductor microdisk lasers*. *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1310–13 (1993).
- [Sol11] D. D. Solnyshkov, T. Weiss, G. Malpuech, and N. A. Gippius. *Polariton laser based on a ZnO photonic crystal slab*. *Appl. Phys. Lett.* **99**, 1111 (2011).

- [Str06] S. Strauf, K. Hennessy, M. T. Rakher, Y.-S. Choi, A. Badolato, L. C. Andreani, E. L. Hu, P. M. Petroff, and D. Bouwmeester. *Self-Tuned Quantum Dot Gain in Photonic Crystal Lasers*. Phys. Rev. Lett. **96**, 127404 (2006).
- [Str11] S. Strauf and F. Jahnke. *Single quantum dot nanolaser*. Laser & Photon. Rev. **5**, 607–6 (2011).
- [Stu09] Chris Sturm, Helena Hilmer, Rüdiger Schmidt-Grund, and Marius Grundmann. *Observation of strong exciton-photon coupling at temperatures up to 410 K*. New Journal of Physics **11**, 0730 (2009).
- [Stu11] Chris Sturm, Helena Hilmer, Bernd Rheinländer, Rüdiger Schmidt-Grund, and Marius Grundmann. *Cavity-photon dispersion in one-dimensional confined microresonators with an optically anisotropic cavity material*. Phys. Rev. B **83**, 205301 (2011).
- [Suf09] J. Suffczynski, A. Dousse, K. Gauthron, A. Lemaître, I. Sagnes, L. Lanco, J. Bloch, P. Voisin, and P. Senellart. *Origin of the Optical Emission within the Cavity Mode of Coupled Quantum Dot-Cavity Systems*. Phys. Rev. Lett. **103**, 027401 (2009).
- [Sun08] Liaoxin Sun, Zhanghai Chen, Qijun Ren, Ke Yu, Lihui Bai, Weihang Zhou, Hui Xiong, Z. Q. Zhu, and Xuechu Shen. *Direct Observation of Whispering Gallery Mode Polaritons and their Dispersion in a ZnO Tapered Microcavity*. Phys. Rev. Lett. **100**, 156403–4 (2008).
- [Sun09] Liaoxin Sun, Zhanghai Chen, Qijun Ren, Ke Yu, Weihang Zhou, Lihui Bai, Z. Q. Zhu, and Xuechu Shen. *Polarized photoluminescence study of whispering gallery mode polaritons in ZnO microcavity*. Phys. Status Solidi (c) **6**, 133–1 (2009).
- [Sun10] Liaoxin Sun, Hongxing Dong, Wei Xie, Zhenghua An, Xuechu Shen, and Zhanghai Chen. *Quasi-whispering gallery modes of exciton-polaritons in a ZnO microrod*. Opt. Express **18**, 15371–153 (2010).
- [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).
- [Tö0] V. Türec, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U. W. Pohl, D. Bimberg, and R. Steingrüber. *Effect of random field fluctuations on excitonic transitions of individual CdSe quantum dots*. Phys. Rev. B **61**, 99 (2000).
- [Tam07] Adele C. Tamboli, Elaine D. Haberer, SharmaRajat, Kwan H. Lee, Shuji Nakamura, and Evelyn L. Hu. *Room-temperature continuous-wave lasing in GaN/InGaN microdisks*. Nat Photon **1**, 61– (2007).
- [Tam09] Adele C. Tamboli, Mathew C. Schmidt, Asako Hirai, Steven P. DenBaars, and Evelyn L. Hu. *Observation of whispering gallery modes in nonpolar m-plane GaN microdisks*. Appl. Phys. Lett. **94**, 251116–3 (2009).
- [Tom09] Stanko Tomić and Nenad Vukmirović. *Excitonic and biexcitonic properties of single GaN quantum dots modeled by 8-band k.p theory and configuration-interaction method*. Phys. Rev. B **79**, 245330 (2009).
- [Tor04] J. Torres, D. Coquillat, R. Legros, J. P. Lascaray, F. Teppe, D. Scalbert, D. Peyrade, Y. Chen, O. Briot, M. Le Vassor d’Yerville, E. Centeno, D. Cassagne, and J. P. Albert. *Giant second-harmonic generation in a one-dimensional GaN photonic crystal*. Phys. Rev. B **69**, 085105 (2004).
- [Tor05] J. Torres, M. Le Vassor d’Yerville, D. Coquillat, E. Centeno, and J. P. Albert. *Ultra-violet surface-emitted second-harmonic generation in GaN one-dimensional photonic crystal slabs*. Phys. Rev. B **71**, 195326 (2005).

- [Tre95] Alessandro Tredicucci, Yong Chen, Vittorio Pellegrini, Marco Börger, Lucia Sorba, Fabio Beltram, and Franco Bassani. *Controlled Exciton-Photon Interaction in Semiconductor Bulk Microcavities*. Phys. Rev. Lett. **75**, 3906–39 (1995).
- [Tri08] S. Tripathy, T. E. Sale, A. Dadgar, V. K. X. Lin, K. Y. Zang, S. L. Teo, S. J. Chua, J. Blasing, and A. Krost. *GaN-based microdisk light emitting diodes on (111)-oriented nanosilicon-on-insulator templates*. J. Appl. Phys. **104**, 053106–7 (2008).
- [Tri11] A. Trichet, L. Sun, G. Pavlovic, N.A. Gippius, G. Malpuech, W. Xie, Z. Chen, M. Richard, and Le Si Dang. *One-dimensional ZnO exciton polaritons with negligible thermal broadening at room temperature*. Phys. Rev. B **83**, 041302 (2011).
- [Tri12] Aurélien Trichet. *One-dimensional polaritons in ZnO microwires : Towards one-dimensional quantum degenerate gas of bosons*. Thèse de doctorat, Université de Grenoble, 2012.
- [Tsi08] S. I. Tsintzos, N. T. Pelekanos, G. Konstantinidis, Z. Hatzopoulos, and P. G. Savvidis. *A GaAs polariton light-emitting diode operating near room temperature*. Nature **453**, 372–3 (2008).
- [Ulr07] S. M. Ulrich, C. Gies, S. Ates, J. Wiersig, S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Luffler, A. Forchel, F. Jahnke, and P. Michler. *Photon Statistics of Semiconductor Microcavity Lasers*. Phys. Rev. Lett. **98**, 043906 (2007).
- [Urs09] V. V. Ursaki, V. V. Zalamai, I. M. Tiginyanu, A. Burlacu, E. V. Rusu, and C. Klingshirn. *Refractive index dispersion deduced from lasing modes in ZnO microtetrapods*. Appl. Phys. Lett. **95**, 171101–3 (2009).
- [Ver12] Marijn A. M. Versteegh, Daniel Vanmaekelbergh, and Jaap I. Dijkhuis. *Room-Temperature Laser Emission of ZnO Nanowires Explained by Many-Body Theory*. Phys. Rev. Lett. **108**, 157402 (2012).
- [VT12] N. Vico-Trivino, G. Rossbach, U. Dharanipathy, J. Levrat, A. Castiglia, J.-F. Carlin, K. A. Atlasov, R. Butté, R. Houdre, and N. Grandjean. *High quality factor two dimensional GaN photonic crystal cavity membranes grown on silicon substrate*. Appl. Phys. Lett. **100**, 0711 (2012).
- [vV06] Lambert K. van Vugt, Sven Rühle, Prasanth Ravindran, Hans C. Gerritsen, Laurens Kuipers, and Daniël Vanmaekelbergh. *Exciton Polaritons Confined in a ZnO Nanowire Cavity*. Phys. Rev. Lett. **97**, 147401 (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**, 3314–33 (1992).
- [Wie08] Jan Wiersig and Martina Hentschel. *Combining Directional Light Output and Ultralow Loss in Deformed Microdisks*. Phys. Rev. Lett. **100**, 033901 (2008).
- [Win06] Momme Winkelnkemper, Andrei Schliwa, and Dieter Bimberg. *Interrelation of structural and electronic properties in InGaN/GaN quantum dots using an eight-band k.p model*. Phys. Rev. B **74**, 155322 (2006).
- [Win07] M. Winkelnkemper, R. Seguin, S. Rodt, A. Schliwa, L. Reissmann, A. Strittmatter, A. Hoffmann, and D. Bimberg. *Polarized emission lines from A- and B-type excitonic complexes in single InGaN/GaN quantum dots*. J. Appl. Phys. **101**, 113708–4 (2007).
- [Win08] M Winkelnkemper, R Seguin, S Rodt, A Hoffmann, and D Bimberg. *GaN/AlN quantum dots for single qubit emitters*. Journal of Physics : Condensed Matter **20**, 454211 (2008).
- [Wit11] M. Witzany, R. Rossbach, W.-M. Schulz, M. Jetter, P. Michler, T.-L. Liu, E. Hu, J. Wiersig, and F. Jahnke. *Lasing properties of InP/(Ga,In)P quantum dots in microdisk cavities*. Phys. Rev. B **83**, 205305 (2011).

- [Wu11] Tzeng-Tsong Wu, Peng-Hsiang Weng, Yen-Ju Hou, and Tien-Chang Lu. *GaN-based photonic crystal surface emitting lasers with central defects*. Appl. Phys. Lett. **99**, 2211 (2011).
- [Yi09] Chang-Hwan Yi, Myung-Woon Kim, and Chil-Min Kim. *Lasing characteristics of a Lima[c-cedilla]on-shaped microcavity laser*. Appl. Phys. Lett. **95**, 1411 (2009).
- [Yos04] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe. *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*. Nature **432**, 200–2 (2004).
- [Zam02] Marian Zamfirescu, Alexey Kavokin, Bernard Gil, Guillaume Malpuech, and Mikhail Kaliteevski. *ZnO as a material mostly adapted for the realization of room-temperature polariton lasers*. Phys. Rev. B **65**, 161205 (2002).
- [Zim08] Mariano A. Zimmler, Jiming Bao, Federico Capasso, Sven Muller, and Carsten Ronning. *Laser action in nanowires : Observation of the transition from amplified spontaneous emission to laser oscillation*. Appl. Phys. Lett. **93**, 051101–3 (2008).
- [Zim10] Mariano A Zimmler, Federico Capasso, Sven Müller, and Carsten Ronning. *Optically pumped nanowire lasers : invited review*. Semic. Sci. and Technol. **25**, 0240 (2010).

Annexes