



HAL
open science

Spectroscopie de condensats polaritoniques dans des microcavités et guides d'onde à base de GaN et ZnO

Omar Jamadi

► **To cite this version:**

Omar Jamadi. Spectroscopie de condensats polaritoniques dans des microcavités et guides d'onde à base de GaN et ZnO. Physique [physics]. Université Clermont Auvergne [2017-2020], 2018. Français. NNT : 2018CLFAC031 . tel-02005985

HAL Id: tel-02005985

<https://theses.hal.science/tel-02005985>

Submitted on 4 Feb 2019

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.

UNIVERSITÉ CLERMONT AUVERGNE
U.F.R. Sciences et Technologies

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES

THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITÉ
Spécialité : Physique de la matière condensée

PAR

Omar JAMADI

Master Recherche
spécialité Physique

**SPECTROSCOPIE DE CONDENSATS POLARITONIQUES DANS DES MICROCAVITÉS ET
GUIDES D'ONDE À BASE DE GAN ET ZNO.**

Soutenue publiquement le 15 mars 2018, devant la commission d'examen

G. LÉRONDEL	président de jury
E. DELEPORTE	rapporteur
M. RICHARD	rapporteur
J. ZÚÑIGA-PÉREZ	examineur
M. MIHAILOVIC	examineur
P. DISSEIX	directeur de thèse
J. LEYMARIE	directeur de thèse
F. RÉVERET	invité
A. AMO	invité

*but one can never be sure
whether it's good poetry or
bad acid.*

— Charles Bukowski, *Love Is a Dog from Hell*

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Evelyne Gil, directrice de l'Institut Pascal, et son prédécesseur, Michel Dhome, pour m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire.

Je voudrais ensuite remercier Gilles Léron del, Emmanuelle Deleporte, Maxime Richard, Jesús Zúñiga-Pérez et Martine Mihailovic pour leur participation à mon jury de thèse. Ce fut un honneur et un plaisir d'avoir un jury si compétent et je vous suis très reconnaissant pour l'attention que vous avez portée à mon travail. Je tiens particulièrement à remercier Emmanuelle Deleporte et Maxime Richard pour avoir accepté de rapporter mon travail de thèse malgré le peu de temps imparti.

Je souhaite maintenant remercier mes directeurs de thèse, Pierre Disseix et Joël Leymarie, qui m'ont accueilli au sein de l'équipe de spectroscopie dès mon stage de Master et offert la possibilité de m'épanouir pleinement dans mes travaux de recherche jusqu'à la fin de ma thèse.

Joël, merci pour la confiance et pour la grande liberté d'action et que tu m'as accordée. Merci aussi d'avoir partagé ta rigueur scientifique et tes nombreuses connaissances avec moi.

Pierre, je tiens à t'adresser ici mes plus vifs remerciements. Merci pour la qualité de ton encadrement, de tes conseils scientifiques ou non-scientifiques, et de ton soutien qui fut très précieux en fin de thèse. Ta disponibilité sans faille et ton oreille attentive n'ont pas d'égal. Merci aussi pour les nombreux bons moments passés, entre autres, aux (banquets de) conférences.

Je tiens également à remercier François Réverêt qui a encadré ma thèse. Merci pour tout ce que tu m'as appris : du bon alignement de la manip jusqu'aux subtilités des polaritons dans GaN et ZnO. Apprendre la spectroscopie avec toi était très simple et très agréable. Ton optimisme et ton enthousiasme ont été un moteur puissant durant ma thèse.

Merci à Martine Mihailovic pour avoir examiné consciencieusement ma thèse, pour les mesures d'ellipsométrie d'indices de GaN et ZnO qui ont servi un nombre incalculable de fois dans mes fits, et pour sa gentillesse et ses nombreux petits gâteaux.

Merci à François Médard pour sa disponibilité, ses avis pertinents et pour les nombreuses discussions que l'on a pu avoir ensemble, des phonons LO jusqu'au fameux plasma EHP.

Tous les résultats obtenus au cours de ma thèse sont issus de la collaboration étroite avec deux laboratoires : le CRHEA et le C2N. Dans ce cadre, je remercie Sophie Bouchoule, Jesús Zúñiga-Pérez et Fabrice Semond, grâce auxquels j'ai pu travailler avec des microcavités et des guides à l'état de l'art. Merci Fabrice pour m'avoir invité et accueilli au CRHEA durant ma première année de thèse, j'ai énormément appris sur l'épitaxie pendant ces deux semaines.

Jésus, je te suis très reconnaissant pour avoir toujours répondu à mes nombreuses questions sur la contrainte et la croissance, notamment lorsqu'il était question des guides ZnO/ZnMgO. Tu as suivi de près l'évolution de nos résultats et nous avons pu avoir de nombreux échanges, très constructifs et instructifs, qui ont assuré une très bonne dynamique. Merci aussi pour l'invitation à l'ESRF. Cette semaine de nanodiffraction fut une expérience enrichissante. J'en garde une belle photo!

Un grand merci à Guillaume Malpuech et Dmitry Solnyshkov pour l'aide que vous nous avez apporté dans l'interprétation des résultats expérimentaux et pour les différents calculs que vous avez menés. Merci pour votre disponibilité, ce fut vraiment une chance d'avoir simplement à grimper deux étages

pour discuter avec vous.

Merci à Antoine Moreau pour m'avoir appris les subtilités des modes guidés et formé à l'utilisation de son logiciel de simulation photonique MOOSH.

Durant ma thèse j'ai eu la chance d'enseigner trois années à l'IUT Mesure Physique, je tiens à remercier William Bussière et Lionel Jouve qui ont su faciliter mon apprentissage.

Merci à mes collègues thésards Maxime, Olivier, Arnel, pour toutes ces pauses café/clope qui ont égayés de nombreuses journées/soirées, et ce depuis les premières années de licence! À l'heure où j'écris vous êtes déjà tous docteurs, félicitations à vous et bonne chance pour la suite. Un grand merci à mes amis Mathieu, Evan, Maxime K, Erwan avec qui nous avons passé de très nombreux bons moments pendant ces 8 années, en particulier chez l'inspecteur le plus renommé du bassin minier. Il se reconnaîtra;). Je ne sais pas ce que nous serions tous devenus sans ces innombrables soirées au Nota Bene en compagnie entre autres de Fred et Thierry. Merci à vous. Enfin, une spéciale dédicace à mes colloqs de la "Blue house", Luc et Olivier avec qui j'ai vraiment aimé passer cette dernière année de thèse.

Je remercie mes parents, mon frère et ma sœur, pour leur soutien et leurs encouragements permanent depuis toutes ces années. Finalement, merci à Maud, pour la joie qu'elle m'apporte jour après jour et pour m'avoir épaulé et supporté durant cette dernière année.

Table des matières

Introduction	9
1 Le nitrure de gallium et l'oxyde de zinc pour la polaritonique	13
1.1 Propriétés physiques	13
1.1.1 Structure cristalline	13
1.1.2 Croissance	14
1.1.3 Constantes d'élasticité et contraintes	15
1.1.4 Phonons	17
1.1.5 Structure de bandes	17
1.2 Excitation élémentaire dans un semiconducteur	19
1.2.1 Modèle hydrogénoïde de l'exciton de Wannier-Mott	20
1.2.2 Excitons de GaN et ZnO	21
1.2.3 Fonction diélectrique	22
1.2.4 Excitons en régime de haute densité	25
1.3 Du couplage fort lumière-matière au laser à polaritons	28
1.3.1 Microcavités planaires	28
1.3.2 Guides d'onde	32
1.3.3 Couplage fort lumière-matière	34
1.3.4 Effet laser à polaritons	40
1.3.5 Domaine de validité du laser à polaritons	44
1.3.6 État de l'art	45
2 Laser à polaritons dans des microcavités planaires à base de GaN et ZnO	47
2.1 Dispositifs expérimentaux pour la micro-photoluminescence	48
2.1.1 Sources d'excitation laser	49
2.1.2 Imagerie de Fourier	49
2.1.3 Imagerie en espace réel	51
2.1.4 Spots d'excitation	52
2.2 Propriétés optiques des microcavités	53
2.2.1 Présentation des échantillons	53
2.2.2 Étude de la couche active	55
2.2.3 Étude de la qualité optique	56
2.3 Couplage fort et laser à polaritons à température ambiante	58
2.3.1 Détermination de l'éclatement de Rabi	58
2.3.2 Couplage fort	59
2.3.3 Laser à polaritons	60
2.4 Influence du désordre photonique sur le laser à polaritons	64
2.4.1 Condensation avec un large spot d'excitation	64
2.4.2 Variation du spot d'excitation	67
2.5 Influence du désaccord et de la température : diagrammes de phase	68
2.5.1 Régime thermodynamique et régime cinétique	68

2.5.2	Diagramme de phase de ZnO	71
2.5.3	Diagramme de phase de GaN	73
2.5.4	Validité du régime laser à polaritons en puissance	75
2.5.5	Comparaison entre les microcavités GaN et ZnO	76
2.6	Couplage fort et laser à polaritons en régime extrême : hautes températures	77
2.6.1	Excitons et hautes températures dans GaN	78
2.6.2	Étude du couplage fort à 350 K	78
2.6.3	Laser à polaritons à 350 K	79
3	Laser à polaritons dans des géométries guidantes	85
3.1	Introduction sur les polaritons guidés	86
3.1.1	Guides d'ondes <i>versus</i> microcavités	86
3.1.2	État de l'art	86
3.2	Présentation des structures	87
3.2.1	Croissance et particularité structurelle	87
3.2.2	Étude de la couche active	88
3.2.3	Modes guidés des structures	91
3.2.4	Détection des modes guidés	92
3.3	Couplage fort et laser à polaritons horizontal	93
3.3.1	Couplage fort	93
3.3.2	Cavités horizontales	94
3.3.3	Laser à polaritons horizontal	96
3.3.4	Évolution en puissance au-delà du seuil	100
3.3.5	Influence de la taille de la cavité	103
3.3.6	Amplification polaritonique	104
3.3.7	Évolution en température	106
3.4	Compétitions entre lasers à polaritons vertical et horizontal dans les microcavités	107
	Conclusion	113
	Bibliographie	117

Introduction

En généralisant les travaux de Bose sur la statistique quantique des photons [1] à un gaz de bosons sans interaction à l'équilibre thermodynamique, Einstein prédit en 1925 l'existence d'un nouvel état de la matière appelé condensat de Bose-Einstein. Les condensats de Bose-Einstein sont caractérisés par une occupation macroscopique de l'état quantique de plus basse énergie qui se manifeste lorsque la température du système est inférieure à une température critique. La première véritable preuve expérimentale de la condensation de Bose-Einstein eut lieu en 1995, dans les équipes de recherche de Wolfgang Ketterle, Eric Cornell et Carl Wieman, grâce à un gaz dilué d'atomes de rubidium ultra refroidis [2][3]. La température de transition étant inversement proportionnelle à la masse des bosons, la condensation d'atomes de rubidium, dont la masse représente 100000 fois la masse de l'électron libre, nécessite des températures extrêmes, inférieures à 100 nK.

Ces conditions expérimentales étant très compliquées à obtenir, plusieurs alternatives moins contraignantes ont été explorées. En 1962, Moskalevko [4] et Blatt [5] proposèrent d'étudier cette transition de phase dans les semi-conducteurs, à l'aide d'un gaz d'excitons. Les excitons sont des bosons composites, constitués d'un électron et d'un trou liés par l'interaction coulombienne. Leur masse effective, proche de celle de l'électron libre, permet d'obtenir théoriquement la condensation à des températures cryogéniques accessibles à l'aide d'un simple cryostat. Cependant, cet avantage est compensé par deux points négatifs. Le premier concerne leur temps de vie court, de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes, qui est un frein à l'établissement d'un équilibre thermique avec le réseau environnant. Le deuxième concerne leur capacité à perdre progressivement leur caractère bosonique lorsque leur densité devient trop importante. Ces deux particularités ont constitué jusqu'à présent un frein important à l'établissement d'un condensat de Bose-Einstein composé d'excitons.

Dans les années 1990, la mise au point de microcavités de grande qualité, liées au développement des diodes laser à cavité verticale émettant par la surface (VCSELs), a permis l'émergence d'un nouveau candidat : l'exciton-polariton de microcavité (ou simplement polariton). Ces particules résultent du couplage fort entre le mode photonique d'une microcavité et la résonance excitonique d'une couche active de semi-conducteur. La particularité des polaritons est de partager à la fois les propriétés de la lumière et de la matière. Grâce à leur composante photonique, ils possèdent des masses effectives extrêmement faibles, de près de neuf ordres de grandeur inférieures à celle des atomes, ce qui permet théoriquement l'observation de condensat de Bose-Einstein à température ambiante pour des densités où la nature bosonique de l'exciton n'est pas impactée.

La première observation du régime de couplage fort eut lieu en 1992 dans une microcavité à puits quantique GaAs/AlAs [6]. Ce résultat marqua le début d'intenses recherches portant sur les polaritons de cavité. En 2006, Kasprzak *et al* observèrent pour la première fois un condensat de Bose-Einstein de polaritons dans une microcavité CdTe à 40 K. Depuis, de nombreuses expériences ont été réalisées afin d'étudier la nature quantique des fluides polaritoniques, notamment à travers l'observation de la superfluidité [7][8], de vortex [9][10][11] et de solitons [12][13][14].

Au delà de l'aspect fondamental des condensats, les polaritons de cavités soulèvent un vif intérêt pour leur possible application en optoélectronique. L'exemple le plus célèbre est le laser à polaritons, proposé en 1996 par Imamoğlu *et al.*, qui repose sur l'utilisation d'un condensat de polaritons hors-équilibre pour produire une source de lumière cohérente [15]. Contrairement à un laser classique, le laser à polaritons ne nécessite aucune inversion de population afin de stimuler l'émission lumineuse,

ce qui permet potentiellement la création de composants lasers fonctionnant à très bas seuil. Pour que ces futurs composants soient utilisables dans la vie de tous les jours, il est indispensable de garantir la stabilité des excitons en température. Pour cela, leur énergie de liaison doit être supérieure à l'agitation thermique à température ambiante, de l'ordre de 25 meV. Cette condition limite de facto les semi-conducteurs utilisables pour les couches actives des microcavités.

Dans ce travail de thèse, nous allons nous concentrer sur deux semi-conducteurs inorganiques qui semblent être les plus adaptés pour la réalisation d'un laser à polaritons fonctionnant à température ambiante : GaN [16] et ZnO [17]. En effet, les excitons de ces deux matériaux ont l'avantage de posséder des énergies de liaison élevées (25.9 meV pour GaN et 60 meV pour ZnO) et des forces d'oscillateur importantes qui permettent l'obtention du régime de couplage fort à température ambiante et même au delà. Même si le laser à polaritons à température ambiante a déjà été observé à la fois dans GaN [18] et ZnO [19], aucune comparaison objective n'a pas pu être établie entre ces deux candidats, notamment en raison des grandes différences existantes au niveau des propriétés photoniques des microcavités (facteur de qualité et désordre photonique) et des conditions expérimentales.

La première partie de mon travail a consisté à étudier la condensation des polaritons dans deux microcavités planaires à base de GaN et ZnO présentant des propriétés photoniques identiques. Avec ces deux microcavités, l'objectif était double : améliorer la compréhension des différents leviers agissant sur la condensation des polaritons afin d'optimiser les futures structures et établir une comparaison quantitative des seuils laser à polaritons entre GaN et ZnO afin de dégager un candidat optimal.

La capacité des polaritons d'interagir entre eux via leur composante excitonique leur confère une forte non-linéarité qui les rend particulièrement intéressants pour la réalisation de composants tout optiques. Ces dernières années, de nombreux concepts et prototypes basés sur l'utilisation des polaritons de cavité ont été proposés pour la réalisation d'amplificateurs [20], de transistors [21][22], de commutateurs [23] et de circuits logiques [24][25]. Ces propositions se basent toutes sur des microcavités GaAs dont la maîtrise technologique permet d'obtenir d'excellentes propriétés optiques (facteurs de qualité de l'ordre de 100000). Ainsi, les faibles vitesses de groupe des polaritons de microcavité (1 $\mu\text{m}/\text{ps}$) sont compensées par leur temps de vie extrêmement long, de l'ordre de la centaine de picosecondes, ce qui leur permet de se propager sur de grandes distances. Pour ce type de composant, la longueur de propagation des polaritons est un paramètre fondamental. Elle détermine les pertes de signal ayant lieu entre deux portes logiques, et, par opposition, le gain à appliquer pour compenser ces dernières. La faible énergie de liaison des excitons dans GaAs (4 meV) empêche toute implémentation de ces composants polaritoniques tout optique à température ambiante. Encore une fois, l'utilisation de GaN et ZnO en remplacement de GaAs semble idéal. Cependant, le temps de vie des polaritons dans les microcavités GaN et ZnO étant actuellement limité à des valeurs proches de 0.5 ps, les longueurs de propagations des polaritons sont trop faibles pour être exploitées. Cette limitation peut être contournée grâce à l'utilisation de guides d'onde polaritoniques. Dans cette nouvelle géométrie, le régime de couplage fort entre un mode non-radiatif confiné par réflexion totale interne et une résonance excitonique donne naissance à des polaritons possédant des vitesses de propagation dix à cinquante fois plus rapides que dans les microcavités.

La deuxième partie de mon travail a consisté à étudier la propagation et les propriétés non-linéaires des polaritons dans deux structures guidantes de ZnO. Ces études ont permis d'observer pour la première fois le laser à polaritons dans une structure guidante.

Le premier chapitre de ce manuscrit, divisé en trois sections, présente les notions fondamentales pour l'étude des polaritons de microcavité et de guide d'onde. La première section s'attelle à décrire les propriétés physiques de GaN et ZnO, de leur structure cristalline à leur structure de bandes. Le concept d'excitons est développé dans la deuxième section. La troisième section décrit les dispositifs de confinement de la lumière employés pour obtenir le régime de couplage fort et présente les éléments nécessaires à la compréhension de la condensation des polaritons et de l'effet laser à polaritons.

Le deuxième chapitre présente les résultats expérimentaux obtenus dans les microcavités GaN et ZnO. Les différents dispositifs expérimentaux utilisés sont détaillés dans la première section.

La deuxième section est consacrée à l'étude des propriétés excitoniques et optiques des microcavités. Après avoir démontré, dans la troisième section, le régime de couplage fort et le laser à polaritons à 300 K pour les deux microcavités, la quatrième section s'intéresse en détail aux effets du désordre photonique sur le laser à polaritons. L'influence du désaccord et de la température sur le seuil laser est traitée dans la cinquième section à travers la réalisation de diagrammes de phase. Les rôles joués par les régimes cinétiques et thermodynamiques sont détaillés. Une attention particulière a été accordée à l'impact de la relaxation des polaritons assistée par l'émission de phonon LO sur les seuils lasers. Les diagrammes de phase des deux microcavités sont ensuite comparés. La dernière section de ce chapitre s'intéresse à la possibilité d'étendre, dans une microcavité planaire de GaN, la température de fonctionnement du laser à polaritons aux très hautes températures grâce à une étude du couplage fort et du laser à polaritons à 350 K.

Le troisième et dernier chapitre présente l'étude du laser à polaritons dans des géométries guidantes à base de ZnO. La première section propose une introduction sur les polaritons guidés en comparant leurs propriétés à celles des polaritons de microcavité et en établissant l'état de l'art dans le domaine. Les propriétés physiques et optiques des deux guides étudiés et le principe de détection des modes guidés sont décrits dans la deuxième section. La troisième section est consacrée à la démonstration du régime de couplage fort et du laser à polaritons. L'effet laser à polaritons dans cette géométrie est appelé "laser à polaritons horizontal" en opposition au "laser à polaritons vertical" des microcavités. Les mécanismes spécifiques liés à la géométrie sont ensuite détaillés grâce à des mesures en puissance au delà du seuil laser et des études à deux spots d'excitation. Les évolutions en température de l'énergie et du seuil laser à polaritons sont également présentées. Finalement, la dernière section propose une étude préliminaire de la compétition entre le laser à polaritons vertical et le laser à polaritons horizontal dans la microcavité ZnO du chapitre 2.

Chapitre 1

Le nitrure de gallium et l'oxyde de zinc pour la polaritonique

Sommaire

1.1 Propriétés physiques	13
1.1.1 Structure cristalline	13
1.1.2 Croissance	14
1.1.3 Constantes d'élasticité et contraintes	15
1.1.4 Phonons	17
1.1.5 Structure de bandes	17
1.2 Excitation élémentaire dans un semiconducteur	19
1.2.1 Modèle hydrogénoïde de l'exciton de Wannier-Mott	20
1.2.2 Excitons de GaN et ZnO	21
1.2.3 Fonction diélectrique	22
1.2.4 Excitons en régime de haute densité	25
1.3 Du couplage fort lumière-matière au laser à polaritons	28
1.3.1 Microcavités planaires	28
1.3.2 Guides d'onde	32
1.3.3 Couplage fort lumière-matière	34
1.3.4 Effet laser à polaritons	40
1.3.5 Domaine de validité du laser à polaritons	44
1.3.6 État de l'art	45

Au cours de ce chapitre, nous présenterons dans un premier temps les principales propriétés physiques de GaN et ZnO massif. Dans un second temps, nous développerons les notions d'excitons et détaillerons leurs propriétés dans ces matériaux. Après avoir détaillé les propriétés de confinement optique des microcavités planaires et des guides d'onde, nous présenterons le régime de couplage fort dans ces structures. Finalement, les notions nécessaires à la compréhension de l'effet laser à polaritons seront présentés et un bref état de l'art sera donné.

1.1 Propriétés physiques

1.1.1 Structure cristalline

Le nitrure de gallium et l'oxyde de zinc peuvent cristalliser soit dans la structure würtzite (réseau hexagonal) soit dans la structure blende de zinc (réseau cubique). Dans les deux cas, chaque atome de gallium (ou de zinc) est au centre d'un tétraèdre formé par les atomes d'azote (ou d'oxygène). Cette

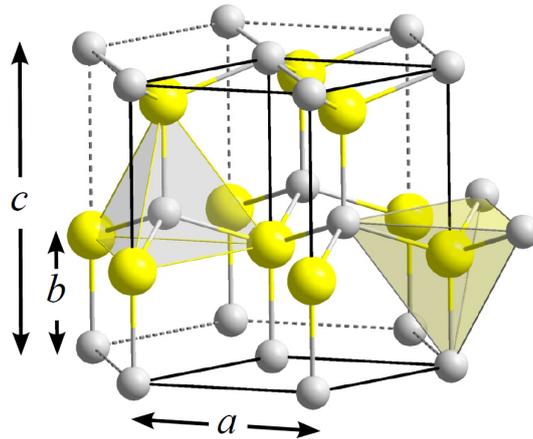


Fig. 1.1 – Schéma de la maille wurtzite

	a (Å)	c (Å)
GaN[26]	3.1892	5.185
ZnO[27]	3.2496	5.2042

TABEAU 1.1 – Paramètres de maille de GaN et ZnO mesurés expérimentalement pour une structure wurtzite.

coordination tétraédrique, typique d'une hybridation sp^3 , démontre la nature covalente des liaisons. Cependant, le coté ionique des liaisons n'est pas négligeable, notamment dans ZnO, du fait de la forte électronégativité de l'azote et de l'oxygène. Ces deux matériaux sont donc à la frontière entre les semiconducteurs covalents et ioniques. À température et à pression ambiante, la phase stable est la structure wurtzite. La structure de type blende de zinc peut-être obtenue lorsque la croissance est réalisée sur un substrat de symétrie cubique. Cependant, cette dernière n'est pas concernée dans le travail qui suit, et nous considérerons par la suite uniquement la structure wurtzite.

La maille de la structure wurtzite est représentée schématiquement sur la figure 1.1. Elle appartient au groupe d'espace C_{6v} en notation de Schoenflies et est composée de deux sous-réseaux hexagonaux interpénétrés et décalés selon l'axe orthogonal au plan de l'hexagone (axe c). Les paramètres de maille a et c représentent respectivement la distance entre deux atomes de même nature dans le plan de base et la distance entre deux plans de base équivalents. Les paramètres de maille de GaN et ZnO mesurés par diffraction de rayons X sont reportés dans le tableau 1.1

La figure 1.2 répertorie les différents plans cristallins utilisés pour la croissance par épitaxie. Dans la grande majorité des cas, le plan c (0001) est utilisé. Ce plan ne possède pas de symétrie d'inversion perpendiculairement à l'axe c et donne naissance à une polarisation spontanée. Il est dit polaire et les échantillons pourront alors être de polarité Ga (ou Zn) ou de polarité N (ou O). Cette particularité, qui est à éviter pour la croissance d'hétérostructures, peut être contournée par l'utilisation de plan non-polaires comme le plan a ($11\bar{2}0$) ou m ($1\bar{1}00$).

1.1.2 Croissance

Techniques

Afin d'élaborer des échantillons de GaN ou de ZnO, trois principales techniques de croissance permettant le dépôt d'un cristal sur un substrat sont disponibles :

- l'épitaxie sous jets moléculaires (ou MBE pour Molecular Beam Epitaxy).
- la méthode aux organométalliques (ou MOVPE pour Metal Organic Vapor Phase Epitaxy).
- la méthode aux hydrures (ou HVPE pour Hydride Vapour Phase Epitaxy).

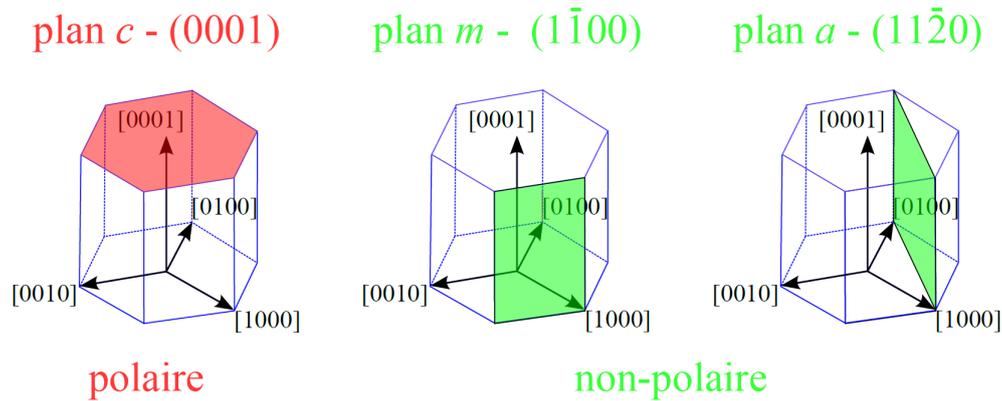


Fig. 1.2 – Plans les plus utilisés en symétrie würtzite. Le plan c (0001) est un plan polaire. Les plans a (11 $\bar{2}$ 0) et m (1 $\bar{1}$ 00), orthogonaux au plan C, sont des plans non-polaires.

L'épitaxie sous jets moléculaires est une technique de dépôt par voie physique qui permet un contrôle au niveau de la monocouche atomique. Cette technique requiert l'utilisation de vide très poussé, typiquement 10^{-8} Pa, et possède une faible vitesse de croissance (environ 1 $\mu\text{m}/\text{h}$). Son avantage principal est de pouvoir définir très précisément les paramètres de croissance et de suivre l'évolution *in-situ* par diffraction d'électrons de haute énergie réfléchis (RHEED pour Reflection High Energy Electron Diffraction).

La méthode aux organométalliques est une technique de dépôt par voie chimique qui permet d'obtenir une vitesse de croissance pouvant aller jusqu'à 10 $\mu\text{m}/\text{h}$. Elle permet d'avoir une bonne reproductibilité ce qui fait d'elle la technique privilégiée pour la production industrielle en optoélectronique.

La méthode aux hydrures est aussi une technique de dépôt par voie chimique. Cette méthode est privilégiée pour la croissance d'échantillons massifs de bonne qualité grâce à des vitesses de croissance qui peuvent atteindre 500 $\mu\text{m}/\text{h}$.

Substrat

La croissance de GaN et ZnO peut se faire sur un substrat de même nature chimique, on parlera alors d'homoépitaxie, ou au contraire sur un substrat de nature chimique différente (hétéroépitaxie). Dans le cas d'une croissance hétéroépitaxiée, le choix du substrat est primordial car il va déterminer la qualité morphologique et les propriétés optiques du futur échantillon. Un désaccord de paramètre de maille entre le substrat et le cristal engendrera la formation de dislocations et de défauts dus à l'accumulation de contraintes dans la couche épitaxiée (voir section 1.1.3). Une attention particulière doit aussi être portée à la différence de coefficients de dilatation thermique qui pourra mener à la création de fissures macroscopiques en fin de croissance lors du refroidissement de l'échantillon.

1.1.3 Constantes d'élasticité et contraintes

Comme indiqué précédemment, les couches épitaxiées sont souvent sujettes à un certain degré de déformation. Ces déformations vont modifier les paramètres de maille du matériau et modifier ainsi sa structure de bandes. Dans le cas où la déformation est élastique, la loi de Hooke permet de relier le tenseur des déformations $[\epsilon]$ à celui des contraintes $[\sigma]$ via les coefficients d'élasticité C_{ij} . Pour les cristaux de type würtzite, cinq coefficients d'élasticité sont nécessaires :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{xy} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \epsilon_{xy} \\ \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} \end{pmatrix}. \quad (1.1)$$

Les déformations peuvent être normales ou de cisaillement. Les déformations normales, notées ϵ_{xx} , ϵ_{yy} et ϵ_{zz} représentent la déformation le long des trois directions orthogonales $[1\bar{1}00]$, $[11\bar{2}0]$ et $[0001]$. Les contraintes de cisaillement sont notées ϵ_{xy} , ϵ_{yz} , et ϵ_{zx} . Elles traduisent le changement d'angle entre les trois directions principales induit par la déformation le long d'axes non principaux. Seules les déformations normales sont présentes lors de croissances sur des plans polaires ou non-polaires.

Croissance suivant l'axe c

Lors d'une croissance suivant l'axe c, les déformations dans le plan sont isotropes ($\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$) :

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{\parallel} = \frac{a_s - a}{a}. \quad (1.2)$$

Selon l'axe de croissance, l'expression de l'élément du tenseur des déformations est donnée par :

$$\epsilon_{zz} = \frac{c_s - c}{c}, \quad (1.3)$$

Avec a et c les paramètres de maille du matériau déformé de la couche épitaxiée et a_s et c_s les paramètres de maille du substrat. La surface étant libre de contrainte, $\sigma_{zz} = 0$ et on peut écrire à partir de l'équation (1.1) :

$$\epsilon_{zz} = \epsilon_{\perp} = -\frac{2C_{13}}{C_{33}}\epsilon_{\parallel}. \quad (1.4)$$

Croissance sur plan m

Quand la croissance est réalisée sur plan m ($1\bar{1}00$), la symétrie uni-axiale du cristal est brisée et passe de C_{6v} à C_{2v} . Il y a un désaccord de maille différents suivant les directions $[11\bar{2}0]$ et $[0001]$: les déformations dans le plan sont anisotropes ($\epsilon_{xx} \neq \epsilon_{yy}$). La surface étant libre de contrainte, on obtient la condition suivante pour σ_{yy} :

$$\sigma_{yy} = C_{12}\epsilon_{xx} + C_{11}\epsilon_{yy} + C_{13}\epsilon_{zz} = 0. \quad (1.5)$$

On peut alors exprimer l'élément du tenseur des déformations selon l'axe de croissance par :

$$\epsilon_{yy} = -\frac{C_{12}\epsilon_{xx} + C_{13}\epsilon_{zz}}{C_{11}}. \quad (1.6)$$

Dans le tableau 1.2 sont reportés les coefficients d'élasticité de GaN et ZnO. En raison des coefficients d'élasticité élevés, les échantillons de GaN seront très sensibles aux effets de contrainte.

	C_{11}	C_{12}	C_{13}	C_{33}	C_{44}
GaN [28] (Gpa)	390	145	106	398	105
ZnO [29] (Gpa)	190	110	90	196	39

TABLEAU 1.2 – Coefficients d'élasticité de GaN et ZnO.

	A_1 (TO)	E_2 (TO)	E_2^{high}	E_2^{low}	A_1 (LO)	E_1 (LO)
GaN [30] (meV)	65.9	68.9	70.4	17.9	91	91.9
ZnO [31] (meV)	46.9	50.84	54.3	12.2	71.2	73.1

TABLEAU 1.3 – Énergies des phonons obtenues par spectroscopie Raman à 300 K au centre de la zone de Brillouin dans le cas de structures de type würtzite GaN ou ZnO.

1.1.4 Phonons

Les atomes d'un réseau cristallin ne sont pas figés, ils peuvent osciller autour de leur position d'équilibre, entraînant une série d'ondes de vibrations se propageant dans le réseau. Les phonons sont les quasi-particules représentant les quanta de vibration du réseau cristallin. Ils sont impliqués dans de nombreux processus d'interaction avec d'autres particules et modifient ainsi les propriétés électriques et optiques du matériau.

Dans GaN et ZnO, la structure würtzite implique quatre atomes par maille élémentaire. On dénombre alors douze modes phononiques :

- un mode longitudinal acoustique (LA)
- deux modes transverses acoustiques (TA)
- trois modes longitudinaux optiques (LO)
- six modes transverses optiques (TO)

Les fréquences de vibration de ces modes sont accessibles par spectrométrie Raman ou infrarouge (IR). Le tableau 1.3 regroupe les énergies des modes actifs dans GaN et ZnO.

1.1.5 Structure de bandes

Le comportement des électrons dans un cristal de semiconducteur correspond à un déplacement suivant un potentiel cristallin périodique et leur fonction d'onde peut être exprimée à l'aide de fonctions de Bloch. Leur utilisation permet de calculer la structure de bandes du semiconducteur en considérant uniquement la maille primitive du réseau réciproque appelée première zone de Brillouin. Cette dernière est représentée sur la figure 1.3.

GaN et ZnO sont deux semiconducteurs à gap direct : le maximum de la bande de valence coïncide avec le minimum de la bande conduction au centre Γ ($\vec{k} = 0$) de la zone de Brillouin. La différence

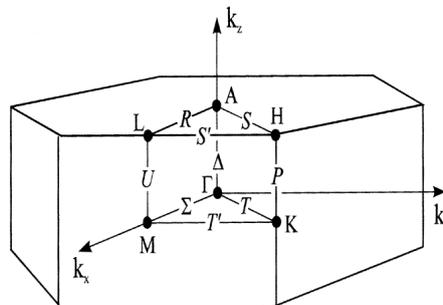


Fig. 1.3 – Première zone de Brillouin d'une structure würtzite. Les points de haute symétrie sont indiqués par des lettres grecques.

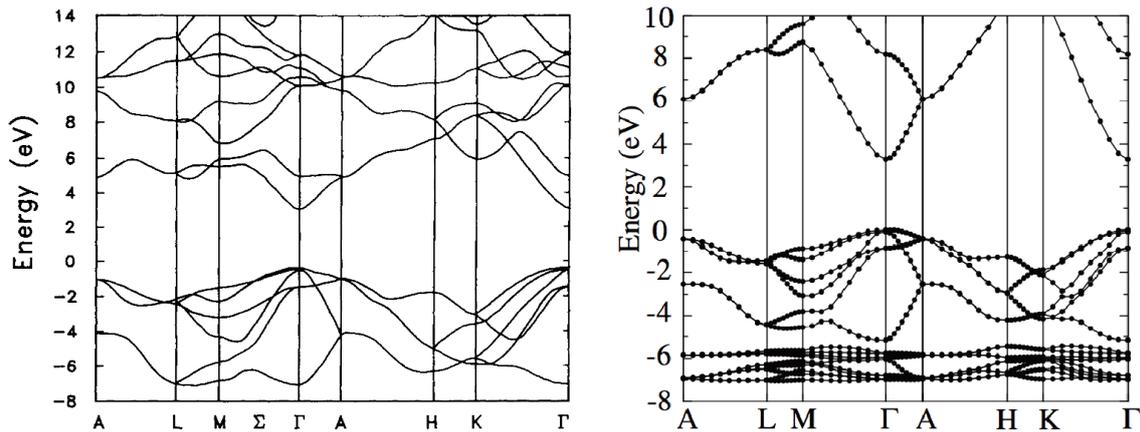


Fig. 1.4 – Structure de bande électronique calculée pour GaN[34] (à gauche) et ZnO[35] (à droite).

d'énergie entre ces deux bandes est appelé énergie de bande interdite (E_g). À température ambiante, la valeur de la bande interdite de GaN non-contraint[32] est de 3.39 eV et de 3.37 eV pour ZnO[33]. Les structures de bandes de ces deux matériaux sont présentées sur la figure 1.4.

La bande de conduction est formée à partir des orbitales 4s vides des cations Ga^+ ou Zn^{2+} qui possèdent un moment orbital L nul. La bande de valence provient quant à elle des orbitales 2p des anions (N^- ou O^{2-}), orbitales triplement dégénérées possédant un moment orbital $L = 1$. Dans une structure de type würtzite, l'action simultanée du champ cristallin et de l'interaction spin-orbite va conduire à la levée de dégénérescence de la bande de valence laissant trois bandes distinctes.

Le groupe de symétrie de GaN et ZnO en phase würtzite, C_{6v} , possède six représentations irréductibles non-équivalentes au point Γ (Γ_1 à Γ_6) dont le détail est disponible dans la littérature[36]. En considérant le spin de l'électron, il est nécessaire d'introduire trois représentations supplémentaires dites doubles (Γ_7 à Γ_9). Les différentes bandes possèdent chacune une représentation particulière et leur connaissance permettra de définir les règles de sélection des transitions optiques[37].

La bande de conduction est de symétrie Γ_7 dans GaN et ZnO. La bande de valence, sous l'action du champ cristallin seul, se sépare en état non-dégénéré de symétrie Γ_1 et un état doublement dégénéré

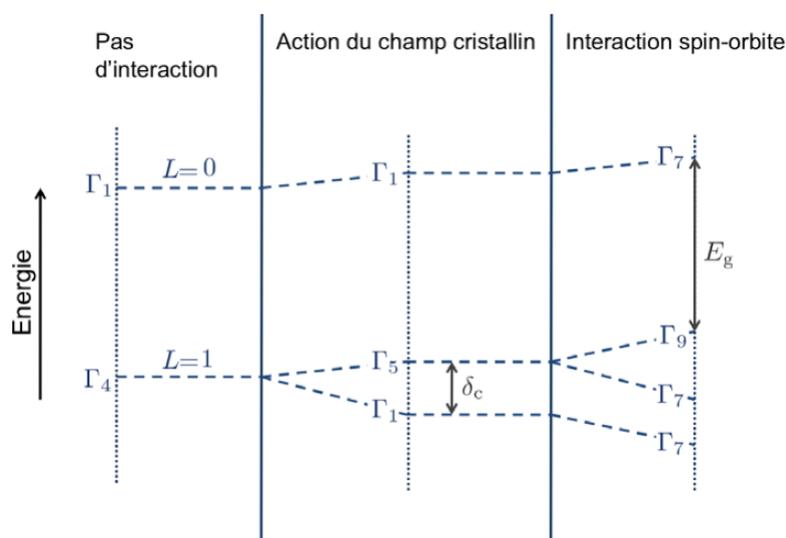


Fig. 1.5 – Structure de bande au point Γ pour une structure würtzite en considérant de gauche à droite : pas d'interaction, l'action du champ cristallin seul, et l'action combiné du champ cristallin et de l'interaction spin-orbite.

de symétrie Γ_5 . L'écart en énergie entre ces deux états δ_c est fonction de l'état de contrainte de la couche épitaxiée. En considérant le spin de l'électron et l'interaction spin-orbite, l'état non-généré Γ_1 est appelé Γ_7 et la dégénérescence de l'état Γ_5 est levée, donnant naissance à deux bandes de symétrie Γ_7 et Γ_9 . L'écart en énergie entre ces deux bandes est appelé δ_{so} .

Trois niveaux sont donc observés pour la bande de valence, ils seront notées A, B, et C par ordre d'énergie décroissante. Dans GaN, ces bandes possèdent respectivement les symétries Γ_9 , Γ_7 et Γ_7 . Dans ZnO, la symétrie de ces trois bandes a longtemps divisé la communauté. Les plus récents résultats [38][39] tendent vers un ordonnancement Γ_7 (A), Γ_9 (B) et Γ_7 (C), et ce en raison d'un couplage spin-orbite négatif dû à la contribution des orbitales 3d de l'atome de Zn. Le détail des débats peut être trouvé dans la référence [40].

Variation en température

L'énergie de bande interdite diminue avec la température. L'expansion thermique du réseau et les interactions électron-phonon sont à l'origine de cette réduction [41]. L'évolution du gap est bien modélisée par la loi semi-empirique de Varshni [42] :

$$E_g = E_g(0) - \frac{\alpha T^2}{T + \beta}, \quad (1.7)$$

où $E_g(0)$ est la valeur du gap à 0 K, T la température en Kelvin, et α et β sont des paramètres ajustables caractéristiques du matériau.

Masse effective

À proximité du point Γ , la dispersion des électrons de la bande de conduction est parabolique pour les faibles vecteurs d'onde et peut être approximée par :

$$E_c(\vec{k}) = E_c(0) + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m_x^*} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m_y^*} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_z^*}, \quad (1.8)$$

où \hbar est la constante réduite de Planck et m_i^* la masse effective des électrons dans la direction i. Grâce au concept de masse effective, on ne considère plus des électrons de masse fixe m_0 évoluant dans un potentiel cristallin mais des électrons libres dont la masse effective varie.

Les bandes de valence peuvent être décrites de façon identique : leur dispersion concave peut être interprétée soit par un électron de masse effective négative soit par une quasi-particule chargée positivement, appelé trou, ayant une masse effective positive. Les trous sont des absences d'électron dans la bande de valence et ils possèdent une masse effective généralement plus élevée que celle des électrons de la bande de conduction. Les masses effectives des quasi-particules au centre de la zone de Brillouin dans GaN et ZnO pour la symétrie würtzite sont résumées dans les références [43] et [44].

1.2 Excitation élémentaire dans un semiconducteur

Un semiconducteur est dans son état fondamental lorsque sa bande de valence est entièrement occupée d'électrons et sa bande de conduction vide. L'absorption d'un photon d'énergie supérieure à celle du gap du matériau va permettre le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction. La place vacante laissée par cet électron dans la bande de valence peut être assimilée à une pseudo-particule de charge positive appelée trou. Une interaction de type coulombienne est possible entre l'électron et le trou, donnant naissance à une autre pseudo-particule : l'exciton. Les excitons sont différenciés en première approche par la distance séparant l'électron et le trou.

Lorsque celle dernière est inférieure à la maille cristalline, l'exciton est très localisé, on parlera d'exciton de Frenkel [45]. Électrons et trous seront alors fortement liés. Ce type d'exciton est présent dans les halogénures alcalins (NaBr...) ou les cristaux moléculaires (anthracène).

Pour la plupart des semiconducteurs inorganiques comme le GaN et le ZnO, les interactions coulombiennes sont écrantées par les électrons de la bande de valence et la distance séparant les deux particules sera supérieure à la maille cristalline. Cet exciton délocalisé est appelé exciton de Wannier-Mott [46][47].

1.2.1 Modèle hydrogénoïde de l'exciton de Wannier-Mott

L'exciton est constitué d'un électron de la bande de conduction et d'un trou de la bande de valence en interaction coulombienne. Cette quasi-particule est similaire à un atome d'hydrogène où le trou occuperait le rôle du proton. Elle peut être décrite par l'équation de Schrödinger suivante :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \vec{\nabla}_{\vec{r}_e}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \vec{\nabla}_{\vec{r}_h}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r|\vec{r}_e - \vec{r}_h|} \right] \psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = (E - E_g) \psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h), \quad (1.9)$$

où $\psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$ est la fonction enveloppe de l'exciton. Les deux premiers termes décrivent l'énergie cinétique de l'électron et du trou via leur masse effective m_e^* et m_h^* . Le troisième terme traduit l'interaction coulombienne entre les deux pseudo-particules avec e la charge élémentaire et \vec{r}_e et \vec{r}_h les coordonnées dans l'espace réel de l'électron et du trou. ϵ_0 et ϵ_r sont respectivement la permittivité du vide et la permittivité relative du matériau.

En dissociant le déplacement du centre de masse de coordonnée \vec{R} , du mouvement relatif \vec{r} de l'électron par rapport au trou, on obtient les deux équations suivantes :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2M} \vec{\nabla}_{\vec{R}}^2 \right) \psi(\vec{R}) = E_R \psi(\vec{R}), \quad \vec{R} = \frac{m_e^* \vec{r}_e + m_h^* \vec{r}_h}{m_e^* + m_h^*} \quad (1.10a)$$

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \vec{\nabla}_{\vec{r}}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r|\vec{r}|} \right) \psi(\vec{r}) = E_r \psi(\vec{r}), \quad \vec{r} = \vec{r}_e - \vec{r}_h, \quad (1.10b)$$

avec $M = m_e^* + m_h^*$ la masse de l'exciton et $\mu = \frac{m_e^* \cdot m_h^*}{m_e^* + m_h^*}$ sa masse réduite.

L'énergie totale de l'exciton E_X est égale à la somme des énergies E_R et E_r :

$$E_X = E_g - \frac{Ry^*}{n^2} + \frac{\hbar^2 K^2}{2M}. \quad (1.11)$$

\vec{K} est le vecteur d'onde relatif au déplacement du centre de masse. $Ry^* = 13,6 \cdot \frac{\mu/m_0}{\epsilon_r^2}$ eV est le Rydberg de l'exciton aussi appelé énergie de liaison (E_B) de l'exciton lorsque celui-ci est dans son état fondamental ($n=1$).

Comme dans le cas de l'atome d'hydrogène, on peut déterminer le rayon de Bohr de l'exciton a_b qui est associé à l'extension spatiale de la fonction d'onde excitonique. Dans le cas où $n=1$ (orbitale 1s) l'expression du rayon de Bohr est donnée par la relation :

$$a_B = a_H \cdot \frac{\epsilon_r}{\mu/m_0}. \quad (1.12)$$

avec $a_H = 0,529$ Å le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène.

1.2.2 Excitons de GaN et ZnO

Le nitrure de gallium et l'oxyde de zinc étudiés au cours de cette thèse possèdent trois excitons nommés A, B, et C chacun étant formé d'un électron de la bande de conduction et d'un trou de la bande de valence A, B, ou C. Les excitons de ZnO possèdent des énergies de liaison de 60 meV et un rayon de Bohr de 18 Å [48]. Les énergies de liaison des excitons A, B et C de GaN sont respectivement $E_{B,A}=24.8$ meV, $E_{B,B}=24.7$ meV, et $E_{B,C}=26.8$ meV [49].

Règles de sélections

Les règles de sélection permettent de déterminer quelles sont les transitions optiques impliquant les excitons qu'il est possible d'observer expérimentalement. Elles sont définies à l'aide de la symétrie des bandes de valence et de conduction introduites dans la section 1.1.4.

La représentation d'un exciton est le produit de la représentation du trou de la bande de valence, de l'électron de la bande de conduction et de la fonction enveloppe de l'exciton qui est de symétrie Γ_1 lorsque celui-ci est dans son état fondamental ($n=1$). La représentation des excitons de GaN et ZnO est disponible ci-après [50][51] :

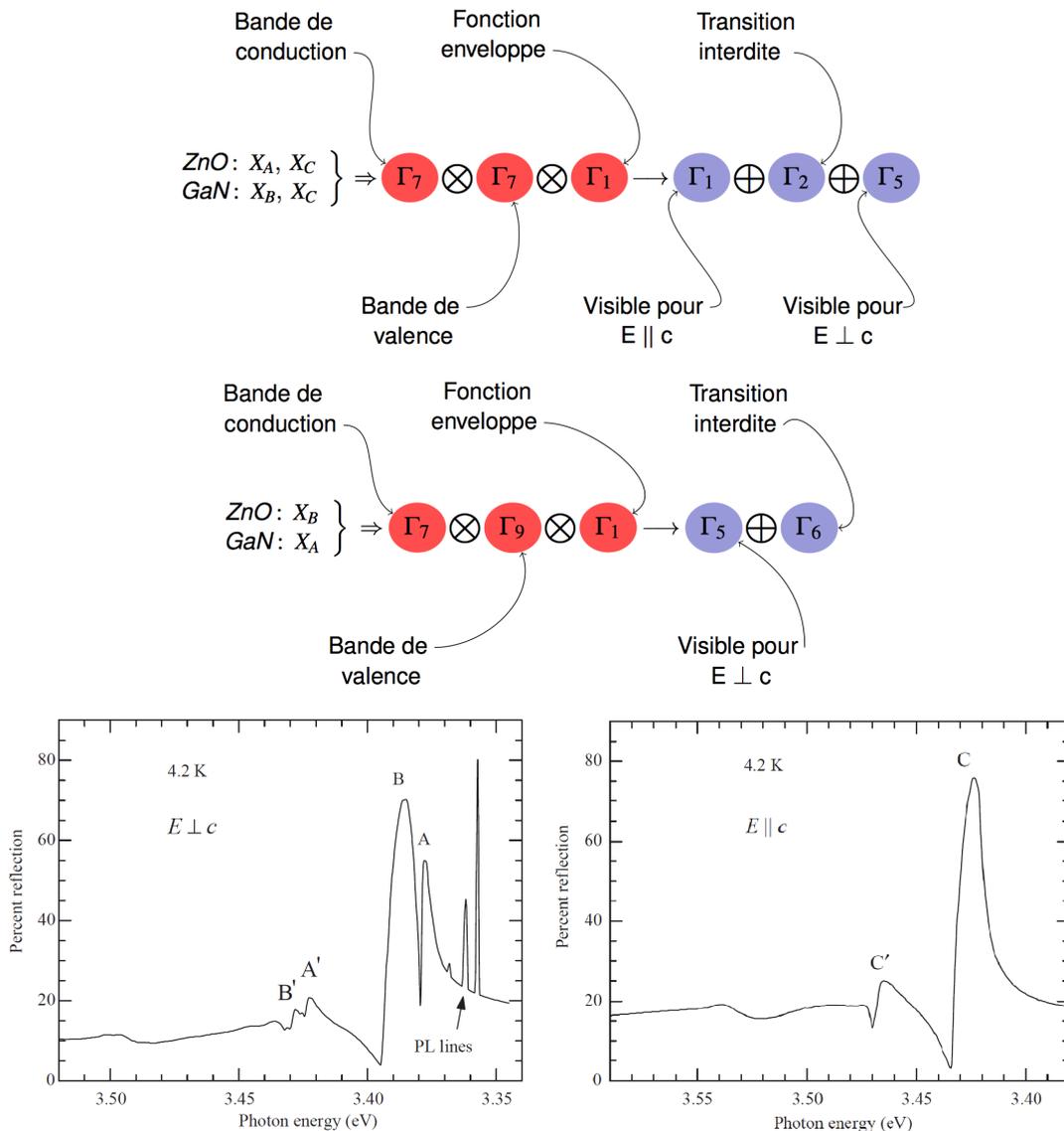


Fig. 1.6 – Mesures de réflectivité pour $\vec{E} \perp \vec{c}$ et $\vec{E} \parallel \vec{c}$ dans ZnO [52].

En suivant ces règles on peut prédire que les excitons A et C de ZnO seront visibles en polarisation TE ($\vec{E} \perp \vec{c}$) et TM ($\vec{E} \parallel \vec{c}$) alors que l'exciton B ne sera visible qu'en polarisation TE. Même si les transitions excitoniques de A et de C dans ZnO sont autorisées dans les deux polarisations, leur influence sur les spectres expérimentaux n'est pas équivalente (figure 1.6). En effet, la probabilité d'observer la transition excitonique A en polarisation TM n'est pas très élevée. Cette probabilité est aussi appelée force d'oscillateur de la transition optique considérée.

Les tableaux 1.4 et 1.5 regroupent les différentes transitions observables dans ZnO et GaN avec leurs probabilités respectives (dans le cadre d'une couche non-contrainte épitaxiée sur plan c).

Exciton	Transition autorisée	Polarisation	Probabilité de transition
A (Γ_1)	Oui	$\vec{E} \parallel \vec{c}$	Faible
A (Γ_2)	Non	-	-
A (Γ_5)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Importante
B (Γ_5)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Importante
B (Γ_6)	Non	-	-
C (Γ_1)	Oui	$\vec{E} \parallel \vec{c}$	Importante
C (Γ_2)	Non	-	-
C (Γ_5)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Faible

TABLEAU 1.4 – Règles de sélection de ZnO pour une contrainte nulle (orientation plan c) [40].

Exciton	Transition autorisée	Polarisation	Probabilité de transition
A (Γ_5)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Importante
A (Γ_6)	Non	-	-
B (Γ_1)	Oui	$\vec{E} \parallel \vec{c}$	Faible
B (Γ_2)	Non	-	-
B (Γ_5)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Importante
C (Γ_1)	Oui	$\vec{E} \parallel \vec{c}$	Importante
C (Γ_2)	Non	-	-
C (Γ_5)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Modérée

TABLEAU 1.5 – Règles de sélection de GaN pour une contrainte nulle (orientation plan c) [53].

Influence de la contrainte

La déformation du réseau cristallin induite par la contrainte d'une couche épitaxiée peut modifier la structure de bande d'un semiconducteur. Lors d'une contrainte en compression, la distance entre deux atomes liés diminue ce qui amène un meilleur recouvrement des orbitales et un renforcement des interactions. La différence d'énergie entre états liant et anti-liant augmente et par analogie le gap du matériau E_g augmente. À l'inverse, une contrainte en tension réduira l'énergie de bande interdite. Suivant la nature de la contrainte, les propriétés de symétrie de la maille cristalline peuvent être affectées modifiant ainsi la symétrie des bandes et les règles de sélection. Ces modifications sont illustrées pour GaN (plan c et plan m) sur la figure 1.7 issue de la référence [54].

1.2.3 Fonction diélectrique

La réponse d'un matériau à une excitation lumineuse (champ électrique \vec{E}) est gouvernée par sa fonction diélectrique $\epsilon(\omega)$. Au voisinage des résonances excitoniques, la fonction diélectrique est fortement modifiée et peut être caractérisée par un modèle classique de Drüde-Lorentz. Les excitons sont

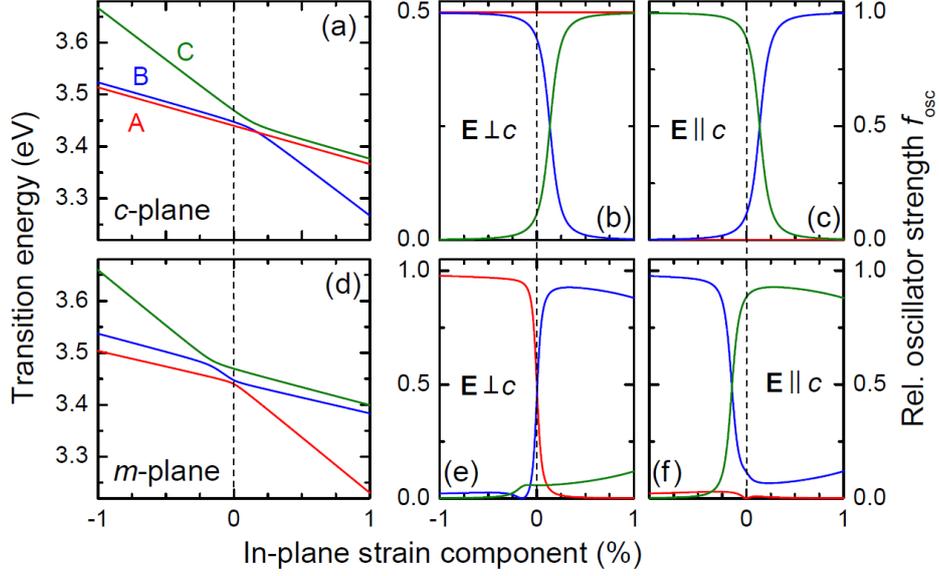


Fig. 1.7 – a) Évolution des énergies excitoniques A, B, et C au point Γ pour une orientation c du plan en fonction la déformation dans le plan ($\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$). b,c) Forces d'oscillateur relatives pour les polarisations TE et TM. d,f) Représentations équivalentes pour une orientation plan m dans le cas spécial où $\epsilon_{xx} = \epsilon_{zz}$. La ligne en pointillé indique la situation de GaN non contraint [54].

assimilés à des oscillateurs harmoniques de masse m , de pulsation de résonance ω_0 , excités par le champ électrique $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}$. La position de l'oscillateur sera repérée par le vecteur déplacement \vec{u} . L'équation du mouvement est exprimée par (1.13) où Γ est le terme d'amortissement (force de frottement visqueux) :

$$m \frac{d^2 \vec{u}}{dt^2} = -m \omega_0^2 \vec{u} - m \Gamma \frac{d\vec{u}}{dt} - e \vec{E}. \quad (1.13)$$

Cette équation admet une solution de la forme $\vec{u} = \vec{u}_0 e^{-i\omega t}$:

$$\vec{u} = -\frac{e}{m} \frac{\vec{E}}{(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega)}. \quad (1.14)$$

Chaque oscillateur possède un moment dipolaire \vec{p} égal au produit de la charge et du déplacement :

$$\vec{p} = -e\vec{u} = \frac{e^2}{m} \frac{\vec{E}}{(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega)}. \quad (1.15)$$

Un ensemble tridimensionnel de N oscillateurs possédera un moment dipolaire $\vec{P} = N\vec{p}$. Ce moment dipolaire est lié à l'induction électrique \vec{D} et à la fonction diélectrique $\epsilon(\omega)$ par l'équation (1.16) dont on peut tirer l'expression (1.17).

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \epsilon_0 \epsilon(\omega) \vec{E} = \epsilon_0 \left[1 + \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} \right] \vec{E} \quad (1.16)$$

$$\epsilon(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} \quad (1.17)$$

Dans la relation 1.17, le terme $Ne^2/(mc_0)$ correspond à la force du couplage entre le champ électrique et les oscillateurs, dans un modèle purement classique. Pour les transitions excitoniques dans les semiconducteurs, ce terme est le carré de l'élément de matrice optique. Dans une approche quantique, lorsque la transition entre l'état excitonique $|\Psi_{ex}\rangle$ et l'état final $|0\rangle$ est autorisée, l'expression de ce terme devient :

$$|H_{ex}|^2 = |\langle \Psi_{ex} | H | 0 \rangle|^2, \quad (1.18)$$

où H est l'hamiltonien de l'exciton.

La fonction diélectrique pour l'ensemble des transitions excitoniques d'énergie E_{Xj} d'un semiconducteur est alors donnée par la relation 1.19 :

$$\epsilon_{ex}(E) = \epsilon_b + \sum_j \frac{f_j}{(E_{Xj}^2 - E^2 - i\Gamma_j E)} \quad (1.19)$$

où f quantifie le couplage d'une transition excitonique avec le champ électrique, f est couramment appelée force d'oscillateur et est égale à $\frac{2N|H_{ex}|^2 E_0}{\hbar^2 \epsilon_0}$. j peut désigner l'exciton A, B ou C dans son état fondamental mais aussi dans leurs états excités. Pour ces derniers, la force d'oscillateur du niveau n , dans le cadre du modèle hydrogénoïde, est égale à : $f_j^n = f_j^{n=1} / n^3$.

Élargissement homogène

L'équation 1.19 nous informe que la distribution en énergie des oscillateurs est une lorentzienne de largeur à mi-hauteur Γ . Ce terme est aussi appelé élargissement homogène. Il est causé par les interactions entre les excitons et d'autres particules comme les phonons ou les impuretés.

Dans GaN et ZnO, à basse température et à faible puissance d'excitation, les interactions exciton-impureté sont responsables de l'élargissement homogène [55]. Ce dernier sera noté Γ_0 . Lorsque la température croît, l'augmentation de la densité de phonons amène une augmentation de l'élargissement homogène. Ce comportement peut être modélisé par la loi de Segall [56] :

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + \Gamma_{ac} T + \frac{\Gamma_{op}}{\exp(E_{LO}/k_b T) - 1}, \quad (1.20)$$

où Γ_{ac} et Γ_{op} sont les paramètres traduisant respectivement les interactions exciton-phonon acoustique et exciton-phonon optique. E_{LO} est l'énergie du phonon LO.

Les interactions des excitons avec les phonons acoustiques sont significatives à basse température uniquement, elles font suite à la modification par les ondes sonores du potentiel périodique vu par les électrons et les trous [57]. Les phonons entraînent un déplacement des atomes par rapport à leur position d'équilibre et donc une modification de la structure de bande. L'interaction avec les phonons optiques se nomme interaction de Fröhlich [58], elle n'existe que dans les matériaux polaires et décrit comment les électrons et les trous interagissent avec le champ électrique produit par les phonons LO. Les paramètres Γ_0 , Γ_{ac} , Γ_{op} , et E_{LO} sont reportés dans le tableau 1.6.

Élargissement inhomogène

Lorsque le matériau est inhomogène (inhomogénéités de composition ou de contrainte) la prise en compte d'un élargissement inhomogène est inévitable. Dans ce cas, on considère une distribution gaussienne d'oscillateurs harmoniques, similaires à ceux décrit par l'équation 1.19, dont l'énergie est

centrée sur $\hbar\omega_0$ et d'écart type σ . Pour rappel, la largeur à mi-hauteur d'une gaussienne est égale à : $2\sigma\sqrt{\ln 4}$.

L'expression de la fonction diélectrique est alors donnée par :

$$\epsilon_{\text{ex}}(E) = \epsilon_b + \sum_j \int \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_j} \frac{f_j}{x^2 - E^2 - i\Gamma_j E} \exp\left(-\frac{(x - E_{Xj})^2}{2\sigma_j^2}\right) dx, \quad (1.21)$$

où x représente l'énergie de résonance des excitons. Cet élargissement est dû à la qualité du cristal et ne dépend donc pas de la température. Dans de nombreux matériaux il domine l'élargissement homogène uniquement à basse température. Les élargissements inhomogènes de GaN et ZnO à 5 K sont répertoriés dans le tableau 1.6.

	σ (meV)	Γ_0 (meV)	Γ_{ac} ($\mu\text{eV/K}$)	Γ_{op} (meV)	E_{LO} (meV)
GaN [59]	0.8	0.1	10	420	91.8
ZnO [55]	0.22	0.8	22	620	72

TABLEAU 1.6 – Élargissement inhomogène et paramètres de la loi de Segall pour GaN et ZnO à 5 K. Les élargissements correspondent à des moyennes pour les deux excitons A et B.

1.2.4 Excitons en régime de haute densité

L'exciton, étant composé de deux fermions, possède un spin entier. Il fait donc partie de la famille des bosons. Cependant, cette appartenance n'est valide que pour des faibles densités d'excitons n_X pour lesquelles la distance moyenne entre deux excitons $r = 1/n_X^{1/3}$ est très supérieure au rayon de Bohr de l'exciton a_B (figure 1.8b). Une augmentation de la densité d'excitons va progressivement réduire la distance moyenne entre ces derniers et renforcer leur caractère fermionique à travers les interactions coulombiennes et le remplissage continu de l'espace des phases. Ces deux mécanismes, qui deviennent dominants lorsque $r \approx a_B$, réduisent l'énergie de liaison E_B des excitons à zéro et mènent à leur dissociation en un plasma d'électrons et de trous non corrélés (figure 1.8c). Ce changement d'état entre un gaz d'excitons à faible densité et un plasma électrons-trous à haute densité est appelée transition de Mott [60]. La densité à laquelle cette transition de phase a lieu est appelée densité de Mott n_M .

Dans une première approche, n_M peut être approximée en considérant l'inverse du volume occupé par un exciton :

$$n_M^S = \left(\frac{4}{3}\pi a_B^3\right)^{-1}. \quad (1.22)$$

Cependant, cette approche simpliste mène à une possible surestimation de la densité de Mott d'un ordre de grandeur en comparaison avec les valeurs mesurées expérimentalement [62]. De nombreuses formules ont été proposées dans la littérature pour calculer n_M . Nous nous contenterons ici de rappeler les deux formules les plus utilisées, qui se basent sur la longueur d'écrantage de Debye-Hückel et de Thomas-Fermi [36].

En considérant un gaz d'électron-trou décrit par la statistique de Maxwell-Boltzmann, la longueur d'écrantage de Debye-Hückel permet d'aboutir à l'expression de la densité de Mott n_M^{DH} suivante :

$$n_M^{\text{DH}} = (1.19)^2 \frac{k_B T}{2a_B^3 E_B}. \quad (1.23)$$

Cette équation implique une augmentation de la densité de Mott avec la température et donne des résultats non physiques pour les très basses températures ($n_M^{\text{DH}}(T \rightarrow 0) = 0$) et les très hautes températures ($n_M^{\text{DH}}(T \rightarrow \infty) = \infty$).

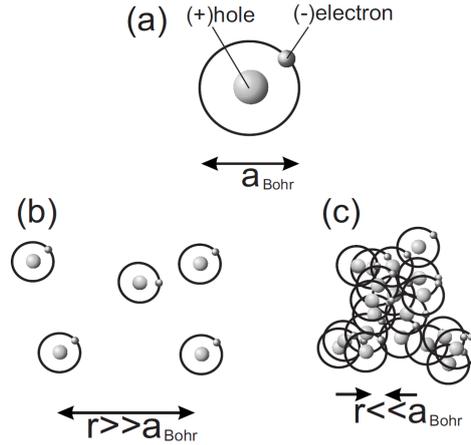


Fig. 1.8 – Schéma extrait de la référence [61]. a) Exciton de Wannier possédant un rayon de Bohr a_{Bohr} . b) Gaz d'excitons sous la densité de Mott. La distance moyenne r entre deux excitons est très supérieure au rayon de Bohr de l'exciton. Lorsque la densité de porteurs devient supérieure à la densité de Mott, la distance moyenne r entre deux excitons devient inférieure au rayon de Bohr de l'exciton. Le gaz d'excitons devient alors un plasma d'électrons-trous dégénéré.

En considérant un plasma électron-trou dégénéré, la longueur d'écrantage de Thomas-Fermi mène à l'expression de la densité de Mott n_{M}^{TF} suivante :

$$n_{\text{M}}^{\text{TF}} = (1.19)^6 a_{\text{B}}^{-3} \frac{\pi}{192} \left(\frac{m_e m_h}{(m_e + m_h)^2} \right)^3. \quad (1.24)$$

Le tableau 1.7 récapitule les différentes valeurs de densité de Mott pour GaN et ZnO, calculées à partir des trois équations listées précédemment. La dernière colonne du tableau présente les limites basses et hautes des densités de Mott mesurées expérimentalement sur des couches épitaxiées de GaN et ZnO par micro-photoluminescence [63][64][65][66], réflectivité pompe-sonde femtoseconde [67][68], transmission pompe-sonde femtoseconde [69] ou calculées théoriquement [68][70].

La grande disparité des valeurs mesurées s'explique par la difficulté de générer une densité de porteurs bien définie dans une couche de semiconducteur. En effet, le profil d'absorption exponentielle des couches peut mener à la superposition de signaux provenant de régions à différentes densités. À cela s'ajoute la difficulté de convertir la puissance d'excitation en densité de porteurs. Cette conversion nécessite de connaître précisément le temps de vie radiatif et non-radiatif des excitons. De plus, des mécanismes de pertes comme les recombinaisons de surface ou les recombinaisons bimoléculaires peuvent intervenir et mener à une surestimation des densités lorsqu'il est considéré qu'un photon absorbé équivaut à une paire électron-trou.

En comparant les différentes valeurs du tableau 1.7, on peut remarquer que la méthode de calcul liée à la longueur d'écrantage de Thomas-Fermi mène à une sous-estimation de la densité de Mott d'un ou de deux ordres de grandeur vis à vis des limites basses expérimentales. D'autre part, les deux autres approches ont tendance à surestimer la densité de Mott. Il est nécessaire, pour définir plus précisément la transition de Mott, d'étudier en détail les conséquences de l'augmentation de la densité sur les excitons.

Les interactions coulombiennes, à travers les effets d'échange et de corrélation, sont responsables de la diminution de l'énergie de bande interdite E_g avec la densité [36][71]. On parle alors de renormalisation de l'énergie de bande interdite. En considérant seulement l'énergie d'échange, un calcul au premier ordre prédit une évolution en racine cubique de la densité n [64]. La renormalisation de l'énergie de bande interdite peut alors se traduire par l'équation suivante :

$$E_g(n) = E_X(n=0) + E_B(n=0) - \alpha \cdot n^{1/3}, \quad (1.25)$$

	n_M^S (cm ⁻³)	n_M^{DH} (cm ⁻³)	n_M^{TF} (cm ⁻³)	n_M^{Exp} (cm ⁻³)
GaN	10 ¹⁹	2.9 · 10 ¹⁹	7.8 · 10 ¹⁵	2.2 · 10 ¹⁷ ~ 1.6 · 10 ¹⁹
ZnO	4 · 10 ¹⁹	5.5 · 10 ¹⁹	9 · 10 ¹⁶	3 · 10 ¹⁷ ~ 10 ¹⁹

TABLEAU 1.7 – Densités de Mott calculés pour GaN et ZnO en suivant l’approche de la sphère dure, l’approche Debye-Hückel et l’approche Thomas-Fermi. La dernière colonne situe la gamme de valeurs de la densité de Mott mesurées expérimentalement.

où α est le coefficient de renormalisation. Ce coefficient dépend uniquement du matériau et de l’énergie de liaison des excitons.

Parallèlement, l’augmentation de la densité de porteurs réduit la force d’oscillateur des transitions excitoniques. Deux effets sont à l’origine de cette diminution. Le premier effet est lié à l’écrantage du potentiel de Coulomb par les porteurs libres qui diminue l’énergie de liaison des excitons, augmente leur rayon de Bohr et mène à une diminution du recouvrement des fonctions d’onde de l’électron et du trou et à une réduction de la force d’oscillateur. Le deuxième effet est une conséquence du principe d’exclusion de Pauli qui interdit à deux fermions d’occuper le même état quantique. Ainsi, les états déjà occupés ne pourront plus être utilisés pour la création de nouveaux excitons et l’espace des phases disponible deviendra de plus en plus réduit à mesure que la densité d’excitons augmentera.

La diminution de l’énergie de liaison des excitons E_B , qui devrait provoquer un décalage de l’énergie des excitons vers les plus hautes énergies (blueshift), est compensée de façon quasi-parfaite par la renormalisation de l’énergie de bande interdite. De fait, l’énergie des excitons ne varie pas avec la densité d’excitation [72][73][74]. Ainsi, lorsque l’énergie de bande interdite est égale à l’énergie des excitons, l’énergie de liaison de l’exciton est nulle. On peut alors définir la transition de Mott par le critère suivant :

$$E_g(n = n_M) = E_X(n = 0). \quad (1.26)$$

Le décalage de l’énergie de bande interdite ΔE_g et l’évolution de l’énergie des excitons E_X d’une couche de ZnO en fonction de la densité de porteurs sont illustrés sur la figure 1.9a, extraite de la référence [66]. La densité de Mott correspond à la densité à laquelle les courbes ΔE_g et E_X se croisent (ici $n_M = 3 \cdot 10^{17}$). La figure 1.9a présente aussi l’évolution du potentiel chimique μ des paires électron-trou, défini comme l’énergie séparant les quasi-niveaux de Fermi des électrons $\Delta E_{F,e}$ et des trous $\Delta E_{F,h}$ ($\mu = E_g + E_{F,e} + E_{F,h}$). La densité n_G pour laquelle les courbes μ et ΔE_g se croisent marque la naissance du gain (ici $n_G = 4 \cdot 10^{18}$) [75]. Cet effet, purement fermionique, peut constituer une limite haute pour la détermination de n_M [76].

La figure 1.9b, extraite de la référence [77], présente l’évolution de l’absorption des transitions excitoniques A et B, dans GaN à 10 K, en fonction de la puissance d’excitation. Avec l’augmentation de la puissance, on peut observer la saturation progressive des résonances excitoniques jusqu’à leur disparition complète pour une puissance d’excitation $I=2.8$ MW/cm².

Au vu des équations 1.25 et 1.26, la seule connaissance de l’évolution de l’énergie de bande interdite en densité permet de prédire la densité de Mott. Cependant, il demeure très difficile de déterminer expérimentalement ou théoriquement cette évolution avec précision, notamment avant la transition de Mott. De nombreuses évolutions très différentes ont été rapportées dans la littérature. Par exemple, la référence [66] en dénombre pas moins de sept pour ZnO.

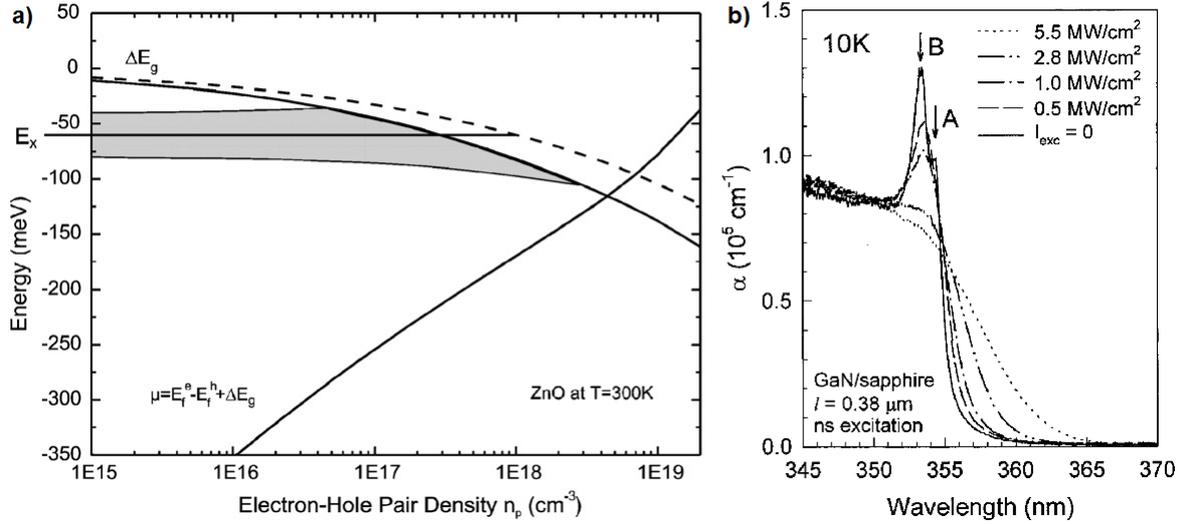


Fig. 1.9 – a) Évolution du décalage de l'énergie de bande interdite ΔE_g , de l'énergie de l'exciton E_x et du potentiel chimique μ des paires électron-trou en fonction de la densité d'électron-trou à 300 K dans ZnO. La ligne en pointillés ΔE_g correspond au calcul de la référence [78]. La figure est extraite de la référence [66]. b) Spectres d'absorption pompe-sonde centrés sur les résonances excitoniques A et B en fonction de la puissance d'excitation à 10 K. La figure est extraite de la référence [77].

1.3 Du couplage fort lumière-matière au laser à polaritons

1.3.1 Microcavités planaires

Les microcavités à base de semiconducteurs sont des résonateurs de type Péro-Fabry composées de deux miroirs de Bragg (ou DBR, Distributed Bragg Reflectors) entourant une couche active. La couche active peut être soit une couche massive de semiconducteur (microcavité planaire) soit un empilement de puits quantiques (microcavités à puits). Dans ce type de structure, le champ électromagnétique est confiné au sein de la couche active permettant une interaction lumière-matière accrue.

Miroir de Bragg

Les miroirs de Bragg sont constitués d'une alternance périodique de couches d'indices n_1 et n_2 et d'épaisseurs l_1 et l_2 permettant de réfléchir fortement certaines longueurs d'onde. Une représentation des premières couches est donnée dans la figure 1.10.

À chaque interface, une partie de la lumière est réfléchi et les rayons résultants vont interférer à la surface du miroir de Bragg. Pour que les interférences soient constructives, il est nécessaire que le déphasage ϕ obéisse à la condition $\phi = 2m\pi$. En considérant le déphasage entre les rayons 2 et 3 par rapport à 1, on obtient les conditions suivantes :

$$\phi_{12} = \frac{2\pi}{\lambda_0} (2n_1 l_1 \cos \theta_1) + \pi = 2m\pi \quad m \in \mathbb{N} \quad (1.27a)$$

$$\phi_{13} = \frac{2\pi}{\lambda_0} (2n_1 l_1 \cos \theta_1 + 2n_2 l_2 \cos \theta_2) = 2m\pi \quad m \in \mathbb{N} \quad (1.27b)$$

L'introduction d'un déphasage supplémentaire de π est la conséquence de la réflexion entre un milieu de faible indice et de fort indice. Les angles θ_1 et θ_2 sont les angles formés par les rayons transmis dans chaque couche. En considérant un rayon en incidence normale, il est facile d'extraire les conditions d'épaisseurs nécessaires pour l'obtention d'interférences constructives :

$$l_1 = \frac{\lambda_0}{4n_1} \quad \text{et} \quad l_2 = \frac{\lambda_0}{4n_2} \quad (1.28)$$

λ_0 est la longueur d'onde dans le vide à laquelle est centré le miroir. La périodicité de l'empilement des couches du miroir induit la création d'une gamme d'énergie où les ondes électromagnétiques ne peuvent se propager. Ce phénomène peut être traité à l'aide du formalisme des fonctions de Bloch et, de façon analogue à la structure de bande d'un semiconducteur, cette gamme d'énergie sera nommée bande interdite optique (ou "stop band" en anglais).

La figure 1.11a présente les réflectivités calculées de miroirs nitrures AlN/Al_{0.2}Ga_{0.8}N épitaxiés sur substrat silicium composés de 10, 20, et 30 paires centrées à une longueur d'onde $\lambda_0=355$ nm (ou $E_0 = 3492$ meV en énergie). Ces calculs ont été réalisés avec le formalisme des matrices de transfert. À la longueur d'onde λ_0 , les indices du miroir sont : $n_{\text{AlN}} = 2.15$ et $n_{\text{AlGaN}} = 2.52$. Les indices du substrat et du milieu ambiant sont respectivement $n_{\text{Si}} = 6.11$ et $n_{\text{GaN}} = 2.6$. L'absorption des miroirs a été négligée. Comme on peut le constater, le coefficient de réflectivité est directement lié au nombre de paires N dans le miroir. Cependant, son évolution n'est pas linéaire, et la réflectivité maximum que peut atteindre un miroir est donnée par la formule [79] :

$$R_{\text{max}} = 1 - 4 \left(\frac{n_b}{n_h} \right)^{2N}, \quad (1.29)$$

où n_b et n_h sont respectivement les indices bas et hauts du miroir de Bragg.

Dans notre cas, le miroir de Bragg AlN/Al_{0.2}Ga_{0.8}N de 30 paires devrait exhiber une valeur R_{max} de 0.9997. Il est à noter que les valeurs mesurées expérimentalement seront plus faibles notamment du fait de l'absorption résiduelle des matériaux utilisés.

Outre la réflectivité maximale, la largeur de la stop-band est un paramètre fondamental. Cette largeur Δ_{sb} peut-être calculée à partir de la relation suivant, dans l'hypothèse où le nombre de paires est grand [80] :

$$\Delta_{\text{sb}} = \frac{4E_0}{\pi} \frac{n_h - n_b}{n_h + n_b} \quad (1.30)$$

Cette relation met en évidence le paramètre clé qu'est le contraste d'indice ($n_h - n_b$) entre les bi-couches du miroir. Plus celui-ci sera important, plus la largeur spectrale de la stop-band sera élevée. La figure 1.11b compare la stop-band de deux miroirs : un miroir nitrure composé de 30 paires de

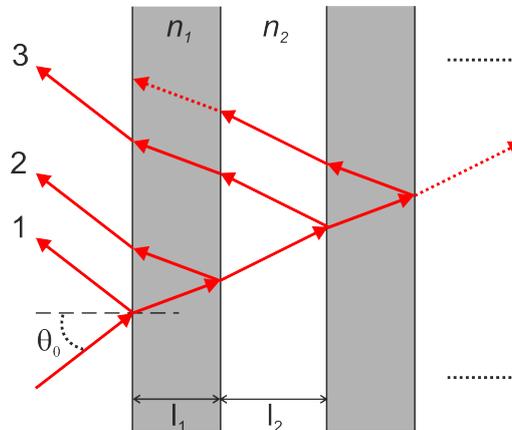


Fig. 1.10 – Schéma des rayons lumineux réfléchis par un miroir de Bragg; seules les premières couches de la structure sont représentées dans le cas où $n_1 > n_2$.

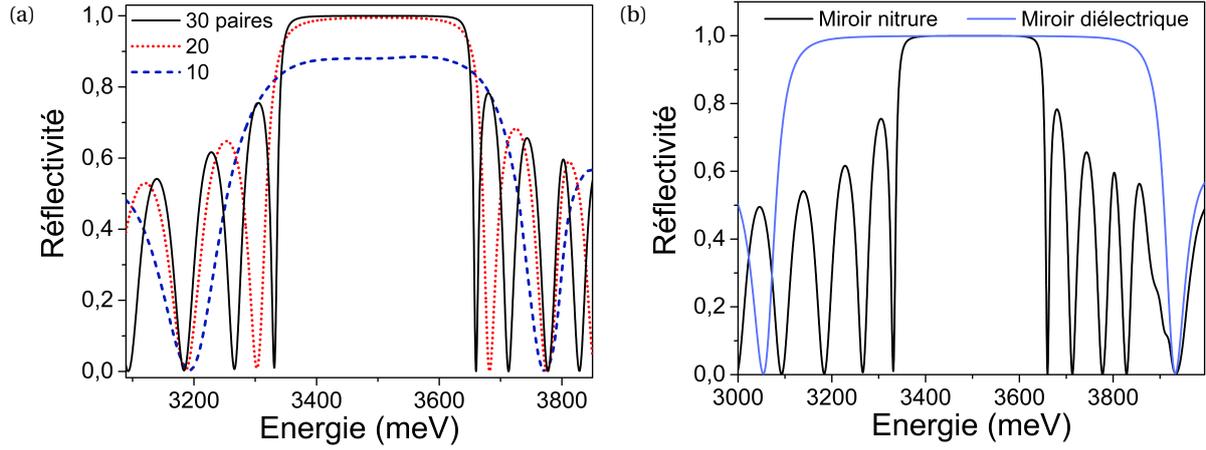


Fig. 1.11 – a) Réflectivité du miroir de Bragg AlN/AlGaIn en fonction de l'énergie et influence du nombre de paires. b) Comparaison des largeurs de bande interdite entre un miroir nitrure et un miroir diélectrique.

AlN/AlGaIn et un miroir diélectrique composé de 11 paires de $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$. Le plus grand contraste d'indice de ce dernier lui permet d'avoir une stop-band large de 600 meV comparé au 260 meV du miroir nitrure, le tout avec un R_{\max} équivalent et un nombre de paire plus faible.

Contrairement aux cas des miroirs métalliques, le champ électromagnétique peut pénétrer dans les miroirs de Bragg. Le champ dans une microcavité étant confiné dans la partie centrale, la pénétration de ce dernier dans le miroir va allonger la longueur effective de la cavité. La longueur de pénétration est appelée L_{DBR} , elle est définie comme le double de la distance à laquelle doit être placée un miroir à phase fixe pour induire le même retard de phase sur le coefficient de réflexion [79]. Son expression est donnée par [80] :

$$L_{\text{DBR}} = \frac{\lambda_0}{4n_{\text{in}}} \frac{\min(n_{\text{in}}, n_{\text{b}})}{\max(n_{\text{in}}, n_{\text{b}})} \frac{n_{\text{h}}}{n_{\text{h}} - n_{\text{b}}}, \quad (1.31)$$

où n_{in} est l'indice du milieu incident.

Encore une fois, la relation 1.31 met en évidence l'importance cruciale du contraste d'indice. D'un point de vue purement théorique, le fort contraste d'indice des miroirs diélectriques comparé aux miroirs nitrures les rend très avantageux pour la réalisation de microcavités. Cependant, les matériaux diélectriques étant amorphes, il n'est pas possible de faire croître des couches actives de GaN et de ZnO de bonne qualité. La réalisation de structures totalement diélectriques nécessite de multiples étapes pour contrer ce problème et reste un challenge ardu [81]. Les structures hybrides composées d'un miroir bas nitrure et d'un miroir haut diélectrique seront donc préférées.

Microcavités complètes

La microcavité dans son ensemble est composée de deux miroirs de Bragg entourant une couche active. Ce système est analogue à une cavité Pérot-Fabry, et seuls les modes photoniques dont le déphasage ϕ respecte la condition 1.32 seront transmis. Ces modes sont aussi appelés modes de cavité.

$$\phi = 2\pi m \quad m \in \mathbb{N}. \quad (1.32)$$

La longueur d'onde λ_c du mode photonique est alors reliée à l'épaisseur L_c de la cavité d'indice n_c par la relation :

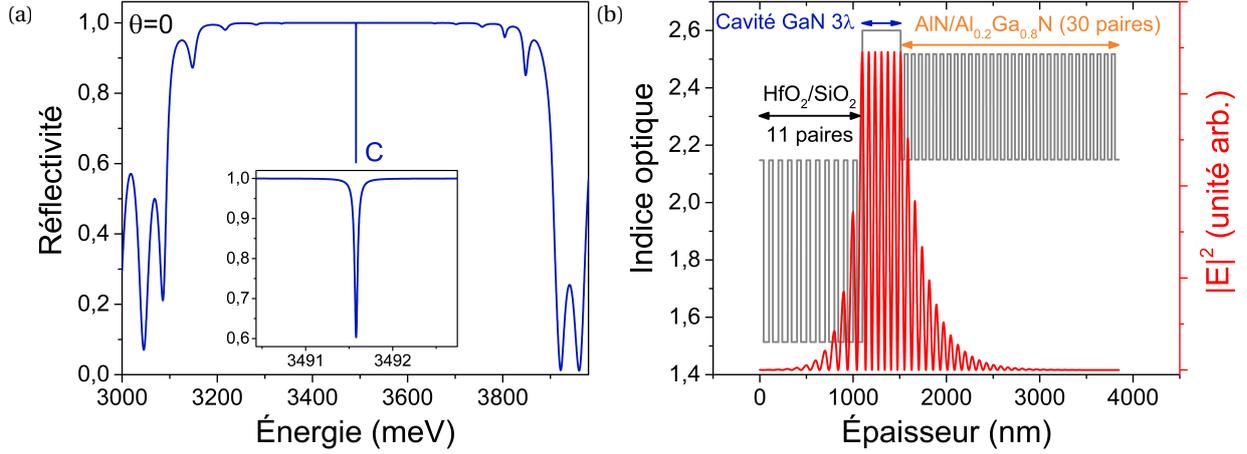


Fig. 1.12 – a) Réflectivité en incidence normale d'une microcavité constituée d'un miroir AlN/Al_{0,2}Ga_{0,8}N de 30 paires et d'un miroir HfO₂/SiO₂ de 11 paires. La couche active de GaN est une couche passive sans exciton. L'insert est un zoom sur le mode de cavité. b) Répartition du module au carré du champ électrique $|E|^2$ à l'énergie du mode de cavité (rouge) et profil d'indice (bleu) en fonction de la position dans la microcavité.

$$\lambda_c = \frac{2n_c L_c \cos \theta_c}{m} . \quad (1.33)$$

La figure 1.12a présente la réflectivité d'une microcavité composée d'un miroir nitrure et diélectrique définis précédemment : 30 paires AlN/Al_{0,2}Ga_{0,8}N et 11 paires HfO₂/SiO₂ centrés à $\lambda_{\text{DBR}} = 355$ nm. Le substrat est en silicium et la couche active est composée de GaN, d'indice n_c , purement réel (sans contribution excitonique) et d'épaisseur $3\lambda_c/n_c$. Le mode de cavité est visible sous la forme d'un creux étroit au milieu de la stop-band. D'autres creux, moins prononcés, sont visibles sur les bords de la stop-band, ils correspondent aux modes de Bragg du miroir nitrure dont la stop-band est moins large. À l'aide du formalisme des matrices de transfert, il est également possible de calculer la répartition du champ électrique dans la microcavité à l'énergie du mode photonique (figure 1.12b). Le champ électrique est maximal dans la couche de GaN et on peut voir sa décroissance exponentielle dans les miroirs. Comme prévu par la relation 1.31, la longueur de pénétration du champ dans le miroir diélectrique est plus faible que dans le miroir nitrure. Afin de poursuivre la comparaison avec le résonateur de Pérot-Fabry, la pénétration du champ dans les miroirs doit être prise en compte. Pour ce faire, on introduit la notion d'épaisseur de cavité effective L_{eff} :

$$L_{\text{eff}} = L_c + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^2 L_{\text{DBR}_i} , \quad (1.34)$$

Du fait de la pénétration du champ, si la longueur d'onde de résonance des miroirs λ_{0_i} est différente de celle de la cavité λ_c , la longueur d'onde de résonance du mode photonique λ_{ph} deviendra :

$$\lambda_{\text{ph}} = \frac{\lambda_c L_c + \frac{1}{2} (\lambda_{0_1} L_{\text{DBR}_1} + \lambda_{0_2} L_{\text{DBR}_2})}{L_{\text{eff}}} . \quad (1.35)$$

Facteur de qualité et temps de vie photonique

Le mode de cavité possède une certaine largeur à mi-hauteur Γ_{ph} , reliée au temps de vie fini des photons dans la structure τ_{ph} . Ce dernier est défini par la relation :

$$\tau_{\text{ph}} = \frac{4\pi n_c L_{\text{eff}}}{c(1 - \sqrt{R_{\text{inf}} R_{\text{sup}}})} \quad (1.36)$$

où R_{inf} et R_{sup} sont la réflectivité du miroir inférieur et supérieur.

À partir des spectres de réflectivité et de la largeur Γ_{ph} , il est possible de déterminer le facteur de qualité Q de la structure :

$$Q = \frac{E_{\text{ph}}}{\Gamma_{\text{ph}}} . \quad (1.37)$$

Le temps de vie des photons dans la cavité est aussi accessible expérimentalement, il est relié au facteur de qualité Q et à la largeur à mi-hauteur Γ_{ph} par la relation :

$$\tau_{\text{ph}} = \frac{Q}{\omega_{\text{ph}}} . \quad (1.38)$$

Relation de dispersion du mode photonique

Grâce à la géométrie plane et au confinement de la lumière dans la direction de croissance z , le vecteur d'onde des photons dans la cavité \vec{k} peut-être décomposé suivant sa composante parallèle \vec{k}_{\parallel} et perpendiculaire \vec{k}_{\perp} au plan des couches. La norme de \vec{k} peut donc s'écrire $k = \sqrt{k_{\parallel}^2 + k_{\perp}^2}$ avec $k_z = \frac{m\pi}{L_c}$ d'après l'équation (1.32).

La relation de dispersion du mode de cavité est exprimée par :

$$E_c(\mathbf{k}) = \frac{\hbar c}{n_c} k = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{\left(\frac{m\pi}{L_c}\right)^2 + (k_{\parallel})^2} \quad m \in \mathbb{N}. \quad (1.39)$$

Pour de faibles valeur de k_{\parallel} , la dispersion du mode de cavité est quasiment parabolique et il est possible de définir une masse effective pour le photon dans la cavité [82] :

$$m_c^* = \hbar^2 \left[\left(\frac{d^2 E_c(\mathbf{k})}{dk^2} \right)_{k=0} \right]^{-1} = \frac{m \hbar n_c^2}{\lambda_c c} . \quad (1.40)$$

La relation de dispersion (1.39) est exprimée en fonction de la composante parallèle k_{\parallel} qui n'est pas accessible expérimentalement. Il sera plus aisé de travailler avec l'angle d'incidence externe θ_{ext} relié à k_{\parallel} par $k_{\parallel} = \frac{k \sin(\theta)}{n_c}$.

On obtient alors la relation de dispersion suivante :

$$E_c(\theta_{\text{ext}}) = \frac{\hbar c}{\lambda_0} \left(1 - \frac{\sin^2 \theta_{\text{ext}}}{n_c^2} \right)^{-1/2} . \quad (1.41)$$

1.3.2 Guides d'onde

Les guides d'ondes, à l'instar des microcavités, permettent de confiner le champ électromagnétique dans une couche de semiconducteur et favorisent l'interaction lumière-matière. Cependant, ce confinement n'est pas obtenu à l'aide de miroirs de Bragg, mais est basé sur le phénomène de réflexion totale interne. En considérant une onde lumineuse se propageant d'un milieu plus réfringent n_2 à un milieu moins réfringent n_1 , il est possible de définir un angle d'incidence, appelé angle de réfraction

limite (θ_c), à partir duquel il n'existe plus de rayons réfractés transmis mais uniquement des rayons réfléchis. Cet angle est défini par la relation :

$$\theta_c = \sin^{-1} \left(\frac{n_2}{n_1} \right). \quad (1.42)$$

La figure 1.13a présente un exemple de guide d'onde planaire asymétrique constitué d'une couche guidante de GaN et d'une gaine (ou cladding) en AlN, déposées sur un substrat de Si. Dans notre cas, les angles de réfraction limites aux interfaces air/GaN et GaN/AlN sont respectivement égaux à 22.6 et 55.8 degrés. Les rayons lumineux dans la couche de GaN possédant un angle θ inférieur à 22.6 degrés seront appelés modes radiatifs et s'échapperont de la couche. Au contraire, ceux possédant un angle supérieur à 55.8 degrés seront totalement réfléchis aux deux interfaces : le champ est confiné et on parlera de modes guidés.

D'un point de vue purement électromagnétique, les modes guidés sont les solutions des équations de Maxwell résolues en considérant le guide infini et isotrope suivant les directions x et y. En polarisation TE, les solutions sont de forme :

$$E_m(\vec{r}, t) = E_m(z) \exp^{i(\omega t - \beta y)}, \quad (1.43)$$

où $E_m(z)$ est l'amplitude du champ électrique suivant la direction z du mode guidé m et β sa constante de propagation. Le mode correspondant à $m = 0$ est appelé mode fondamental, les autres seront appelés modes d'ordre supérieur.

$$\frac{\partial^2 E_x(z)}{\partial z^2} + (k_0^2 n_1^2 - \beta^2) E_x(z) = 0. \quad (1.44)$$

En substituant 1.43 dans l'équation d'onde 1.44, nous pouvons déterminer la condition nécessaire au confinement du champ dans la couche guidante. Dans le cadre de l'exemple choisi, elle s'écrit :

$$n_1 < n_{\text{eff}} < n_2 \quad \text{avec} \quad n_{\text{eff}} = \frac{\beta}{k_0} = n_g \sin(\theta). \quad (1.45)$$

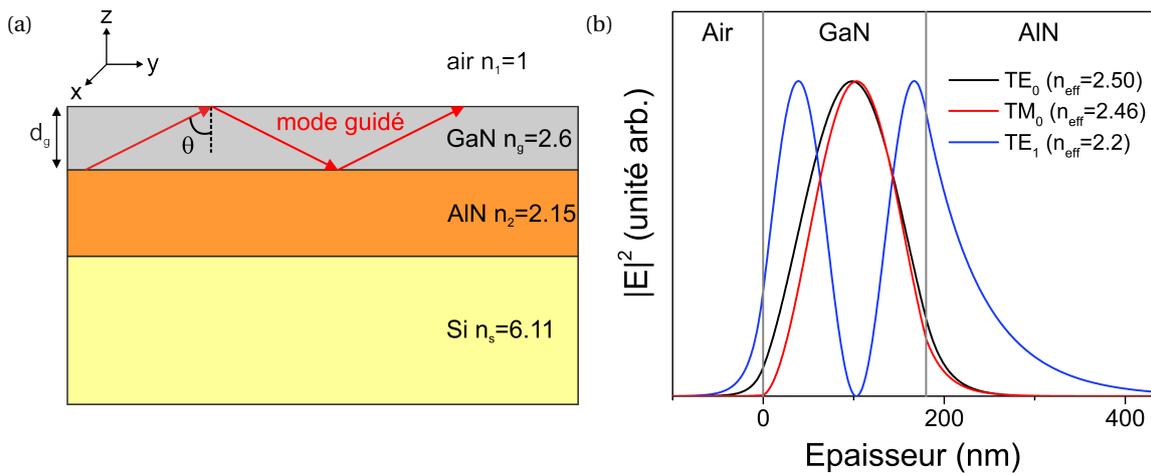


Fig. 1.13 – a) Schéma d'un guide d'onde planaire composé d'une couche guidante de GaN, d'un cladding de AlN et d'un substrat de Si. Les rayons lumineux d'angle $\theta > \theta_c$ sont guidés dans la couche de GaN. b) Répartition du module au carré du champ électrique $|E|^2$ en fonction de la position dans le guide, à ($\lambda = 355\text{nm}$), pour les trois modes guidés TE₀, TM₀ et TE₁. L'épaisseur de la couche guidante est 180 nm.

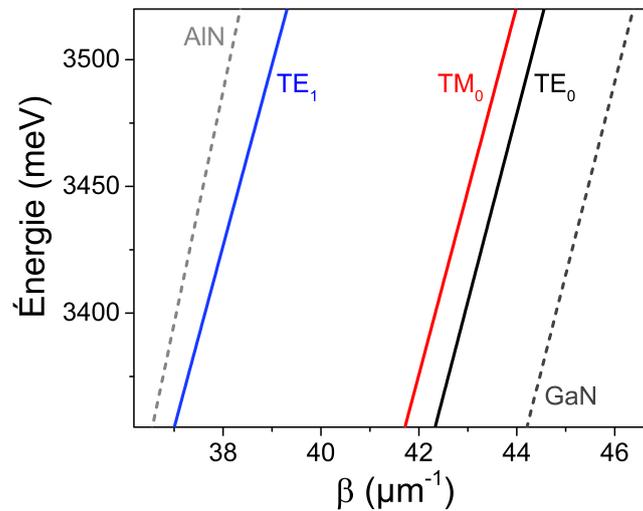


Fig. 1.14 – Dispersion des modes guidés TE_0 , TM_0 et TE_1 de la structure présentée sur la figure 1.13a. Les cônes de lumière de AlN et GaN sont représentés en pointillés.

L'amplitude $E_m(z)$ des modes guidés sera décrite par une exponentielle réelle décroissante dans l'air et le cladding, et par une sinusoïde dans la couche guidante. Le guide décrit plus haut, dont l'épaisseur est de 180 nm, supporte trois modes : deux modes transverses électriques (TE) et un mode transverse magnétique (TM). Le nombre de modes dépend principalement de l'épaisseur de la couche guidante. La figure 1.13b présente la répartition de l'intensité du champ de chacun des modes guidés dans la structure calculé à l'aide du formalisme des matrices S [83]. La relation de dispersion des modes guidés est présentée sur la figure 1.14, la zone respectant la condition 1.45 est comprise entre les lignes pointillées grises représentant le cône de lumière de AlN et GaN.

1.3.3 Couplage fort lumière-matière

Jusqu'à présent, nous avons considéré de façon indépendante les photons confinés dans les microcavités (ou les guides planaires) et les excitons de GaN et ZnO. Nous allons voir dans la partie qui suit comment ces deux composantes sont liées par le couplage lumière-matière.

Deux types de couplages sont possibles : le couplage faible et le couplage fort. Le couplage faible correspond au cas où les interactions entre les photons confinés et les excitons du semiconducteur sont irréversibles. Le couplage lumière-matière est traité comme une perturbation, et le système est décrit par la règle d'or de Fermi et l'effet Purcell [84]. Lorsque le temps de vie du photon est supérieur au temps nécessaire à sa réabsorption par les excitons, les interactions sont réversibles et le traitement précédent n'est plus valable, le système est en couplage fort. Les modes excitoniques et photoniques donnent naissance à deux nouveaux états propres : la branche polaritonique basse et la branche polaritonique haute (couramment appelées LPB et UPB pour "lower/upper polaritonic branch"). La quasi-particule correspondante est l'exciton-polariton, elle sera appelée simplement polariton par la suite.

Le couplage fort peut être décrit à l'aide d'un modèle classique utilisant le formalisme des équations de Maxwell ou un modèle quantique.

Modèle classique

La description classique de l'interaction lumière-matière fait intervenir les équations de Maxwell liées à la réponse excitonique via la fonction diélectrique définie section 1.2.3. De la même façon que dans les sections 1.3.1 et 1.3.2, les formalisme des matrices de transfert et des matrices S seront respectivement utilisés pour les microcavités et les guides.

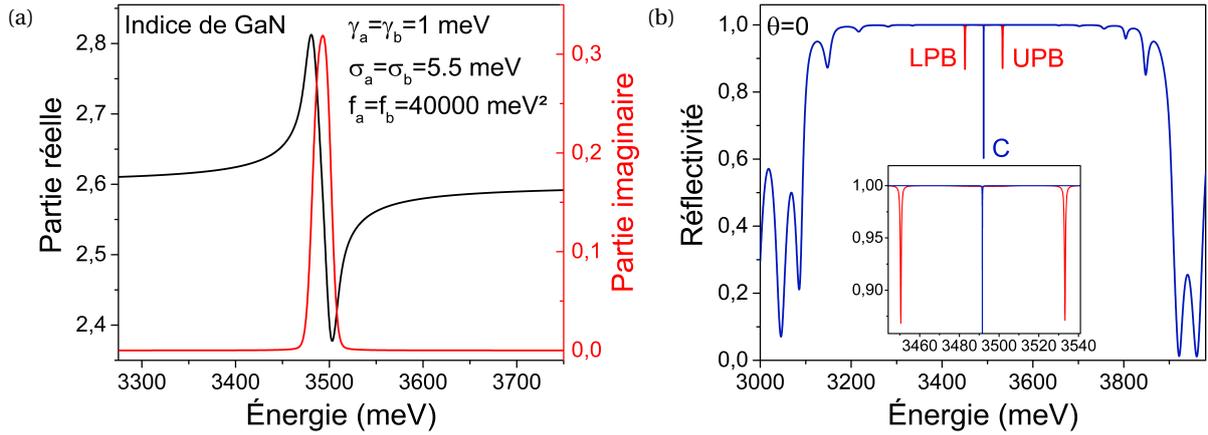


Fig. 1.15 – a) Indice réel (noir) et imaginaire (rouge) de GaN obtenu à partir du modèle inhomogène de la fonction diélectrique. Les paramètres utilisés sont indiqués. b) Réflectivité en incidence normale d'une microcavité constituée d'un miroir AlN/Al_{0.2}Ga_{0.8}N de 30 paires, d'un miroir HfO₂/SiO₂ de 11 paires et d'une couche active avec excitons (rouge) et sans (bleu). L'insert est un zoom sur les modes.

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser aux modifications du spectre de réflectivité de la microcavité GaN définie précédemment lorsque la fonction diélectrique tient compte des excitons. La figure 1.15a présente l'indice réel et imaginaire de la couche active de GaN. L'absorption bande à bande a été ignorée afin de révéler les deux branches polaritoniques. Les réflectivités avec exciton (rouge) et sans (bleu) sont tracées sur la figure 1.15b. Le couplage fort se manifeste sur le spectre rouge par la disparition du mode de cavité au profit de deux nouveaux modes, nommés branche polaritonique basse et haute (LPB et UPB). Les propriétés de ces nouveaux états, comme l'élargissement, sont dérivées des propriétés photoniques et excitoniques. Ainsi, en raison de sa composante excitonique, la LPB possède un élargissement supérieur au mode de cavité.

La figure 1.16a présente l'évolution de la réflectivité en fonction de l'angle d'émission. Les dispersions de la LPB et de la UPB sont caractérisées par un anticroisement, preuve incontestable du régime de couplage fort. Il est à noter que le mode de Bragg MB1 est aussi en couplage fort, comme le prouve

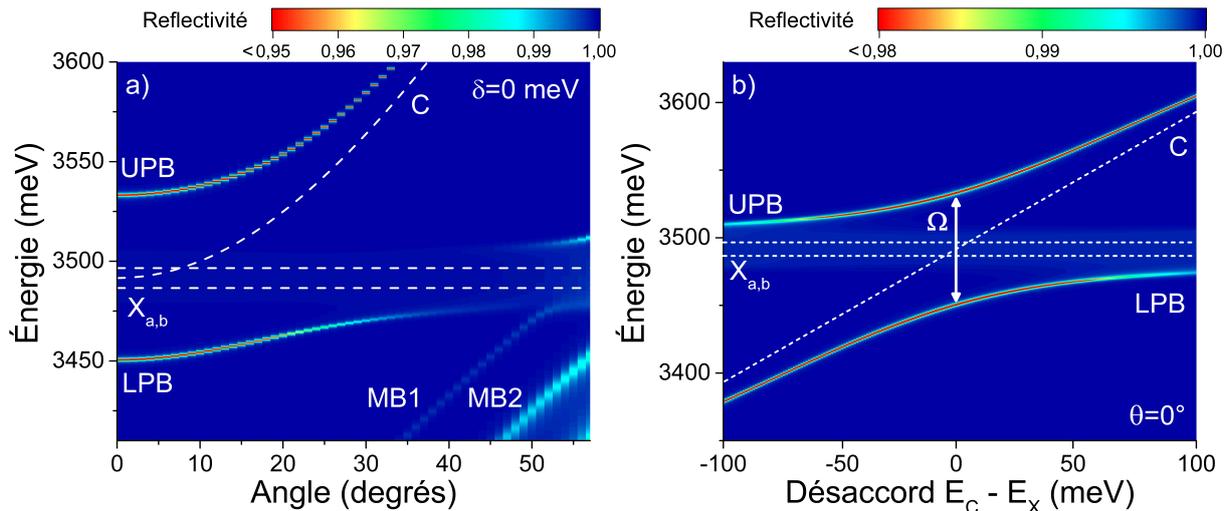


Fig. 1.16 – a) Dispersion des branches polaritoniques basses et hautes (LPB et UPB) pour un désaccord nul. Les modes excitoniques et photoniques sont représentés en pointillés. Le premier et deuxième mode de Bragg sont appelés respectivement MB1 et MB2. b) Variation de la LPB et UPB en fonction du désaccord pour $\theta = 0^\circ$. Le dédoublement de Rabi mesuré pour $\delta = 0$ meV vaut $\Omega = 86$ meV.

l'anticroisement avec les excitons à $\theta = 55^\circ$.

Dans le cas présenté ici, les énergies des excitons A et B ont respectivement été fixées à $E_{XA} = 3487$ meV et $E_{XB} = 3497$ meV et l'énergie du mode de cavité à $E_C = 3492$ meV. Les modes excitoniques ont donc une énergie moyenne E_X égale à l'énergie du mode de cavité E_C , on parlera de désaccord nul. Le désaccord $\delta = E_C - E_X$ est un paramètre fondamental affectant la nature du couplage lumière-matière et les propriétés des polaritons. La figure 1.16b présente l'évolution des modes polaritoniques à $\theta = 0^\circ$ pour des désaccords allant de -100 à 100 meV. Là aussi, un anticroisement net des modes polaritoniques est visible. Pour les désaccords négatifs, l'énergie de la LPB converge vers celle du mode de cavité tandis que la UPB converge vers les excitons. La situation est inversée pour les désaccords positifs. La différence d'énergie entre les modes couplés est minimale pour $\delta = 0$ meV. Cette énergie est appelée dédoublement de Rabi Ω et caractérise la force de l'interaction lumière-matière.

Le même traitement peut être effectué pour la modélisation du couplage fort dans les guides plans. La figure 1.17 présente la dispersion du guide plan défini précédemment en prenant compte des excitons dans la fonction diélectrique. Pour plus de clarté, seul le mode fondamental transverse électrique a été considéré. Les paramètres excitoniques utilisés sont les mêmes que pour la figure 1.15a. De la même façon que pour la microcavité, le couplage fort se traduit dans le guide par l'anticroisement des modes excitoniques et photoniques. On peut noter que pour une épaisseur de couche guidante inférieure à la couche active de la microcavité (180 nm versus 478 nm), le dédoublement de Rabi est plus important dans le guide. Cela traduit le meilleur confinement du champ électromagnétique dans les structures guidées.

Modèle quantique

Dans le modèle quantique, aussi appelé modèle des oscillateurs couplés, les excitons et les photons forment un système de deux oscillateurs bosoniques couplés par l'interaction lumière-matière. Dans le cadre de la seconde quantification, l'exciton de vecteur d'onde dans le plan $k_{||}$ est caractérisé par les opérateurs création et annihilation ($\hat{b}_{k_{||}}^\dagger, \hat{b}_{k_{||}}$). Pour des faibles densités, ces opérateurs excitoniques satisfont la relation de commutation bosonique. Les opérateurs correspondant pour les photons sont ($\hat{a}_{k_{||}}^\dagger, \hat{a}_{k_{||}}$). L'hamiltonien du système pour un vecteur d'onde $k_{||}$ s'écrit :

$$\hat{H}_{k_{||}}^{\text{pol}} = \hat{H}_{k_{||}}^{\text{C}} + \hat{H}_{k_{||}}^{\text{X}} + \hat{H}_{k_{||}}^{\text{int}} = E_C(k_{||})\hat{a}_{k_{||}}^\dagger \hat{a}_{k_{||}} + E_X(k_{||})\hat{b}_{k_{||}}^\dagger \hat{b}_{k_{||}} + V(\hat{a}_{k_{||}} \hat{b}_{k_{||}}^\dagger + \hat{a}_{k_{||}}^\dagger \hat{b}_{k_{||}}), \quad (1.46)$$

où V est la constante d'interaction [79]. Cette dernière est considérée comme ne dépendant pas du vecteur d'onde et peut être calculée grâce à la relation 1.47 :

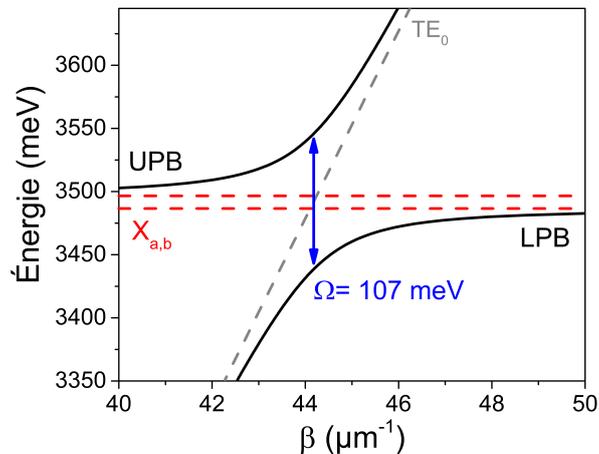


Fig. 1.17 – Dispersion des branches polaritoniques basses et hautes de la structure présentée sur la figure 1.13a. Le dédoublement de Rabi est mesuré pour la distance minimale entre la LPB et UPB. Le mode TE_0 non couplé est tracé en pointillés gris.

$$V = \sqrt{\frac{f_{\text{osc}} L_c}{4n_{\text{cav}}^2 L_{\text{eff}}}}. \quad (1.47)$$

Les paramètres clés sont les forces d'oscillateurs des excitons f_{osc} , l'épaisseur de la cavité L_c et le confinement du champ électromagnétique à travers la longueur effective L_{eff} .

L'hamiltonien peut être diagonalisé à l'aide de la transformation de Hopfield :

$$\hat{p}_{k_{\parallel}}^{\dagger} = X_{k_{\parallel}} \hat{b}_{k_{\parallel}}^{\dagger} + C_{k_{\parallel}} \hat{a}_{k_{\parallel}}^{\dagger}, \quad (1.48a)$$

$$\hat{u}_{k_{\parallel}}^{\dagger} = -C_{k_{\parallel}} \hat{b}_{k_{\parallel}}^{\dagger} + X_{k_{\parallel}} \hat{a}_{k_{\parallel}}^{\dagger}, \quad (1.48b)$$

où $X_{k_{\parallel}}$ et $C_{k_{\parallel}}$ sont les coefficients d'Hopfield satisfaisant la condition $|X_{k_{\parallel}}|^2 + |C_{k_{\parallel}}|^2 = 1$ [85]. Dans cette nouvelle base, l'hamiltonien de l'équation 1.46 s'écrit :

$$\hat{H}_{k_{\parallel}}^{\text{pol}} = E_{\text{LP}}(k_{\parallel}) \hat{p}_{k_{\parallel}}^{\dagger} \hat{p}_{k_{\parallel}} + E_{\text{UP}}(k_{\parallel}) \hat{u}_{k_{\parallel}}^{\dagger} \hat{u}_{k_{\parallel}}. \quad (1.49)$$

Les opérateurs bosoniques $(\hat{p}_{k_{\parallel}}^{\dagger}, \hat{p}_{k_{\parallel}})$ et $(\hat{u}_{k_{\parallel}}^{\dagger}, \hat{u}_{k_{\parallel}})$ sont les opérateurs création et annihilation des nouveaux états propres du système appelés polaritons bas (lower polaritons) et polaritons hauts (upper polaritons). Les énergies propres E_{LP} et E_{UP} donnent accès aux dispersions des branches basses (LPB) et hautes (UPB) :

$$E_{\text{LPB}}(k_{\parallel}) = \frac{E_C(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{\delta_{k_{\parallel}}^2 + 4V^2}, \quad (1.50a)$$

$$E_{\text{UPB}}(k_{\parallel}) = \frac{E_C(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{\delta_{k_{\parallel}}^2 + 4V^2}, \quad (1.50b)$$

où $\delta_{k_{\parallel}} = E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})$ est le désaccord. La différence d'énergie entre les deux branches est minimale lorsque $\delta_{k_{\parallel}} = 0$. Elle est nommée dédoublement de Rabi et son expression est égale à :

$$\Omega = E_{\text{UPB}}(\delta = 0) - E_{\text{LPB}}(\delta = 0) = 2V. \quad (1.51)$$

Les polaritons étant des particules mixtes résultant de la superposition linéaire d'un exciton et d'un photon, il est possible de leur attribuer un poids photonique et excitonique. Les poids photoniques et excitoniques de la LPB sont respectivement donnés par les modules au carré des coefficients d'Hopfield $|X_{k_{\parallel}}|^2$ et $|C_{k_{\parallel}}|^2$ (et vice-versa pour la UPB). Ils sont liés au vecteur d'onde dans le plan k_{\parallel} , au dédoublement de Rabi Ω et au désaccord δ par les relations :

$$X_{k_{\parallel}}(\delta) = \frac{\Omega}{\sqrt{\Omega^2 + 4(E_{\text{LPB}}(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel}))^2}}, \quad (1.52a)$$

$$C_{k_{\parallel}}(\delta) = -\frac{4(E_{\text{LPB}}(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel}))}{\sqrt{\Omega^2 + 4(E_{\text{LPB}}(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel}))^2}}. \quad (1.52b)$$

La relation 1.51 correspond à une situation utopique où l'exciton et le photon ont un temps de vie infini et donc un élargissement nul. Une façon de prendre en considération les largeurs homogènes finies des modes photoniques et excitoniques est d'introduire une partie imaginaire $-i\gamma$ aux énergies E_C et E_X . L'hamiltonien 1.46 s'écrit donc maintenant :

$$\hat{H}_{k_{\parallel}}^{\text{pol}} = \begin{pmatrix} E_C(k_{\parallel}) - i\gamma_C & V \\ V & E_X(k_{\parallel}) - i\gamma_X \end{pmatrix}. \quad (1.53)$$

Les valeurs propres sont modifiées en conséquences :

$$E_{\text{LPB}}(k_{\parallel}) = \frac{E_C(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} - i\left(\frac{\gamma_X + \gamma_C}{2}\right) - \frac{1}{2}\sqrt{[\delta_{k_{\parallel}} - i(\gamma_X - \gamma_C)]^2 + 4V^2}, \quad (1.54a)$$

$$E_{\text{UPB}}(k_{\parallel}) = \frac{E_C(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} - i\left(\frac{\gamma_X + \gamma_C}{2}\right) + \frac{1}{2}\sqrt{[\delta_{k_{\parallel}} - i(\gamma_X - \gamma_C)]^2 + 4V^2}. \quad (1.54b)$$

La première différence avec l'équation 1.50 est l'apparition d'un terme imaginaire lié à la largeur des modes polaritoniques $\gamma_{\text{LPB/UPB}} = -i \text{Im}(E_{\text{LPB/UPB}})$. La figure 1.18 présente les relations de dispersion des deux branches polaritoniques pour trois désaccords différents ainsi que les fractions excitoniques et photoniques de la LPB. L'élargissement photonique choisi $\gamma_C = 3$ meV correspond à une microcavité possédant un facteur de qualité d'environ 1100. Les excitons A et B de GaN ont été assimilés à un mode excitonique d'énergie moyenne $E_X = 3492$ meV dont la dispersion est considérée plate dans la gamme de vecteur d'onde étudié. Le terme de couplage V a été fixé à 40 meV.

La LPB possède un minimum d'énergie en $k_{\parallel} = 0$ et converge tout en s'infléchissant vers la dispersion de l'exciton à grand vecteur d'onde. À l'inverse, la UPB tend vers la dispersion du mode de cavité à grand k_{\parallel} .

Pour les désaccords négatifs, la LPB est proche du mode photonique et les polaritons dans l'état fondamental possèdent une fraction photonique importante (80% à $k_{\parallel} = 0$). Les poids photoniques et excitoniques des polaritons déterminent leurs propriétés intrinsèques comme l'élargissement homogène, la section efficace des processus de diffusion, la masse effective et le temps de vie. Ainsi,

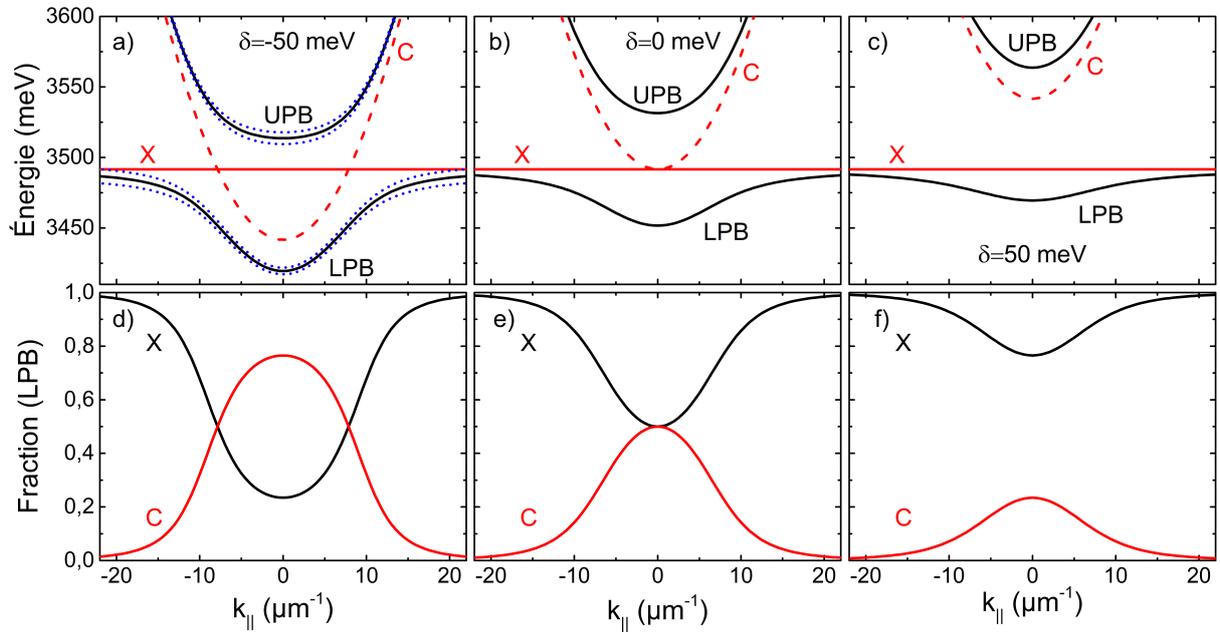


Fig. 1.18 – Relation de dispersion des branches polaritoniques basses et hautes (lignes noires pleines) pour a) $\delta = -50$ meV, b) $\delta = 0$ meV et c) $\delta = 50$ meV. Les modes non couplés sont tracés en rouge. Les élargissements à mi-hauteur de la LPB et UPB sont tracés en pointillés bleus sur a). Les fractions excitoniques (noir) et photoniques (rouge) de la LPB sont tracés en d,e,f) pour les trois désaccords. Par soucis de simplicité, l'énergie du mode excitonique est la moyenne des énergies des excitons A et B. Pour toutes les courbes, $V = 40$ meV, $\gamma_X = 10$ meV et $\gamma_C = 3$ meV.

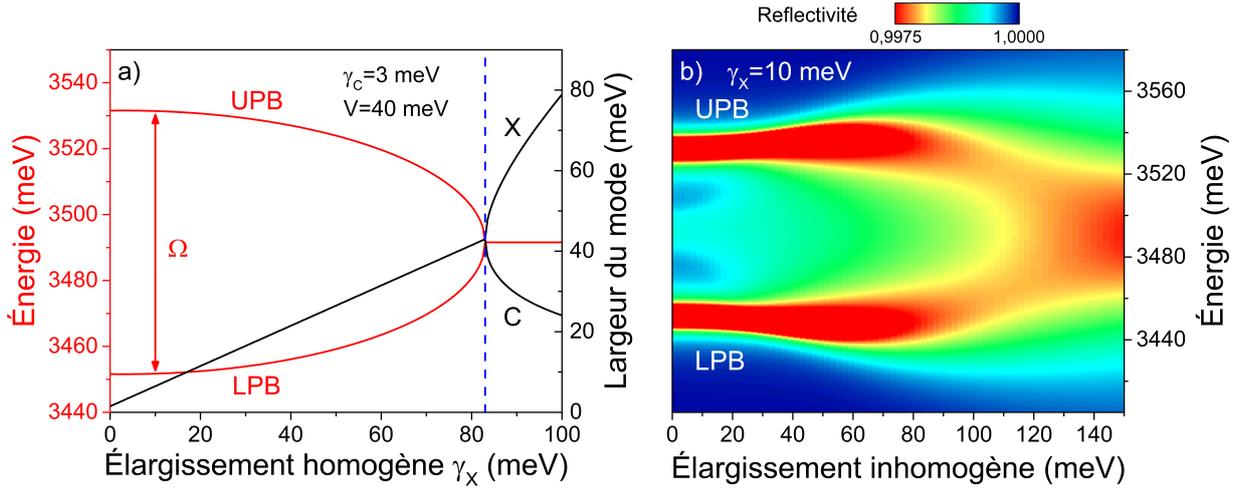


Fig. 1.19 – a) Élargissements (noir) et énergies (rouge) des modes polaritoniques en fonction de l'élargissement homogène γ_X en $k_{\parallel} = 0$ et $\delta = 0$. γ_C et V sont respectivement fixés à 3 meV et 40 meV. Le trait en pointillés bleus à $\gamma_X = 83$ meV marque la transition entre le régime de couplage fort et le régime de couplage faible. b) Réflectivité calculée grâce au formalisme des matrices de transfert en $k_{\parallel} = 0$ et à désaccord nul en fonction de l'élargissement inhomogène des excitons. La zone de transition entre le couplage fort et le couplage faible est marquée par les pointillés blancs. L'élargissement homogène des excitons est fixé à 10 meV.

en raison du faible élargissement γ_C et du caractère photonique prononcé, l'élargissement de la LPB dans l'état fondamental est minimal. Ce dernier augmente à mesure que le caractère excitonique du polariton s'accroît (figure 1.18a).

Pour les désaccords positifs, la dispersion de la LPB est peu incurvée et proche de la dispersion excitonique. Le polariton a un caractère excitonique très prononcé : sa masse effective sera proche de celle de l'exciton et ses interactions avec d'autres particules seront importantes.

En modifiant le désaccord, il est ainsi possible de contrôler le comportement des polaritons à travers leur composante excitonique et photonique. Nous verrons en détail dans le chapitre 2 comment ces paramètres influent sur la relaxation et la condensation des polaritons.

La seconde différence est la modification du dédoublement de Rabi qui dépend maintenant de la différence relative entre le terme de couplage V et les élargissements homogènes $\gamma_{X,C}$ des modes non couplés :

$$\Omega = \begin{cases} 0 & \text{si } V \leq \frac{|\gamma_X - \gamma_C|}{2} \\ 2\sqrt{V^2 - \left(\frac{\gamma_X - \gamma_C}{2}\right)^2} & \text{si } V > \frac{|\gamma_X - \gamma_C|}{2} \end{cases} \quad (1.55)$$

Sur la figure 1.19a, les parties réelles et imaginaires des valeurs propres des modes polaritoniques sont tracées en fonction de la largeur homogène du mode excitonique, en $k_{\parallel} = 0$ et pour $\delta = 0$. Elles correspondent respectivement à l'énergie des modes et à leur élargissement. Le dédoublement de Rabi est directement accessible, il correspond à la différence d'énergie entre la LPB et la UPB. Conformément à la condition 1.55, au moment où la différence d'élargissement devient égale à $2V$ (pointillés bleus), celui-ci s'annule et le système passe du régime de couplage fort au régime de couplage faible. Dans ce régime, les énergies des modes propres sont dégénérées et égales aux énergies des modes nus E_C et E_X . Contrairement aux énergies, les élargissements ne correspondent pas aux valeurs initiales γ_X et γ_C fixées. En effet, même en régime de couplage faible, les modes sont toujours corrélés à travers la constante d'interaction V . Ceux-ci ne reprendront leur élargissement initial que pour des valeurs très grandes de γ_X .

Élargissement inhomogène

Il est à noter que l'élargissement inhomogène des excitons γ_{inh} ne peut pas être pris en compte dans le modèle des oscillateurs couplés. Pour ce faire, il est nécessaire d'utiliser le formalisme des matrices de transfert. La figure 1.19b décrit l'évolution de la réflectivité des modes polaritoniques en fonction de γ_{inh} pour $k_{||} = 0$ et à désaccord nul. L'élargissement homogène est fixé à $\gamma_X = 10$ meV. Le Rabi de la microcavité simulée est de 82 meV à $\gamma_{inh} = 0$ meV. Contrairement à l'élargissement homogène, l'impact de l'élargissement inhomogène sur le Rabi est quasi nul tant que $\gamma_{inh} < \Omega$. Les élargissements inhomogènes étant au maximum de 10 meV dans les microcavités étudiées dans le cadre de ce travail, le principal frein à la mise en place du régime de couplage fort sera l'élargissement homogène qui augmente significativement avec la température.

1.3.4 Effet laser à polaritons

Nous avons présenté dans les pages précédentes les conditions nécessaires à l'établissement du couplage fort dans les microcavités et les guides planaires. Les polaritons, quasi-particules mixtes composées d'un exciton et d'un photon, sont considérés comme des bosons dans la limite où la densité est faible. Dans cette partie, nous allons brièvement rappeler les propriétés des bosons et présenter le phénomène de condensation de Bose-Einstein. Nous verrons comment la condensation s'opère dans le cas des polaritons de microcavité et quels mécanismes spécifiques entrent en œuvre dans l'effet laser à polaritons. Après avoir décrit les conséquences de l'augmentation de la densité de porteurs sur la LPB et sur le régime de couplage fort, nous déterminerons les conditions de densité favorables à l'effet laser à polaritons. Finalement, un état de l'art du laser à polaritons sera dressé.

Condensation de Bose-Einstein

Les effets quantiques se manifestent lorsque la longueur d'onde de de Broglie λ_T représentant l'extension spatiale de la particule devient comparable à la distance inter-particules.

$$\lambda_T = \frac{h}{\sqrt{2\pi m k_B T}}. \quad (1.56)$$

L'équation 1.56 met en évidence les deux paramètres clés qui devront être minimisés pour l'apparition de ces effets : la température et la masse. Suivant la symétrie de leur fonction d'onde, les particules quantiques peuvent être classées en deux catégories : les fermions (fonction d'onde antisymétrique) et les bosons (fonction d'onde symétrique).

La distribution des bosons suit la statistique de Bose-Einstein f_{BE} :

$$f_{BE}(\vec{k}, T, \mu) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E(\vec{k}) - \mu}{k_B T}\right) - 1}, \quad (1.57)$$

où $E(\vec{k})$ est la relation de dispersion des bosons considérés et μ le potentiel chimique. Ce dernier est déterminé à partir de la conservation du nombre total de particules N . La fonction de partition f_{BE} ne pouvant être négative, le potentiel chimique devra respecter la condition $\mu < E(0)$ où $E(0)$ est l'énergie du niveau fondamental. L'expression du nombre total de particules est la suivante :

$$N(T, \mu) = \sum_{\vec{k}} f_{BE}(\vec{k}, T, \mu) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E(0) - \mu}{k_B T}\right) - 1} + \sum_{\vec{k} \neq 0} f_{BE}(\vec{k}, T, \mu). \quad (1.58)$$

Dans la limite thermodynamique ($N \rightarrow \infty$, $L^d \rightarrow \infty$, et $n = N/L^d$ constant), la densité totale n est obtenue en intégrant la distribution dans l'espace des \vec{k} :

$$n(T, \mu) = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{N(T, \mu)}{L^d} = n_0(T, \mu) + \frac{1}{(2\pi)^d} \int_{E > E(0)}^{+\infty} f_{BE}(\vec{k}, T, \mu) d^d \vec{k}, \quad (1.59)$$

où $n_0(T, \mu)$ est la densité dans l'état fondamental :

$$n_0(T, \mu) = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{L^d} \frac{1}{\exp\left(\frac{E(0) - \mu}{k_B T}\right) - 1}. \quad (1.60)$$

Ce terme est nul lorsque μ est différent de $E(0)$. D'autre part, le terme de droite de l'équation 1.59 est une fonction croissante de μ . Il correspond à la densité des états excités. Augmenter la densité de particules dans le système revient donc à augmenter le potentiel chimique. La densité maximum que peut atteindre ce terme est appelé densité critique :

$$n_c(T) = \lim_{\mu \rightarrow 0} \frac{1}{(2\pi)^d} \int_{E > E(0)}^{+\infty} f_{BE}(\vec{k}, T, \mu = E(0)) d^d \vec{k}. \quad (1.61)$$

n_c converge uniquement pour des valeurs de dimension d supérieure à 2.

Au delà de la densité critique, les états excités sont saturés et les particules supplémentaires vont occuper l'état fondamental. Cette transition de phase vers un état d'occupation macroscopique du niveau de plus basse énergie a été proposée en 1925 par Einstein. Sa densité est exprimée par :

$$n_0(T) = n(T) - n_c(T) = n(T) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^{3/2} \right], \quad (1.62)$$

où T_c est la température critique en dessous de laquelle la transition de Bose-Einstein est observable. Dans un espace à 3 dimensions, elle est égale à :

$$T_c = \frac{2\pi\hbar^2}{mk_B} \left(\frac{n}{2,612} \right)^{2/3}. \quad (1.63)$$

La première observation expérimentale d'un condensat de Bose-Einstein eut lieu en 1995 par Wieman et Cornell, dans un système d'atomes de rubidium refroidis à 170 nK [2]. Cette température extrêmement faible est requise en raison de la masse élevée de ces atomes. Dans l'idée d'augmenter T_c à des gammes de températures plus accessibles expérimentalement, des particules plus légères sont nécessaires.

Les polaritons de cavité, dont la masse peut-être jusqu'à cinq ordres de grandeurs plus faible que celle des électrons, apparaissent comme des candidats idéaux. Cependant, le traitement précédent ne s'applique pas car le confinement des photons donne au système un caractère 2D. Dans ce cas, le dernier terme de l'équation 1.59 ne converge jamais et la condensation de Bose-Einstein au sens strict du terme n'est pas autorisée. Néanmoins, une condensation locale via une transition vers un état superfluide est possible (transition Kosterlitz-Thouless) [86].

Laser à polaritons

La théorie initiale de la condensation de Bose-Einstein a été établie en considérant un système de bosons sans interactions, fermé, et à l'équilibre thermodynamique. Les polaritons de microcavité ne respectent aucune de ces trois propriétés. Ils possèdent un temps de vie extrêmement court, de l'ordre de la picoseconde, et leur distribution à l'équilibre est un compromis entre les polaritons créés par le

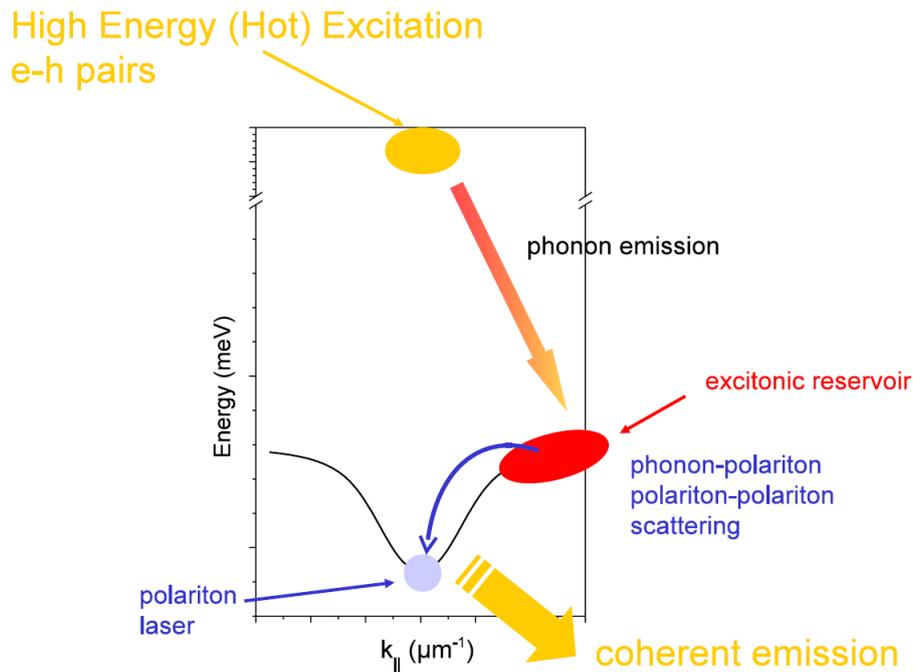


Fig. 1.20 – Représentation schématique des processus conduisant au laser à polaritons dans une microcavité plane sous excitation non résonnante. La courbe noire correspond à la dispersion de la LPB. La figure est extraite de la référence [87].

pompage, qui interagissent à travers leur composante excitonique pour relaxer vers l'état fondamental, et les polaritons qui s'échappent de la cavité. Les polaritons de microcavité constituent donc un système ouvert hors équilibre. Cependant, il est possible en jouant sur certains paramètres d'amener le système relativement proche de l'équilibre. Dans ce cas, les propriétés du quasi-condensat de polaritons seront très similaires à celles d'un condensat de Bose-Einstein (occupation macroscopique de l'état fondamental, longueur de cohérence élevée, etc). La première expérience démontrant la condensation de Bose-Einstein de polariton a été réalisée en 2006 par Kasprzak *et al.* dans une microcavité CdTe [88]. Depuis, l'appellation condensat de polaritons est communément admise et sera utilisée par la suite.

Les différentes étapes menant à la condensation des polaritons dans l'état de plus basse énergie dans le cas typique d'une excitation optique non résonnante sont résumées sur la figure 1.20.

- 1) La première étape correspond au pompage optique de la microcavité à l'aide d'un laser, continu ou pulsé, d'énergie supérieure à l'énergie de bande interdite du matériau composant la couche active. Dans le cadre d'une excitation à 266 nm, le plasma électron-trou possédera un excès d'énergie de l'ordre de 1 eV.
- 2) Dans une seconde étape, les paires électron-trou vont relaxer en quelques dizaines de femtosecondes vers les états de plus basse énergie en émettant des phonons optiques [89][90]. Ce processus est accéléré dans GaN et ZnO en raison de l'énergie élevée des phonons LO (92 et 72 meV) et du couplage de Fröhlich entre les porteurs libres et les phonons optiques. L'émission de phonons acoustiques prend le relais une fois que l'excès d'énergie des porteurs devient inférieur à l'énergie des phonons LO. Ces processus aboutissent à la formation de polaritons (à très fort caractère excitonique) dans le réservoir excitonique situé à grand vecteur d'onde (ou grand angle).
- 3) Ces polaritons vont ensuite entrer dans le cône de lumière et relaxer le long de la branche basse en émettant des phonons optiques et acoustiques. Ces processus de relaxation deviennent in-

efficaces au niveau où la courbure de la LPB change de signe : les polaritons doivent céder une plus grande énergie et peu de vecteur d'onde. Il faudra par exemple 50 ps pour dissiper 5 à 10 meV ce qui correspond à environ 10 fois le temps de vie des polaritons dans cette région [91]. Les polaritons vont donc s'accumuler dans cette zone, appelée "bottleneck" (goulot d'étranglement) [92]. De plus, à mesure que les polaritons relaxent, leur fraction photonique augmente, ce qui diminue à la fois leur temps de vie et leur probabilité d'interagir avec d'autres particules. Cet effet peut être surpassé en augmentant la densité de porteurs afin d'augmenter la population de polaritons et de favoriser les processus de diffusion polariton-polariton. Ces processus de relaxation permettent aux polaritons d'atteindre l'état fondamental. Nous verrons aussi que la relaxation peut se faire directement du réservoir excitonique à l'état fondamental de la LPB lorsque la différence entre ces deux niveaux est égale à l'énergie d'un ou de deux phonons LO.

- 4) Lorsque la densité de polaritons est supérieure à la densité critique $n_c(T)$, un condensat de polaritons se forme.

La luminescence du condensat de polaritons partage des propriétés très similaires à celle d'un laser classique, comme l'émission de photons cohérents et monochromatiques. On parlera de laser à polaritons [15]. Le laser à polaritons, contrairement à un laser classique, ne nécessite aucune inversion de population. C'est la relaxation des polaritons qui est "stimulée" par l'occupation de l'état final et non l'émission de lumière. La puissance d'excitation nécessaire pour obtenir la condensation des polaritons et l'effet laser à polaritons est appelée seuil laser. Ce seuil est intrinsèquement lié à l'efficacité de la relaxation des polaritons du réservoir excitonique jusqu'au bas de de la LPB. Il est donc primordial de connaître les paramètres qui influencent la relaxation des polaritons pour minimiser le seuil laser.

La relaxation des polaritons peut être décrite grâce à la résolution numérique de l'équation semi-classique de Boltzmann. Ce formalisme, développé dans l'équipe de Guillaume Malpuech, présente l'avantage de pouvoir inclure facilement tous les processus d'interactions affectant la relaxation des polaritons. L'équation semi-classique de Boltzmann s'écrit :

$$\frac{dn_k}{dt} = P_k - \Gamma_k n_k - n_k \sum_{k'} W_{k \rightarrow k'} (n_{k'} + 1) + (n_k + 1) \sum_{k'} W_{k' \rightarrow k} n_{k'}, \quad (1.64)$$

où n_k représente la fonction de distribution d'un état polaritonique ou excitonique à un vecteur d'onde donné, P_k est le terme de pompe, Γ_k traduit le taux de décroissance (d'origine radiative ou non). Enfin, $W_{k \rightarrow k'}$ correspond au taux de diffusion entre état initial de vecteur d'onde k et un état final de vecteur d'onde k' . La contribution de nombreux processus de diffusion peut être considérée. Pour chaque type d'interaction, le taux de diffusion W sera traité de façon perturbative à l'aide de la règle d'or de Fermi. Dans les microcavités, les principaux processus de diffusion sont les interactions polariton-polariton, polariton-phonon, polariton-porteur libre, et polariton-désordre structural.

À partir de l'équation 1.64, il est possible de déterminer, pour une température et un désaccord donné, la densité critique n_c requise pour la condensation des polaritons, le temps de relaxation τ_{rel} nécessaire pour que le gaz de polaritons soit thermalisé à la température du réseau et le temps de vie moyen des polaritons $\bar{\tau}_{pol}$. La figure 1.21 présente l'évolution de τ_{rel} et $\bar{\tau}_{pol}$ en fonction du désaccord à 300 K, calculé pour une microcavité à puits quantiques GaN [93].

Pour les désaccords très négatifs, le temps de relaxation est très supérieur au temps de vie des polaritons. Cela s'explique par la profondeur marquée du piège polaritonique, couplée à la faible fraction excitonique des polaritons qui défavorise les interactions polariton-polariton et polariton-phonon, et à la fraction photonique élevée qui diminue le temps de vie des polaritons. La relaxation n'est pas assez rapide pour permettre la thermalisation du gaz de polaritons, la distribution des polaritons est hors équilibre et la condensation est gouvernée uniquement par la cinétique du système. Ce régime est appelé régime cinétique. Dans ce régime, le seuil laser à polaritons diminue avec l'augmentation du désaccord.

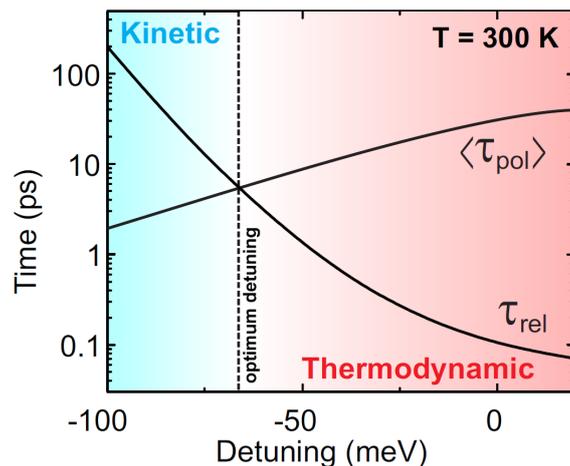


Fig. 1.21 – Temps de relaxation (τ_{rel}) et temps de vie moyen des polaritons (τ_{pol}) calculés à 300 K en fonction du désaccord δ . À $\delta = -65$ meV, le croisement de τ_{rel} et τ_{pol} correspond au désaccord optimal δ_{opt} où le seuil laser à polaritons est minimal. Pour $\delta \gg \delta_{opt}$, le système est dominé par la thermodynamique (région rouge) tandis que pour $\delta \ll \delta_{opt}$, il est dominé par la cinétique de relaxation (région bleue). La figure est extraite de la référence [93].

Pour les désaccords les plus positifs, la faible profondeur du piège polaritonique et les fractions excitoniques élevées des polaritons permettent au temps de relaxation de devenir très inférieur au temps de vie des polaritons. Le gaz de polaritons est alors thermalisé, à une température effective supérieure ou égale à celle du réseau et le système est régi uniquement par la thermodynamique du système. Ce régime est appelé régime thermodynamique. Dans ce régime, le seuil laser à polaritons diminue avec la réduction du désaccord.

Le désaccord pour lequel le temps de relaxation est équivalent au temps de vie moyen du polariton est appelé désaccord optimal. Il représente un compromis entre la cinétique et la thermodynamique du système et permet d'accéder aux seuils laser les plus bas. La température, qui détermine la population de phonons et la densité critique, a aussi un impact sur la cinétique de relaxation et la thermodynamique du système. La position du désaccord optimal varie donc en température.

L'évolution du seuil laser à polaritons en fonction du désaccord et de la température est appelé diagramme de phase. Les diagrammes de phases calculés numériquement à l'aide de l'équation 1.64 ont permis de reproduire fidèlement l'évolution du seuil mesurée expérimentalement dans des microcavités CdTe [94], GaAs [95], GaN [93] et ZnO [19]. Une étude détaillée de l'impact du désaccord et de la température sur la condensation des polaritons est disponible dans le chapitre 2 via la présentation de diagrammes de phase réalisés dans deux microcavités planaires à base de GaN et ZnO.

Jusqu'à présent, nous avons traité les condensats de polaritons dans le cadre des microcavités, où les polaritons condensent au minimum d'énergie de la LPB. Dans le cas des guides, la branche polaritonique basse ne possède pas d'état de plus basse énergie. Le système opère donc forcément dans un régime gouverné par la cinétique des processus de relaxation et est encore plus éloigné de l'équilibre thermodynamique qu'un gaz de polaritons de microcavité. Néanmoins, l'effet laser à polaritons est quand même possible, comme nous le verrons dans le chapitre 3.

1.3.5 Domaine de validité du laser à polaritons

Nous avons vu dans la section 1.2.4 quels étaient les effets de l'augmentation de la densité de porteurs sur les excitons de GaN et ZnO. Il est intéressant d'étudier comment ces effets se traduisent dans le cas de microcavités (ou les guides), lorsque la densité de porteurs est augmentée afin d'atteindre le seuil laser à polaritons.

La variation d'énergie des excitons avec la densité étant négligeable, le principal effet qui nous inté-

resse ici est la renormalisation des forces d'oscillateur des transitions excitoniques. Cette renormalisation affecte le régime de couplage fort en diminuant la constante d'interaction V et le dédoublement de Rabi Ω (équation 1.47) et provoque un décalage de la LPB vers les hautes énergies et un décalage de la UPB vers les basses énergies. Dans GaN et ZnO, la renormalisation des forces d'oscillateurs est considérée comme le mécanisme majoritairement responsable du blueshift de la LPB sous le seuil laser à polaritons [96].

Les polaritons offrent donc un moyen simple de mesurer l'écrantage des forces d'oscillateurs en suivant l'évolution du blueshift de la LPB en fonction de la puissance d'excitation. Une détermination de la densité de Mott est même envisageable sous certaines conditions : pour des élargissements excitoniques faibles, par exemple à basse température, la renormalisation complète des forces d'oscillateurs entraîne l'annulation du dédoublement de Rabi. L'énergie de la LPB va alors augmenter jusqu'à atteindre l'énergie du mode non couplé le plus proche : mode photonique à désaccord négatif et mode excitonique à désaccord positif. Une connaissance précise des forces d'oscillateurs de GaN et ZnO permet ainsi de prédire, pour un désaccord donné, le blueshift de la LPB correspondant à la transition de Mott. Encore une fois, la difficulté de cette approche réside dans la conversion de la puissance d'excitation en une densité de porteurs. En plus des raisons évoquées dans la section 1.2.4, il faut ajouter la relaxation des polaritons comme nouveau mécanisme de fuite qui impacte la densité du réservoir. Comme nous le verrons dans le chapitre 2, ce mécanisme prend toute son importance lorsque le seuil laser à polaritons est franchi.

À partir de ces éléments là et de la condition 1.55, il est possible de déterminer trois cas de figure en fonction de la puissance d'excitation nécessaire à l'obtention du laser à polaritons :

- 1) La renormalisation des forces d'oscillateurs et de la constante d'interaction associée à la puissance seuil est assez faible pour que la condition $V > \frac{|Y_x - Y_c|}{2}$ soit satisfaite. La structure opère en régime de couplage fort. C'est le régime du laser à polaritons.
- 2) La renormalisation des forces d'oscillateurs excitoniques et de la constante d'interaction est telle que la condition $V > \frac{|Y_x - Y_c|}{2}$ n'est plus satisfaite. La structure opère en régime de couplage faible. Les forces d'oscillateurs ne sont pas nulles et la densité de Mott n'est pas atteinte. L'effet laser est cependant possible grâce à des mécanismes de gain basés sur les excitons [97][98].
- 3) La renormalisation des forces d'oscillateurs excitoniques est complète. La structure opère en régime de couplage faible. La densité de Mott est dépassée et le gain est fourni par un plasma électron-trou. C'est le régime laser des VCSELS.

1.3.6 État de l'art

Suite à la description théorique du laser à polaritons donné par Imamoğlu *et al.* [15], les premiers signes expérimentaux d'une stimulation de l'émission de l'état fondamental ont été observés par Le Si Dang *et al.* en 1998 dans une microcavité CdTe à puits quantiques à 5 K [99]. Ces résultats furent suivis en 2003 par la démonstration de l'effet laser à polaritons par Deng *et al.* dans une microcavité GaAs à puits quantiques à 4 K [100]. Depuis, le laser à polaritons a été observé à maintes reprises dans ces deux matériaux, soit dans des microcavités [88][101][95], soit dans des géométries permettant un confinement accru des polaritons, comme les micropiliers [102][103]. Dans toutes ces publications, l'occupation macroscopique de l'état fondamental a été réalisée uniquement pour des températures inférieures à 100 K en raison des faibles énergies de liaison des excitons de GaAs et CdTe ($E_B \leq 10$ meV).

En vue de réaliser un laser à polaritons fonctionnant à température ambiante, l'utilisation de matériaux possédant des excitons avec de grandes énergies de liaison est indispensable. Dans la famille des matériaux inorganiques, l'attention s'est rapidement tournée vers les semiconducteurs à large énergie de bande interdite comme GaN [104][105], ZnO [106][107], CuCl [108] ou ZnSe [109][110]. Actuellement, même si tous ces matériaux ont permis l'observation du régime de couplage fort dans des microcavités à température ambiante, la démonstration du laser à polaritons à cette température n'a pu être établie que dans GaN et ZnO.

Le laser à polaritons à température ambiante a d'abord été obtenu dans une microcavité massive de GaN en 2007 [18] puis dans une microcavité contenant 67 puits quantiques GaN/AlGaN en 2008 [111]. Pour ZnO, il faudra attendre 2013 pour la première démonstration du phénomène à 300 K [19]. La condensation de polaritons a depuis été observée dans des nanofils de ZnO à température ambiante [112] et dans des microfils de ZnO à 450 K [113].

Parallèlement, de nombreux efforts ont été déployés dans le domaine des microcavités organiques. Ces matériaux ont l'avantage de posséder des excitons très localisés (excitons de Frenkel), avec de grandes énergies de liaisons ($E_B \approx 1\text{eV}$) et des forces d'oscillateurs élevées, et présentent des coûts de fabrication faibles. Le premier effet laser à polaritons à 300 K a été observé par Kéna-Cohen *et al.* en 2010 dans une microcavité d'anthracène [114]. Ces résultats ont été suivis en 2014 par la démonstration du même effet dans des microcavités à base de polymère [115] et de fluorène (TDAF). Récemment, la condensation des polaritons à 300 K a aussi été rapportée une microcavité pérovskite [116].

Tous les résultats présentés ici ont été obtenus à l'aide d'une injection optique, hors, il va de soi qu'une industrialisation du laser à polaritons n'aura pas lieu sans une injection électrique des dispositifs. À ce jour, même si l'observation de l'effet laser à polaritons à température ambiante a été revendiquée dans une microcavité GaN injectée électriquement par Bhattacharya *et al.* [117], aucune démonstration convaincante n'a vu le jour [118].

Chapitre 2

Laser à polaritons dans des microcavités planaires à base de GaN et ZnO

Sommaire

2.1 Dispositifs expérimentaux pour la micro-photoluminescence	48
2.1.1 Sources d'excitation laser	49
2.1.2 Imagerie de Fourier	49
2.1.3 Imagerie en espace réel	51
2.1.4 Spots d'excitation	52
2.2 Propriétés optiques des microcavités	53
2.2.1 Présentation des échantillons	53
2.2.2 Étude de la couche active	55
2.2.3 Étude de la qualité optique	56
2.3 Couplage fort et laser à polaritons à température ambiante	58
2.3.1 Détermination de l'éclatement de Rabi	58
2.3.2 Couplage fort	59
2.3.3 Laser à polaritons	60
2.4 Influence du désordre photonique sur le laser à polaritons	64
2.4.1 Condensation avec un large spot d'excitation	64
2.4.2 Variation du spot d'excitation	67
2.5 Influence du désaccord et de la température : diagrammes de phase	68
2.5.1 Régime thermodynamique et régime cinétique	68
2.5.2 Diagramme de phase de ZnO	71
2.5.3 Diagramme de phase de GaN	73
2.5.4 Validité du régime laser à polaritons en puissance	75
2.5.5 Comparaison entre les microcavités GaN et ZnO	76
2.6 Couplage fort et laser à polaritons en régime extrême : hautes températures	77
2.6.1 Excitons et hautes températures dans GaN	78
2.6.2 Étude du couplage fort à 350 K	78
2.6.3 Laser à polaritons à 350 K	79

Ce chapitre est consacré à l'étude de l'effet laser à polaritons dans des microcavités planaires de GaN et ZnO par micro-photoluminescence. La première section présente les dispositifs expérimentaux utilisés tandis que la deuxième décrit les échantillons et leurs propriétés. La troisième section est dédiée à la démonstration à température ambiante, du couplage fort et de l'effet laser à polaritons, principalement grâce à de l'imagerie de Fourier. L'effet du désordre photonique sur la condensation

des polaritons et le seuil laser est mis en évidence dans la section quatre. Cet effet est appuyé par des mesures de tomographie en espace réel et des mesures en fonction de la taille du spot d'excitation. La section cinq détaille l'effet du désaccord sur le seuil, de 10 K à 300 K. Cet ensemble de mesures constitue le diagramme de phase de la microcavité. Les diagrammes de phase des deux microcavités de GaN et ZnO sont comparés et l'influence des phonons LO est mis en lumière. Finalement, la sixième et dernière section propose une étude du régime de couplage fort/laser à polaritons à 350 K dans GaN. Cette température constituant un régime extrêmement défavorable pour les excitons, la nature de l'effet laser sera discuté, notamment à travers l'analyse d'images en espace réciproque et de l'évolution des diagrammes de phase.

2.1 Dispositifs expérimentaux pour la micro-photoluminescence

La micro-photoluminescence (μ PL) est l'analyse des photons émis par un échantillon soumis à une excitation lumineuse. Le semiconducteur est excité par un laser dont l'énergie est supérieure à l'énergie de bande interdite. L'absorption de photons crée des paires électron-trou possédant un grand vecteur d'onde. Ces paires vont progressivement se désexciter via des processus non-radiatifs comme l'émission de phonons, leur permettant d'atteindre les extrema des bandes de conduction et de valence. Finalement, les photons émis par la recombinaison radiative des paires électron-trou thermalisées sont détectés. L'analyse de spectres de μ PL de semiconducteurs est riche de renseignements sur les propriétés intrinsèques (excitons) et extrinsèques (impuretés).

Les différentes configurations utilisées sont résumées sur la figure 2.1. Dans la première configuration d'excitation, le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon au moyen d'un objectif Thorlabs possédant une ouverture numérique $NA=0.4$ (angle maximum de détection par rapport à l'axe optique du système égal à 23.6 degrés) et une distance focale $f_{obj} = 10$ mm. La luminescence de l'échantillon est collectée par le même objectif. La deuxième configuration utilise en détection un objectif Mitutoyo d'ouverture numérique $NA=0.5$ (angle maximum de détection égal à 30 degrés) et une distance focale $f_{obj} = 2$ mm. Cet objectif possédant une transmission très faible à la longueur d'onde 266 nm, l'excitation à cette longueur d'onde se fera par le côté, au moyen d'une lentille asphérique possédant une distance focale de 8 cm.

Deux configurations de détection sont possibles. La première emploie les lentilles de Fourier et de collecte, elle servira pour l'imagerie de Fourier qui permettra d'accéder à la répartition angulaire de

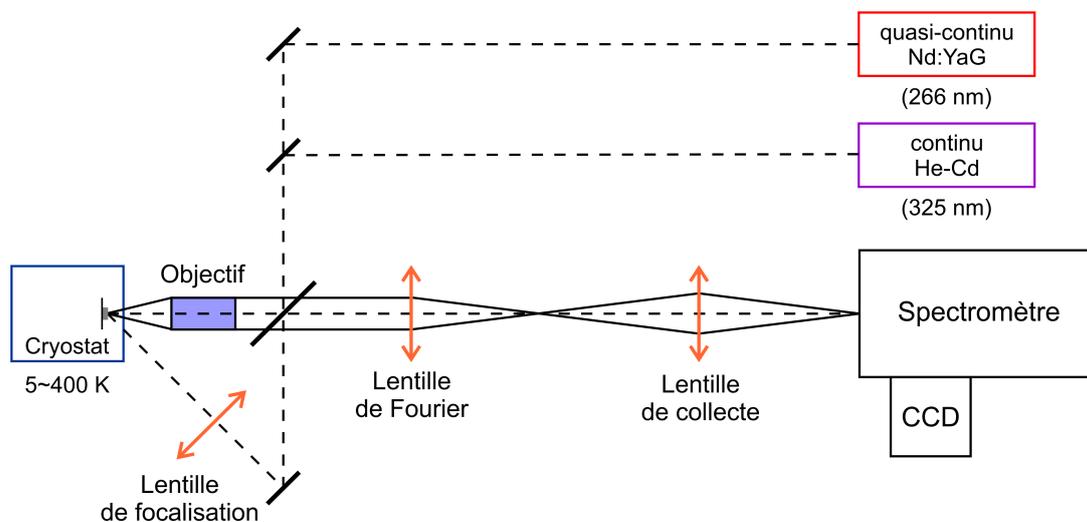


Fig. 2.1 – Schéma du dispositif expérimental incluant les différentes sources d'excitation dans le cas de l'imagerie de Fourier. Le faisceau laser peut être focalisé en incidence normale par l'objectif ou avec un angle par une lentille. Dans les deux cas, la photoluminescence est collectée par l'objectif.

l'émission. C'est cette configuration qui est présentée sur la figure 2.1. Les distances focales des lentilles de Fourier et de collecte utilisées sont respectivement 10 cm et 30 cm. La deuxième configuration ne nécessite que la lentille de collecte, elle sera employée pour de l'imagerie en espace réel. Enfin, les objectifs de microscope pourront être remplacés par une lentille asphérique de focale $f = 6$ cm en excitation et détection. Ce dispositif sera utilisé pour la réalisation des diagrammes de phase.

Quelle que soit la configuration, la lentille de collecte focalise la photoluminescence sur les fentes d'entrée d'un spectromètre HR1000 Jobin-Yvon possédant une focale d'un mètre, pouvant être équipé d'un réseau 1200 ou 2400 traits/mm (blasés à 330 nm), associé à une caméra CCD comptant 1024×256 pixels de $26 \mu\text{m}$ de côté.

Un cryostat à circuit d'hélium fermé et un cryostat à circulation d'hélium permettent le déroulement des expériences de 5 à 400 K.

2.1.1 Sources d'excitation laser

Deux sources d'excitation laser ont été utilisées au cours de cette thèse : une continue, utilisée pour les caractérisations classiques, et un laser impulsionnel, employé pour étudier l'effet laser à polaritons. Ces sources sont listées ci-dessous :

- Laser continu He-Cd émettant à 325 nm.
- Laser impulsionnel Nd YAG (Q-switched), quadruplé en fréquence à 266 nm, possédant des pulses de 400 ps de longueur avec un taux de répétition de 20 kHz.

2.1.2 Imagerie de Fourier

La relation de dispersion des polaritons est une source très précieuse d'informations. Pour y accéder, il est nécessaire que tous les rayons émis par l'échantillon avec un angle θ soient focalisés au même point sur la fente d'entrée verticale du spectromètre. Ce plan conjugué est appelé plan de Fourier et peut être imagé en utilisant le montage présenté sur la figure 2.1. Afin de récolter une grande plage d'angles, on utilisera l'objectif Mitutoyo possédant la plus grande ouverture numérique ($\text{NA}=0.5$). Tous les rayons émis par l'échantillon avec des angles $\theta \leq 30^\circ$ seront collectés et focalisés en un point du plan focal image derrière l'objectif. Ce plan correspond au plan de Fourier. Afin d'imager ce dernier sur la fente du spectromètre, deux lentilles sont requises.

Le schéma 2.2 décrit le trajet des rayons lumineux émis avec un angle θ . Ces rayons sont focalisés sur

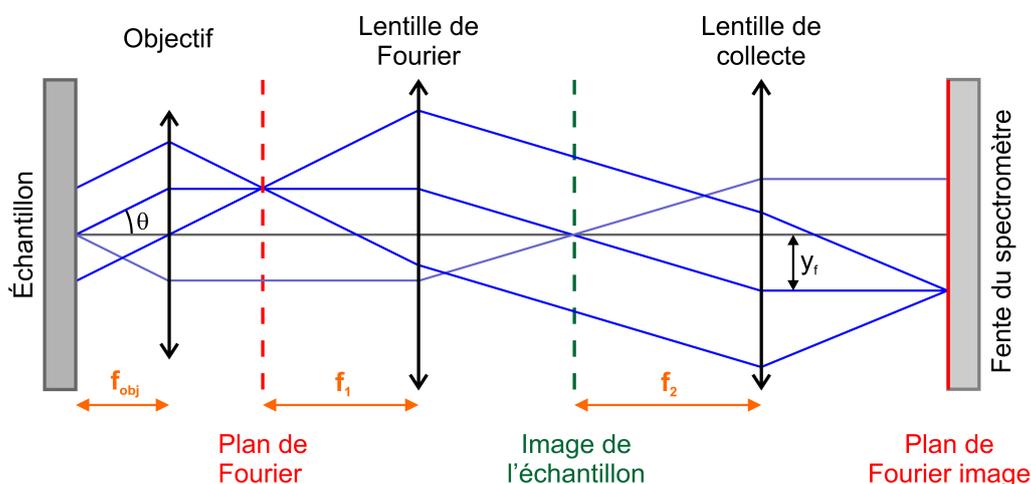


Fig. 2.2 – Principe de l'imagerie de Fourier avec un objectif de distance focale f_{obj} et deux lentilles de distance focale f_1 et f_2 . Chaque rayon émis avec un angle θ est focalisé sur les fentes du spectromètre à une hauteur y_f .

la fente du spectromètre en un point de hauteur y_f . La relation entre ces deux grandeurs est donnée par la relation 2.1 :

$$y_f = G f_{\text{obj}} \tan(\theta) , \quad (2.1)$$

où $G = f_2/f_1$ est le grandissement du système formé par la lentille de Fourier (f_1) et de collecte (f_2). Le plan de Fourier image a la forme d'un disque de rayon $r_f = G f_{\text{obj}} \tan(30^\circ)$. Après avoir centré ce dernier sur la fente d'entrée du spectromètre, la dispersion des polaritons $E = f(\theta)$ est obtenue en fermant horizontalement cette dernière. Il est possible de sélectionner l'émission d'une zone précise de l'échantillon en plaçant un pinhole dans le plan focal image de la lentille de Fourier, en tenant compte du grandissement $g = f_1/f_{\text{obj}}$.

Afin d'exploiter les images des dispersions, il est nécessaire d'établir une correspondance entre la position des pixels de la caméra CCD sur laquelle la dispersion est imagée et les angles θ . Cette correspondance est réalisée en comparant pour un même désaccord deux dispersions polaritoniques, l'une enregistrée en imagerie de Fourier (figure 2.3a), l'autre enregistrée avec une fibre optique montée sur un goniomètre (figure 2.3b). En extrayant l'énergie pour chaque pixel de la figure 2.3a et en répétant le procédé pour chaque angle de la figure 2.3b, on obtient la correspondance reportée sur la figure 2.4a (carrés noirs). Il est à noter qu'il est possible de créer une correspondance pixel/angle à partir d'un raisonnement purement géométrique [119]. Cependant, cette approche là ne tient pas compte des aberrations optiques et mène, dans notre cas, à une correspondance erronée comme on peut le voir sur la figure 2.4a (ligne rouge).

Finalement, il est possible d'étendre la gamme d'angles accessibles en tiltant l'échantillon et son support. Par exemple, avec un tilt de 20° entre la normale de l'échantillon et l'axe optique, on pourra étudier la dispersion des polaritons de -10° à 50° . Cependant, cette manipulation n'est possible qu'à température ambiante, lorsque le hublot du cryostat est absent. En effet, ce dernier, du fait de son astigmatisme, modifie le trajet des rayons lumineux possédant des angles supérieurs à 30° et fausse ainsi la relation de dispersion. Cet effet est particulièrement visible sur la figure 2.4b, où la dispersion des modes de Bragg est déformée aux angles élevés (pixels 23 à 50) lorsque le hublot est présent.

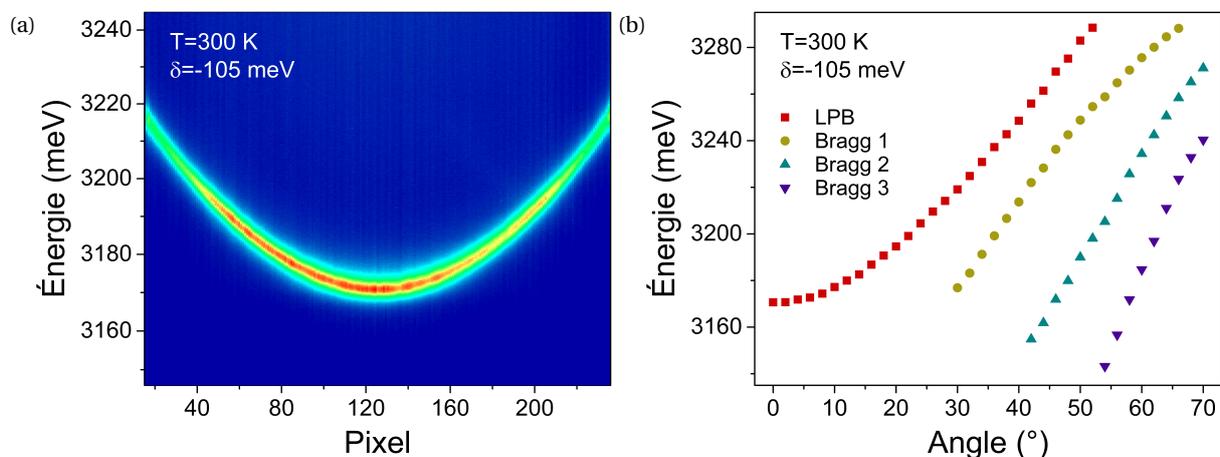


Fig. 2.3 – Relation de dispersion de la LPB mesurée à 300 K en imagerie de Fourier (a) et avec la fibre optique (b) pour un désaccord identique $\delta = -105$ meV. La densité d'excitation est équivalente pour les deux techniques. L'échantillon est une microcavité ZnO.

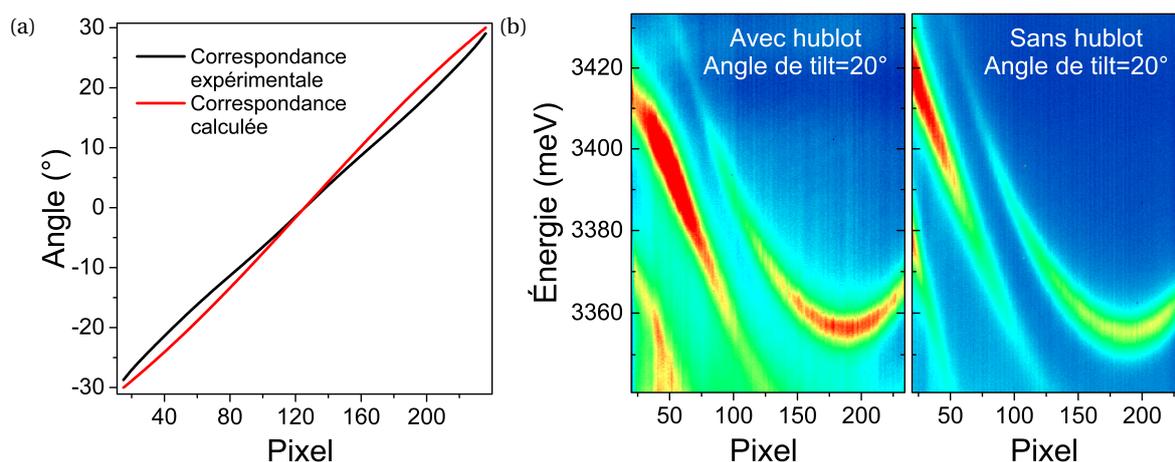


Fig. 2.4 – a) Correspondance pixel/angle obtenue à partir des figures 2.3a et 2.3b (noir) comparée à la correspondance calculée à partir de [119] (rouge). b) Relation de dispersion de la LPB mesurée à 300 K en imagerie de Fourier, avec (gauche) et sans hublot (droite). L'angle de tilt est de 20°. Les dispersions du premier et deuxième mode de Bragg sont déformées aux hauts angles (pixels 23 à 50) lorsque le hublot est présent.

2.1.3 Imagerie en espace réel

L'imagerie en espace réel (ou imagerie en champ proche) est indispensable pour comprendre et interpréter les phénomènes de relaxation et de condensation visibles en imagerie de Fourier. Ces deux montages sont très similaires. Afin d'imager l'espace réel, il suffit simplement de retirer la lentille de Fourier. Les caractéristiques des deux objectifs sont détaillées dans le tableau 2.1.

L'utilisation de l'objectif Mitutoyo conduit au grandissement le plus élevé et à la meilleure résolution spatiale. Il sera préféré à l'objectif Thorlabs pour les études de condensation en espace réel. Néanmoins, on peut noter que sa résolution spatiale (173 nm) est limitée par son pouvoir de résolution (439 nm).

Grâce à un support motorisé, la lentille de collecte peut être déplacée horizontalement, permettant ainsi de centrer sur les fentes d'entrée du spectromètre différentes zones de l'échantillon. En fermant les fentes et en plaçant le réseau dans la gamme de longueur d'onde adéquate, il est possible d'obtenir une image présentant en abscisse la longueur d'onde d'émission et en ordonnée et la position y de l'espace réel. On obtient donc pour une position x de l'espace réel, une discrimination spectrale des photons émis d'un point d'ordonnée y . Cette action est la base de la tomographie : en enregistrant ces multiples images pour différentes abscisses successives, il est possible de recréer une image précise de l'espace réel pour une longueur d'onde d'émission donnée.

Objectif	f_{obj} (mm)	NA	Pouvoir de résolution (nm)	Grandissement (f_2/f_1)	Résolution spatiale (nm)
Thorlabs	10	0.4	549	30	867
Mitutoyo	2	0.5	439	150	173

TABLEAU 2.1 – Distance focale, ouverture numérique et pouvoir de résolution à 360 nm des objectifs Thorlabs et Mitutoyo. Les deux dernières colonnes correspondent respectivement au grandissement du système obtenu en associant l'objectif et la lentille de collecte et à la résolution spatiale théorique obtenue avec la CCD (1 pixel=26x26 μm^2).

2.1.4 Spots d'excitation

Différentes tailles de spots sont disponibles suivant les configurations d'excitation. Les figures 2.6a et 2.6b présentent les spots d'émission associés aux objectifs Thorlabs et Mitutoyo, enregistrés à 5 K avec le laser Q-Switched. L'excitation à travers l'objectif Thorlabs permet d'obtenir un spot d'excitation de faible diamètre. L'excitation associée à l'objectif Mitutoyo est réalisée sur le côté, avec une lentille asphérique. Cette configuration d'excitation latérale explique la forme elliptique et les grandes dimensions du spot.

Comme nous le verrons dans les pages qui suivent, la taille du spot d'excitation a une grande influence sur le seuil du laser à polariton. Deux tailles de spots ne sont pas suffisantes pour mener cette étude. En déplaçant la position z de l'objectif Thorlabs sur l'axe optique, il est possible de modifier les dimensions du spot d'excitation. Le challenge principal réside dans la mesure de ces dimensions. Pour y parvenir, la méthode de la lame de rasoir a été utilisée [120]. Elle consiste à placer une lame de rasoir sur le trajet du faisceau d'excitation, à une distance d du point focal de l'objectif, et à suivre l'évolution de la puissance détectée pour différentes positions x ou y , suivant si l'on veut mesurer la largeur ou la hauteur du spot (figure 2.5).

La figure 2.6d présente l'évolution de la puissance transmise mesurée en fonction de la position x de la lame de rasoir, pour une distance $d = -180 \mu\text{m}$. Pour $x = 220 \mu\text{m}$, la lame de rasoir cache entièrement le faisceau d'excitation et pour $x = 280 \mu\text{m}$, la lame est complètement en dehors du trajet du faisceau. En faisant l'hypothèse d'un faisceau gaussien, les données expérimentales peuvent être ajustées par l'équation suivante :

$$P(x) = \frac{P_{\max}}{2} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{\sqrt{2}(x_0 - x)}{w} \right) \right], \quad (2.2)$$

où erf représente la fonction d'erreur de Gauss et w le rayon du spot d'excitation défini à $1/e^2$. En répétant cette opération pour différentes valeurs de d , on obtient la courbe d'étalonnage présentée sur la figure 2.6c. On a donc accès à une gamme de diamètres allant jusqu'à $100 \mu\text{m}$ si l'on défocalise l'objectif d'une distance $d=525 \mu\text{m}$. Le même procédé est utilisé suivant y pour déterminer la hauteur du spot.

Enfin, la configuration d'excitation impliquant la lentille asphérique permet d'obtenir un spot intermédiaire de $14 \mu\text{m}$ de diamètre. Ce diamètre a lui aussi été mesuré avec la méthode de la lame de rasoir.

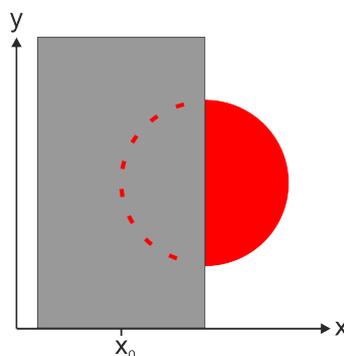


Fig. 2.5 – Schéma illustrant la méthode de la lame de rasoir. Le faisceau laser est représenté en rouge et la lame de rasoir en gris. x_0 représente la position de la lame pour laquelle la moitié du faisceau d'excitation est coupé.

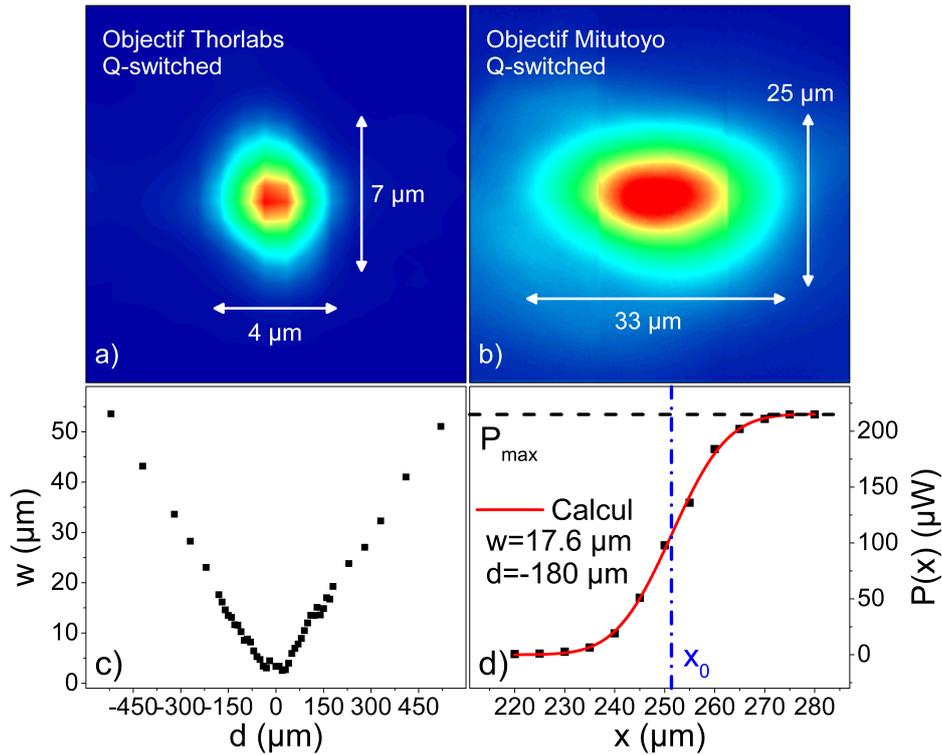


Fig. 2.6 – a) Spot d'excitation du laser Q-switched focalisé par l'objectif Thorlabs. b) Spot d'excitation du laser Q-switched focalisé avec une excitation sur le côté via une lentille asphérique et détecté par l'objectif Mitutoyo. Les dimensions indiquées sur les figures a et b correspondent au rayon w mesuré à $1/e^2$. c) Variation du rayon du spot d'excitation en fonction de l'écart au point focale de l'objectif Thorlabs. d) Évolution de la puissance détectée en fonction de la position de la lame de rasoir. P_{max} correspond à la puissance détectée sans la lame de rasoir. x_0 est la position pour laquelle la lame de rasoir bloque la moitié de la puissance P_{max} .

2.2 Propriétés optiques des microcavités

2.2.1 Présentation des échantillons

Les deux microcavités étudiées dans ce chapitre sont épitaxiées sur un substrat silicium. Un tel substrat présente plusieurs avantages vis à vis d'un substrat saphir : il est plus facile à graver, son prix est plus attractif et il possède une meilleure conductivité thermique. Dans l'optique de réaliser un laser à polaritons injecté électriquement, son utilisation permettrait une intégration simplifiée à la filière Si. Cependant, la croissance de miroirs de Bragg nitrures sur substrat Si est un challenge, notamment en raison des différences de paramètres de maille et de coefficients d'expansion thermique (elles sont respectivement de 17 % et 57 % dans le cas de GaN/Si [121]). Ces deux différences sont à l'origine de la mise en tension de la structure, et aboutissent, pour les couches épaisses, à la formation de fissures lorsque l'échantillon se refroidit de la température de croissance (800 °C) à la température ambiante. Dans le cas des miroirs nitrures où le contraste d'indice n'est pas très élevé, un grand nombre de couches est nécessaire pour maximiser le facteur de qualité. Cela implique donc un miroir épais (typiquement 2.5 μm pour nos microcavités) et une densité de fissures élevée. La fissuration du miroir nitrure peut être évitée grâce à l'utilisation d'un substrat Si structuré. Cette méthode a été proposée par nos partenaires du CRHEA qui élaborent les miroirs nitrures et les couches actives des microcavités étudiées. L'idée générale est d'utiliser des mesas dont les surfaces libres latérales permettent la relaxation élastique de la contrainte. Il est ainsi possible de déposer un miroir nitrure de 30 paires sans fissures (figure 2.7).

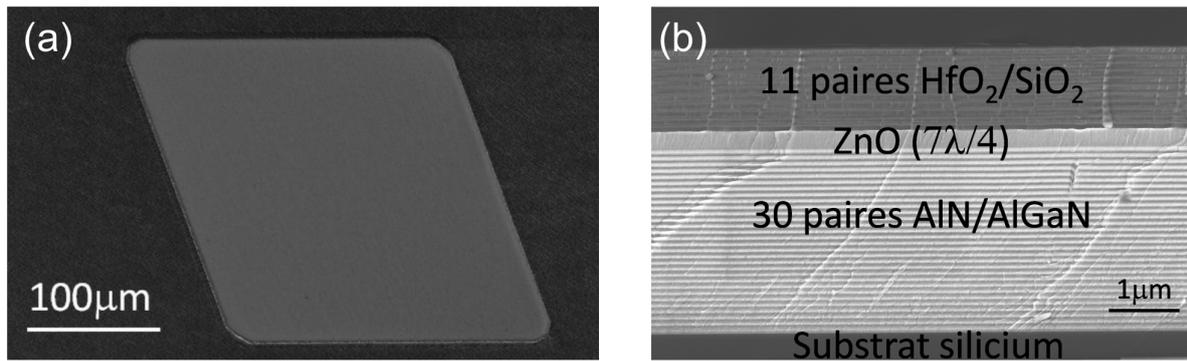


Fig. 2.7 – Images au microscope électronique à balayage. a) Mesa non fissurée, structurée sur un substrat Si(110) avec un miroir de Bragg de 30 paires (AlN/Al_{0,2}Ga_{0,8}N). b) Vue transversale de la microcavité complète de ZnO d'épaisseur ($7\lambda/4$). La structure de la microcavité GaN est identique, seule l'épaisseur de la couche active varie ($7\lambda/2$).

La réalisation des microcavités comprend trois étapes :

1. La gravure du substrat silicium (Si(110)) est réalisée de manière chimique par voie humide avec de la potasse caustique (KOH) et par gravure par voie sèche avec de l'hexafluorure de soufre (SF₆). Différentes formes de mesas sont possibles (triangle, losange, carré) de même que plusieurs tailles (50x50 à 1000x1000 µm²).
2. La croissance du DBR inférieur et de la couche active est réalisée par MBE. La microcavité ZnO est composée d'un miroir de 30 paires (AlN/Al_{0,2}Ga_{0,8}N) et d'une couche active d'épaisseur ($3\lambda/2 + \lambda/4$), soit 280 nm. La couche $\lambda/4$ supplémentaire est nécessaire pour compenser le déphasage associé à la dernière couche du miroir nitrure en AlGaN (il est préférable de faire croître ZnO sur AlGaN plutôt que sur AlN pour diminuer la rugosité).
La microcavité GaN possède le même miroir nitrure, à ceci près qu'une couche d'AlN a été ajoutée pour faire la jonction entre GaN et AlGaN. Le DBR est donc composé de 30.5 paires et il est complété par une couche active d'épaisseur ($7\lambda/2$), soit 480 nm.
Les miroirs inférieurs possèdent un léger gradient d'épaisseur permettant de faire varier la position de leur bande d'arrêt. Un gradient a aussi été introduit lors de la croissance de la couche active afin d'avoir accès à une grande gamme de désaccords. Nous verrons que ces deux gradients, qui ne sont pas corrélés, ont une influence sur le dédoublement de Rabi des deux microcavités.
3. La croissance réalisée par évaporation du DBR diélectrique composé de 11 paires (HfO₂/SiO₂).

La microcavité ZnO possède des mesas en forme de losanges de différentes tailles (de 50x50 à 1000x1000 µm²) et la microcavité GaN possède des mesas carrés de 500 µm. Les vues transversales des deux microcavités, réalisées par microscopie électronique à balayage (figure 2.7b) et par microscopie électronique en transmission (figure 2.8a) attestent des très bonnes qualités structurales des échantillons.

Une mesure de la rugosité de surface de la microcavité GaN est présentée sur la figure 2.8b. La mesure a été effectuée par AFM sur une surface de 5x5 µm² et a permis d'extraire une rugosité quadratique moyenne de 1.7 nm. Elle est légèrement supérieure sur la microcavité ZnO (2.9 nm).

Comme expliqué auparavant, les bords des mesas permettent de relaxer la contrainte accumulée et d'éviter la formation de fissures. Néanmoins, ce processus de relaxation dépend fortement de la taille des mesas, plus précisément de la distance à la surface libre. Une étude statistique portant sur le pourcentage de mesa craquées en fonction de leur taille est disponible dans la référence [122]. La structure étudiée possède le même miroir nitrure (30 paires (AlN/Al_{0,2}Ga_{0,8}N) ainsi qu'une couche active de GaN de 440 nm. Les mesas de 490 µm de côté (carré) sont craquées à 50 % tandis que les mesas de 200 µm sont non craquées à 95 %. Enfin, il est à noter que la rugosité quadratique moyenne ne dépend pas de la densité de fissures.

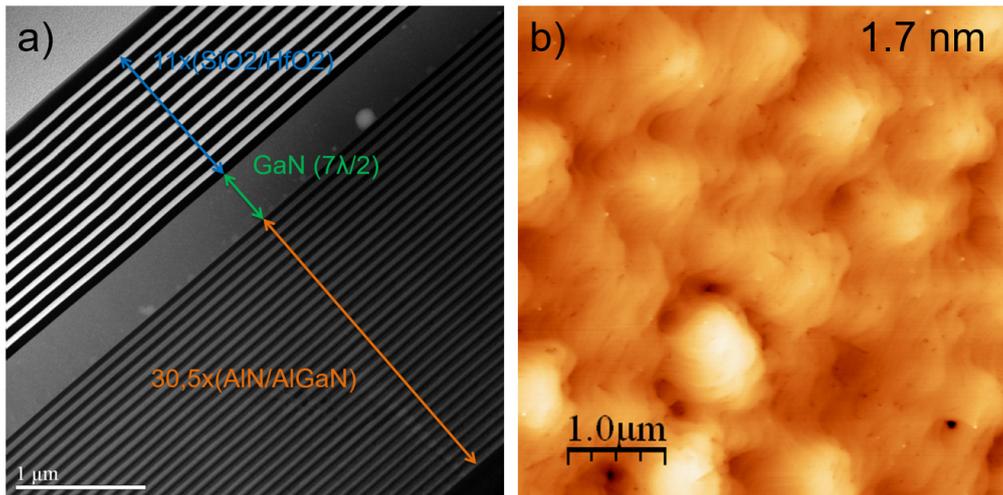


Fig. 2.8 – Microcavité GaN. a) Vue transversale réalisée au microscope électronique en transmission. b) Image de la surface réalisée au microscope à forces atomiques. La rugosité quadratique moyenne est indiquée.

2.2.2 Étude de la couche active

Afin d'étudier les propriétés excitoniques de la couche active, nous avons à disposition un morceau de la microcavité GaN sans miroir supérieur. Cette demi-cavité possède donc la même couche active que la microcavité complète. L'épaisseur est sensiblement la même et la seule différence entre les deux structures réside dans la forme des mesas (triangles de 400 μm de hauteur).

À travers des mesures de μ PL, il est possible de dresser le portrait du désordre excitonique de la couche active au niveau de l'échantillon ou d'une mesa. La photoluminescence étant surtout représentative des propriétés extrinsèques du matériau (impuretés), notre étude du désordre excitonique à 5 K se fera de manière indirecte, à travers la luminescence des excitons liés à des donneurs neutres (D^0X). L'énergie de localisation E_{loc} de ces donneurs neutres est égale à 6 meV et dans le cas d'un GaN non contraint, ce pic de photoluminescence est donc attendu entre 3471 et 3472 meV [59][124].

Dans notre cas, ce pic varie le long de l'échantillon entre 3495.4 et 3501.6 meV (figure 2.9a), ce qui correspond à une énergie moyenne des excitons A de $E_{XA} = 3504$ meV. Ces valeurs très élevées sont typiques d'une couche de GaN en compression. Cette contrainte est due à la différence entre le paramètre de maille moyen du miroir et le paramètre de maille de GaN.

Au niveau d'une mesa, une mesure de tomographie permet d'extraire la variation d'énergie en fonction de la distance aux bords libres (figure 2.9b). Comme attendu, la contrainte est nulle à l'extrémité de la mesa et l'on retrouve l'énergie de D^0X non contraint. En remontant vers le centre et en s'éloignant du bord, l'énergie de la raie D^0X tend rapidement, en quelques microns, vers une valeur contrainte de 3499.5 meV. L'évolution est ensuite assez lente et on mesure une énergie maximale des excitons liés de 3502.5 meV au niveau du spot d'excitation. Les fissures présentes en haut de l'image agissent comme des bords libres et de nouveau, la contrainte de la couche de GaN et l'énergie de D^0X diminuent. On a donc sur une même mesa un désordre excitonique réduit (2 meV), dans la mesure où l'on ne se trouve pas trop près du bord (2-3 μm). Le fait de pouvoir observer l'émission de D^0X à plus de 10 μm du spot d'excitation est attribué à la recombinaison de polaritons se propageant à l'aide des modes non-radiatifs de la couche active (voir chapitre 3). Sur la totalité de l'échantillon, le désordre excitonique est estimé à 5 meV.

Les énergies des excitons A et B sont des paramètres indispensables pour le calcul du désaccord exciton-photon et la réalisation de diagramme de phase. La figure 2.9c présente les spectres de μ PL de 8 K à 250 K réalisés sur la demi cavité avec le laser continu He-Cd. On peut voir avec la température, la disparition progressive du pic associé à D^0X qui correspond à la délocalisation des excitons liés grâce à l'agitation thermique. À partir de 50 K, les excitons A et B sont clairement visibles et l'éner-

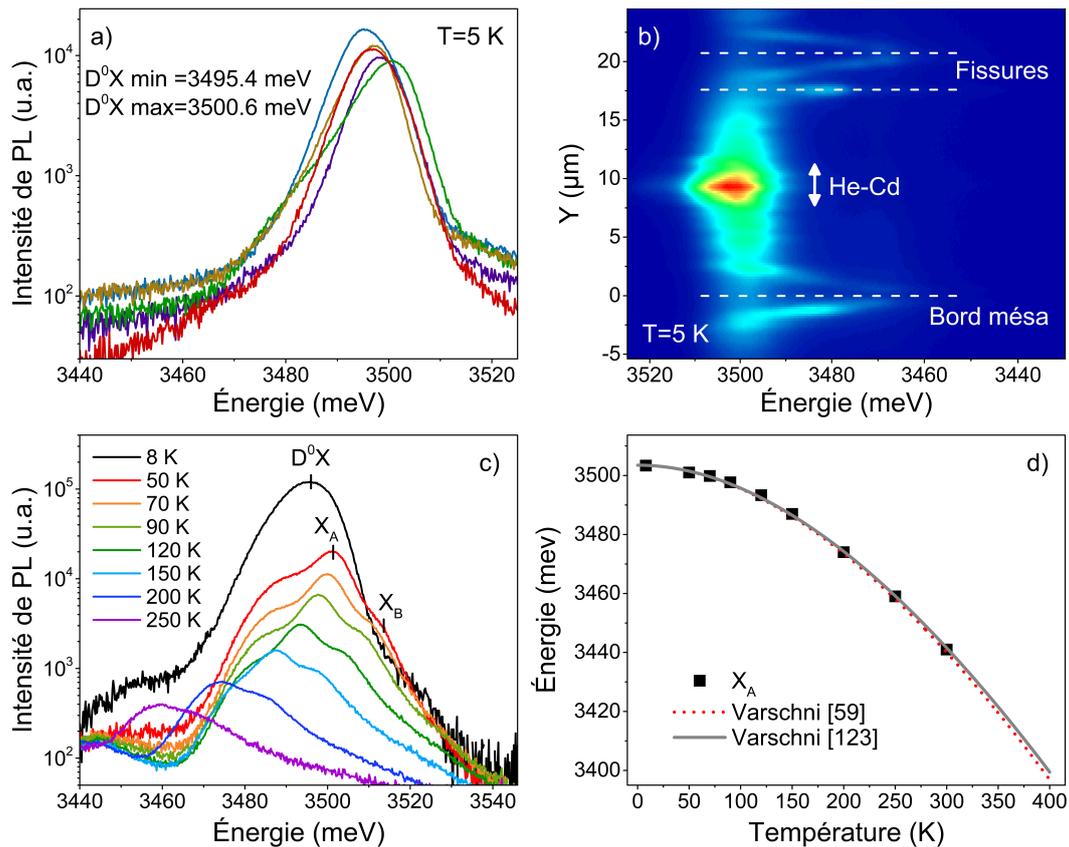


Fig. 2.9 – a) Variation du pic de μ PL des excitons liés aux donneurs neutres le long de la demi-cavité GaN. b) Tomographie 1D présentant une ligne verticale englobant le bord d’une mesa ($Y=0 \mu\text{m}$), le spot d’excitation ($Y=9 \mu\text{m}$), et deux fissures ($Y=18 \mu\text{m}$ et $Y=21 \mu\text{m}$). L’énergie des excitons liés est maximale au centre de la zone formée entre le bord du mesa et les fissures. À mesure que la distance avec les bords libres diminue, l’énergie décroît très faiblement dans un premier temps pour ensuite tendre rapidement vers la valeur de D^0X non contraint à 2-3 μm du bords. c) Spectres de μ PL pour différentes températures permettant de suivre l’évolution des excitons. La différence d’énergie entre A et B est environ de 10 meV. d) Variation de l’énergie de l’exciton A mesurée en μ PL en fonction de la température (carrés noirs) ajustée avec la loi de Varschni utilisant les paramètres α et β donnés dans les références [59][123]. La source d’excitation utilisée est le laser He-Cd.

gie les séparant est estimée à 10 meV. Cette valeur est attribuée à la contrainte en compression. Les énergies de l’exciton A en fonction de la température sont reportées sur la figure 2.9d. Les données expérimentales sont bien reproduites par la loi de Varshni utilisant les paramètres de la littérature [59][123].

La microcavité ZnO ne possédant pas de demi-cavité associée, l’étude du désordre excitonique n’a pas pu être menée. Cependant, ZnO relaxe beaucoup plus rapidement que GaN et de façon générale la couche active de ZnO est totalement relaxée. L’énergie des excitons et leur évolution en température peuvent donc être tirées de mesures sur des échantillons massifs de ZnO [55].

2.2.3 Étude de la qualité optique

La qualité optique d’une microcavité se résume principalement à trois propriétés :

1. Le facteur de qualité Q , qui détermine le temps de vie du photon et du polariton, et qui a un impact sur le seuil laser à polaritons.
2. L’échelle de variation d’énergie de la LPB sur une surface donnée, qui a un impact sur le type de condensat observé (localisé ou étendu).

3. La largeur de bande d'arrêt des miroirs qui fixe la gamme des désaccords accessibles.

Nos deux microcavités exhibent des facteurs de qualité oscillant entre 1000 et 2000. La mesure du Q se fait de façon indirecte, à travers l'élargissement du mode polaritonique. Il est donc nécessaire de maximiser la fraction photonique des polaritons pour avoir une mesure précise.

Localement, le facteur de qualité peut atteindre 3480 (figure 2.10a). La figure 2.10b présente une mesure du désordre photonique de la cavité ZnO réalisée avec un spot de $3\ \mu\text{m}$ de diamètre sur une portion de mesa de $150\ \mu\text{m}$. La fraction photonique des modes polaritoniques sondés est d'environ 80 %. Le facteur de qualité effectif moyen est de 1100 et la valeur médiane est égale à 1035. La disparité du facteur de qualité sur l'échantillon s'explique par des fluctuations d'épaisseurs de la couche active et des miroirs de Bragg. Ces mêmes fluctuations sont à l'origine de la variation d'énergie de la LPB. Celle-ci oscille de façon quasi-périodique entre 3369 et 3371 meV sur une échelle de $20\ \mu\text{m}$. Cette variation de 2 meV est assez représentative du faible désordre photonique local des deux microcavités.

Sur une zone plus étendue de $90 \times 90\ \mu\text{m}^2$, la variation peut atteindre 6 meV comme le montre la figure 2.11a [125]. Chaque pixel correspond à $2 \times 2\ \mu\text{m}^2$ et la taille du spot d'excitation utilisé est de l'ordre d'un pixel. L'énergie de la branche basse oscille au maximum entre 3162 et 3168 meV. Cette faible variation de $\pm 3\ \text{meV}$ constitue un record pour une microcavité opérant dans l'ultraviolet.

L'échelle de variation du mode polaritonique est similaire sur la microcavité GaN (6 meV au maximum), mais, à la différence de la microcavité ZnO, le désordre excitonique sur la mesa, de l'ordre de 2 meV, peut amplifier ou réduire les effets du désordre photonique.

La figure 2.11b présente un spectre de micro-réflexivité réalisé sur la microcavité ZnO à température ambiante, ajusté par un calcul numérique utilisant le formalisme des matrices de transfert (MDTF). Afin que la modélisation soit la plus réaliste possible, les indices de chaque matériau composant les miroirs diélectriques et miroirs nitrures ont été mesurés par ellipsométrie. Le bon accord entre expérience et calcul est un autre garant de la qualité optique de l'échantillon. L'expérience étant réalisée sur la face supérieure de l'échantillon, la bande d'arrêt observée correspond à celle du miroir diélectrique (600 meV). Le miroir nitrure possédant une bande d'arrêt environ deux fois moins large (280 meV), ses modes de Bragg sont présents dans la bande d'arrêt du miroir supérieur. En raison de l'absorption résiduelle des miroirs et de la couche active [126], le creux associé à la LPB à 3170 meV ($\delta = -105\ \text{meV}$) n'est pas très prononcé.

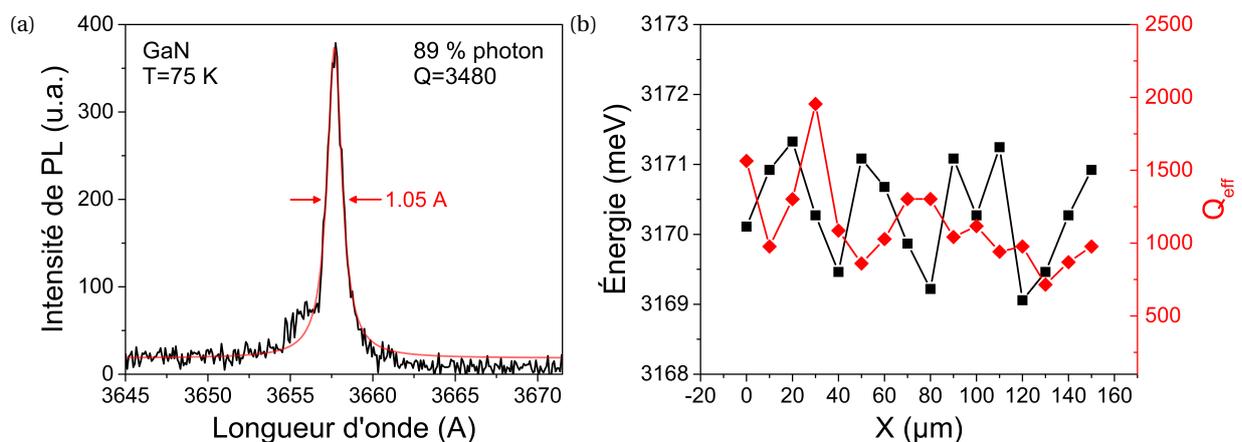


Fig. 2.10 – a) Spectre de μPL réalisé à 75 K sur la microcavité GaN. La fraction photonique de la LPB est 89 % et le Q effectif mesuré est de 3480. b) Variation de l'énergie (carrés noirs) et du facteur de qualité effectif (losanges rouges) de la LPB sur une portion de mesa de $150\ \mu\text{m}$, sur la microcavité ZnO. Le diamètre du spot d'excitation est de $3\ \mu\text{m}$. Afin d'obtenir une mesure précise du facteur de qualité effectif, seule l'émission à 0° est détectée grâce à un diaphragme centré sur l'axe optique.

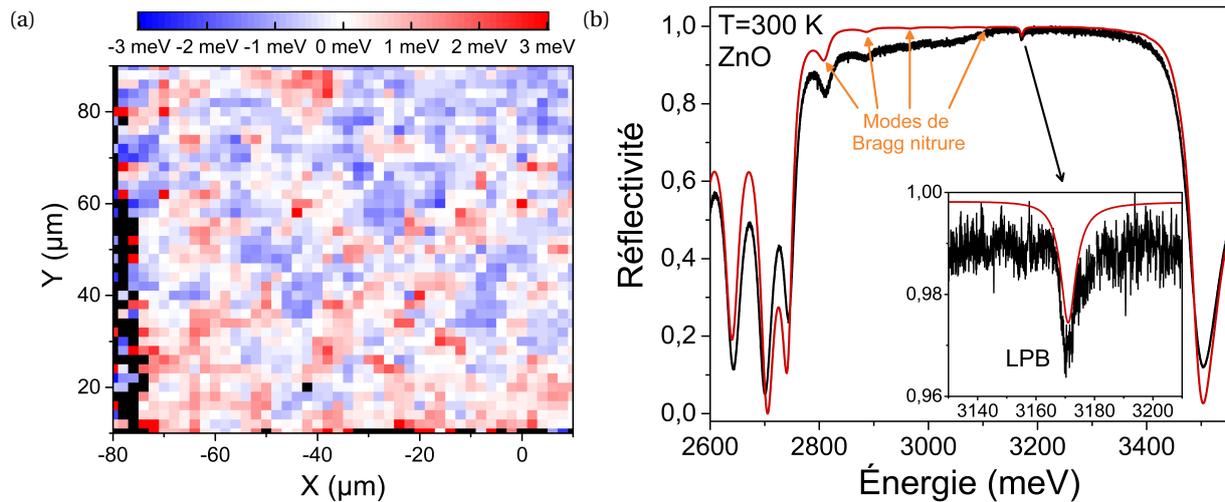


Fig. 2.11 – Microcavité ZnO. a) Cartographie μ PL de l'énergie de la LPB à 300 K sur le coin d'une mesa [125]. b) Micro-réflexivité à température ambiante (noir) et réflectivité calculée (rouge). Les modes de Bragg du miroir nitrure sont visibles sur le côté basse énergie de la bande d'arrêt. La LPB est visible à 3171 meV. Le Bragg le plus proche de LPB se trouve à 3106 meV. Le centre de la bande d'arrêt du miroir diélectrique est fixée à 3110 meV, celui du miroir nitrure à 3250 meV.

2.3 Couplage fort et laser à polaritons à température ambiante

2.3.1 Détermination de l'éclatement de Rabi

Les éclatements de Rabi de nos deux microcavités ne peuvent pas être mesurés expérimentalement en raison de l'épaisseur importante des couches actives. En effet, au delà de 140 nm pour GaN et 80 nm pour ZnO, la branche haute polaritonique (UPB) n'est plus détectable en raison de l'absorption bande à bande trop élevée [127][128]. Pour cette raison, l'éclatement de Rabi (ou simplement Rabi) est estimé de façon numérique à l'aide du formalisme des MDTE, en utilisant les paramètres excitoniques (forces d'oscillateur et élargissements) mesurés dans la référence [55]. Comme précisé dans le chapitre 1, l'absorption bande à bande est volontairement ignorée afin de révéler la UPB. En se plaçant à désaccord nul, le Rabi correspond simplement à l'énergie séparant la LPB et la UPB. À température ambiante, les Rabi calculés sont de 85 meV pour GaN et 165 meV pour ZnO. Le Rabi plus important de la cavité ZnO s'explique par les forces d'oscillateur des excitons quatre à six fois plus importantes que celle de GaN.

Ces valeurs correspondent au cas idéal où les bandes d'arrêt des deux miroirs sont centrées à la même énergie, celle du mode de cavité. Le confinement du champ électromagnétique est donc maximal. En réalité :

1. Les deux miroirs ne sont jamais parfaitement alignés et, même si la bande d'arrêt du miroir diélectrique est très large, le confinement du champ est légèrement diminué.
2. L'énergie du mode de cavité est différent en chaque point de l'échantillon en raison du gradient d'épaisseur de la couche active.
3. Les couches du miroir nitrure possédant un léger gradient d'épaisseur, la position du centre de la bande d'arrêt et les énergies des modes de Bragg sont elles aussi amenées à varier en fonction de la position sur l'échantillon.

Un mode photonique en bord de bande d'arrêt aura un confinement inférieur à un mode parfaitement centré, et donc un dédoublement de Rabi inférieur. La figure 2.12 montre, pour la microcavité GaN, l'évolution du Rabi en fonction de la différence d'énergie entre le mode de cavité E_C et le premier mode de Bragg nitrure $E_{BN,1}$. Pour réaliser cette figure, nous avons relevé l'énergie de la LPB et du premier mode de Bragg nitrure pour différents points de l'échantillon. À l'aide de ces deux infor-

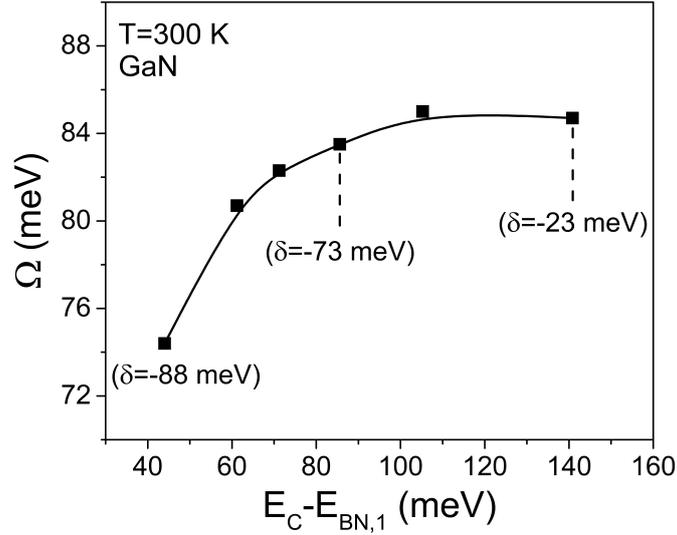


Fig. 2.12 – Microcavité GaN. Évolution à température ambiante du dédoublement de Rabi Ω en fonction de la différence d'énergie ($E_C - E_{BN,1}$) entre le mode de cavité et le premier mode de Bragg du miroir nitrure.

mations et du formalisme des MDTE, nous avons pu reproduire chaque cas de figure en jouant sur l'épaisseur des couches du miroir nitrure et l'épaisseur de la couche active. Le dédoublement de Rabi est ensuite extrait en relevant la différence d'énergie minimale entre la LPB et la UPB sur la relation de dispersion calculée. L'énergie du mode de cavité est déterminé en réduisant les forces d'oscillateur des excitons à zéro.

Le Rabi est égal à 82 ± 2 meV pour la majorité des désaccords accessibles. Ces valeurs sont très proches du Rabi idéal de 85 meV, traduisant un bon recouvrement des miroirs inférieurs et supérieurs. Cependant, pour les désaccords les plus négatifs ($\delta = -88$ meV), le mode de cavité est situé au bord de la bande d'arrêt du miroir nitrure et la diminution du confinement du champ électromagnétique se traduit par un Rabi diminué de 9 % (74.4 meV).

La situation est différente pour la microcavité ZnO. Pour les points les plus défavorables, qui sont aussi les plus négatifs (comme ceux présentés sur les figures 2.3b et 2.11b), le mode de cavité est situé à 107 meV du premier mode de Bragg nitrure. Le Rabi correspondant est estimé à 157 meV, au lieu de 160 meV pour les autres désaccords. La différence avec le Rabi nominal de 165 meV est due au recouvrement imparfait des bandes d'arrêt des miroirs inférieurs et supérieurs.

2.3.2 Couplage fort

Nous avons vu dans le chapitre 1 les conditions nécessaires au régime de couplage fort. L'élargissement inhomogène γ_{inh} des excitons étant d'environ 10 meV dans la microcavité GaN et de quelques meV dans la microcavité ZnO, c'est l'élargissement homogène, qui augmente avec la température, qu'il faut comparer au dédoublement de Rabi. Les mesures tirées de la référence [55] nous indique que les élargissements homogènes à température ambiante sont de l'ordre de 17 meV dans GaN et de 50 meV dans ZnO. Ces valeurs sont très éloignées des dédoublements de Rabi extraits dans la partie précédente et l'on devrait théoriquement observer le régime de couplage fort dans nos deux microcavités à température ambiante.

Une façon simple de vérifier que nos microcavités opèrent en régime de couplage fort est d'étudier, grâce à l'imagerie de Fourier, la variation de courbure de la dispersion polaritonique en fonction du désaccord : la courbure étant inversement proportionnelle à la masse effective des polaritons, une variation de désaccord, et donc de fraction photonique/excitonique, implique obligatoirement un changement de courbure.

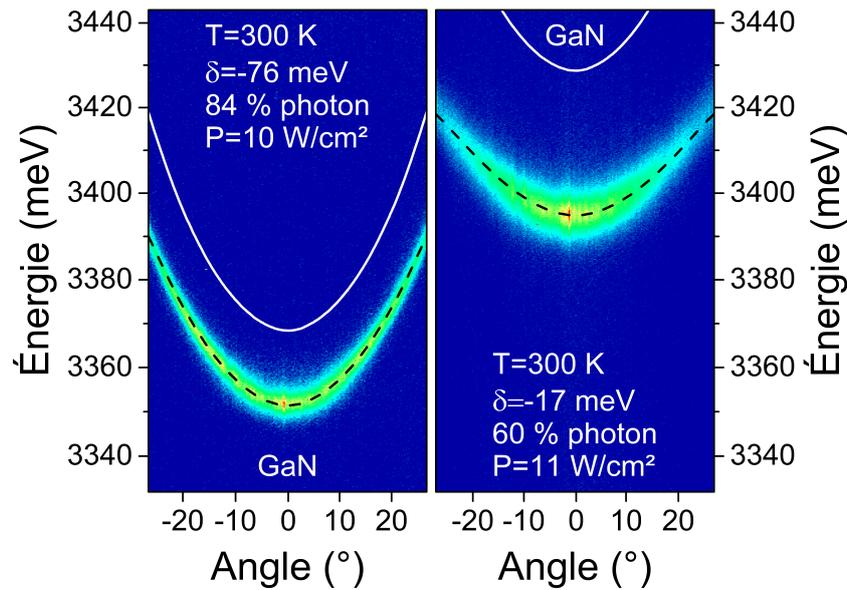


Fig. 2.13 – Microcavité GaN. μ PL résolue en angle présentant l'évolution de la dispersion de la LPB pour deux désaccords, sous excitation pulsée (Q-switched) et à température ambiante. La dispersion de la LPB est reproduite par un calcul quasi-particule (pointillés noirs). Les excitons A et B sont assimilés à une seule résonance excitonique d'énergie $E_X = 3445$ meV. La dispersion du mode cavité non couplé est tracée en blanc. Les puissances moyennes d'excitation sont indiquées.

La figure 2.13 compare les dispersions de la LPB pour deux désaccords, à 300 K, sur la microcavité GaN. Les désaccords sont calculés grâce à un modèle quasi-particule 2x2, en utilisant des termes de couplage compatibles avec les dédoublements de Rabi déterminés dans la partie précédente. Ainsi, les énergies des modes de cavité calculées avec le modèle quasi-particule sont égales aux énergies estimées avec le formalisme des MDTF. Le modèle quasi-particule permet aussi de reproduire les dispersions polaritoniques.

Pour $\delta = -76$ meV, le caractère photonique du polariton domine (84 %), la masse effective du polariton est faible, proche de celle du photon de cavité, et la courbure de la LPB est sensiblement identique à celle du mode de cavité. La distance entre la LPB et le mode photonique à l'état fondamental est de 16 meV et le piège polaritonique est profond ($E_X - E_{LPB}(k=0) = 93$ meV). Pour $\delta = -17$ meV, la fraction excitonique est plus importante (40 %), la dispersion apparaît comme aplatie par rapport à celle du mode de cavité et le piège est moins profond ($E_X - E_{LPB}(k=0) = 50$ meV). La distance entre la LPB et le mode photonique à l'état fondamental est de 33.6 meV. Le changement de courbure en fonction du désaccord est la preuve du régime de couplage fort. La figure 2.14 compare de façon similaire les dispersions enregistrées sur la microcavité ZnO. De la même façon, l'évolution de la courbure en fonction du désaccord prouve le régime de couplage fort.

2.3.3 Laser à polaritons

Après avoir vérifié que nos deux microcavités opéraient en régime de couplage fort à 300 K, nous pouvons nous atteler à la démonstration de l'effet laser à polaritons. Pour ce faire, nous avons utilisé l'excitation pulsée (Q-switched) focalisée à travers une lentille asphérique. Le spot d'excitation possède un diamètre de 14 μ m.

Les spectres de μ PL enregistrés en fonction de la puissance d'excitation ont été séparés en deux figures pour plus de lisibilité. La figure 2.15a présente ces spectres pour des puissances de $0.07 P_{th}$ à $1.05 P_{th}$. À mesure que la puissance augmente, l'émission se décale vers les hautes énergies (blueshift) et s'affine. On peut déceler la présence de plusieurs pics, particulièrement visibles aux puissances les plus élevées. Le pic principal, de plus haute intensité, est nommé LPB1. Le pic situé à plus basse

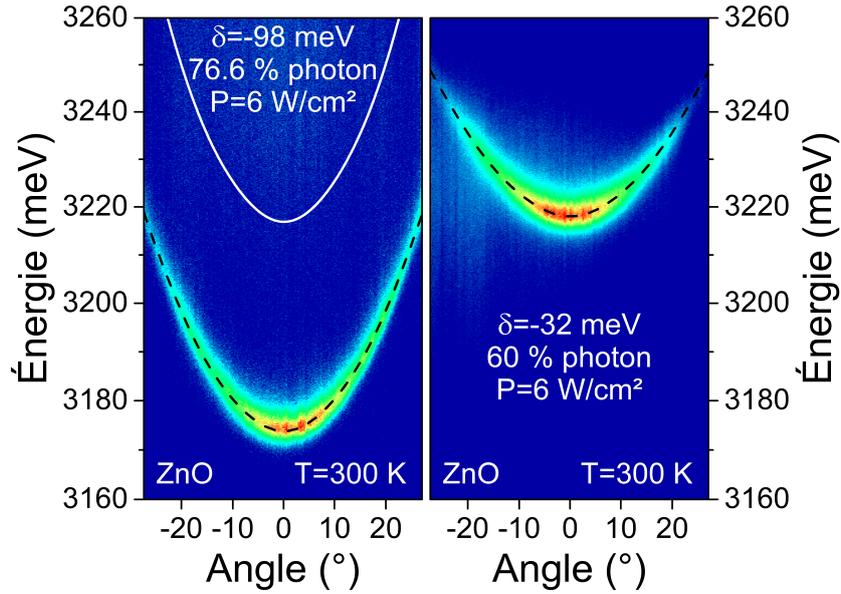


Fig. 2.14 – Microcavité ZnO. μ PL résolue en angle présentant l'évolution de la dispersion de la LPB pour deux désaccords, sous excitation pulsée (Q-switched) et à température ambiante. La dispersion de la LPB est reproduite par un calcul quasi-particule (pointillés noirs). Les excitons A et B sont assimilés à une seule résonance excitonique d'énergie $E_X = 3315$ meV. La dispersion du mode cavité non couplé est tracée en blanc. Les puissances moyennes d'excitation sont indiquées.

énergie et un peu moins intense est nommé LPB2 et l'épaulement à haute énergie est appelé LPB3. La figure 2.15b décrit l'évolution de la μ PL pour des puissances allant de P_{th} à $1.75 P_{th}$. L'augmentation de la puissance d'excitation se traduit par l'apparition croissante de modes additionnels. Cet aspect multimode est lié au désordre photonique introduit dans la section 2.2.3. Il fera l'objet d'une étude approfondie dans les pages qui suivent.

L'élargissement à mi-hauteur (FWHM) du pic principal est reporté en rouge sur la figure 2.15c tandis que son intensité est reportée en noir. L'évolution quasi-quadratique de l'intensité aux faibles puissances d'excitation nous informe que la relaxation des polaritons se fait principalement à travers des interactions polariton-polariton [129]. La très forte non-linéarité observée au seuil $P_{th} = 33$ W/cm² est caractéristique de l'effet laser à polaritons et la réduction drastique de la largeur à mi-hauteur associée traduit la cohérence temporelle de l'émission. En suivant l'intensité des modes LPB2 et LPB3, il est aussi possible de leur définir une puissance seuil. Ces dernières sont légèrement supérieures au seuil du mode principal : $1.05 P_{th}$ pour LPB2 (35 W/cm²) et $1.12 P_{th}$ pour LPB3 (41 W/cm²).

L'énergie du mode de cavité E_C peut être estimée à l'aide du formalisme des MDTF. Pour ce faire, nous nous basons sur l'énergie du mode polaritonique à basse puissance ($0.07 P_{th}$). Ce mode large comprenant plusieurs modes polaritoniques est certainement dominé par les modes LPB1 et LPB2 qui sont les premiers à passer le seuil laser. L'écart d'énergie de plus de 10 meV entre ces modes au seuil et le mode de cavité ($E_C = 3372.7$ meV) est une des garanties que le régime de couplage fort est conservé.

Il est important de rappeler que les modes polaritoniques apparaissant au delà du seuil sont liés à des modes photoniques d'énergies différentes. Par exemple, le mode LPB3 visible comme un épaulement à basse puissance étant situé 2 meV plus haut que le mode LPB1, on peut estimer l'énergie du mode de cavité associé à $E'_C = 3374.7$ meV. De plus, le dispositif de détection utilisé ne permet pas de différencier les angles d'émission, il est donc possible que les modes apparaissant à hautes énergies (3372 meV) soient des états excités d'un piège photonique issus de vecteurs d'onde non nuls.

L'évolution en puissance de l'énergie des modes polaritoniques constitue aussi une preuve du régime de couplage fort. Elle est présentée sur la figure 2.15d dès lors que les modes LPB1, LPB2 et LPB3 sont identifiables. Le seuil de chacun des modes est représenté par des lignes pointillées. Comme

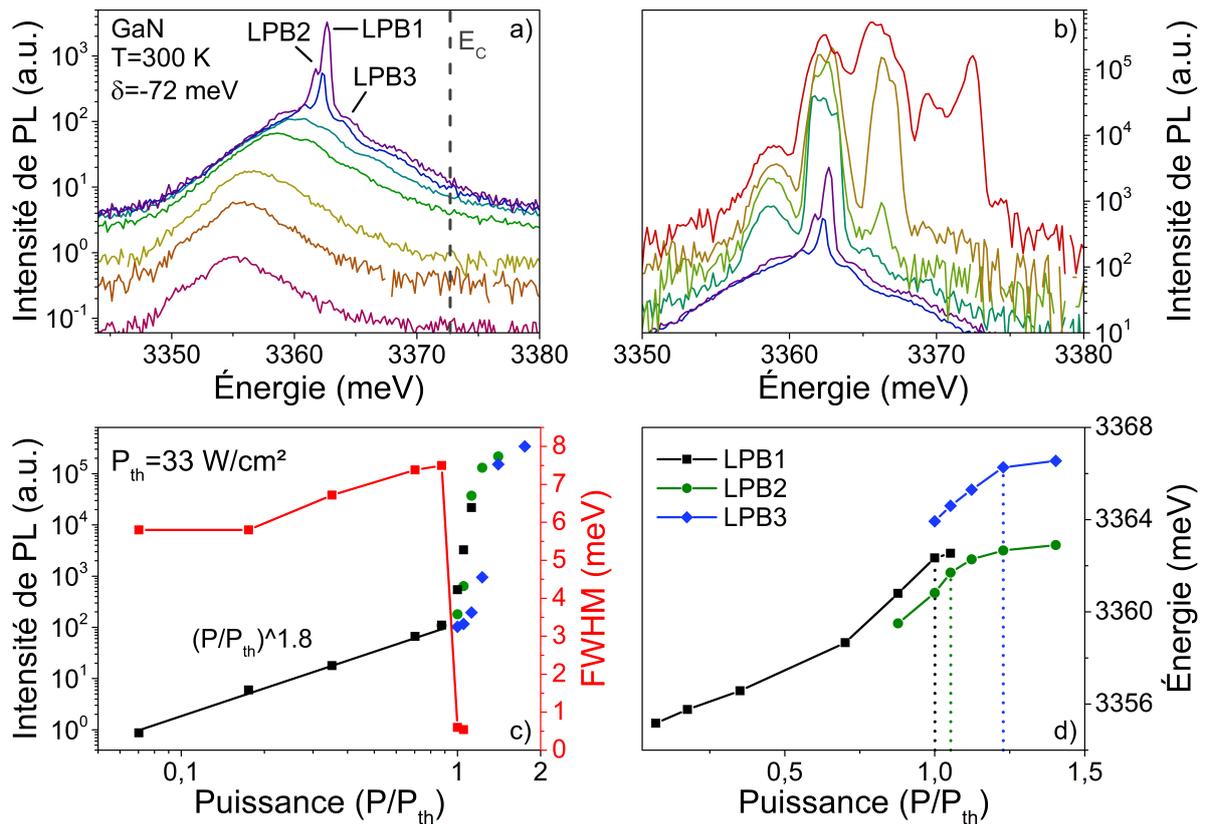


Fig. 2.15 – Microcavité GaN. Spectres de μ PL enregistrés à 300 K, pour un désaccord $\delta = -72$ meV, et pour différentes puissances d’excitation : a) $0.07 P_{th}$ à $1.05 P_{th}$ et b) P_{th} à $1.75 P_{th}$. Le spot d’excitation est de $14 \mu\text{m}$. c) Évolution de la largeur à mi-hauteur (carrés rouges) et de l’intensité (carrés noirs) de la LPB1 en fonction de la puissance normalisée par la puissance seuil P_{th} . Les évolutions de l’intensité de la LPB2 et LPB3 sont aussi reportées (ronds verts et losanges bleus). d) Énergies des LPB1, LPB2 et LPB3 en fonction de la puissance normalisée. Les seuils des trois modes sont représentés par des lignes pointillées de couleurs associées.

nous l’avons vu dans le chapitre 1, les forces d’oscillateur des excitons diminuent avec la densité de porteurs injectés, c’est-à-dire avec la puissance d’excitation. Cette réduction du Rabi engendre le blueshift observé du mode LPB1. En faisant l’hypothèse que la condensation prend place dans l’état fondamental de la LPB1, il est possible de calculer, avec le formalisme des MDTF, le dédoublement de Rabi renormalisé. Le Rabi calculé à P_{th} est de 60.6 meV, ce qui correspond à une diminution de 27 % par rapport à la valeur nominale.

Le blueshift des modes LPB1 et LPB2 sous leur seuil respectif est comparable avec celui du mode principal. Au delà seuil, on peut noter une quasi stagnation du blueshift pour les trois modes en question. Ce comportement peut s’expliquer par le verrouillage du réservoir excitonique [130]. Une fois que le seuil est dépassé, la densité d’excitons dans le réservoir est figée et tous les porteurs injectés sont directement aspirés par le condensat. Le fait que la stagnation du blueshift ait lieu à des puissances différentes pour chacun des trois modes écarte la possibilité d’un seul condensat à divers stades d’excitation.

L’effet laser à polaritons peut aussi être observé en imagerie de Fourier. La figure 2.16 montre la dispersion polaritonique de la microcavité ZnO à un désaccord $\delta = -98$ meV pour deux puissances d’excitation : $0.13P_{th}$ et P_{th} . Le spot d’excitation a une forme elliptique de demi-axes $12.5 \mu\text{m}$ et $16.5 \mu\text{m}$.

De la même façon que sur la figure 2.15a, le seuil laser à polaritons est caractérisé par une forte augmentation de l’intensité et un affinement spectral. La dispersion de la LPB est toujours visible au seuil, elle est composée de la fraction non condensée du gaz polaritonique. La cohabitation entre la

fraction condensée et non-condensée peut être temporelle, notre expérience n'étant pas résolue en temps, ou spatiale, notamment dans le cas présent où le spot d'excitation est grand. Comme nous le verrons dans la section suivante, la condensation des polaritons à ce désaccord négatif est régie par la cinétique des processus de relaxation. Dans un tel cas de figure, la condensation n'a pas forcément lieu dans l'état fondamental du système. En effet, comme la relaxation des polaritons est de moins en moins efficace à mesure que la profondeur du piège polaritonique augmente, le facteur d'occupation peut d'abord devenir supérieur à 1 dans un état excité du système [102][95][131]. Pour ces raisons, il est très difficile d'estimer avec précision la position de l'état fondamental de la LPB au seuil. En considérant que ce dernier se trouve dans une gamme d'énergie comprise entre 3178 meV et 3182 meV, un calcul basé sur le formalisme des MDTF permet d'estimer le dédoublement de Rabi au seuil à 147 ± 5 meV, soit une renormalisation du Rabi comprise entre 6 % et 12 %. Le même calcul permet aussi d'estimer la renormalisation des forces d'oscillateur. Pour la puissance $P_{th}=46$ W/cm², les forces d'oscillateur sont réduites de 18 ± 6 %.

Comme cela est fréquemment observé dans les microcavités sujettes au désordre photonique, l'émission laser est caractérisée par un trait horizontal, d'énergie supérieure au bas de la LPB, qui possède une extension angulaire non nulle [132][54]. Grâce aux lois de la diffraction, il est possible de relier l'extension angulaire au diamètre de la source d'émission. Dans notre cas, l'extension angulaire $\Delta\theta=8^\circ$ nous indique, grâce à l'équation 2.3 [133], que l'émission vient d'une source spatialement cohérente de diamètre totale à mi-hauteur $d=2.8$ μm .

$$d \approx \frac{\lambda}{\Delta\theta} . \quad (2.3)$$

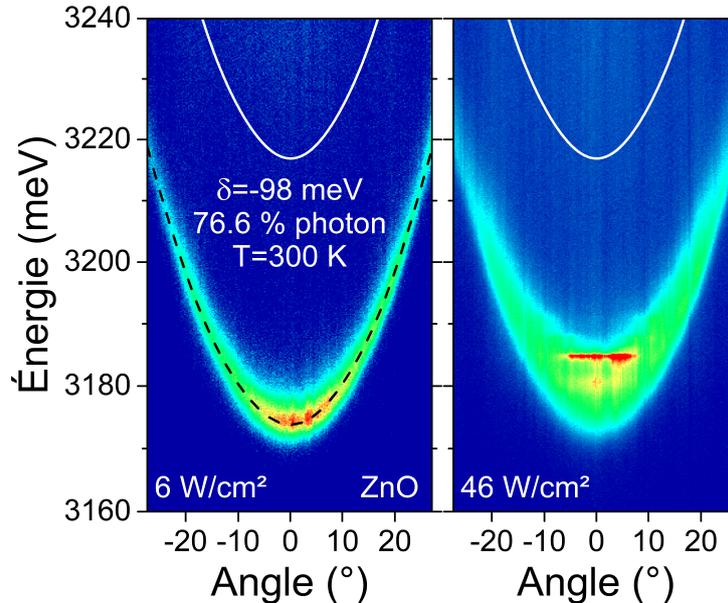


Fig. 2.16 – Microcavité ZnO. μPL résolue en angle présentant la relation de la dispersion de la LPB à $\delta = -87$ meV pour deux puissances d'excitation : 6 W/cm² et 46 W/cm². La dispersion de la LPB à basse puissance est reproduite par un calcul quasi-particule (pointillés noirs). Les excitons A et B sont assimilés à une seule résonance excitonique d'énergie moyenne $E_X = 3315$ meV. La dispersion du mode cavité non couplé est tracée en blanc.

2.4 Influence du désordre photonique sur le laser à polaritons

2.4.1 Condensation avec un large spot d'excitation

Pour déterminer l'origine de l'émission multimode observée au delà du seuil, il est nécessaire d'associer deux techniques d'imagerie : l'imagerie en champ lointain et l'imagerie en champ proche. Nous avons vu que ces deux techniques sont très semblables du point de la mise en place expérimentale : il est possible de passer de l'une à l'autre simplement en enlevant ou en ajoutant la lentille de Fourier. Afin d'obtenir le grandissement le plus élevé possible, nous avons choisi de travailler avec l'objectif Mitutoyo. On rappelle que cet objectif ne transmet pas le laser d'excitation pulsé utilisé pour atteindre le seuil laser à polaritons. L'excitation se fait donc par le coté, et le spot d'excitation a la forme d'une ellipse de demi-axes $12.5 \mu\text{m}$ et $16.5 \mu\text{m}$.

La figure 2.17 recense les dispersions enregistrées en un même point de la cavité GaN, à température ambiante et pour plusieurs puissances d'excitation. Le désaccord choisi est $\delta = -56 \text{ meV}$ et la fraction photonique des polaritons à l'état fondamental est de 78 %. L'émission au seuil est dominée par un mode d'énergie $E_A = 3370.8 \text{ meV}$ et d'extension angulaire $\Delta\theta = 10^\circ$ (figure 2.17b). Ce mode sera appelé par la suite mode fondamental. L'extension angulaire nous donne un premier indice : la source lumineuse doit avoir un diamètre proche de $2.1 \mu\text{m}$. Pour une puissance d'excitation de $1.4 P_{\text{th}}$, deux nouveaux modes laser apparaissent à plus hautes énergies. Le mode principal, qui domine les deux nouveaux modes en intensité, apparaît à une énergie légèrement décalée vers le bleu. L'extension angulaire des deux nouveaux modes est identique à celle du mode fondamental. Finalement, pour une puissance d'excitation de $1.9 P_{\text{th}}$, une multitude de modes additionnels viennent s'ajouter et la luminescence est dominée par une bande large de 3 meV centrée à 3380 meV .

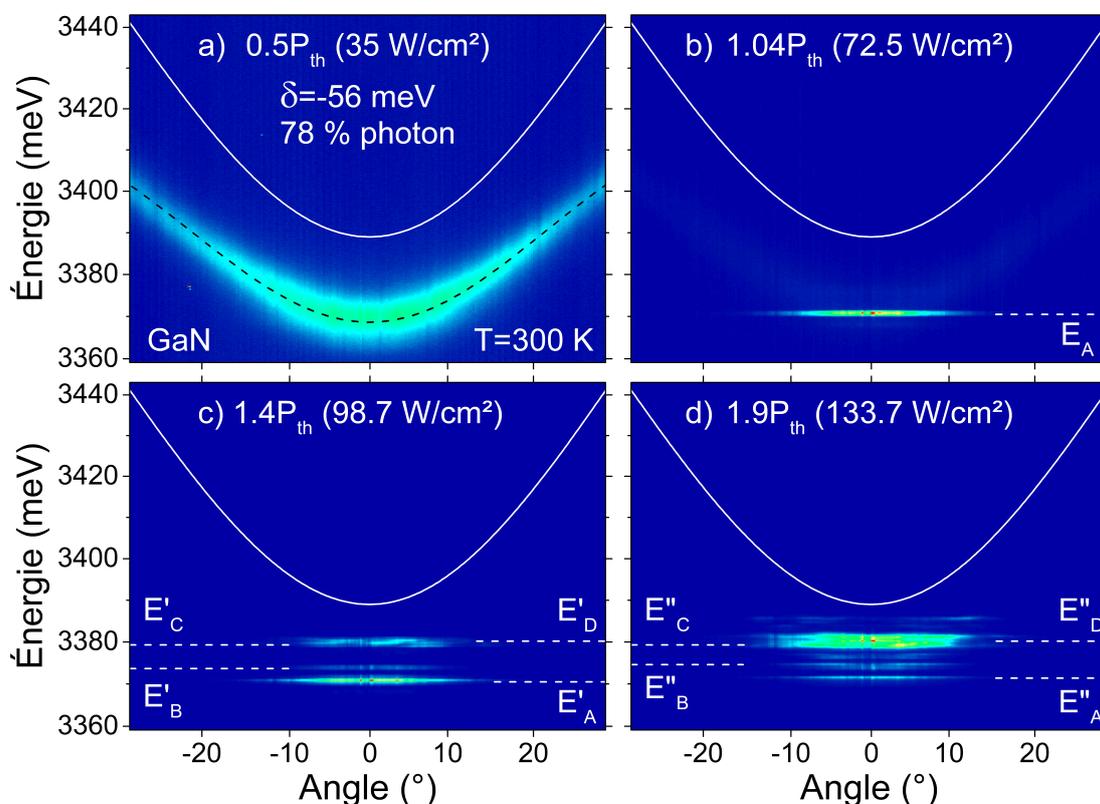


Fig. 2.17 – Microcavité GaN. μPL résolue en angle à température ambiante présentant la dispersion de la LPB à $\delta = -56 \text{ meV}$ pour quatre puissances : 0.5 , 1.04 , 1.4 , et $1.9 P_{\text{th}}$ ($P_{\text{th}} = 69.9 \text{ W/cm}^2$). Les dispersions de la LPB et du mode de cavité calculées grâce à un modèle quasi-particule sont représentées en noir et blanc.

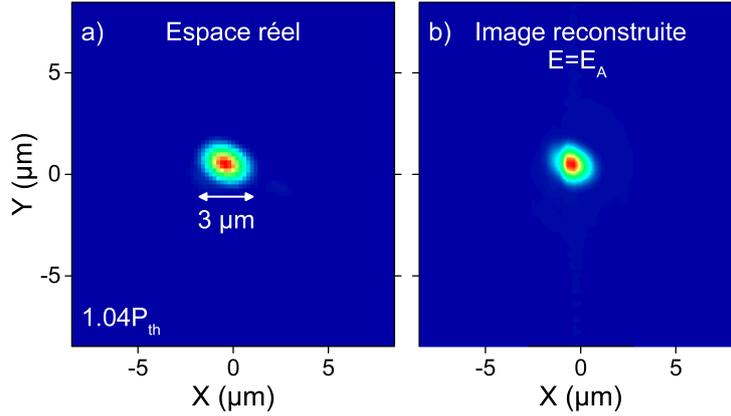


Fig. 2.18 – a) Émission en espace réel. b) Image reconstruite à l'énergie $E_A = 3370.8$ meV.

Nous avons enregistré l'émission en espace réel pour chacune des puissances. L'image correspondant à la puissance seuil est présentée sur la figure 2.18a. L'émission se compose d'une tâche arrondie de diamètre $d=3 \mu\text{m}$ en bon accord avec le diamètre calculé précédemment. L'interprétation des images 2.17b et 2.18a est assez simple : l'émission laser est constituée d'un seul mode d'énergie E_A et l'image en champ proche est composée d'un seul point très intense. On peut donc facilement relier la position dans l'espace à l'énergie. Afin de vérifier notre hypothèse, nous avons utilisé le principe de tomographie. Cette technique nous permet de reconstruire une image de l'espace réel à une énergie fixée. En choisissant l'énergie du mode fondamental E_A , nous obtenons la figure 2.18b. L'excellente adéquation entre les images 2.18a et 2.18b confirme notre hypothèse et par la même occasion le bon fonctionnement de notre montage expérimental de tomographie. Ce spot d'émission sera appelé spot fondamental par la suite.

Le spot fondamental représente seulement 1 % du spot d'excitation. Sa position dans l'espace n'est pas liée à la position du spot d'excitation : un déplacement de l'échantillon sous le spot d'excitation fixe implique un déplacement de la tâche d'émission. L'hypothèse d'un spot d'excitation inhomogène peut donc être écartée et la localisation du condensat est liée à une propriété intrinsèque de l'échantillon. Au vu de la rugosité de celui-ci et du profil de la LPB tracée sur la figure 2.10b, tout semble indiquer une localisation du condensat dans un piège polaritonique. Ce point possède le seuil le plus bas dans la zone éclairée par notre spot d'excitation. Au vu de la fraction photonique élevée des polaritons, il s'agit très certainement du point ayant le facteur de qualité le plus élevé : comme nous le verrons dans la section 2.5, le temps de vie des polaritons est le principal levier agissant sur le seuil pour les désaccords très négatifs.

En augmentant la puissance d'excitation, trois nouveaux spots d'émission apparaissent (figure 2.19a). Ils possèdent des diamètres équivalents à celui du spot fondamental. L'émission est toujours dominée par ce dernier dont la position n'a pas variée. Grâce aux mesures de tomographie, il est possible d'attribuer à chacune de ses tâches une énergie. Comme on peut le voir sur la figure 2.19b, l'adéquation entre l'émission en espace réel et les images reconstruites est excellente lorsqu'on utilise les énergies des modes visibles sur la figure 2.17c. Le faible blueshift de 0.1 meV du mode fondamental ($E'_A = 3370.9$) nous informe que localement la densité d'excitons dans le réservoir cesse d'augmenter une fois le seuil dépassé. Les trois nouveaux spots B, C, et D d'énergie $E'_B = 3374.3$ meV, $E'_C = 3379.2$ meV, et $E'_D = 3380.3$ meV correspondent à trois zones où le seuil laser à polaritons a été franchi. Il est raisonnable de penser que ces trois condensats sont eux aussi localisés dans des pièges et que la sélection des points en régime laser soit une fois de plus dictée par leur facteur de qualité. Les seuils des trois modes étant comparables, leur blueshift doit être équivalent. Ainsi, les écarts d'énergie entre les modes lasers doivent être sensiblement égaux aux écarts d'énergie entre les LPBs à basse puissance. Cette différence est d'environ 6 meV entre le mode B et les modes C et D, ce qui correspond, si l'on ne considère que le désordre photonique, à une différence d'épaisseur de la couche active de 2 nm. Le

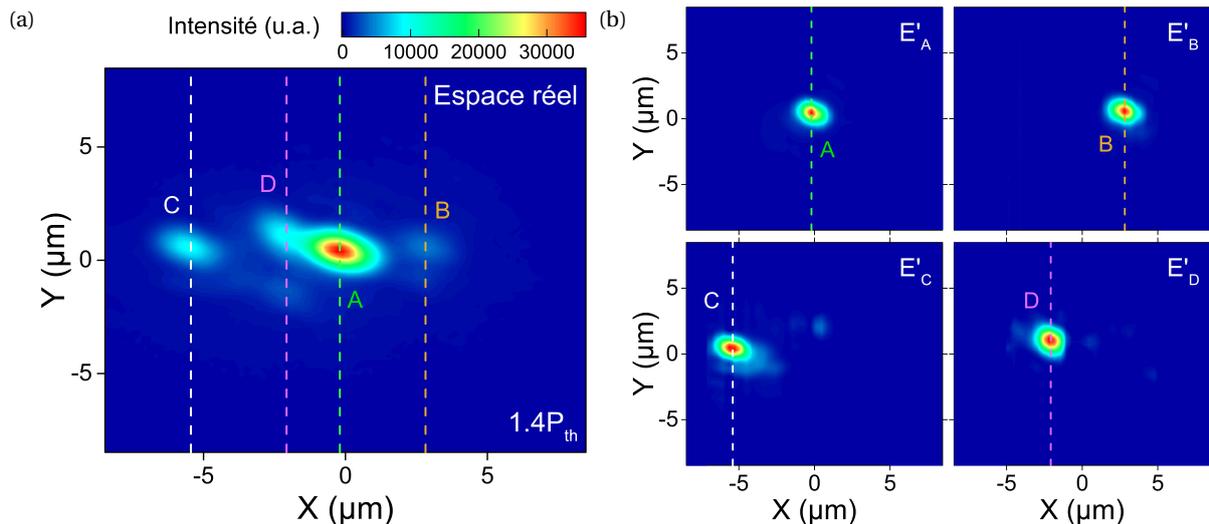


Fig. 2.19 – a) Émission en espace réel. b) Images reconstruites aux énergies $E'_A = 3370.9$ meV, $E'_B = 3374.3$ meV, $E'_C = 3379.2$ meV, et $E'_D = 3380.3$ meV.

mode fondamental ayant un seuil inférieur aux trois autres modes, il n'est pas possible de comparer son énergie à basse puissance avec celle des autres modes.

En augmentant la puissance à $1.9 P_{th}$, la condition de seuil est à nouveau remplie dans plusieurs zones et une multitude de nouveaux spots sont observables en espace réel (figure 2.20a). Les spots A, B, C et D sont toujours visibles mais leur intensité ont changé. L'émission est dominée par le spot D. De la même façon, l'émission à l'énergie $E''_D = 3380.3$ domine sur la figure 2.17d. Il est possible, encore une fois, de déterminer l'énergie d'émission de chacun des nouveaux spots. La figure 2.19b présente les images reconstituées aux énergies E''_A , E''_B , E''_C , et E''_D . Ces énergies sont celles qui permettent d'obtenir le plus de signal aux positions des quatre spots de la puissance précédente. Encore une fois, le faible blueshift des modes (0.1-0.2 meV) est le signe d'un verrouillage local du réservoir une fois le seuil dépassé. Mis à part le spot D, la totalité des spots visibles sur l'image reconstituée à l'énergie E''_C appartiennent à une gamme d'énergie comprise entre 3378.7 et 3379.7 meV. Chacun de ses spots présente un maximum à une énergie bien définie dans cette gamme. Cela exclut a priori le mécanisme de synchronisation observé dans la référence [134], où les condensats localisés d'une microcavité CdTe soumis au désordre présentaient une phase synchronisée au delà du seuil laser. Ces condensats exhibaient, contrairement à basse puissance, la même énergie au delà du seuil et présentaient une cohérence spatiale étendue malgré la localisation. Dans notre cas, il s'agit certainement de plusieurs points possédant globalement le même seuil et la même énergie. Des mesures de cohérence spatiale permettraient de confirmer l'hypothèse que le désordre photonique de nos cavités rend impossible toute synchronisation des condensats localisés.

La microcavité ZnO présentant un désordre photonique identique à celle de GaN, aucune différence notable n'a pu être observée sur la condensation des polaritons à température ambiante : les condensats sont toujours localisés dans des pièges polaritoniques. À cette température, les désaccords accessibles présentent des fractions photoniques élevées, ce qui augmente la sensibilité des polaritons au désordre photonique [19]. On peut donc imaginer que les effets du désordre photonique sur la condensation soient gommés pour des polaritons possédant des fractions excitoniques importantes. La microcavité ZnO possède les désaccords les plus positifs et les fractions excitoniques les plus élevées (70 % à 5 K). Les études pour ces points excitoniques n'ont pas permis d'observer de différence sur la condensation des polaritons. Il est fortement probable que les fractions excitoniques dont on dispose ne soient pas suffisamment élevées pour lisser le désordre photonique de nos microcavités.

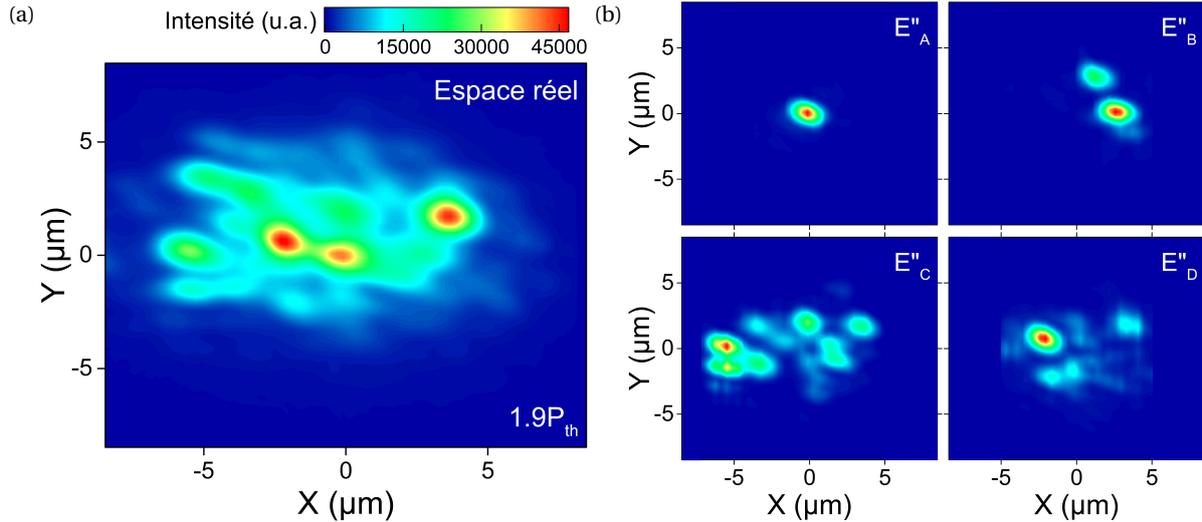


Fig. 2.20 – a) Émission en espace réel. b) Images reconstruites aux énergies $E''_A = 3371.4$ meV, $E''_B = 3374.5$ meV, $E''_C = 3379.4$ meV, et $E''_D = 3380.5$ meV.

2.4.2 Variation du spot d'excitation

Nous venons de voir qu'en utilisant un large spot d'excitation, le désordre photonique de nos microcavités induisait une émission multimode résultant de condensats localisés. On peut maintenant se poser la question suivante : quel est l'effet du diamètre du spot d'excitation sur le seuil laser à polaritons? Afin de répondre à cette question, nous avons mesuré l'évolution du seuil en fonction du diamètre du spot d'excitation. L'expérience a été réalisée sur les deux microcavités à température ambiante, pour une fraction photonique équivalente. La taille du spot est contrôlée à l'aide de l'abaque présentée sur la figure 2.6c. Pour chaque diamètre, le seuil laser correspond à une moyenne établie sur une dizaine de points répartis sur une même mesa (500 μm pour GaN et 1 mm pour ZnO). Les résultats obtenus sur une gamme de diamètres allant de 5 μm à 85 μm sont présentés sur la figure 2.21. Les seuils les plus élevés sont observés pour les diamètres les plus faibles (5-7 μm). Cela peut s'expliquer par la forte densité d'excitons sous le spot qui induit un fort gradient de potentiel éjectant de façon balistique les polaritons par l'intermédiaire d'interactions polariton-polariton et polariton-porteur libre [135]. En augmentant le diamètre du spot, le gradient de potentiel vu par les polaritons diminue, jusqu'à ce qu'il ne soit plus possible pour ces derniers de quitter le spot d'excitation durant leur temps de vie. On obtient alors un seuil minimal correspondant à un diamètre d'excitation d'environ 13~17 μm.

Au delà de 20 μm, on peut remarquer une augmentation des seuils puis une stabilisation pour des diamètres de 40-45 μm. À première vue, cette évolution peut sembler en contradiction avec l'hypothèse émise dans la section 2.4.1. En effet, si le point qui possède le facteur de qualité le plus élevé passe la condition de seuil en premier, l'évolution des seuils sur la figure 2.21 devrait devenir constante une fois que le diamètre d'excitation optimal est dépassé. L'augmentation observée pour les grands spots d'excitation peut être le signe d'une compétition entre les différents modes polaritoniques. Le mode polaritonique associé au facteur de qualité le plus élevé serait ainsi perturbé par la proximité de modes polaritoniques secondaires, issus de points voisins, dont le temps de vie est moindre. Ces modes agiraient ainsi vis-à-vis du réservoir excitonique du mode principal comme une source de fuite et augmenteraient son seuil laser. Passé un certain diamètre, cet effet se stabilise, ce qui signifie que les nouveaux modes secondaires éclairés par le spot d'excitation n'ont plus d'influence sur le mode principal.

La variation globale du facteur de qualité sur l'échantillon et l'effet de compétition lié à sa variation locale peut expliquer les seuils élevés mesurés dans les expériences d'imagerie de Fourier où le spot d'excitation est large. De plus, le caractère multimode de l'émission observé sur la figure 2.15

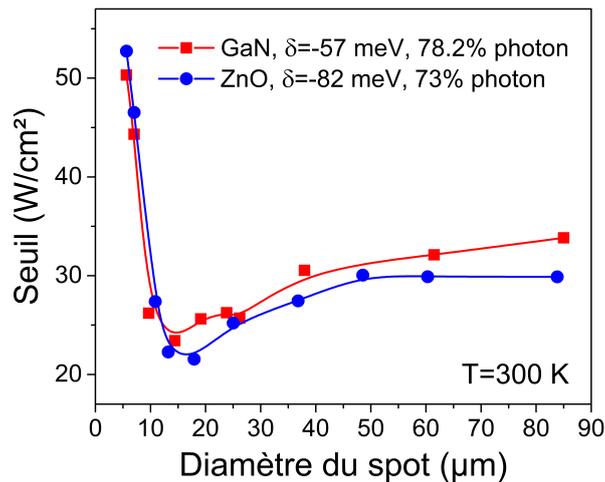


Fig. 2.21 – Évolution du seuil laser à polaritons en fonction du diamètre du spot d'excitation.

semble indiquer que cette compétition est toujours présente même avec un spot de diamètre 14 µm. Le diamètre optimal représente donc un compromis entre l'éjection des polaritons dû au gradient de potentiel et la fuite des polaritons dans les modes secondaires.

Pour valider cette hypothèse, on peut imaginer une expérience permettant de comparer directement les seuils obtenus avec un spot de diamètre optimal et un grand spot. Cette expérience se déroulerait en trois étapes, avec un montage expérimental utilisant un seul et unique objectif et sur une même zone de l'échantillon :

1. La première étape consiste à réaliser, sur une zone définie, une cartographie du désordre photonique (énergie de la LPB et facteur de qualité) à l'aide d'un spot de taille comparable aux pièges polaritoniques (3 µm).
2. La deuxième étape implique une cartographie des seuils de la zone réalisée avec un spot de diamètre optimale (14 µm).
3. La dernière étape consiste à éclairer la zone avec un grand spot d'excitation, de façon identique à ce qui a été réalisé dans les pages précédentes et à comparer les seuils obtenus en fonction de la position du spot et des facteurs de qualités des points éclairés.

2.5 Influence du désaccord et de la température : diagrammes de phase

Grâce au gradient d'épaisseur des couches actives de nos deux microcavités, l'énergie du mode de cavité varie en fonction de la position sur l'échantillon permettant ainsi d'avoir accès à une large gamme de désaccord. L'effet laser à polaritons a pu être étudié sur une plage de température de 10 à 300 K pour des désaccords allant de -150 meV à 74 meV sur la microcavité ZnO et de -138 meV à 28 meV sur la microcavité GaN. Dans l'optique à long terme de réaliser un composant injecté électriquement, la variation du seuil laser en fonction du désaccord et de la température, aussi appelé diagramme de phase, est une information capitale. De plus, comme le désordre photonique est similaire dans les deux microcavités, les diagrammes de phase de GaN et ZnO pourront directement être comparés afin de déterminer si un candidat idéal se profile.

2.5.1 Régime thermodynamique et régime cinétique

Le désaccord et la température sont les deux leviers qui gouvernent les propriétés des polaritons. Le désaccord détermine, à travers les fractions excitoniques et photoniques, le temps de vie des polaritons, leur probabilité d'interagir avec d'autres particules (polaritons, phonons, porteurs libres) et leur masse effective. La température, quant à elle, influe sur les taux de diffusions et la relaxation des polaritons, le temps de vie des excitons, et la densité critique.

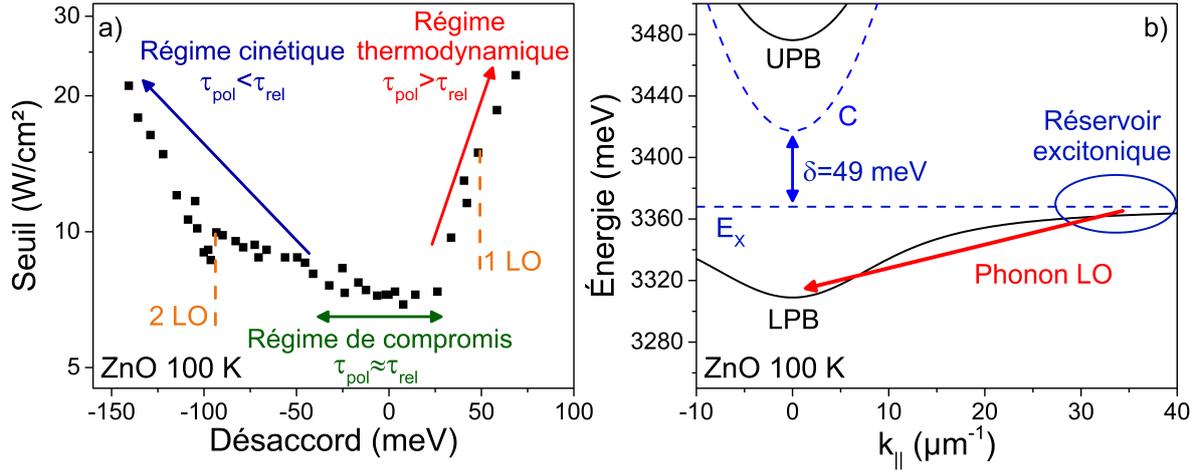


Fig. 2.22 – a) Diagramme de phase réalisée à 100 K sur la microcavité ZnO. Les désaccords positifs (négatifs) correspondent au régime thermodynamique (cinétique). Entre ces deux régimes se trouve le régime de compromis où le temps de vie des polaritons est égal au temps de relaxation. Les lignes verticales indiquent les désaccords pour lesquels le réservoir excitonique et l'état fondamental de la LPB sont séparés par l'énergie d'un ou deux phonons LO. b) Dispersion polaritonique calculée à 100 K au désaccord pour lequel l'état fondamental de la LPB est résonnant avec le phonon 1 LO.

Le temps de vie moyen des polaritons $\bar{\tau}_{\text{pol}}$ est donné par la formule suivante [93] :

$$\frac{1}{\bar{\tau}_{\text{pol}}} = \frac{1}{n_{\text{tot}}} \sum_{k_{\parallel}} \frac{n_{k_{\parallel}}}{\tau_{\text{pol}}(k_{\parallel})}, \quad (2.4)$$

où n_{tot} est le nombre total de polaritons dans le système, $n_{k_{\parallel}}$ le nombre d'occupation de l'état polaritonique de vecteur d'onde k_{\parallel} , et $\tau_{\text{pol}}(k_{\parallel})$ le temps de vie dans cet état. Celui-ci est lié au temps de vie du photon dans la cavité τ_{C} et au temps de vie non-radiatif des excitons τ_{NR} par la relation :

$$\frac{1}{\tau_{\text{pol}}(k_{\parallel})} = \frac{|C_{k_{\parallel}}|^2}{\tau_{\text{C}}} + \frac{|X_{k_{\parallel}}|^2}{\tau_{\text{X}}^{\text{NR}}}, \quad (2.5)$$

où $|C_{k_{\parallel}}|^2$ et $|X_{k_{\parallel}}|^2$ sont respectivement les poids photoniques et excitoniques. Le temps de vie des photons dans nos microcavités (0.2 ps) étant beaucoup plus faible que celui des excitons, le temps de vie des polaritons dans le cône de lumière est fortement limité par leur composante photonique. Le temps de vie moyen des polaritons est une fonction croissante du désaccord et sera maximal pour les désaccords possédant les fractions excitoniques les plus élevées.

Au contraire, le temps de relaxation τ_{rel} décroît avec le désaccord. Il dépend principalement de la profondeur du piège polaritonique ($E_{\text{X}} - E_{\text{LPB}}(k_{\parallel} = 0)$), qui diminue avec le désaccord, et de la capacité des polaritons à interagir avec d'autres particules, qui augmente avec le désaccord [136] (ce raisonnement exclut volontairement l'influence des phonons LO qui sera discutée plus loin).

La figure 2.22a présente le diagramme de phase de la microcavité ZnO réalisé à 100 K. Afin de minimiser les seuils, un spot de 14 μm de diamètre a été utilisé. Un spectre à basse puissance a été enregistré pour chaque seuil afin de pouvoir calculer le désaccord à l'aide d'un modèle quasi-particule 2x2 (un Rabi fixe de 160 meV a été utilisé) et d'extraire le facteur de qualité effectif Q_{eff} de chaque point. Cette opération nous a permis de trier les points et de limiter les effets du désordre photonique.

L'évolution du seuil peut être expliquée de façon qualitative en comparant les deux temps caractéristiques du système, $\bar{\tau}_{\text{pol}}$ et τ_{rel} :

1. Pour les désaccords très négatifs, le piège polaritonique est profond (jusqu'à 177 meV) et les processus de relaxation des polaritons, très photoniques, sont lents. De plus, leur temps de vie

dans l'état fondamental est très court. Le temps de vie moyen des polaritons est inférieur au temps de relaxation, et le seul moyen d'obtenir l'effet laser est d'accélérer la cinétique de relaxation en augmentant la puissance d'excitation, et donc les interactions polariton-polariton. Comme attendu, ces effets néfastes deviennent de plus en plus présents à mesure que le désaccord diminue et les seuils augmentent en conséquence. Le système est fortement hors-équilibre et le seuil laser à polaritons est gouverné par la cinétique, d'où le nom de régime cinétique.

2. Pour les désaccords les plus élevés, le piège polaritonique est peu profond et la cinétique de relaxation des polaritons est rapide. De plus, la fraction excitonique élevée des polaritons dans l'état fondamental leur confère un temps de vie long. Le temps de vie moyen des polaritons est supérieur au temps de relaxation et le gaz polaritonique est thermalisé, à une température égale ou supérieure à celle du réseau [94]. Comme la densité critique n_C augmente avec la fraction excitonique (augmentation de la masse effective des polaritons), le seuil laser augmente à mesure que le désaccord augmente. Ce régime est appelé régime thermodynamique.
3. Les désaccords où le temps de vie moyen des polaritons est de l'ordre du temps de relaxation correspondent à une zone de compromis alliant une masse polaritonique effective faible et des processus de relaxation suffisamment efficaces. Ce régime optimal où l'on trouve les seuils lasers les plus bas est appelé régime de compromis.

Le temps de relaxation peut être localement abaissé lorsque la profondeur du piège polaritonique est égale à l'énergie d'un ou de deux phonons LO (figure 2.22b). Dans ce cas, les excitons du réservoir peuvent directement atteindre l'état fondamental de la LPB en émettant un ou deux phonons LO. Ce mécanisme de relaxation additionnel a été proposé en 1996 par Imamoglu *et al.* [15] et son impact sur le seuil laser à polaritons a été observé la première fois par Boeuf *et al.* dans une microcavité CdTe, où la résonance avec le phonon 1 LO correspondait à une diminution locale du seuil [137]. Cette réduction du seuil laser grâce aux phonons LO a depuis été observée dans des microcavités GaAs [138], ZnO [139] et GaN [140].

Comme on peut le voir sur la figure 2.22a, le large dédoublement de Rabi de la microcavité ZnO (160 meV), supérieur à l'énergie du phonon LO (72 meV), nous permet de sonder, pour une même température, l'influence de la première et deuxième réplique LO sur le seuil. Dans le régime thermodynamique, aucune réduction du seuil n'est associée à la résonance avec le phonon 1 LO. En effet, le temps de relaxation dans ce régime étant déjà court devant le temps de vie des polaritons, une amélioration des processus de relaxation n'a aucun effet. Au contraire, pour un désaccord négatif $\delta = -100$ meV, une faible diminution du seuil est visible à la résonance avec le phonon 2 LO, ce dernier contribuant à l'augmentation des taux de diffusions vers l'état fondamental. Ce processus est cependant peu efficace en raison du temps de vie très court des polaritons dans le régime cinétique. Nous verrons dans la prochaine section que l'impact des phonons LO sur le seuil laser est le plus marqué lorsque la résonance a lieu dans le régime de compromis.

Maintenant que nous avons listé les effets du désaccord sur le seuil laser, nous pouvons nous concentrer sur les effets de la température. Une augmentation de la température accélère les processus de relaxation via l'augmentation des taux de diffusions polariton-phonon acoustique [141]. Lorsque l'agitation thermique devient comparable à l'énergie de liaison des excitons, la présence croissante de porteurs libres permet l'activation des processus de diffusion polariton-électron. Ces processus jouent un rôle similaire à ceux des phonons acoustiques mais sont considérablement plus efficaces [91]. L'augmentation de la température est donc bénéfique pour la cinétique de relaxation et τ_{rel} décroît avec la température.

En revanche, d'un point de vue purement thermodynamique, l'augmentation de la température implique une densité critique n_C plus élevée. Ainsi, pour les désaccords positifs, le seuil laser à polaritons augmentera avec la température.

Finalement, le temps de vie non-radiatif des excitons τ_{NR} diminue avec la température ce qui implique, de façon générale, une diminution du temps de vie effectif des excitons et des polaritons. Cette diminution est accentuée au delà d'une température T_{esc} , appelée température d'échappement

[142], pour laquelle l'agitation thermique est suffisamment élevée pour éjecter les polaritons de l'état fondamental à un état polaritonique situé au delà du point d'inflexion. Pour contrebalancer ce dépeuplement de l'état fondamental, la puissance d'excitation doit être augmentée, ce qui se répercute sur le seuil laser.

2.5.2 Diagramme de phase de ZnO

L'ensemble des diagrammes de phase réalisés sur la microcavité ZnO sont présentés sur la figure 2.23. Pour plus de visibilité, ils ont été séparés en deux catégories de températures, 10 K à 100 K et 150 K à 300 K. Les désaccords résonnants avec la première et la deuxième réplique LO sont signalés par des flèches pour chacune des températures. Afin d'être le plus précis possible, nous avons pris en compte la dépendance en température de l'énergie de la première et deuxième réplique LO. En effet, comme Gross *et al.* l'ont observé [143], et comme Segall *et al.* l'ont démontré [144], l'intensité de la première ou deuxième réplique LO s'exprime par la relation générale :

$$I_{PL}(\hbar\omega) \propto E_{cin}^{1/2} \exp\left[-\frac{E_{cin}}{k_B T}\right] W(E_{cin}), \quad (2.6)$$

où E_{cin} est l'énergie cinétique de l'exciton de vecteur d'onde non nul k_{ex} , $\hbar\omega = E_g - R_y - \hbar\omega_{LO} + E_{cin}$ et $W(E_{cin})$ est la probabilité de créer un phonon d'énergie E_{cin} . Du fait de la conservation du vecteur d'onde, la probabilité $W(E_{cin})$ de créer un phonon est proportionnelle à l'énergie cinétique E_{cin} et le maximum de l'émission se situe à l'énergie E telle que :

$$E = \hbar\omega = E_X - E_{LO} + \frac{3}{2}k_B T. \quad (2.7)$$

Dans le cas d'une réplique à deux phonons LO, la probabilité de création de deux phonons $W(E_{cin})$ est indépendante du vecteur d'onde et de l'énergie cinétique et le maximum d'émission se situe à l'énergie E telle que :

$$E = \hbar\omega = E_X - 2E_{LO} + \frac{1}{2}k_B T. \quad (2.8)$$

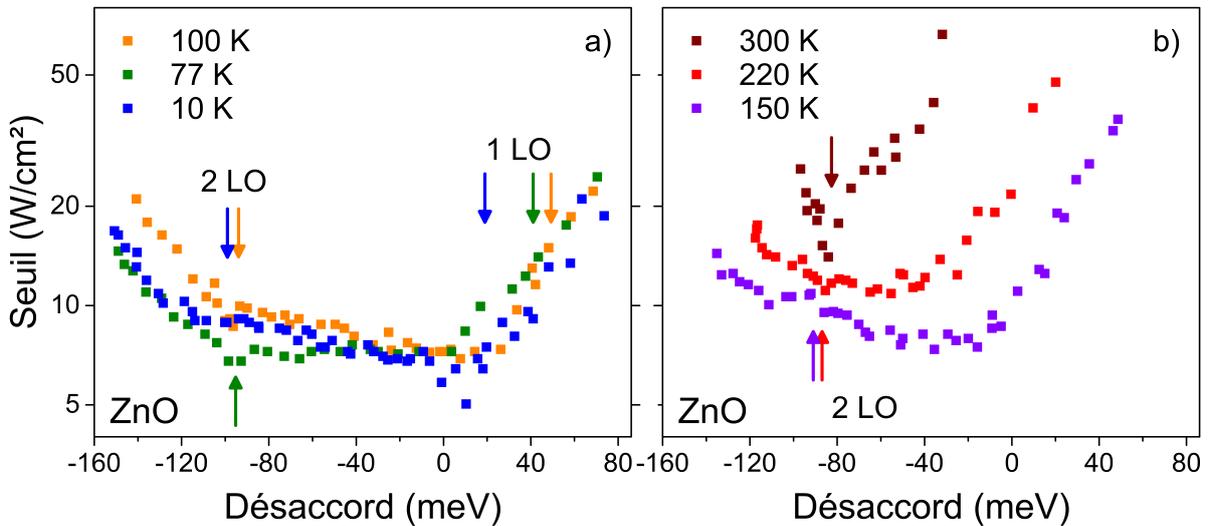


Fig. 2.23 – Diagrammes de phase de la microcavité ZnO de 10 K à 100 K (a) et de 150 K à 300 K (b). Les désaccords résonnants avec les répliques phonons 1 LO et 2 LO sont indiqués par des flèches.

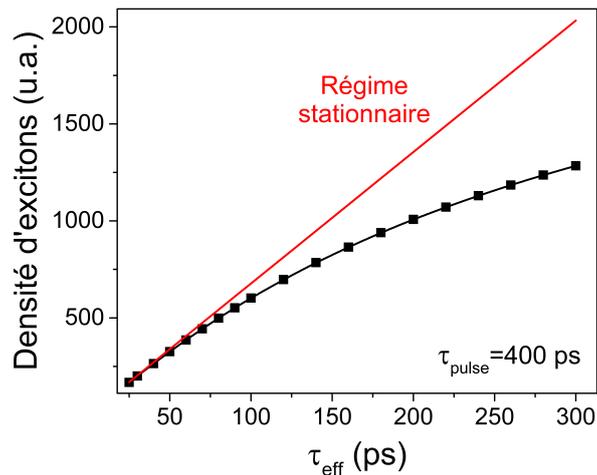


Fig. 2.24 – Évolution de la densité maximale d'excitons atteinte durant un pulse laser de 400 ps en fonction du temps de vie effectif des excitons.

Les régimes cinétiques, de compromis et thermodynamiques sont clairement identifiables pour chacune des températures. À 10 K, la résonance avec la première réplique LO a lieu dans le régime de compromis et est associée à une réduction du seuil laser. La diminution du temps de relaxation grâce aux interactions polariton-LO phonon permet une extension du régime thermodynamique vers des désaccords moins positifs, permettant ainsi l'accès à des densités critiques et des seuils plus faibles. À partir de 77 K, cette résonance entre dans le régime thermodynamique et plus aucune réduction du seuil n'est visible. Pour les désaccords négatifs (régime cinétique), la résonance avec la deuxième réplique LO donne lieu à une faible diminution du seuil. En montant en température, cette résonance a lieu à des désaccords de plus en plus positifs. Elle entre dans le régime de compromis à 300 K, où une forte diminution du seuil est observée.

On peut remarquer que les seuils des régimes thermodynamiques sont relativement proches de 10 K à 100 K ce qui nous indique que le gaz de polaritons est en équilibre thermique avec lui-même, à une température supérieure à celle du réseau. À partir de 150 K, on observe une forte augmentation des seuils pour les désaccords les plus élevés et l'on peut clairement distinguer le régime thermodynamique pour chaque température.

Cette comparaison en température des différents diagrammes de phase doit cependant être prise avec précaution : le seuil affiché correspond à la puissance délivrée par le laser d'excitation, et non à la densité d'excitons injectés. Cette dernière dépend du temps de vie effectif τ_{eff} des excitons. La figure 2.24 présente l'évolution de la densité excitonique maximale atteinte lors d'un pulse laser gaussien de 400 ps en fonction du temps de vie effectif des excitons, calculée à l'aide de l'équation 2.9 :

$$\frac{dn}{dt} = G(t) - \frac{n}{\tau_{\text{eff}}}, \quad (2.9)$$

où $G(t)$ représente le terme de pompe (pulse gaussien). La densité d'excitons est une fonction croissante du temps de vie effectif τ_{eff} . Pour des temps $\tau_{\text{eff}} < 50$ ps, le régime stationnaire est atteint et la densité d'excitons est directement proportionnelle à leur temps de vie. Au delà, on observe une saturation de la densité d'excitons, c'est le régime transitoire. Ces temps de vie n'ont pas encore été déterminés dans nos structures mais on peut s'attendre à ce qu'ils diminuent en température en raison de la prédominance des processus non-radiatifs. Ainsi, si $\tau_{\text{eff}}(5\text{K}) > \tau_{\text{eff}}(300\text{K})$, on aura pour une même puissance d'excitation P : $n_p(5\text{K}) > n_p(300\text{K})$. Des futures mesures de temps de vie des excitons sont donc nécessaires pour permettre une comparaison quantitative plus poussée des seuils.

Si la comparaison des seuils en température demeure délicate, le suivi du désaccord présentant le seuil le plus bas est possible. Ce désaccord est appelé désaccord optimal δ_{opt} , et son évolution en

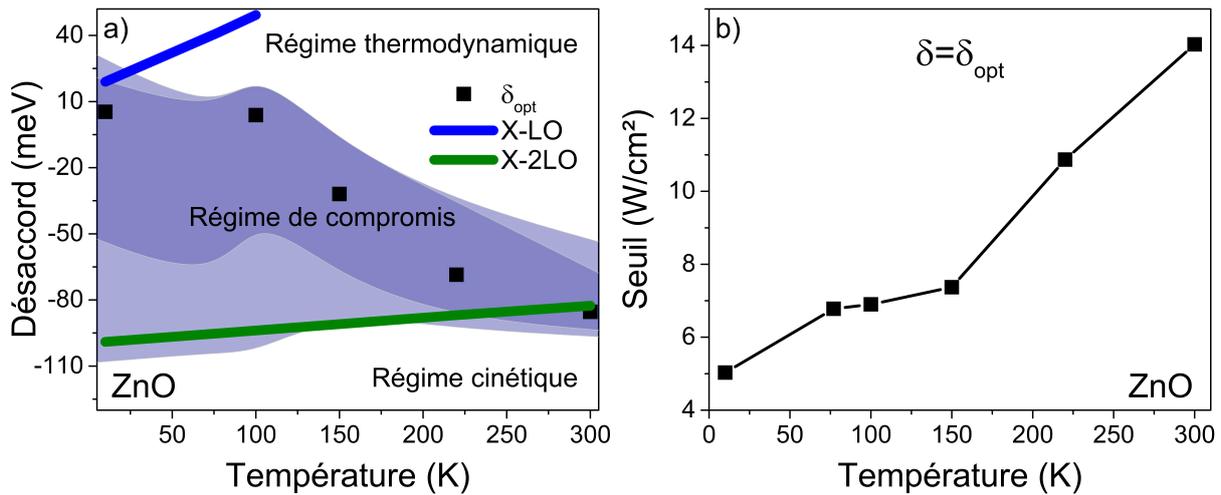


Fig. 2.25 – Microcavité ZnO. a) Évolution du désaccord optimal et des répliques 1 LO (bleu) et 2 LO (vert) en température. Le régime de compromis et son incertitude sont reportés en violet foncé et clair. b) Évolution en température du seuil au désaccord optimal.

température est reportée sur la figure 2.25a. Les répliques 1 LO et 2 LO ainsi que les différents régimes sont aussi indiqués sur cette figure. La zone violette représente le régime de compromis. La délimitation de chacune des zones étant parfois difficile nous avons ajouté une incertitude représentée par une couleur plus claire. Les seuils correspondant aux désaccords optimaux sont reportés sur la figure 2.25b. L'augmentation est lente de 10 K à 150 K puis s'amplifie à 220 K et 300 K. Comme on l'a déjà remarqué sur la figure 2.23a, le désaccord optimal et le régime de compromis évoluent peu de 10 K à 100 K. Au delà de 150 K, le régime thermodynamique et δ_{opt} tendent de façon continue vers les désaccords négatifs. Ce comportement peut être expliqué par la diminution de τ_{rel} avec la température qui étend le régime thermodynamique vers les désaccords plus photoniques. À 300 K, la résonance 2 LO entre dans le régime de compromis et abaisse le seuil.

On peut remarquer que la zone de compromis se réduit progressivement en température tout comme la gamme des désaccords accessibles sur l'échantillon. Contrairement aux excitons dont l'énergie diminue en température, l'énergie du mode photonique varie peu. Elle est limitée à une valeur minimale fixée par le gradient d'épaisseur. Les désaccords négatifs accessibles sur la microcavité se réduisent de fait avec la température. De plus, ceux ci sont de plus en plus proches du bord de la bande d'arrêt du miroir nitrure. Pour les désaccords les plus négatifs, les modes de Bragg couplés au réservoir constituent un mécanisme de fuite et augmentent τ_{rel} . Les modes de Bragg aggravent donc le déséquilibre déjà présent entre le temps de vie des polaritons et le temps de relaxation. En conséquence, les seuils augmentent très rapidement et l'on peut parler de "régime cinétique aggravé".

À 300 K le régime de compromis est pris en étau entre le régime cinétique aggravé et le régime thermodynamique. Ce régime cinétique est purement induit par les modes de Bragg. Le désaccord optimal et le seuil associé sont donc liés au miroir nitrure. Un meilleur centrage du miroir nitrure permettrait sans aucun doute de diminuer le seuil laser à 300 K en garantissant l'accès à des désaccords négatifs non perturbés par les modes de Bragg.

2.5.3 Diagramme de phase de GaN

Les diagrammes de phase de la microcavité GaN sont présentés sur la figure 2.26. Ces diagrammes ont été réalisés dans des conditions expérimentales identiques à celles mises en place pour la microcavité ZnO. La majorité des désaccords ont été calculés à travers un modèle quasi-particule 2x2 utilisant un terme de couplage de 41 meV, à l'exception des points les plus négatifs, pour lesquels des termes de couplage réduits ont été utilisés, en accord avec les calculs de la figure 2.12. Comme

pour la microcavité ZnO, il est possible d'identifier les régimes cinétiques, de compromis et thermodynamiques pour chacune des températures. Du fait du dédoublement de Rabi moins élevé (80 meV contre 160 meV), seule la résonance avec la première réplique LO est accessible de 10 K à 300 K.

Le régime de compromis à 10 K est caractérisé par une large zone s'étendant de -90 meV à -30 meV où les seuils sont constants. À cette température, les effets de la résonance 1 LO sur les seuils sont très faibles dans la mesure où celle-ci est proche du régime cinétique. À 77 K et 100 K, la résonance LO entre pleinement dans le régime de compromis et abaisse localement les seuils. L'effet est le plus marqué à 100 K où la réplique LO est associée à un creux prononcé. Au delà de 150 K, la réplique LO entre dans le régime thermodynamique et plus aucun impact sur les seuils n'est observé. De la même façon que sur la microcavité ZnO, les gammes de désaccords accessibles diminuent en température. À partir de 150 K, le régime cinétique se déplace vers les désaccords plus élevés et sa pente devient plus abrupte du fait de la proximité croissante des modes de Bragg. On retrouve, comme sur la microcavité ZnO, le régime cinétique aggravé lié à l'étroite bande d'arrêt du miroir nitrure.

Les évolutions en température du désaccord optimal et du régime de compromis sont tracées sur la figure 2.27a. Contrairement à ce qui est attendu et observé sur la microcavité ZnO, le désaccord optimal se décale vers les désaccords positifs entre 10 K et 150 K. Cette évolution inhabituelle correspond au moment où la réplique LO entre dans le régime de compromis. On peut d'ailleurs observer que l'évolution de δ_{opt} tend à reproduire celle de la réplique LO, même si cette dernière semble être située une dizaine de meV plus bas en énergie. Cette différence d'énergie peut s'expliquer par une sous-estimation de l'énergie des excitons, notamment en raison de la variation de contrainte en fonction de la position sur l'échantillon.

À 220 K, lorsque la réplique LO entre dans le régime thermodynamique, le désaccord optimal retrouve le comportement attendu et se décale de -34 meV à -70 meV. Enfin, à 300 K, la légère hausse de δ_{opt} s'explique par l'augmentation du temps de relaxation dû à la fuite des polaritons dans les modes de Bragg du miroir nitrure (régime cinétique aggravé). Encore une fois, un miroir inférieur plus large ou mieux centré permettrait de supprimer le régime cinétique aggravé, d'accéder au véritable régime de compromis et d'obtenir des seuils plus bas.

Les seuils correspondant aux désaccords optimaux sont reportés sur la figure 2.27b. Contrairement au cas de ZnO où les seuils ne font qu'augmenter avec la température, les seuils de la microcavité GaN diminuent de 10 K à 150 K puis augmentent de 150 K à 300 K. Ce comportement particulier coïncide avec le passage de la réplique LO dans le régime de compromis.

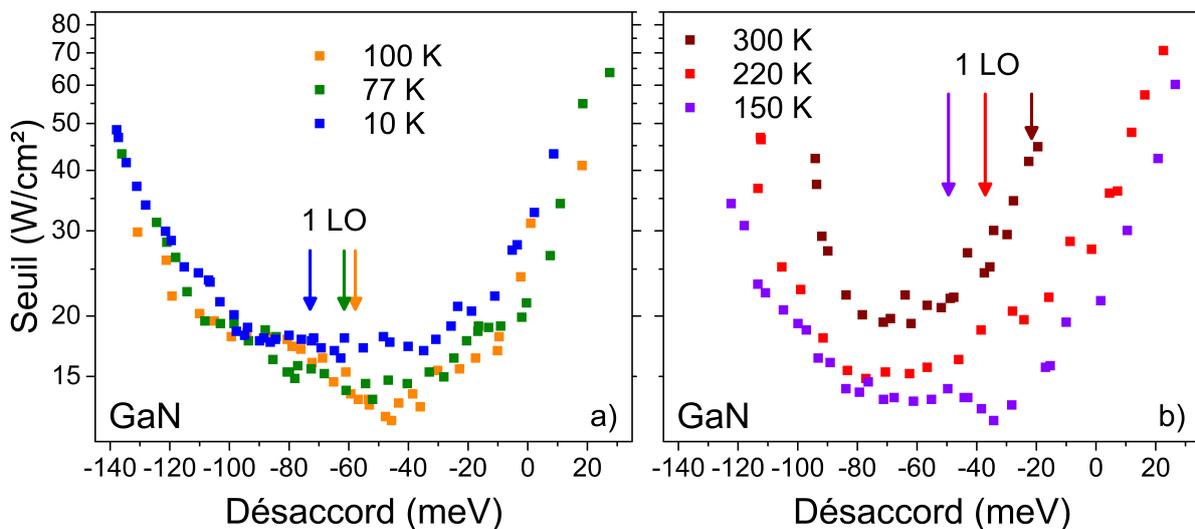


Fig. 2.26 – Diagrammes de phase de la microcavité GaN de 10 K à 100 K (a) et de 150 K à 300 K (b). Les désaccords résonnants avec les répliques phonons 1 LO sont indiqués par des flèches.

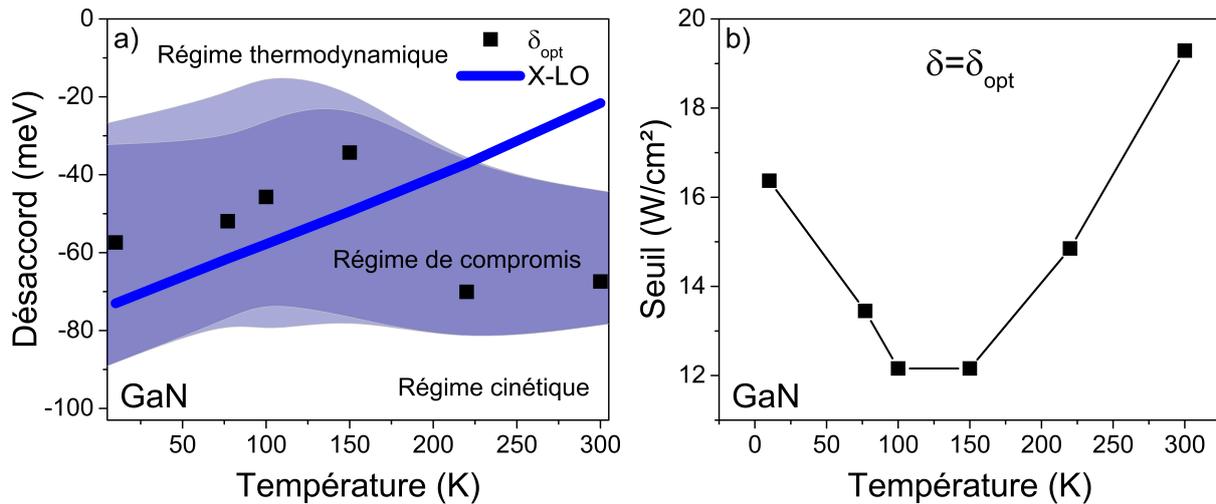


Fig. 2.27 – Microcavité GaN. a) Évolution du désaccord optimal et de la première réplique LO (bleu) en température. Le régime de compromis et son incertitude sont reportés en violet foncé et clair. b) Évolution en température du seuil au désaccord optimal.

2.5.4 Validité du régime laser à polaritons en puissance

Pour les désaccords les plus extrêmes du régime cinétique et thermodynamique, les seuils laser à polaritons peuvent être quatre à cinq fois plus élevés que les seuils mesurés aux désaccords optimaux. Afin de garantir que, quelque soit la puissance d'excitation, l'effet laser observé opère toujours en régime de couplage fort, nous nous sommes intéressés au blueshift de la LPB et à la renormalisation des forces d'oscillateur en puissance.

Pour cela, nous nous sommes appuyés sur des expériences de μ PL réalisées en espace réciproque, similaires à celles présentées sur les figures 2.16 et 2.17. L'imagerie de Fourier permet de visualiser directement la relation de dispersion de LPB et d'estimer plus facilement la position de l'état fondamental.

Pour mesurer le blueshift de la LPB à la puissance seuil, une image de la relation de dispersion a été enregistrée à basse puissance puis au seuil laser à polaritons. On rappelle que, dans notre cas, cette technique d'imagerie impose l'utilisation d'un large spot d'excitation. Comme nous l'avons vu dans la section 2.4.2, la grande taille du spot d'excitation implique des seuils laser à polaritons plus élevés qu'avec la configuration optimale utilisée pour la réalisation des diagrammes de phases (diamètre du spot égal à 14 μ m). Ainsi, en fonction des facteurs de qualité de la zone éclairée, les seuils mesurés en imagerie de Fourier peuvent être deux à trois fois plus élevés que ceux relevés dans les diagrammes de phases (à désaccord égal).

Le désordre photonique, la cohabitation spatiale et la localisation dans des pièges photoniques (états excités) peuvent rendre difficile l'estimation de l'état fondamental de la LPB au seuil. Pour ces raisons, nous avons choisi pour chaque image un intervalle d'énergies plutôt qu'une énergie (section 2.3.3).

À partir de l'énergie de la LPB mesurée à basse puissance et de l'intervalle d'énergies mesuré au seuil, il est possible, grâce au formalisme des MDTE, de reproduire le blueshift de la LPB en diminuant les forces d'oscillateur des excitons. Les élargissements homogènes et inhomogènes des excitons sont pris en compte. Les résultats sont présentés sur la figure 2.28 pour GaN (5 K et 300 K) et ZnO (77 K et 300 K) sous la forme de pourcentages de renormalisation : 0 % correspond aux forces d'oscillateur nominales et 100 % correspond à la transition de Mott.

Pour chaque température, les gammes de puissances qui correspondent aux seuils reportés sur les diagrammes de phase sont représentées par des flèches. À 300 K dans la microcavité GaN, le seuil maximal reporté dans le diagramme de phase est de 44.8 W/cm². Par comparaison, la renormalisation des forces d'oscillateur calculée à 69.9 W/cm² est de 25.5 % +/- 10 %. À 300 K dans la microcavité

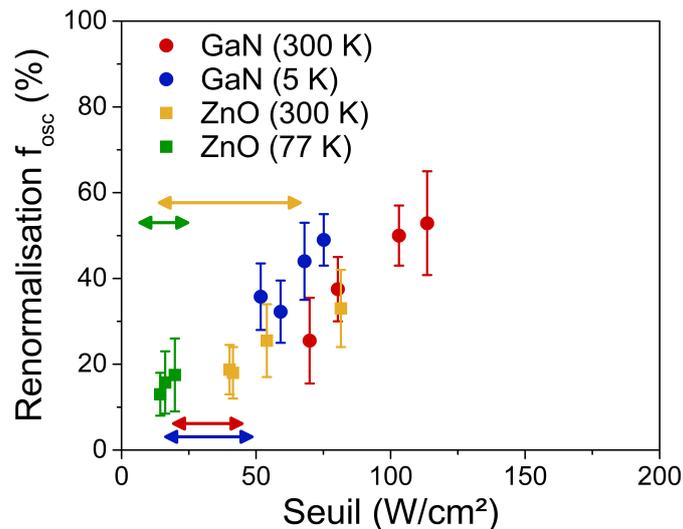


Fig. 2.28 – Renormalisation des forces d’oscillateur excitoniques dans GaN (5 K et 300 K) et ZnO (77 K et 300 K), calculée à l’aide du formalisme des MDTE, en fonction de la puissance au seuil. Pour chaque point, la relation de dispersion de la LPB a été enregistrée à faible puissance et au seuil (procédé identique à celui utilisé pour la figure 2.16) afin de pouvoir estimer le blueshift. Les barres d’incertitudes traduisent la difficulté de positionner l’état fondamental de la LPB au seuil, notamment en raison du désordre photonique. Les flèches horizontales correspondent à l’étendue des seuils mesurés pour les diagrammes de phases.

ZnO, le seuil maximal reporté dans le diagramme de phase est de $66.4 W/cm^2$. Par comparaison, la renormalisation des forces d’oscillateur est de $33\% \pm 9\%$ à $81.5 W/cm^2$.

Ces deux limites hautes permettent d’affirmer que tous les seuils reportés dans les diagrammes de phase à 300 K correspondent à l’effet laser à polaritons. En effectuant le même raisonnement pour 5 K dans GaN et 77 K dans ZnO, nous pouvons établir la même conclusion pour les diagrammes de phases respectifs à ces températures.

Enfin, en considérant qu’il est peu probable que le temps de vie effectifs des excitons augmente entre 5 K et 300 K, il est possible de généraliser cette conclusion à tous les points reportés dans les diagrammes de phase de GaN et ZnO.

Il est intéressant de noter qu’en complétant la figure 2.28 avec un grand nombre de points, une estimation de la densité de Mott dans nos deux microcavités pourrait être effectuée. Par exemple, en considérant une évolution linéaire de la renormalisation des forces d’oscillateur en fonction de la puissance d’excitation et en prolongeant les points reportés à 300 K dans GaN, on obtient, en première approximation, l’annulation des forces d’oscillateur pour une puissance d’excitation de $185 W/cm^2$.

2.5.5 Comparaison entre les microcavités GaN et ZnO

La figure 2.29a compare les seuils optimaux des deux microcavités de 10 K à 300 K et récapitule les effets agissant sur les seuils. Les deux microcavités bénéficient des effets positifs des phonons LO lorsque les résonances ont lieu dans le régime de compromis (10 K et 300 K pour la microcavité ZnO et 77 K, 100 K et 150 K pour la microcavité GaN).

À 10 K, le seuil de la microcavité ZnO est 3.25 fois plus bas que celui de la microcavité GaN. Ce rapport diminue ensuite progressivement avec la température. À 300 K, il n’est plus que de 1.4. Comme on peut le voir sur la figure 2.29b, l’avantage de ZnO n’est valable qu’à l’approche du désaccord optimal. On peut noter que sur la gamme de températures où le miroir de Bragg n’influence pas la relaxation (10 K à 150 K), la variation du seuil est très différente sur les deux structures : pour la microcavité ZnO

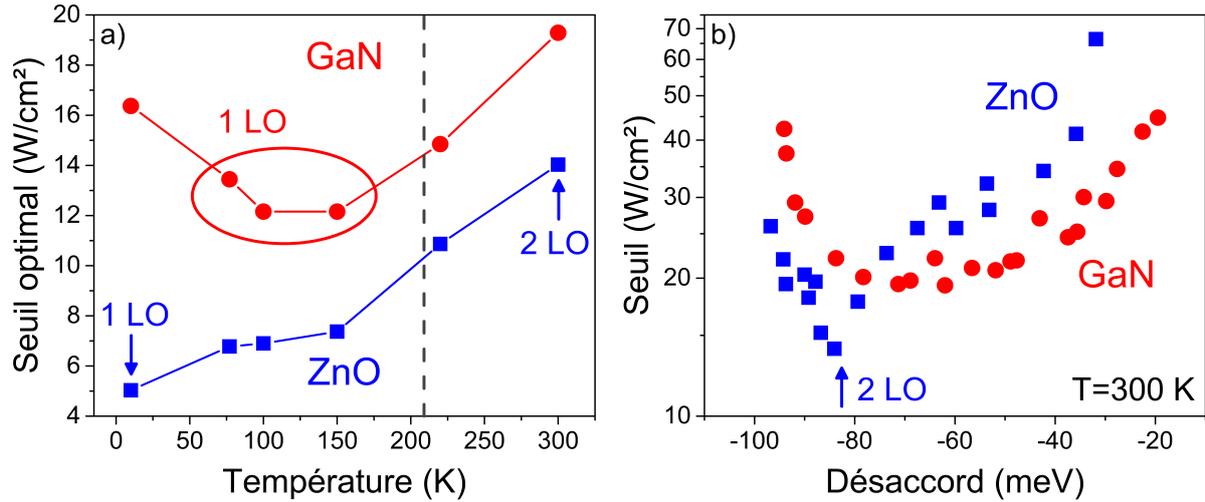


Fig. 2.29 – a) Évolution des désaccords optimaux pour la microcavité GaN et ZnO. Les températures où les désaccords optimaux sont résonants avec des phonons 1 LO ou 2 LO sont indiqués. Au-delà de la ligne en pointillés, les seuils correspondent à des désaccords optimaux dont la position est le fruit d'une compétition entre le régime cinétique aggravé et le régime thermodynamique. b) Comparaison des diagrammes de phase des microcavités GaN et ZnO à 300 K.

le seuil optimal augmente de 47 % tandis qu'il diminue de 26 % sur la microcavité GaN. À partir de 220 K, les diagrammes de phases sont impactés par les modes de Bragg du miroir nitrure et le régime cinétique aggravé. Les seuils optimaux sont donc surestimés et la comparaison des deux microcavités reste difficile.

À la lumière de ces résultats, il n'est pas possible de désigner avec certitude le matériau idéal pour la réalisation d'un laser à polaritons injectés électriquement à 300 K. Deux choses seront nécessaires pour choisir le meilleur prétendant : la mesure du temps de vie effectif des excitons pour chacun des matériaux, afin de comparer les densités de porteurs injectés, et de nouvelles microcavités, possédant des miroirs centrés à plus basses énergies, afin de déterminer les véritables désaccords optimaux. Néanmoins, ZnO part avec une longueur d'avance grâce à ses forces d'oscillateur importantes qui permettront d'ajuster au mieux le dédoublement de Rabi afin de faire coïncider la réplique 2 LO avec le régime de compromis. Le même procédé sur des cavités GaN est impossible en raison des Rabi accessibles et de l'énergie des phonons LO.

2.6 Couplage fort et laser à polaritons en régime extrême : hautes températures

Nous avons vu dans la section précédente que GaN et ZnO sont deux candidats relativement similaires pour obtenir l'effet laser à polaritons à température ambiante. Néanmoins, l'éventuel composant qui verra le jour, le laser à polaritons injecté électriquement, sera amené à opérer une température dépassant 300 K. Il apparaît dès lors nécessaire de pousser l'investigation du couplage fort et de l'effet laser à polaritons à plus hautes températures. Notre étude s'est limitée à la microcavité GaN à 350 K. En effet, la microcavité ZnO ne possède pas les désaccords négatifs requis à cette température pour une étude complète car seuls quelques désaccords extrêmes du régime thermodynamique sont accessibles. Au vu de l'énergie de liaison de 60 meV des excitons de ZnO et du grand dédoublement de Rabi de la microcavité, on peut raisonnablement assumer que le régime de couplage fort et l'effet laser à polaritons sont maintenus sans difficulté à ces températures. Le couplage fort dans une microcavité ZnO a d'ailleurs été observé jusqu'à 410 K par Sturm *et al.* [145] et l'effet laser à polaritons jusqu'à 450 K dans des microfils ZnO [113].

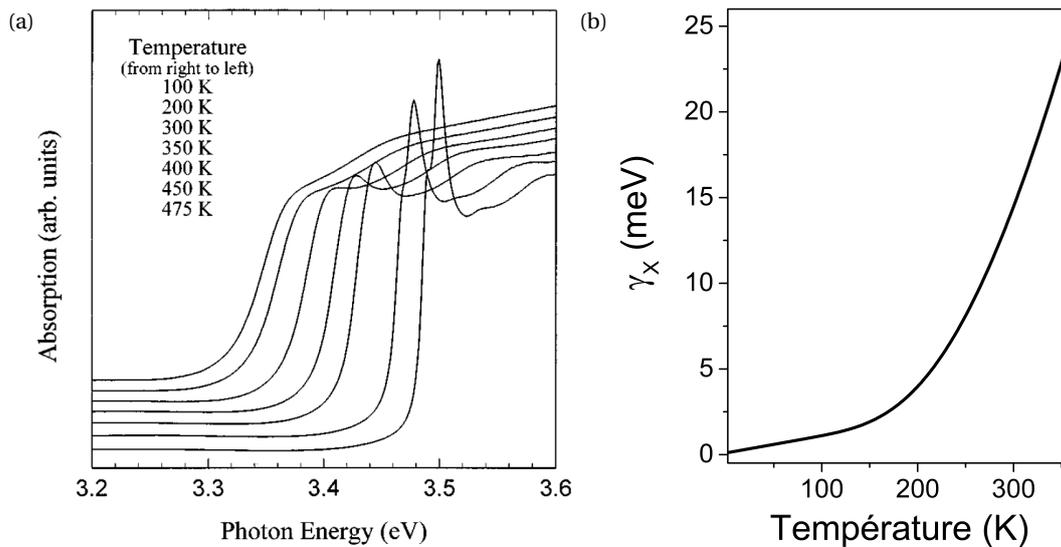


Fig. 2.30 – a) Spectres d’absorption réalisés sur une couche de GaN de 380 nm pour différentes températures [123]. b) Évolution de l’élargissement homogène de l’exciton A en fonction de la température, modélisée par loi de Segall en utilisant les paramètres de la référence [146].

2.6.1 Excitons et hautes températures dans GaN

À la différence de ZnO, l’énergie de liaison des excitons de GaN massif devient inférieure à l’agitation thermique au delà de 300 K. La dissociation des excitons en porteurs libres n’est pas brutale, elle se fait de façon continue [147]. Ainsi, il est possible d’espérer qu’une densité non nulle d’excitons subsiste à 350 K dans GaN. La signature excitonique à cette température est d’ailleurs toujours visible sur des spectres d’absorption, comme on peut le voir sur la figure 2.30a tirée de la référence [123].

L’autre point important est l’augmentation de l’élargissement homogène γ_x des excitons en température. Cette augmentation, modélisée par la loi de Segall en utilisant les paramètres issus de la référence [146], est présentée sur la figure 2.30b. À 350 K, l’élargissement homogène des excitons est égal à 22.9 meV. En considérant, l’élargissement inhomogène d’une dizaine de meV et l’espacement entre l’exciton A et B de 10 meV, on obtient une résonance excitonique possédant un élargissement égal à 29 meV. Le dédoublement de Rabi étant de 82 meV on peut légitimement s’attendre à ce que le régime de couplage fort soit maintenu à cette température élevée, du moins à basse puissance.

2.6.2 Étude du couplage fort à 350 K

La figure 2.31 présente la dispersion de la LPB pour cinq désaccords. Le montage expérimental utilisé est le même qu’à 300 K. L’échantillon est placé dans un cryostat et est chauffé par une résistance à 350 K. De la même façon qu’à 300 K, on observe, pour les différents désaccords, la variation de courbure de la LPB liée au changement de masse effective du polariton. Le changement de courbure est particulièrement marqué entre les désaccords extrêmes, $\delta = -72$ meV et $\delta = +15$ meV, qui correspondent respectivement à des poids photoniques de 83 % et 41 %.

Pour chaque désaccord, des images supplémentaires ont été réalisées à plus basses énergies pour mesurer la position des modes de Braggs du miroir nitrure. Ces informations ont permis d’estimer de façon précise la position du mode de cavité non couplé à l’aide du formalisme des MDTF. Les énergies des excitons A et B à 350 K ont été choisies en adéquation avec les références [59][123] ($E_{XA} = 3319$ meV, $E_{XB} = 3329$ meV, figure 2.9d). La dispersion de la LPB a ensuite pu être reproduite par un modèle quasi-particule qui a permis d’extraire la fraction photonique des polaritons. La variation de courbure en fonction du désaccord est la preuve que le régime de couplage fort est conservé à cette température.

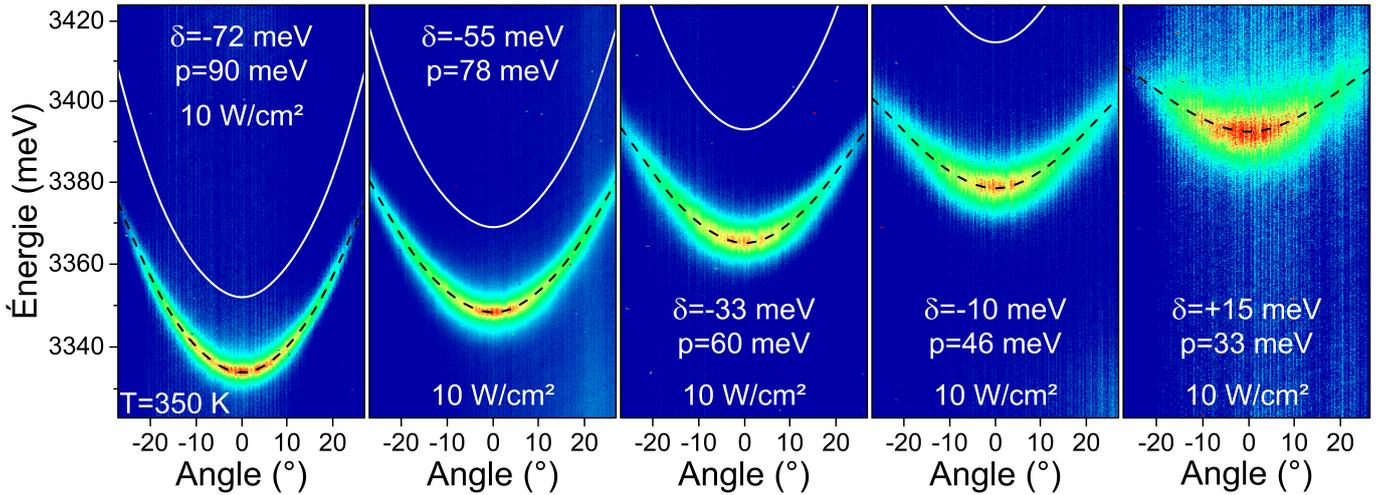


Fig. 2.31 – μ PL résolue en angle présentant l'évolution de la dispersion de la LPB pour cinq désaccords, sur la microcavité GaN, à 350 K. La puissance d'excitation est égale à 10 W/cm^2 . La profondeur des pièges $p = E_X - E_{LPB}$ de chaque désaccord est indiquée. La dispersion de la LPB est reproduite par un calcul quasi-particule (pointillés noirs). La dispersion du mode photonique non couplé est tracée en blanc.

2.6.3 Laser à polaritons à 350 K

Excitation grand spot et imagerie de Fourier

Même si l'excitation grand spot, nécessaire à l'imagerie de Fourier du fait de notre configuration expérimentale (excitation par le côté), est liée à une augmentation des seuils laser à polaritons (section 2.4.2), la photoluminescence résolue en angle est essentielle dans un premier temps pour caractériser le phénomène laser et vérifier que le régime de couplage fort est maintenu au seuil.

La figure 2.32 présente les dispersions au seuil laser pour trois des désaccords de la figure 2.31. Aucun effet laser n'a pu être observé pour les désaccords $\delta = -10 \text{ meV}$ et $\delta = +15 \text{ meV}$, la puissance nécessaire étant supérieure au seuil de dommage du miroir diélectrique. Pour ces désaccords, la profondeur du piège polaritonique est inférieure au double de l'agitation thermique (60 meV) et la déplétion de l'état fondamental est certainement la cause de ces hauts seuils.

La première chose que l'on remarque est la proximité des modes lasers avec le mode photonique non couplé pour les désaccords extrêmes $\delta = -72 \text{ meV}$ et $\delta = -33 \text{ meV}$: les modes lasers sont respectivement situés à 1.7 meV et 3.2 meV du mode photonique estimé à l'aide du formalisme des MDTE. On peut observer que dans le cas du désaccord très négatif, l'émission laser est composée de maximums situés à $\theta = -7^\circ$, $\theta = 0^\circ$, et $\theta = 9^\circ$. Cette structuration particulière de l'émission semble indiquer que le phénomène de condensation a lieu dans un niveau excité d'un piège polaritonique [131] et on peut nettement distinguer la fraction non condensée de la LPB à plus basse énergie. La situation paraît plus favorable pour le désaccord $\delta = -55 \text{ meV}$ où le mode laser est situé à 6.5 meV du mode photonique estimé.

De la même façon que dans la section 2.5.4, il est possible, à partir de ces images et de mesures à basses puissances, d'estimer la renormalisation des forces d'oscillateur des excitons. Encore une fois, la difficulté réside dans la détermination de l'énergie de l'état fondamental de la LPB au seuil. Pour cela, nous travaillerons avec une gamme d'énergie définie à l'aide de la figure 2.32, en augmentant le contraste d'intensité afin de mieux visualiser la fraction non condensée de la LPB. À l'exception du désaccord $\delta = -72 \text{ meV}$ où la condensation a clairement lieu dans un état excité, nous avons choisi de définir l'énergie du mode laser comme limite haute pour cette gamme d'énergie.

Comme attendu, la renormalisation des forces d'oscillateur augmente avec la densité de puissance. Elle est la plus importante pour le désaccord $\delta = -33 \text{ meV}$ qui possède le seuil le plus élevé : sa valeur est estimée entre 73 % et 91 %. Il est important de préciser ici que la transition couplage fort/couplage

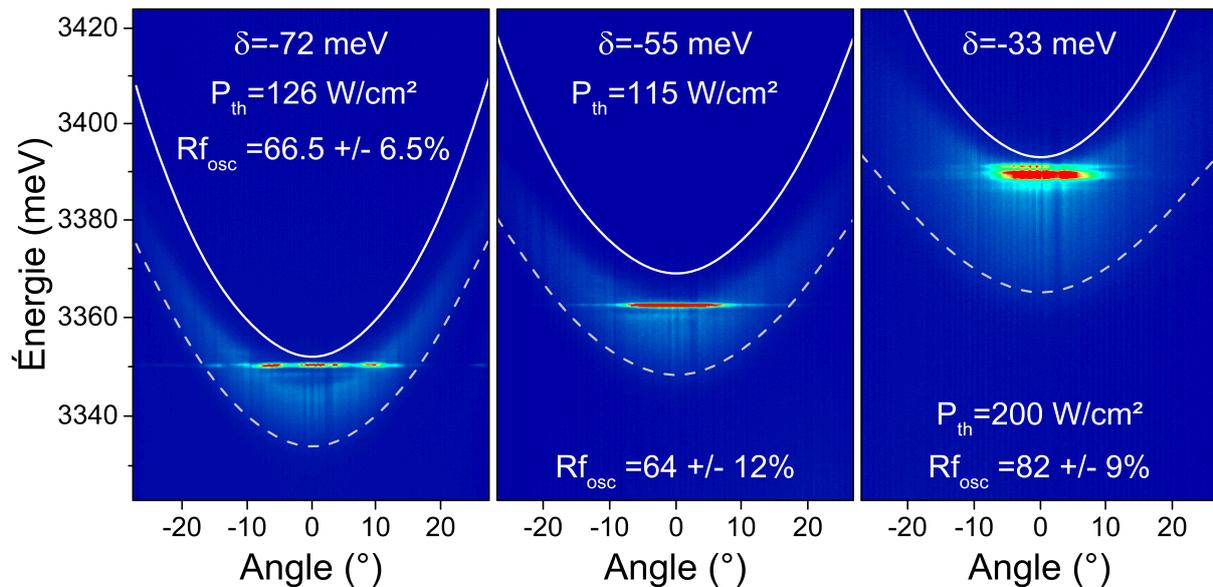


Fig. 2.32 – μ PL résolue en angle présentant la LPB au seuil pour les trois premiers désaccords de la figure 2.31. La dispersion de la LPB mesurée à 10 W/cm² est reportée en pointillés gris. La dispersion du mode photonique non couplé est tracée en blanc. Pour chaque désaccord, les puissances seuils et les pourcentages de renormalisation des forces d’oscillateur Rf_{osc} sont indiqués.

faible est attendue pour une renormalisation des forces d’oscillateur égale à 92.5 % ; pour cette valeur, les élargissements excitoniques deviennent supérieurs au terme de couplage et le dédoublement de Rabi est égal à zéro. La limite haute de 91 % nous indique que le système est très proche de passer en régime de couplage faible.

Pour les deux autres désaccords, la situation est plus favorable. Grâce aux puissances seuils plus faibles, les renormalisations des forces d’oscillateur sont estimées entre 52 % et 76 %.

Ces calculs ne tiennent pas compte de l’éventuelle variation d’énergie des excitons sur l’échantillon causée par la variation de contrainte. Dans le cas d’une sous estimation de l’énergie des excitons A et B, la renormalisation des forces d’oscillateur pourrait aussi être sous-estimée. Au vu de ces éléments, les résultats du calcul effectué à $\delta = -33$ meV incite à la prudence.

Pour chaque désaccord, la dispersion de la LPB mesurée à 10 W/cm² est reportée en gris, afin de servir de point de comparaison. Pour les trois images, la courbure de la dispersion polaritonique est similaire à celle mesurée à plus faible puissance. Le changement de courbure attendu avec la renormalisation du Rabi et l’éventuelle transition vers le couplage faible n’est pas visible et ce même pour le point le plus positif, où la courbure est très différente de celle du mode photonique calculé.

Au vu de l’évolution de la courbure des dispersions, il paraît raisonnable d’affirmer que le couplage fort est maintenu au seuil pour les trois désaccords. L’effet laser correspond donc à la condensation de polaritons. En revanche, les valeurs élevées de renormalisation des forces d’oscillateur calculées nous signale que la transition du régime de couplage fort au régime de couplage faible est proche, notamment lorsque la puissance seuil est de 200 W/cm².

Cette transition couplage fort/couplage faible et laser à polaritons/laser à photons a déjà pu être observée dans des microcavités GaAs [148], InGaAs [149] et ZnO [150]. Dans ces trois références, la transition est très marquée et est caractérisée par l’apparition de la dispersion du mode photonique non couplé. Dans notre cas, nous n’avons jamais observé une telle apparition et les dispersions polaritoniques au seuil ont chacune une courbure plus marquée que celle du mode photonique. Cependant, il serait très intéressant de reproduire cette expérience en ajoutant un diaphragme dans le plan image de l’échantillon (figure 2.2), afin de filtrer l’émission dans l’espace réel et de limiter les effets de cohabitation spatiale.

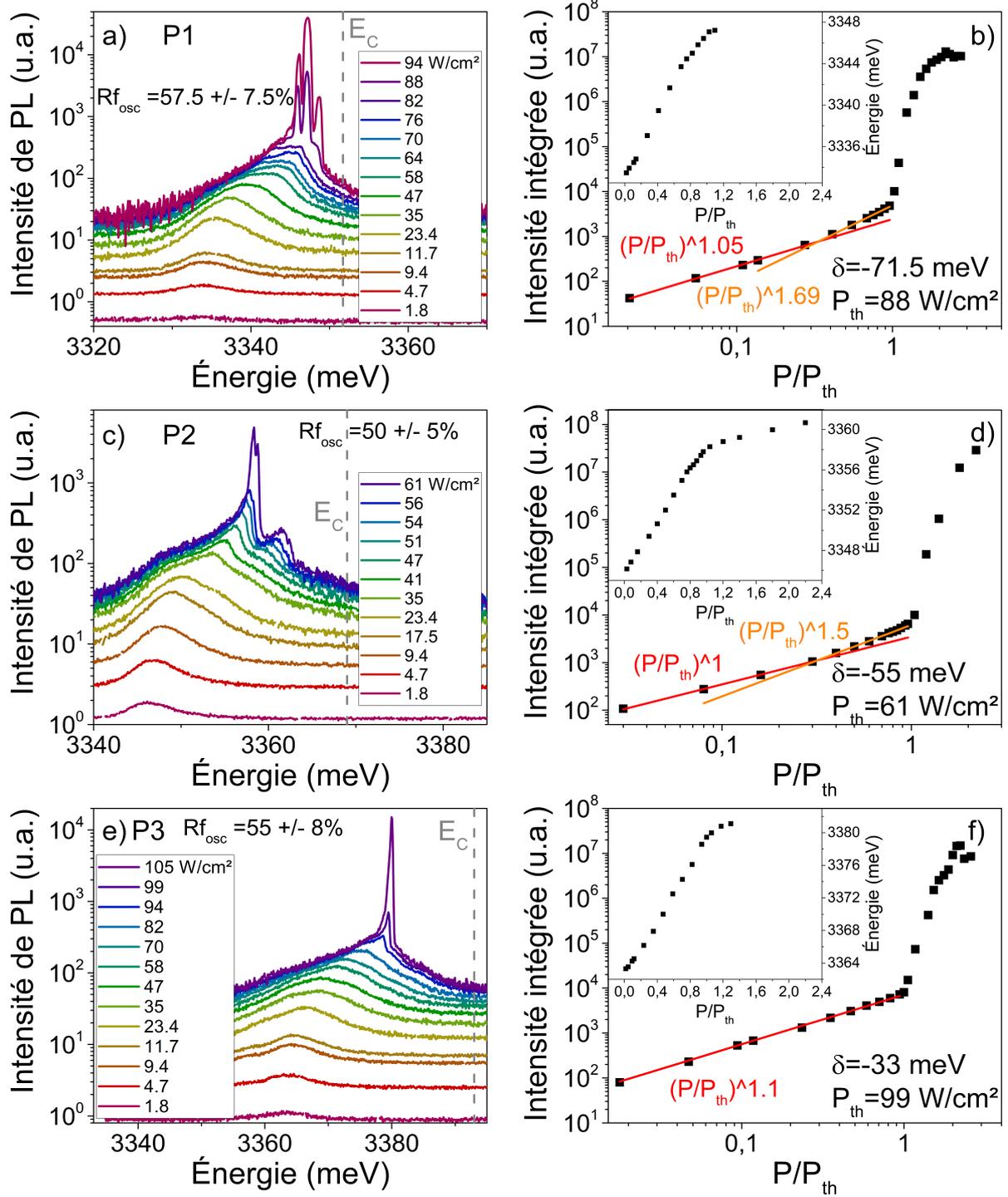


Fig. 2.33 – a) Spectres de μ PL enregistrés sur la cavité GaN à 350 K pour $\delta = -71.5$ meV. L'intensité intégrée en fonction de la puissance d'excitation est reportée sur la figure b) ainsi que le blueshift de la LPB (insert). c)d) Idem pour $\delta = -55$ meV. e)f) Idem pour $\delta = -33$ meV. Le spot d'excitation est de 14 μ m. Les pourcentages de renormalisation des forces d'oscillateur Rf_{osc} et les seuils sont indiqués pour chaque désaccord.

Excitation avec spot optimal et diagrammes de phase

Afin d’avoir accès aux seuils les plus bas possibles, il est nécessaire de réduire la taille du spot d’excitation à sa taille optimale (14 μm). Dans un premier temps, nous avons réalisé une étude en puissance pour des désaccords équivalents à ceux de la figure 2.3a. Ces puissances, nommées P1, P2, et P3, sont présentées sur les figures 2.33a,c,e. Afin de gagner en lisibilité, les spectres correspondant aux densités de puissances situées au delà du seuil laser à polaritons n’ont pas été reportés, l’émission étant marquée par un fort caractère multimode dû au désordre photonique.

Grâce à la réduction du spot d’excitation, les densités de puissance nécessaires au régime laser à polaritons sont globalement divisées par un facteur 2. Cette dépendance prononcée du seuil laser avec la taille d’excitation est propre aux polaritons et à la compétition entre les différentes LPBs. Grâce à la réduction des seuils, la renormalisation des forces d’oscillateur est beaucoup moins importante. Par exemple, la renormalisation au désaccord le moins négatif, $\delta = -33$ meV, passe de 82 % +/- 9 % à 55 % +/- 8 %.

Sur chacune des puissances, on peut observer le blueshift continu de la LPB jusqu’au seuil laser. Celui-ci est reporté dans les inserts des figures 2.33b,d,f. De la même façon qu’à 300 K, le blueshift de la LPB ralenti une fois le seuil passé, signe du verrouillage du réservoir excitonique. L’aspect multimode de l’émission est déjà visible sous le seuil notamment pour les puissances P1 et P2.

On peut aussi remarquer que, pour chacune des puissances, l’évolution de l’intensité intégrée aux faibles puissances d’excitation est majoritairement linéaire. La population de porteurs libres étant majoritaire vis-à-vis des excitons à 350 K, cette évolution peut être liée aux interactions polariton-porteurs libres. Pour les désaccords $\delta = -71.5$ meV et $\delta = -55$ meV, l’évolution devient plus quadratique que linéaire aux abords du seuil, signe des interactions polariton-polariton. Le seuil laser est marqué par une forte non linéarité : l’intensité intégrée augmente de plus de trois ordres de grandeur de P_{th} à $2P_{th}$. La diminution de l’intensité intégrée visible au dessus de 230 W/cm^2 sur la figure 2.33f signifie que le seuil de dommage du miroir supérieur diélectrique est dépassé.

L’ensemble des seuils laser à polaritons mesurés à 350 K avec le spot optimal (carrés rouges) sont reportés sur la figure 2.34a, avec comme point de comparaison le diagramme de phase mesuré à 300 K. Les seuils mesurés avec le large spot sont aussi indiqués (triangles bleus). En comparant les diagrammes, on observe que l’augmentation de la température de 300 K à 350 K est marquée par plusieurs changements. L’étendue des désaccords accessibles diminue de 74 meV à 47 meV. Cette

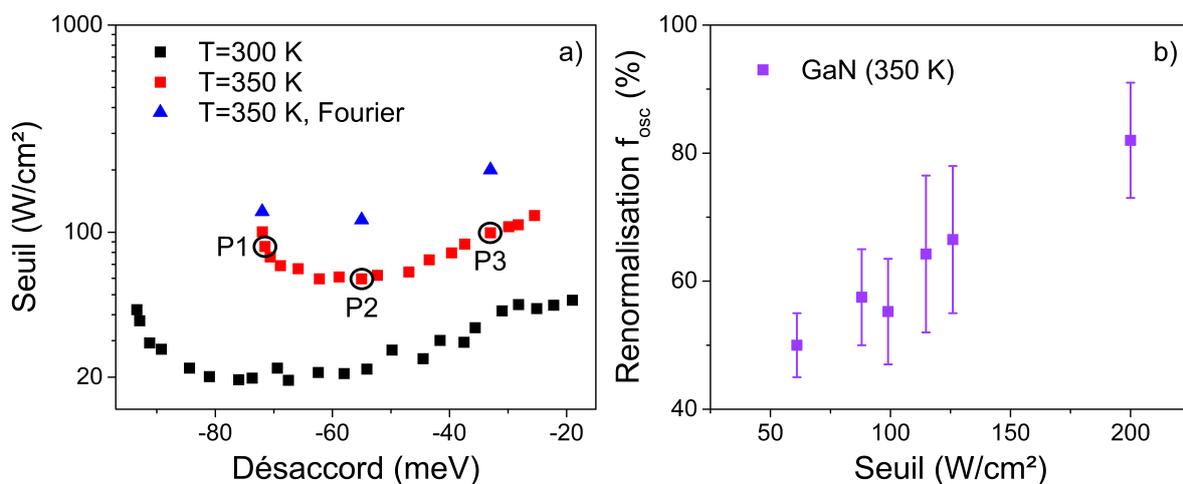


Fig. 2.34 – a) Diagrammes de phase de la microcavité GaN à 300 K et 350 K réalisés avec un spot d’excitation de 14 μm de diamètre (carrés). Les triangles correspondent aux seuils mesurés avec le grand spot d’excitation (figure 2.32). b) Renormalisation des forces d’oscillateur excitoniques calculées à l’aide du formalisme des MDTF en fonction de la puissance au seuil dans GaN à 350 K. Les points sont issus des trois puissances P1, P2, et P3 de la figure 2.33 et des images de Fourier de la figure 2.32.

réduction, qui touche majoritairement le régime cinétique, est liée à la forte diminution de l'énergie des excitons en température couplée à la faible variation de l'énergie du mode photonique nu. Le désaccord le plus négatif passe ainsi de $\delta = -93$ meV à $\delta = -72$ meV soit une variation de 21 meV qui est en très bonne adéquation avec la variation de 20 meV des excitons de 300 K à 350 K. Comme à 300 K, les désaccords les plus faibles sont très proches des modes de Bragg du miroir nitrure qui sont responsables de la fuite des polaritons. Contrairement à ce qui est attendu, l'amélioration des processus de relaxation avec la température, notamment dans notre cas où la relaxation assistée par les porteurs libres est favorisée, n'induit pas un redshift du désaccord optimal. Au contraire, ce dernier se décale de 11 meV vers les hauts désaccords. Ce comportement est directement lié à l'impossibilité d'accéder aux LPBs très photoniques couplée au régime cinétique aggravé.

La figure 2.34b recense les pourcentages de renormalisation des forces d'oscillateur calculés à partir des figures 2.32 et 2.33. Sans surprise, on constate une augmentation de la renormalisation avec la puissance au seuil. Les renormalisations calculées à partir des puissances P1, P2, et P3, comprises entre 45 % et 55 %, permettent d'affirmer que le régime de couplage fort est conservé au seuil pour l'ensemble des points du diagramme de phase réalisés avec le spot de diamètre optimal à 350 K.

Chapitre 3

Laser à polaritons dans des géométries guidantes

Sommaire

3.1 Introduction sur les polaritons guidés	86
3.1.1 Guides d'ondes <i>versus</i> microcavités	86
3.1.2 État de l'art	86
3.2 Présentation des structures	87
3.2.1 Croissance et particularité structurelle	87
3.2.2 Étude de la couche active	88
3.2.3 Modes guidés des structures	91
3.2.4 Détection des modes guidés	92
3.3 Couplage fort et laser à polaritons horizontal	93
3.3.1 Couplage fort	93
3.3.2 Cavités horizontales	94
3.3.3 Laser à polaritons horizontal	96
3.3.4 Évolution en puissance au-delà du seuil	100
3.3.5 Influence de la taille de la cavité	103
3.3.6 Amplification polaritonique	104
3.3.7 Évolution en température	106
3.4 Compétitions entre lasers à polaritons vertical et horizontal dans les microcavités	107

Ce chapitre est dédié à l'étude de l'effet laser à polaritons dans des structures guidantes. La première section introduit les notions fondamentales concernant les polaritons guidés, leurs spécificités par rapport aux polaritons de microcavité et dresse l'état de l'art. Les deux structures étudiées et leurs propriétés excitoniques et photoniques sont présentées dans la deuxième section. La méthode de détection des modes guidés y est aussi détaillée. La troisième section se focalise sur la démonstration du couplage fort et l'étude des effets non-linéaires tels que l'effet laser à polaritons et l'amplification polaritonique. L'origine de l'effet laser dans ces géométries où il n'y a pas d'état fondamental est expliquée. Par opposition au régime laser à polaritons vertical dans les microcavités, on parlera de laser à polaritons horizontal dans les structures guidantes. La quatrième section propose une étude préliminaire de la compétition entre les phénomènes laser à polaritons vertical et horizontal qui peut avoir lieu dans les microcavités.

3.1 Introduction sur les polaritons guidés

3.1.1 Guides d'ondes *versus* microcavités

Les polaritons guidés résultent du couplage fort entre les excitons d'une couche active et un ou plusieurs modes photoniques confinés par réflexion totale interne. La géométrie guidante présente plusieurs avantages vis à vis des microcavités. L'utilisation de la réflexion totale interne permet d'améliorer le confinement du champ électromagnétique et le recouvrement avec les résonances excitoniques, ce qui permet d'avoir, pour une même épaisseur de couche active, un dédoublement de Rabi plus important. Cet avantage est particulièrement marqué dans notre cas, où le faible contraste d'indice des DBRs nitrures de nos microcavités mène à une pénétration du champ dans le miroir importante. Contrairement aux microcavités, où le mode photonique est extrêmement dépendant des épaisseurs des couches des miroirs et de la couche active, les modes guidés ne sont que faiblement sensibles à la variation d'épaisseur de la couche guidante. Peu importe les éventuels fluctuations d'épaisseurs lors de la croissance, les modes guidés seront obligatoirement en résonance avec les excitons à un certain vecteur d'onde. La réalisation d'un guide d'onde est donc beaucoup moins contraignante que celle d'une microcavité. D'un point de vue technologique, l'avantage des guides se traduit aussi par une gravure et une injection électrique plus simple que sur une microcavité. Les guides d'ondes opèrent naturellement à grands vecteurs d'onde et à des vitesses de groupes élevées, ce qui confère la capacité aux polaritons guidés de se propager sur de grandes distances durant leur temps de vie. Ces propriétés les rendent particulièrement intéressants pour la création de circuits tout-optique, basses consommations et compacts : switches, transistors et circuits logiques. Durant les dernières années, les efforts pour réaliser ces composants se sont principalement concentrés sur les polaritons de microcavités [23][151][22]. Ces travaux sont basés sur un flot de de polaritons ayant quelques meV d'énergie cinétique et se propageant à des vitesses de l'ordre de 1-2 $\mu\text{m}/\text{ps}$. Au vu des faibles vitesses de groupe, inhérentes aux modes radiatifs des microcavités, l'utilisation de microcavités possédant des facteurs de qualité très élevés ($Q=100000$) est indispensable. C'est pourquoi l'essentiel de ces recherches ont été menées sur des microcavités GaAs à des températures cryogéniques. Les facteurs de qualité dans les microcavités GaN et ZnO étant limités à seulement quelques milliers, la géométrie guidante appliquée à ces matériaux apparaît comme une solution idéale pour la réalisation de composants polaritoniques à température ambiante.

3.1.2 État de l'art

Le tableau 3.1 dresse une liste de structures qui ont récemment permis l'observation du régime de couplage fort avec des polaritons guidés. Deux méthodes de détection sont disponibles pour l'observation des modes de propagation à grands vecteur d'onde : l'utilisation de réseaux de diffraction gravés sur la surface de l'échantillon ou d'un prisme en configuration Kretschmann [156]. Les modes guidés sont soit confinés par réflexion totale interne (guide d'onde), soit localisés à l'interface entre un cristal photonique 1D tronqué (miroir de Bragg) et un milieu diélectrique semi-infini. La deuxième

Matériau	Géométrie (détection)	d_c (nm)	Rabi (meV)	v_g ($\mu\text{m}/\text{ps}$)	T (K)
J-aggregate [152]	Guide d'onde (Prisme)	230	100-200	-	300
GaAs [153]	Guide d'onde (Réseau de diffraction)	135	9	26	10
Lumogen Red F305 [154]	Onde de surface de Bloch (Prisme)	35	186	120	300
GaN [155]	Guide d'onde (Réseau de diffraction)	130	63 (48)	40	4 (300)

TABLEAU 3.1 – Liste non-exhaustive des structures guidantes récentes ayant permis de démontrer le régime de couplage fort.

configuration utilise les ondes de surface de Bloch (ou BSW pour "Bloch surface wave") [157]. Ces modes sont confinés par la réflexion totale interne du côté du milieu diélectrique et par le gap photonique lié au miroir de Bragg. Les dispersions des BSWs sont donc intimement liées au miroir de Bragg de la structure et sont comprises dans le gap photonique [156]. Le champ électromagnétique étant confiné près de la surface de l'échantillon, ces structures sont très sensibles aux perturbations de la surface et présentent un intérêt pour des applications de détection [158][159], mais aussi pour la propagation de polaritons, notamment en raison des processus de fabrication simples, qui se prêtent bien au dépôt de couche fine de matériaux organiques [160][161][154].

Les forces d'oscillateur élevées des excitons inorganiques et des excitons de GaN ont permis d'atteindre des Rabi assez élevés pour observer le couplage fort à température ambiante. Les vitesses de groupe des polaritons sont d'un à deux ordres de grandeur plus importantes que dans les microcavités, ce qui permet d'atteindre des distances de propagation de plusieurs centaines de micromètres. La faible valeur du Rabi de 9 meV du guide d'onde GaAs a limité les résultats à 10 K, cependant, les fortes interactions polariton-polariton ont permis d'observer sous excitation résonante la génération de solitons brillants temporels à l'échelle de la picoseconde et à très faible puissance d'excitation [153][162]. Des effets non-linéaires comme le blueshift du mode polaritonique sous excitation résonante ont aussi été observés dans la structure supportant les BSWs, à température ambiante [154]. Ces deux résultats demeurent, pour l'instant, les seules observations d'effets non-linéaires dans des structures guidantes. Des effets comme l'amplification des modes polaritoniques, telle qu'observée pour les modes radiatifs dans les microcavités GaAs [20], ou le laser à polaritons, n'ont toujours pas été observés expérimentalement pour les modes guidés, même s'ils demeurent possibles théoriquement [163].

3.2 Présentation des structures

3.2.1 Croissance et particularité structurelle

Les deux guides d'ondes que nous avons étudiés ont été déposés par MBE sur des substrats ZnO orientés suivant le plan m (10-10). Les figures 3.1a et 3.1b détaillent la structure des deux échantillons. Le premier est une demi-cavité comprenant un DBR de 30 paires $\lambda/4$ ZnO/Zn_{0.77}Mg_{0.23}O et une couche active de 130 nm de ZnO et le second est un guide plan constitué d'une couche tampon de 1 μm de Zn_{0.74}Mg_{0.26}O, d'une couche active de 50 nm de ZnO et d'une couche supérieure Zn_{0.74}Mg_{0.26}O de 100 nm.

Les deux échantillons ont la particularité de présenter des fissures régulièrement espacées qui traversent la structure sur plusieurs centaines de nanomètres. L'espacement moyen entre les fissures est de 25 μm mais il peut localement descendre à 5 μm ou augmenter jusqu'à 100 μm . Ces fissures sont parallèles, à la fois dans la direction de croissance (figure 3.2a) et dans le plan de l'échantillon (figure 3.2b), et sont perpendiculaires à l'axe c. Pour expliquer cette disposition particulière, il est nécessaire de se pencher sur le comportement des paramètres de mailles a et c de l'alliage ZnMgO en fonction de l'incorporation de Mg.

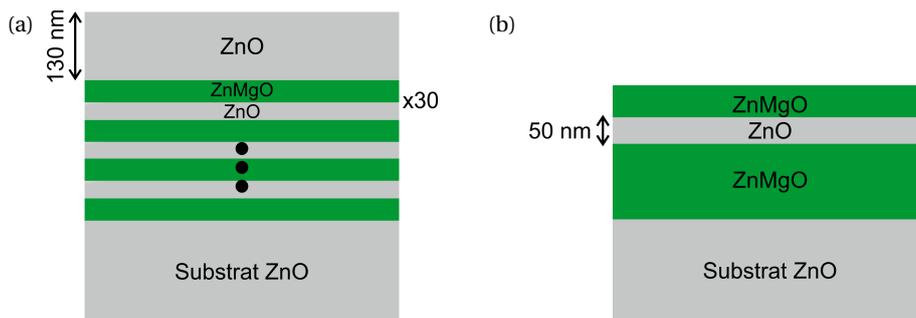


Fig. 3.1 – Schémas des structures étudiées : a) demi-cavité b) guide d'onde plan.

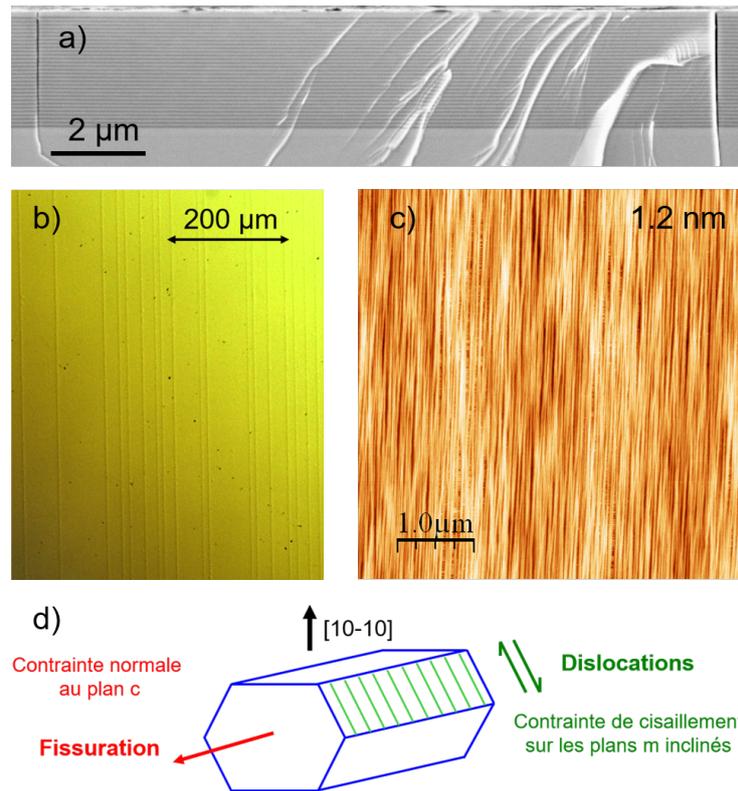


Fig. 3.2 – a) Coupe transversale de la demi-cavité réalisée au microscope électronique en transmission. Deux fissures sont présentes aux extrémités de l'image. b) Image de la surface de la demi-cavité réalisée au microscope optique. c) Image de la surface de la demi-cavité au microscope à force atomique. La rugosité quadratique moyenne est indiquée. d) Schéma représentant les contraintes agissant sur la maille primitive de ZnMgO.

L'alliage $Zn_{1-x}Mg_xO$ cristallise en phase wurtzite tant que le pourcentage x de Mg est inférieur à 55 [164]. Contrairement aux alliages AlGaIn et InGaIn dont les paramètres de mailles a et c augmentent ou diminuent suivant la composition de l'alliage, les paramètres de maille a et c de ZnMgO n'ont pas le même comportement suivant l'incorporation de Mg : a augmente tandis que c diminue [165]. Ainsi, une couche de ZnMgO épitaxiée sur un substrat ZnO plan m subira une contrainte compressive ou extensive suivant l'axe a ou c dans le plan de croissance (figure 3.2d). D'après les calculs issus de la référence [165], la contrainte en tension (normale à l'axe c) responsable de la fissuration des couches est trois fois plus importante que la contrainte de cisaillement. Dans notre cas, pour une composition de Mg approchant 25 %, l'épaisseur critique de fissuration est de 300 nm. Les fissures apparaissent pendant la croissance et le refroidissement de l'échantillon. Comme on peut le voir sur l'image AFM de la figure 3.2c, la surface des échantillons présente une morphologie en strie, constituée de traits allongés suivant l'axe c . La rugosité quadratique moyenne mesurée sur une surface de $5 \times 5 \mu m^2$ est de 1.2 nm. Cette valeur est commune aux deux échantillons.

3.2.2 Étude de la couche active

Contrairement aux microcavités du chapitre 2, les structures guidantes sont épitaxiées sur plan m et l'axe c n'est plus forcément perpendiculaire au champ électrique E . Il est donc nécessaire de polariser l'émission. Les fissures servent de point de repère : en polarisation TE, le champ E est perpendiculaire à l'axe c et parallèle aux fissures, et, en polarisation TM, le champ E est parallèle à l'axe c et perpendiculaire aux fissures.

La figure 3.3a présente un spectre de μPL enregistré en un même point de la demi-cavité, pour les deux polarisations. La figure 3.3b est un zoom sur les excitons. Les spectres sont dominés par l'émission

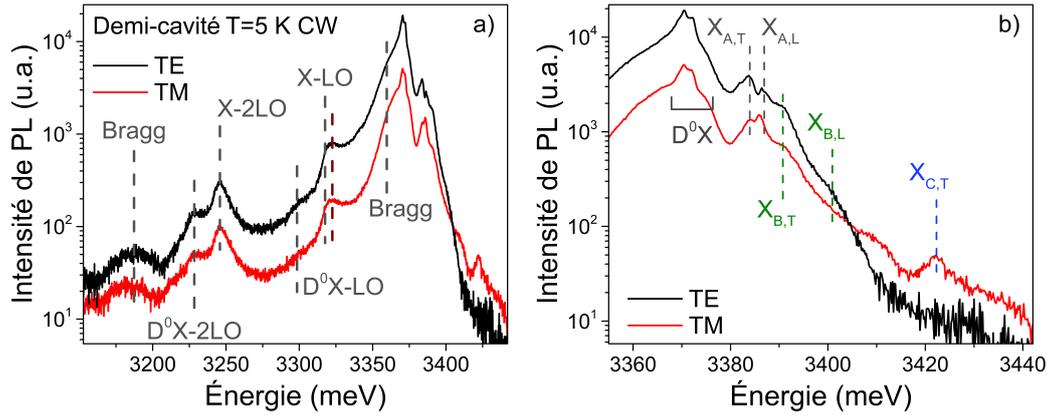


Fig. 3.3 – a) Spectres de μ PL polarisés, réalisés sur la demi-cavité à 5 K avec le laser 266 nm continu. La réponse en polarisation du spectromètre n'est pas prise en compte. Les pics à basses énergies sont identifiés. b) Zoom sur la partie excitonique des spectres de a).

sion des excitons liés aux donneurs neutres à 3370.4 meV. Par comparaison, pour une couche massive de ZnO non contraint, le maximum d'émission des excitons liés se situe à 3360.8 meV [55][166]. Cette différence de 10 meV nous indique que le ZnO des couches actives des échantillons étudiés est en compression.

Nous avons vu dans la section 1.2.2 que les règles de sélection excitoniques dépendent de la polarisation et que les forces d'oscillateur des excitons sont modifiées en présence d'une contrainte. Dans le cas de ZnO plan m, aucune description de l'évolution des forces d'oscillateur n'est encore disponible dans la littérature. Nous rappellerons donc ici, pour servir de base à l'interprétation des spectres de photoluminescence, les règles associées au cas de ZnO plan c non contraint :

- en polarisation TE ($\vec{E} \perp \vec{c}$), les transitions excitoniques A, B, et C sont autorisées. Les forces d'oscillateur des excitons A et B sont élevées tandis que celle de C est très faible.
- en polarisation TM ($\vec{E} \parallel \vec{c}$), les transitions excitoniques A et C sont autorisées. La force d'oscillateur de l'exciton C est élevée, tandis que celle de A est faible et celle de B très faible.

En raison du caractère polaritonique des excitons, deux raies d'émissions sont visibles pour A, B et C, chacune correspondant au mode transverse ou longitudinal des excitons :

- le mode transverse de l'exciton A ($X_{A,T}$) est situé à 3383.9 meV et l'éclatement longitudinal-transverse (éclatement LT) est de 3 meV.
- le mode transverse de l'exciton B ($X_{B,T}$) est situé à 3390.7 meV et l'éclatement LT est de 10 meV.
- le mode transverse de l'exciton C ($X_{C,T}$) est situé à 3422.3 meV (le spectre ne permet pas de positionner précisément le mode longitudinal).

Avant de comparer ces valeurs avec la littérature, il est intéressant de comparer les différences en polarisation. Conformément aux règles énoncées ci-dessus, les raies liées à l'exciton C ne sont visibles qu'en polarisation TM et celles des excitons A et B sont visibles en polarisation TE. Cependant, on peut remarquer un épaulement marqué à l'énergie de l'exciton B pour la polarisation TM. Des mesures de réflectivités sont donc nécessaires pour confirmer si cet épaulement est lié à l'exciton B. Hélas, celles-ci sont uniquement possibles sur le guide d'onde en raison du couplage fort des excitons avec les modes de Bragg supérieurs du miroir ZnO/ZnMgO de la demi-cavité qui empêche toute interprétation.

D'après la référence [166], où plusieurs échantillons de ZnO plan c non-contraints ont été étudiés, les énergies des excitons $X_{A,T}$, $X_{B,T}$ et $X_{C,T}$ sont respectivement égales à 3375.5 meV, 3381.2 meV et 3423 meV. Dans la même référence, les éclatements LT des excitons A et B mesurés sont égaux à 1.9 meV et 9.3 meV. Il semblerait donc que la contrainte compressive, dans notre configuration, ne modifie que les bandes de valence A et B. De la même façon, les éclatements LT que l'on mesure sont légèrement

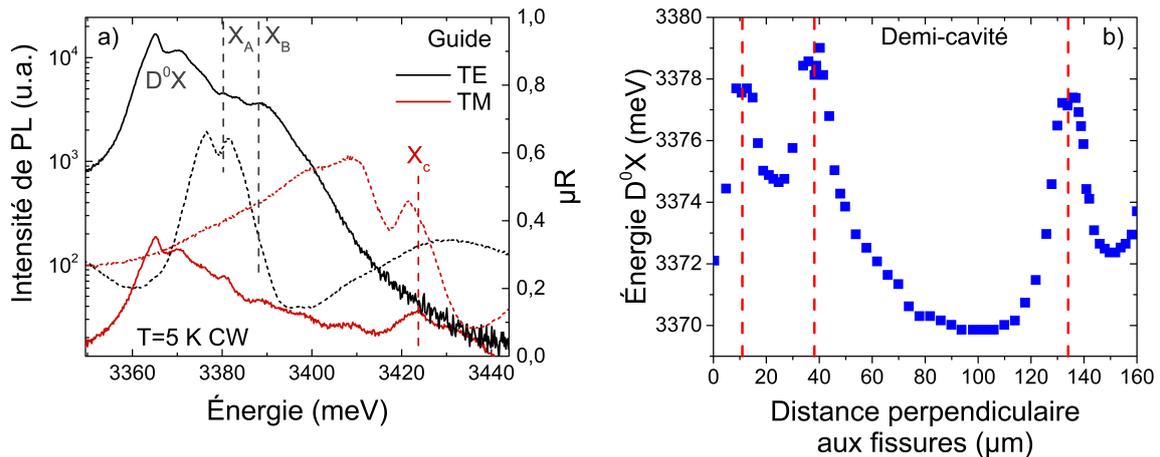


Fig. 3.4 – a) Spectres de μPL (traits pleins) réalisés sur le guide à 5 K avec le laser 325 nm continu couplés aux spectres de micro-réflexivité (pointillés). b) Énergie du pic des excitons liés aux donneurs D^0X de la demi-cavité en fonction de la distance dans la direction perpendiculaire aux fissures. Les positions des fissures sont repérées par les traits pointillés rouges.

supérieurs. De futurs calculs sont nécessaires pour mieux appréhender les effets de la contrainte dans la configuration plan m.

Les spectres de la figure 3.3a, centrés sur une gamme d'énergie plus étendue, sont marqués par les transitions associées aux répliques 1 LO et 2 LO. Le pic marqué par le trait pointillé rouge, dont l'énergie est égale à 3322 meV n'a pas pu être identifié. Il ne correspond pas aux répliques à deux électrons (TES) des excitons liés dont l'énergie devrait être environ égale à 3331 meV, ni à une réplique 1 LO liés aux excitons. Il est possible que ce pic corresponde à des excitons liés à des défauts structuraux [167].

La figure 3.4a présente des mesures de μPL réalisées sur le guide d'onde couplées à des mesures de micro-réflexivité (μR). Conformément aux règles de sélection énoncées, on remarque sur les spectres de μR que les transitions excitoniques A et B sont marquées en polarisation TE (traits pointillés noirs) tandis que celle liée à l'exciton C n'est visible qu'en polarisation TM (traits pointillés rouges). Aucune transition n'est visible aux énergies des excitons A et B pour la polarisation TM. De futures mesures de μPL et μR en température sont donc nécessaires pour affiner la compréhension du spectre de μPL en polarisation TM.

Pour nos deux structures, les excitons A et B sont caractérisés par une énergie supérieure à celle attendue dans le cas de ZnO non-contraint. Cette différence d'énergie, proportionnelle à l'état de contrainte de la couche, n'est pas constante et dépend de la position sur l'échantillon. Un bon moyen de sonder cet état de contrainte consiste à suivre l'évolution des excitons libres ou des excitons liés. La figure 3.4b présente la variation d'énergie du pic D^0X en fonction de la position sur l'échantillon, dans la direction parallèle à l'axe c (perpendiculaire aux fissures). L'énergie de D^0X atteint un maximum local (3378 meV) au niveau des fissures, dont la position est marquée par les traits pointillés rouges, et un minimum local à mi-distance. Ce minimum est d'autant plus bas en énergie que la distance entre les fissures est élevée.

L'état de contrainte dépend donc de la distance aux fissures : la contrainte est maximale au niveau de ces dernières et diminue sur une échelle de 20-30 μm lorsque l'on s'en éloigne. Ceci est en opposition totale avec ce qui a été observé sur les microcavités du chapitre 2, où les bords des mesas et les fissures jouaient le rôle de surface libre permettant le relâchement de la contrainte. Cette évolution atypique peut s'expliquer par la relaxation de la contrainte de tension de la couche de ZnMgO au niveau des fissures qui impliquerait la mise en compression de la couche de ZnO épitaxiée.

3.2.3 Modes guidés des structures

Le guide plan a été conçu de manière à supporter un mode de propagation TE et TM. Nous allons par la suite uniquement nous concentrer sur le mode TE_0 , ce dernier étant le mieux confiné dans la couche de ZnO. La figure 3.5a présente la dispersion de la LPB issu du couplage fort entre le mode TE et les excitons A et B. La dispersion est calculée à l'aide du formalisme des matrices S [83]. L'indice de ZnMgO a été mesuré par ellipsométrie et les épaisseurs des couches ont été déterminées par des mesures de microscope électronique en transmission combinées à des images de réflectivité des rayons X. Pour modéliser l'indice de ZnO, nous nous sommes basés sur les forces d'oscillateur et les élargissements mesurés sur une couche de ZnO massif plan c [55]. L'orientation plan m implique la biréfringence de ZnO comme de ZnMgO, cependant, nous étudierons ici seulement le cas où le mode guidé se propage parallèlement à l'axe c, et nous utiliserons l'indice ordinaire.

Le dédoublement de Rabi du guide est estimé à 193 meV. Par comparaison, le Rabi du mode guidé TM_0 , moins bien confiné, n'est que de 141 meV. Le profil du champ électrique dans le guide est tracée sur la figure 3.5b. L'utilisation de la couche supérieure de ZnMgO n'est pas optimale pour le confinement du champ mais est nécessaire pour la future gravure des réseaux de diffraction.

Avant de présenter les calculs réalisés pour la demi-cavité, il est important de noter que cet échantillon était, à l'origine, destiné à devenir une microcavité. Il n'a donc pas été optimisé en tant que structure guidante, même si, *in fine*, il supporte comme le guide plan un mode guidé TE et TM. La demi-cavité a été réalisée pendant la première série de croissance d'échantillons homoépitaxiés lancée au CRHEA, un an avant la série relative aux guides d'onde, et a initié notre activité sur les modes guidés polaritoniques.

Encore une fois, nous nous concentrerons uniquement sur le mode guidé TE_0 dont la dispersion est présentée sur la figure 3.6a. L'épaisseur plus importante de la couche guidante de la demi-cavité permet d'atteindre un dédoublement de Rabi de 249 meV. Le confinement du mode est tracé sur la figure 3.6b. À la différence des structures des références [154][160][161], le miroir de Bragg de notre demi-cavité ne joue ici que le rôle de support et la position du gap photonique n'a aucune influence sur le confinement du mode propagatif. Le mode TE_0 est donc bien un mode confiné par réflexion totale interne et non un mode de surface de Bloch. L'obtention d'un tel mode de surface demeure possible mais aurait nécessité un design spécifique, notamment au niveau de l'ordonnement des couches et des épaisseurs des couches supérieures.

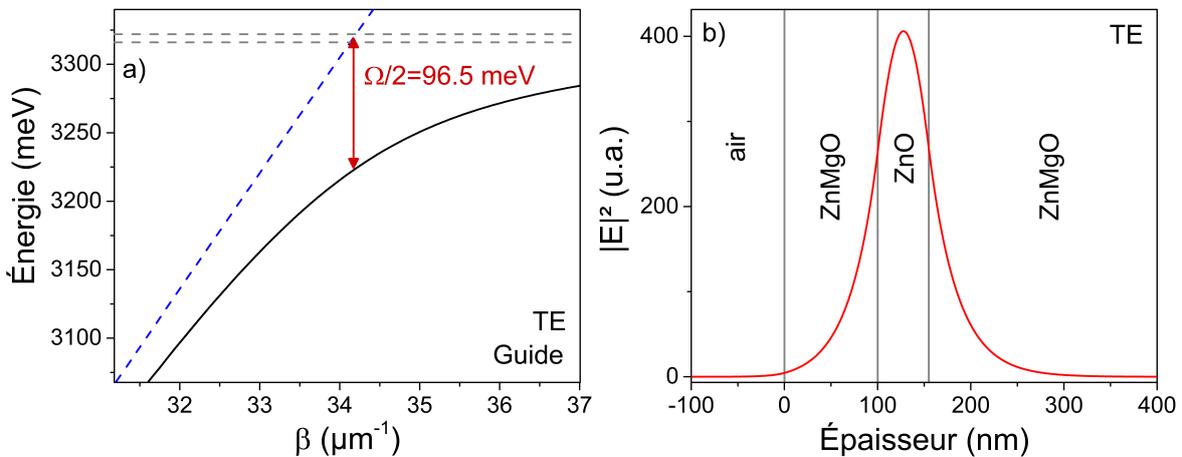


Fig. 3.5 – Guide d'onde. a) Relation de dispersion de la LPB issue du couplage fort entre le mode TE_0 (pointillés bleus) et les excitons (pointillés gris). Le demi Rabi est mesuré au désaccord nul. b) Répartition du module au carré du champ électrique du mode TE_0 en fonction de la position dans la structure, à $\lambda=378$ nm.

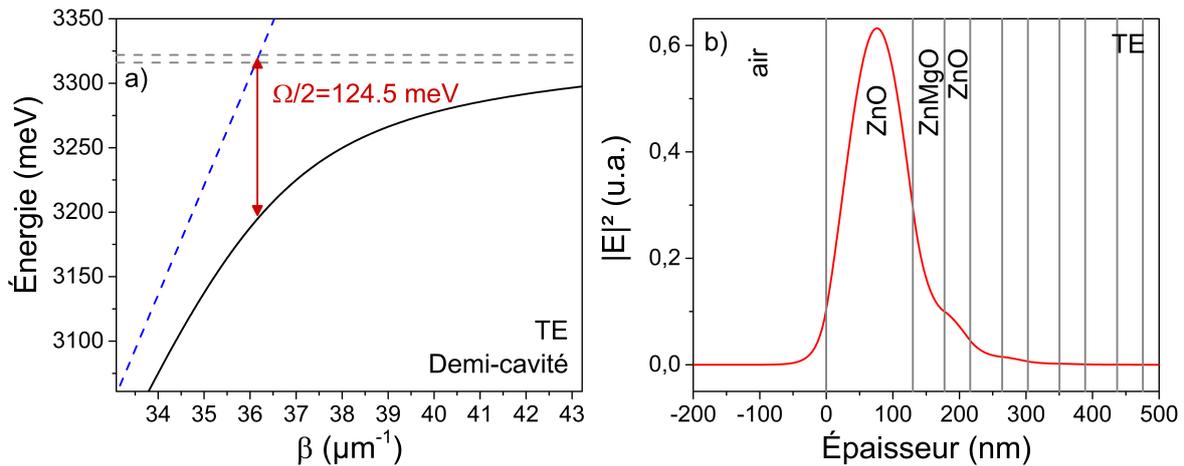


Fig. 3.6 – Demi-cavité. a) Relation de dispersion de la LPB issue du couplage fort entre le mode TE_0 (pointillés bleus) et les excitons (pointillés gris). Le demi Rabi est mesuré au désaccord nul. b) Répartition du module au carré du champ électrique du mode TE_0 en fonction de la position dans la structure, à $\lambda=378$ nm.

3.2.4 Détection des modes guidés

Les modes guidés étant des modes non-radiatifs, il est nécessaire pour les détecter expérimentalement d'avoir recours à des dispositifs de découplage de la lumière. Dans le cas du guide d'onde, des réseaux de diffraction en SiO_2 ont été déposés par lithographie à faisceau d'électrons. Les réseaux possèdent une période Λ comprise entre 180 nm et 220 nm, un facteur de remplissage de 50 % et s'étendent sur des surfaces de $100 \times 100 \mu\text{m}^2$. Les traits des réseaux sont orientés de façon parallèle aux fissures comme on peut le voir sur la figure 3.7a.

Les modes guidés à proximité du réseau de diffraction voient leur constante de propagation décalée par une quantité $2\pi n/\Lambda$ où n est l'ordre de diffraction du réseau. Ainsi, en choisissant la bonne période Λ , il est possible de ramener le vecteur d'onde du mode guidé dans le cône de lumière. Dans notre cas, l'ordre de diffraction est égal à 1 et l'angle d'émission θ du mode guidé est relié à la constante de propagation par la relation :

$$k \sin(\theta) = \beta - \frac{2\pi}{\Lambda}. \quad (3.1)$$

Il est donc possible d'obtenir la relation de dispersion des modes guidés à l'aide d'un montage d'imagerie de Fourier similaire à celui présenté dans le chapitre 2.

Les fissures régulièrement présentes à la surface des deux échantillons constituent une alternative pour le couplage des modes propagatifs avec le cône de lumière. Le dépôt de réseaux de diffraction sur la demi-cavité étant compliqué, les fissures ont constitué l'unique moyen de détection des modes guidés sur cette structure. Grâce au support motorisé, la lentille de collecte peut être déplacée de façon à centrer précisément l'émission de μPL d'une fissure sur la fente d'entrée du spectromètre. Cette technique de détection comporte néanmoins deux désavantages par rapport aux réseaux de diffraction : il n'est pas possible de relier l'angle d'émission à la constante de propagation, et la polarisation du signal est perdue lors de l'extraction par les fissures. De plus, la détection est très dépendante des fissures, notamment de leur épaisseur, qui peut varier sur l'échantillon. La figure 3.7b présente la variation de l'angle moyen d'émission calculé par rapport à la surface de l'échantillon en fonction de la taille des fissures, pour deux cas de figures : à 5 K pour une énergie du mode guidé de 3340 meV et à 300 K pour une énergie de 3200 meV. Les calculs ont été réalisés par Dmitry Solnyshkov à l'aide du logiciel COMSOL (module onde électromagnétique), en simplifiant le problème à une couche guidante de ZnO de 130 nm reposant sur une couche de ZnMgO. L'angle d'émission dépend

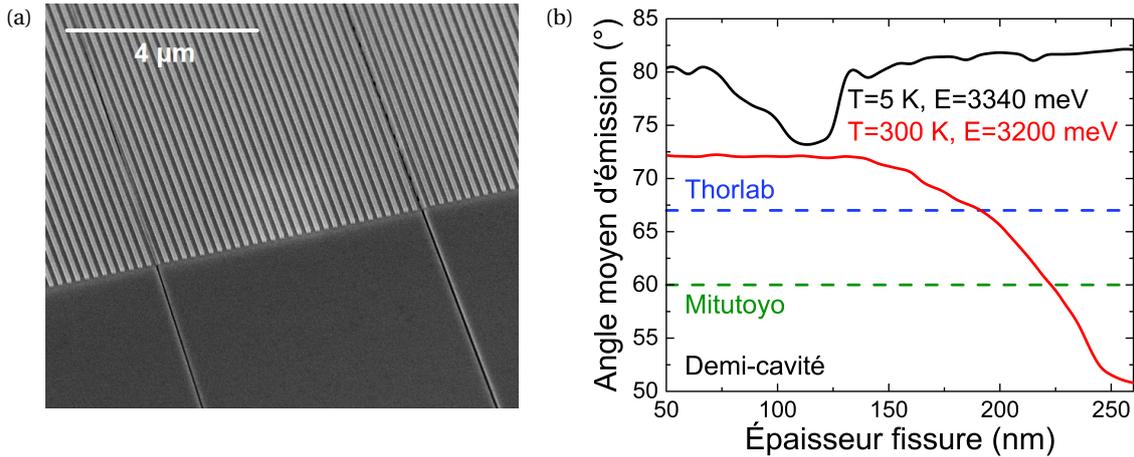


Fig. 3.7 – a) Image réalisée au microscope électronique à balayage montrant le réseau de diffraction en SiO_2 déposé sur le guide d'onde. Les traits du réseau sont parallèles aux fissures. b) Calculs COMSOL présentant l'angle moyen d'émission repéré par rapport à la surface du guide (90° signifie normal à l'échantillon) en fonction de la largeur des fissures. Les lignes pointillées bleue et verte représentent l'ouverture numérique des objectifs Thorlab et Mitutoyo. Les émissions angulaires situées sous ces lignes ne sont pas détectées.

à la fois de la largeur des fissures et de l'énergie des modes guidés : à 5 K, l'émission des modes guidés est contenue dans l'ouverture numérique des deux objectifs utilisés en détection pour quasiment toutes les épaisseurs de fissures, tandis qu'à 300 K elle n'est plus détectable pour des fissures dont l'épaisseur excède 223 nm.

Les dispositifs expérimentaux sont identiques à ceux décrits dans le chapitre 2. Le laser d'excitation Q-switched (266 nm) a été utilisé pour toutes les expériences présentées dans la section suivante.

3.3 Couplage fort et laser à polaritons horizontal

3.3.1 Couplage fort

Les figures 3.8a et 3.8b présentent les dispersions de la LPB mesurées sur le guide d'onde par l'intermédiaire des réseaux de diffraction, à 5 K et 300 K. Pour les deux images, un large spot d'excitation a été utilisé, ce dernier étant placé directement sur les réseaux de diffraction afin de maximiser le signal de μPL . Seule la polarisation TE a été détectée.

À mesure que l'énergie augmente, la dispersion de la LPB s'éloigne de celle du mode photonique non couplé et tend vers celle du mode excitonique. Ce changement de courbure, qui traduit la diminution de la fraction photonique des polaritons, est la preuve du régime de couplage fort. Les dispersions polaritoniques sont bien reproduites par un calcul quasi-particule à deux oscillateurs. Les résonances excitoniques A et B ont été remplacées par un oscillateur unique et la dispersion photonique a été approximée par une droite dont la pente reproduit celle de la dispersion mesurée à basse énergie (3100 meV). Le dédoublement de Rabi déduit à l'aide du modèle quasi-particule est égal à 224 meV pour les deux températures, soit 31 meV de plus que celui tiré du calcul avec les matrices S. Une sous-estimation des forces d'oscillateur des excitons A et B utilisées pour les matrices S due à l'effet de la contrainte pourrait expliquer cette différence.

À 5 K, l'émission de PL est dominée par les excitons liés aux donneurs neutres. Le faible élargissement excitonique à cette température permet d'observer la LPB jusqu'à des poids excitoniques très élevés (96 %). À température ambiante, en raison des élargissements excitoniques importants, les polaritons ayant une fraction excitonique supérieure à 78 % sont absorbés et ne sont plus détectables. La vitesse de propagation des polaritons est intimement liée à la fraction photonique/excitonique des polaritons. Les polaritons ayant une fraction photonique élevée auront des vitesses de groupe importantes

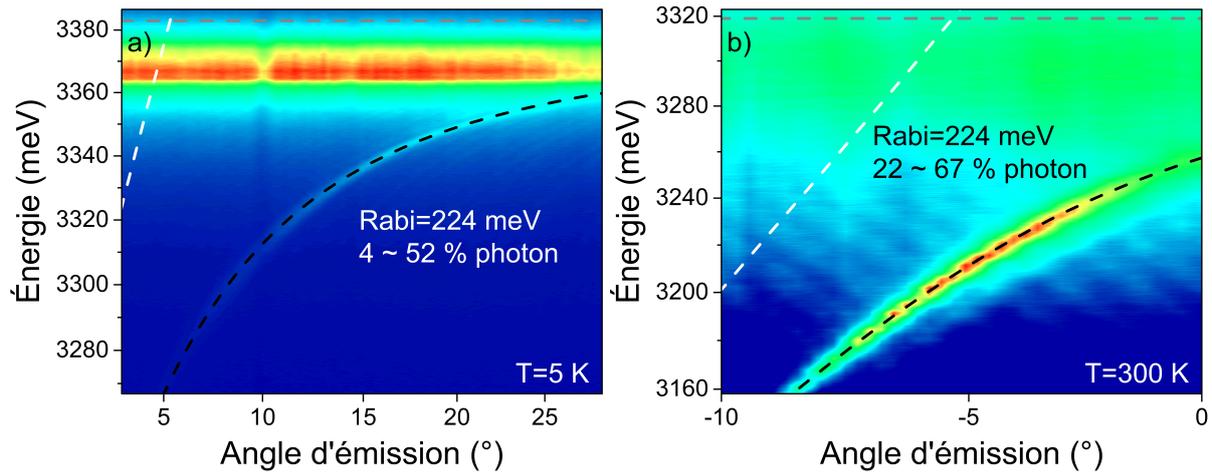


Fig. 3.8 – Guide d’onde. μ PL résolue en angle présentant la dispersion de la LPB à 5 K (a) et 300 K (b). La dispersion de la LPB est reproduite par un calcul quasi-particule (pointillés noirs) qui permet d’estimer le dédoublement de Rabi et les fractions photoniques correspondantes à la gamme d’énergie de la dispersion. Les dispersions du mode photonique et excitonique non couplés sont respectivement reportées en pointillés blancs et gris.

(96 $\mu\text{m}/\text{ps}$ pour une fraction photonique de 67 %) tandis que les polaritons à dominante excitonique posséderont de faibles vitesses de groupe (4 $\mu\text{m}/\text{ps}$ pour une fraction excitonique de 96 %).

La demi-cavité ne possédant pas de réseau de diffraction, la dispersion de la LPB n’est pas accessible directement. Cependant, nous verrons qu’il est tout de même possible de la recréer à partir d’un spectre de μ PL.

3.3.2 Cavités horizontales

La figure 3.9a présente l’émission en espace réel de la demi-cavité à 5 K lorsque celle-ci est excitée par un petit spot (diamètre de 7 μm) placé entre deux fissures. Les spectres d’émission issus du spot d’excitation et des fissures nommés a, b, et c sont reportés sur la figure 3.9b. L’émission de la pompe est dominée par le premier mode de Bragg du miroir à 3355 meV (figure 3.13a) et par les excitons liés aux donneurs à 3370 meV. Les excitons libres sont visibles sous la forme d’un épaulement à 3385 meV. Les spectres enregistrés pour chaque fissure présentent plusieurs caractéristiques propres aux polaritons guidés : l’intensité d’émission des fissures dépend de leur distance au spot d’excitation et l’absorption de la couche de ZnO, visible au delà de 3335 meV, est d’autant plus prononcée que la distance au spot d’excitation est grande.

Les spectres de μ PL des fissures sont marquées par une série de modes très fins formant un motif identique pour tous les spectres (figure 3.9c). Cette particularité est directement liée à la présence des fissures sur nos échantillons. En effet, ces dernières n’ont pas qu’un rôle d’extracteur de lumière, elles induisent aussi un confinement supplémentaire pour les polaritons se propageant dans la direction parallèle à l’axe c. La figure 3.10 présente le calcul à l’aide des matrices de transfert de la réflectivité sur une fissure. Dans la gamme d’énergie considérée, la réflectivité peut atteindre 54 % lorsque l’épaisseur des fissures est un multiple de $\lambda/4$. Ainsi, pour une fissure de 100 nm, près de la moitié des polaritons seront réfléchis, tandis que pour une fissure de 200 nm, tous les polaritons seront transmis.

Deux fissures parallèles constituent donc une cavité horizontale pour les polaritons guidés. Les pics observés sur les spectres de la figure 3.9c correspondent à des modes Fabry-Pérot. Comme nous le verrons par la suite, ces modes sont issus de la cavité formée par les deux fissures entourant le spot d’excitation.

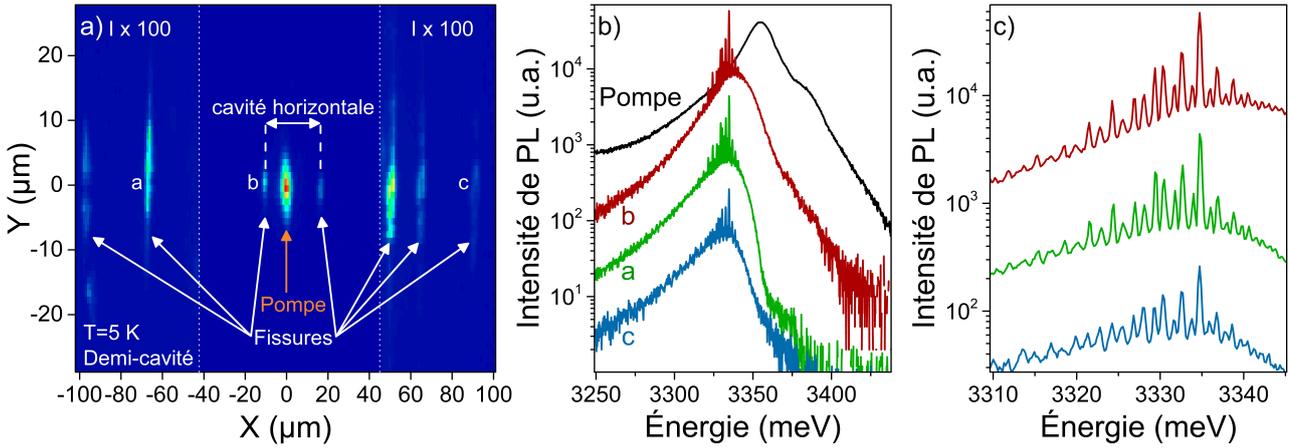


Fig. 3.9 – Demi-cavité. a) Émission en espace réel enregistrée à 5 K avec l’objectif Thorlabs. Le spot d’excitation, visible au centre de l’image, possède un diamètre de 7 μm . La puissance d’excitation est égale à 4.5 W/cm². Les fissures sont repérées par les flèches blanches. Les intensités des zones délimitées par les pointillés blancs sont multipliées par 100. b) Spectres de μPL mesurés au niveau du spot d’excitation (noir), et des fissures a (vert), b (rouge) et c (bleu), situées respectivement à 11 μm , 68 μm et 91 μm du centre du spot. c) Zoom sur les modes Fabry-Pérot de la figure b.

Grâce aux modes Fabry-Pérot, et en connaissant la longueur de la cavité horizontale, il est possible de reconstituer de façon indirecte la dispersion du mode guidé. Ce procédé est souvent employé dans les nanofils où l’accès direct à la dispersion est difficile [168][169]. Nous avons reporté sur la figure 3.11a un spectre de μPL enregistré au niveau de la fissure "b". L’énergie de chaque mode Fabry-Pérot visible entre 3310 meV et 3350 meV a été pointée. Comme on peut le voir sur l’insert, la différence d’énergie ΔE séparant deux modes successifs diminue avec l’énergie du mode. Cette diminution progressive de ΔE en énergie est une preuve du régime de couplage fort. En effet, pour une longueur de cavité L_{cav} fixée, ΔE est uniquement déterminée par la pente de la relation de dispersion du mode guidé. Le confinement de la cavité horizontale implique une quantification du vecteur d’onde dans la direction de propagation considérée : $\Delta\beta = \pi/L_{\text{cav}}$. En connaissant L_{cav} , il est alors possible de remonter à la différence $\Delta\beta$ séparant deux modes Fabry-Pérot successifs dans l’espace réciproque et de recréer la dispersion du mode guidé (figure 3.11b).

Il est en revanche impossible de situer de façon absolue ce fragment de dispersion dans l’espace réciproque. Cela n’empêche pas pour autant de pouvoir extraire le dédoublement de Rabi associé

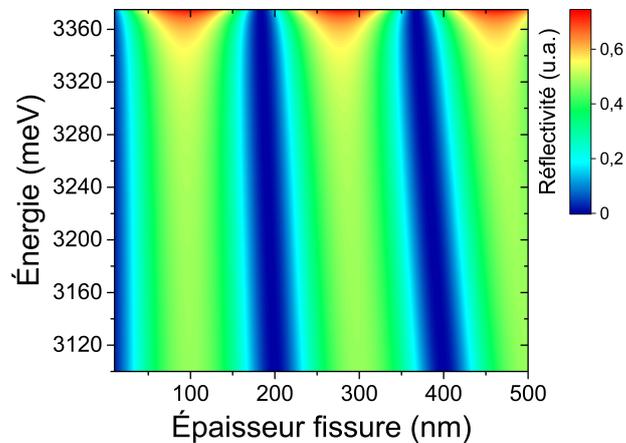


Fig. 3.10 – Calcul de l’évolution du coefficient de réflectivité sur une fissure en fonction de son épaisseur et de l’énergie. Le milieu incident est ZnO.

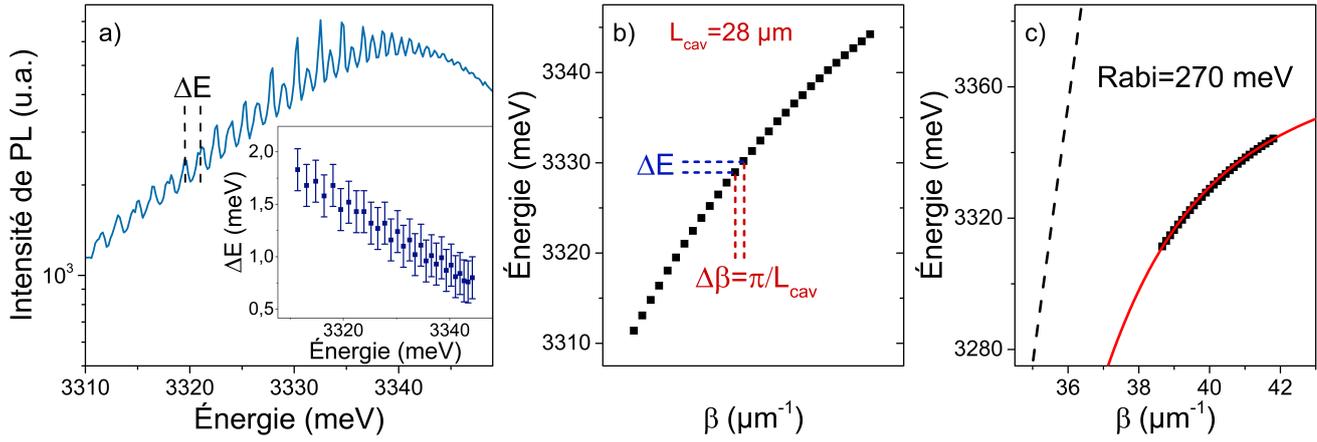


Fig. 3.11 – a) Spectre de μ PL enregistrée sur la fissure "b". L'insert reporte la différence d'énergie entre chaque mode Fabry-Pérot successif en fonction de l'énergie de ces modes. L'incertitude correspond à la limite de résolution du spectromètre. b) Reconstruction partielle de la dispersion de la LPB. En espace réciproque, les modes Fabry-Pérot sont séparés par une constante égal à π/L_{cav} . c) Dispersion partielle de la LPB ajustée par un calcul quasi-particule. Le Rabi estimé est de 270 meV. L'abscisse du mode Fabry-Pérot de plus faible énergie a été fixée à $38.7 \mu\text{m}^{-1}$.

à la LPB comme cela a été fait sur la figure 3.11c à l'aide d'un modèle quasi-particule. Pour ce faire, il convient juste de fixer arbitrairement l'abscisse d'un des modes Fabry-Pérot. Le Rabi estimé de la demi-cavité est de 270 meV. Comme pour le guide, le dédoublement de Rabi calculé avec le modèle quasi-particule est supérieur à celui calculé avec les matrices S (249 meV). Les fractions excitoniques des modes pointés sont comprises entre 78 % et 92 % et les vitesses de groupe des polaritons varient entre $26 \mu\text{m}/\text{ps}$ et $9 \mu\text{m}/\text{ps}$.

3.3.3 Laser à polaritons horizontal

Nous allons maintenant nous intéresser aux effets non-linéaires observables sur les deux échantillons. La figure 3.12a présente une étude en puissance de l'émission issue de la fissure "b", toujours dans le cas de figure présenté sur la figure 3.9a. Entre 3320 meV et 3350 meV, l'intensité augmente de façon continue avec la puissance d'excitation, ce qui correspond au peuplement progressif de la LPB. À partir d'une certaine puissance d'excitation ($1.8 \text{ W}/\text{cm}^2$), on observe l'émergence des modes Fabry-Pérot qui vont, pour certains, conduire à un effet laser marqué à partir d'une puissance seuil égale à $4.5 \text{ W}/\text{cm}^2$.

L'intensité du mode le plus intense est reportée en fonction de la puissance d'excitation sur la figure 3.12b. L'évolution de l'intensité sous le seuil est quasi-quadratique, ce qui est typique d'une relaxation assistée majoritairement par les interactions polariton-polariton. L'effet laser est marqué par une très forte non-linéarité : entre P_{th} et $1.5P_{th}$, l'intensité augmente de plus de deux ordres de grandeur. Bien qu'il ne soit pas possible de suivre en puissance l'affinement des modes Fabry-Pérot, la cohérence temporelle de l'émission est démontrée sur la figure 3.13 où l'on peut observer les franges d'interférences issues de l'émission de deux fissures formant deux sources cohérentes, situées de part et d'autre du spot d'excitation et éloignées de $20 \mu\text{m}$.

L'énergie du mode le plus intense en fonction de la puissance d'excitation est tracée en rouge sur la figure 3.12b. Comme dans le cas des polaritons de microcavités, on observe un ralentissement du blueshift une fois que le seuil est dépassé, signe du verrouillage du réservoir excitonique. Le blueshift du mode Fabry-Pérot étant directement lié à celui de la LPB, il est intéressant de comparer sa valeur au seuil (1.8 meV) avec le dédoublement de Rabi estimé (270 meV). Le blueshift de la LPB au seuil représente moins de 1 % du dédoublement de Rabi, ce qui nous assure que le régime de couplage fort est maintenu.

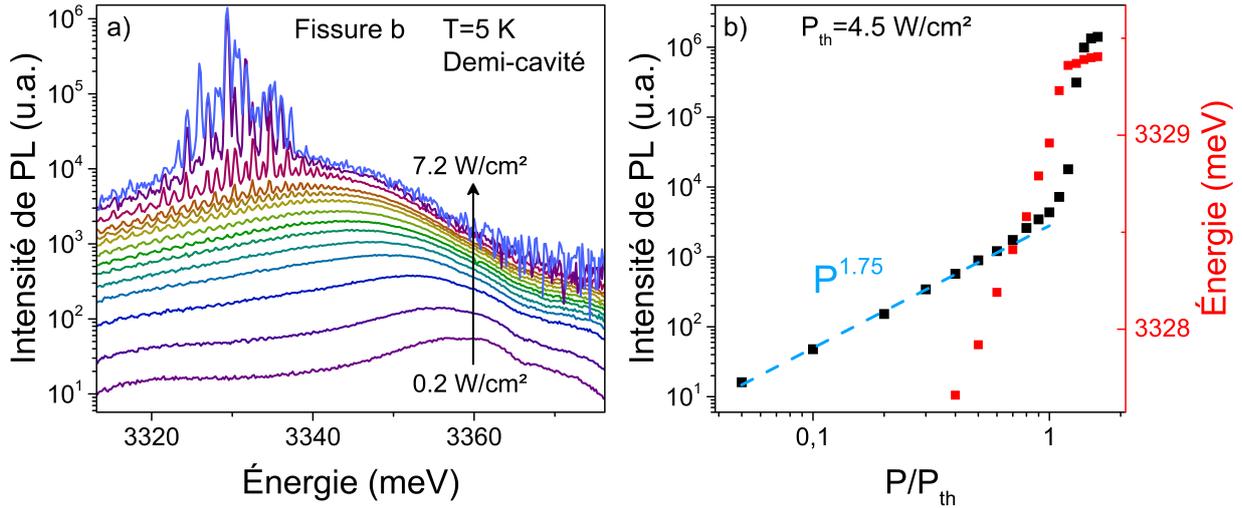


Fig. 3.12 – Demi-cavité. a) Spectres de μ PL enregistrés au niveau de la fissure "b" pour des puissances d'excitation allant de 0.2 W/cm^2 à 7.2 W/cm^2 . b) Intensité du mode le plus intense en fonction de la puissance d'excitation normalisée au seuil ($P_{th}=4.5 \text{ W/cm}^2$). L'exposant de la pente reproduisant l'intensité mesurée sous le seuil indique que la relaxation est assistée par des interactions polariton-polariton et polariton-phonon LO. Par soucis de lisibilité, les spectres correspondant à chaque puissance d'excitation n'ont pas tous été affichés sur la figure a).

Cet effet laser ne pourrait pas être observé sans la cavité horizontale formée par les deux fissures entourant le spot d'excitation. On appellera donc cet effet "laser à polaritons horizontal", par opposition au "laser à polaritons vertical" des microcavités. Le laser à polaritons horizontal, comme son homologue vertical, est basé sur la relaxation stimulée vers l'état final. Dans les microcavités, il est nécessaire pour obtenir l'effet laser à polaritons que le temps de relaxation des polaritons du réservoir excitonique vers le bas de la LPB soit inférieur au temps de vie des polaritons. Il est possible d'augmenter ou de réduire ce temps de relaxation en jouant sur le désaccord. Pour les structures guidantes, la dispersion de la LPB ne présente aucun état fondamental. Le temps de relaxation lié à un état polaritonique dépendra de sa fraction excitonique : plus les polaritons guidés posséderont une composante excitonique élevée, plus la relaxation vers cet état sera efficace. La fraction photonique détermine quant à elle la vitesse de groupe des polaritons : plus les polaritons auront une composante photonique importante plus leur vitesse de groupe sera élevée. Dans notre cas particulier où le spot d'excitation est compris entre deux fissures formant une cavité horizontale, une partie non-négligeable des polaritons se propageant perpendiculairement aux fissures est réfléchi sur ces dernières et renvoyé au niveau du spot d'excitation. Pour chaque état polaritonique, la vitesse de groupe v_g des polaritons définit leur temps de passage τ_p sous le réservoir excitonique, autrement dit le temps alloué pour les processus de diffusion. Les vitesses de groupe extraites de la dispersion de la LPB (figure 3.11c) sont reportées sur la figure 3.13 avec les temps de passages sous le réservoir pour un spot d'excitation de $7 \mu\text{m}$ de diamètre.

Chaque état polaritonique de la LPB est caractérisé par un taux de diffusion entrant W_{in} , un taux de diffusion sortant W_{out} et un taux de déclin $\Gamma = 1/\tau_p$. La figure 3.14 présente un exemple type des variations du taux de diffusion net $W_{in} - W_{out}$ et du taux de déclin Γ calculés en fonction de l'énergie. Pour obtenir le phénomène d'amplification polaritonique dans un état donné, deux conditions sont nécessaires :

- le taux de diffusion net doit être supérieur au taux de déclin Γ .
- la population N de l'état à amplifier doit être assez importante pour déclencher la relaxation stimulée.

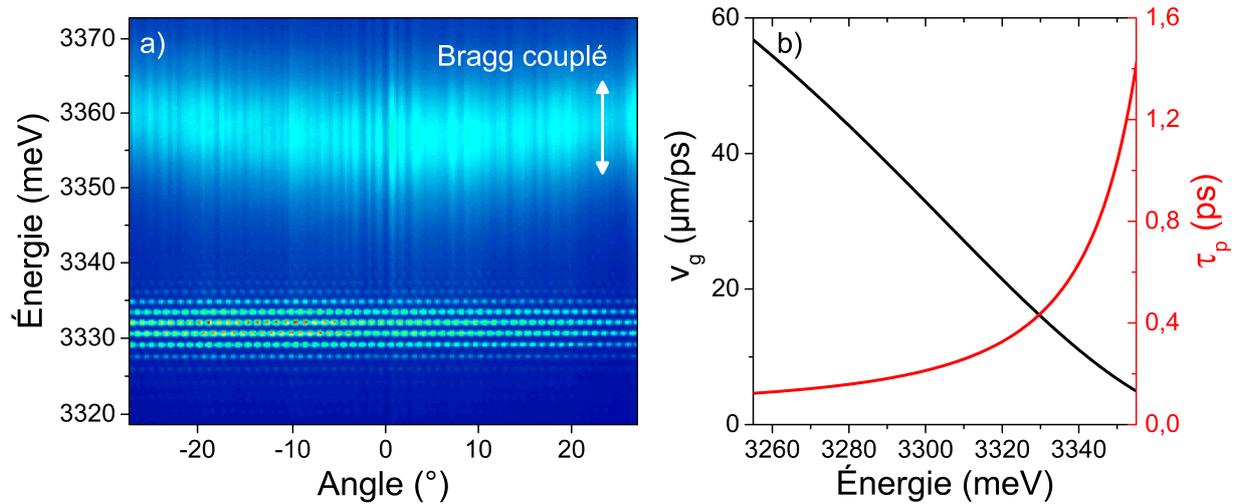


Fig. 3.13 – Demi-cavité. a) μPL résolue en angle enregistrée au seuil montrant la figure d’interférence de deux fissures espacées de $20\ \mu\text{m}$ agissant comme deux sources cohérentes. Le mode dispersif à $3357\ \text{meV}$ correspond au premier mode de Bragg couplé du miroir et provient de la région éclairée par le spot d’excitation. b) Vitesses de groupe des polaritons (noir) calculées à partir de la dispersion présentée sur la figure 3.11c et temps de passage pour un spot d’excitation de $7\ \mu\text{m}$ de diamètre (rouge) en fonction de l’énergie.

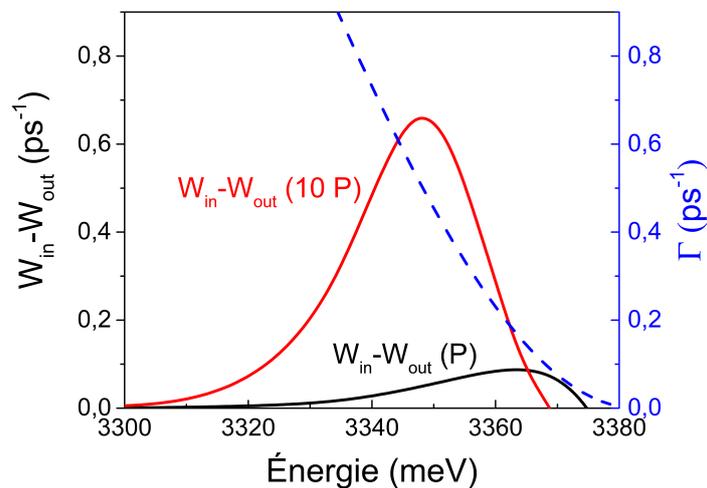


Fig. 3.14 – Taux de diffusion net calculés pour une puissance d’excitation P (noir) et $10P$ (rouge). La courbe en pointillés représente le taux de déclin Γ . Une augmentation de la puissance d’excitation se traduit par une augmentation du taux de diffusion net et par un décalage vers les basses énergies de son maximum (voir section 1.3.4). La zone favorable à l’amplification est située entre $3344\ \text{meV}$ et $3363\ \text{meV}$

Ces deux conditions sont fondamentalement liées dans le cadre du laser à polaritons horizontal : le taux de diffusion net doit être supérieur au taux de déclin pour que la population d'un état puisse croître jusqu'à atteindre le seuil suffisant pour déclencher l'amplification stimulée. Comme cela a été démontré par Solnyshkov *et al.* dans le cadre de polaritons se propageant à grande vitesse dans ZnO [163], les états respectant la première condition sont situés dans une gamme d'énergie résultant du compromis entre la fraction excitonique, qui augmente avec l'énergie et améliore les processus de diffusion, et la déplétion des polaritons vers le réservoir excitonique, qui diminue lorsque l'énergie diminue. Cette gamme d'énergie est directement visible dans notre cas à travers les modes Fabry-Pérot qui passent le seuil laser. Ces modes correspondent à des états polaritoniques réfléchis par les fissures et amplifiés par relaxation stimulée.

La figure 3.15 est un zoom de la figure 3.12 centré sur les modes Fabry-Pérot. Les spectres de μ PL reportés correspondent à des puissances d'excitation allant de 1.8 W/cm² à 8.1 W/cm². Grâce au faible incrément entre chaque puissance (0.45 W/cm²), il est possible de suivre l'évolution du blueshift et de l'intensité de chacun des modes. Notre attention s'est tournée vers trois modes : le mode marqué en bleu, dont l'évolution en puissance est déjà reportée sur la figure 3.12b, qui est le mode le plus intense, là où la population de polaritons est la plus importante, et donc là où l'amplification est la plus efficace; le mode marqué en orange, qui est l'un des modes les plus hauts en énergie ayant passé le seuil laser à polaritons; le mode marqué en rouge, qui est un des modes les plus bas en

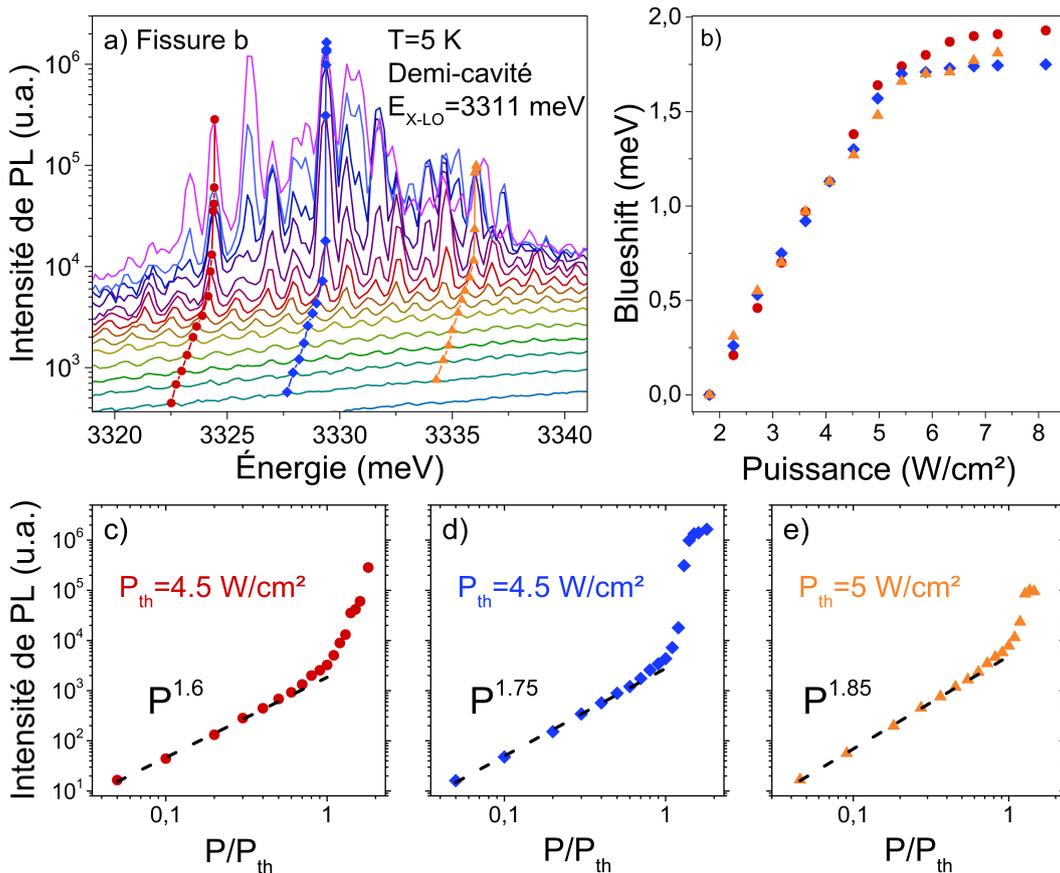


Fig. 3.15 – Demi-cavité. a) Zoom sur les spectres de μ PL de la figure 3.12a. Tous les spectres sont reportés. Le faible pas en puissance permet de suivre l'évolution des modes Fabry-Pérot. b) Blueshift du mode rouge, bleu et orange en fonction de la puissance d'excitation normalisée au seuil. Intensité du mode rouge (c), bleu (d) et orange (e) en fonction de la puissance d'excitation normalisée au seuil. L'exposant de la pente sous le seuil diminue lorsque l'énergie du mode se rapproche de la résonance 1 LO.

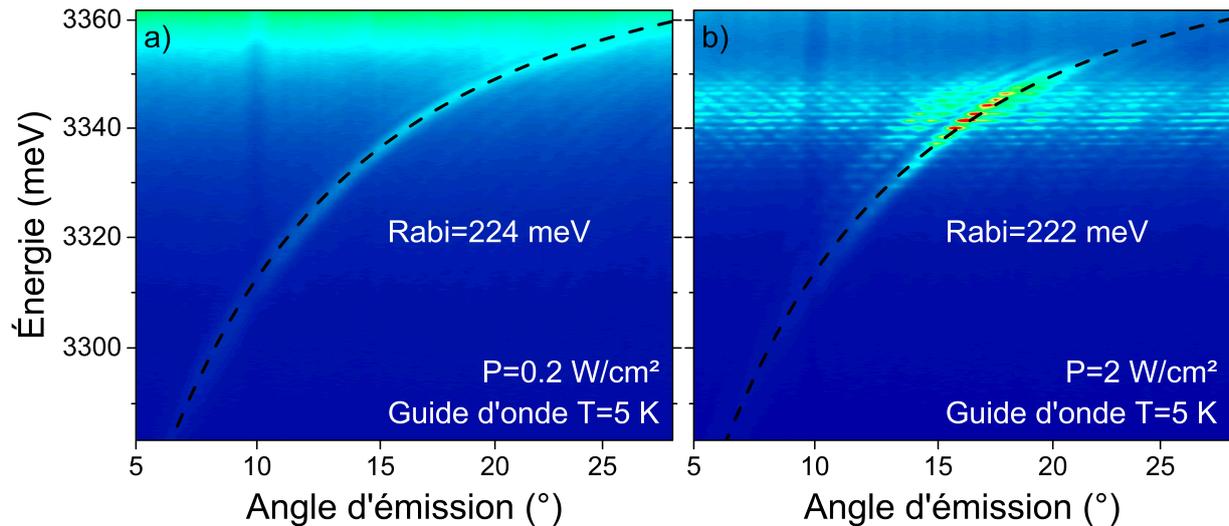


Fig. 3.16 – Guide d'onde. Relations de dispersion de la LPB mesurées sous le seuil (a) et au seuil (b) à 5 K.

énergie ayant passé le seuil laser. Comme on peut le voir sur la figure 3.15b, l'évolution du blueshift est identique pour les trois modes, et l'on retrouve, aux alentours de 5 W/cm^2 , le ralentissement lié au verrouillage du réservoir excitonique. L'intensité de chacun des trois modes est reportée sur les figures 3.15c,d,e. L'évolution sous le seuil devient de moins en moins quadratique à mesure que le mode se rapproche de la première réplique LO situé à 3311 meV , signe de l'augmentation des interactions polariton-phonon LO. Le seuil du mode orange (5 W/cm^2) est légèrement supérieur à celui des modes bleu et rouge (4.5 W/cm^2), et le gain en intensité au seuil est relativement peu marqué comparé à celui des autres deux modes. De la même façon, la population du mode rouge continue d'augmenter de façon non-linéaire à 8.1 W/cm^2 alors que celle du mode bleu s'est stabilisée à 6.3 W/cm^2 . Cette différence est due à la compétition entre les différents modes polaritoniques. Comme nous allons le voir, l'augmentation des taux de diffusions avec la puissance d'excitation permet la relaxation vers des états polaritoniques plus photoniques et déplace la zone favorable à l'amplification vers les basses énergies. Les modes à basses énergies sont donc plus compétitifs en puissance.

L'effet laser à polaritons horizontal est aussi observable sur le guide d'onde. Grâce aux réseaux de diffraction, nous avons cette fois directement accès à la dispersion de la LPB au seuil laser. Les figures 3.16a et 3.16b correspondent aux dispersions de la LPB enregistrées à 5 K avec un large spot d'excitation pour des puissances de 0.2 W/cm^2 ($0.1 P_{\text{th}}$) et 2 W/cm^2 (P_{th}). La cavité horizontale mesure $23 \mu\text{m}$. On peut toujours observer au seuil la dispersion caractéristique de la LPB, preuve du régime de couplage fort, à laquelle se superposent les modes Fabry-Pérot ayant dépassé le seuil laser à polaritons. Le blueshift de la LPB est de l'ordre de 1 meV . Ce dernier est dû à la renormalisation des forces d'oscillateur des excitons avec l'augmentation de la densité dans le réservoir. Cette renormalisation est faible à 5 K : un calcul quasi-particule permet d'estimer le Rabi au seuil à 222 meV , soit une réduction de seulement 2 meV .

3.3.4 Évolution en puissance au-delà du seuil

La figure 3.17 présente les dispersions polaritoniques enregistrées à 5 K sur le guide d'onde, pour des puissances d'excitation allant de $0.1 P_{\text{th}}$ à $20 P_{\text{th}}$. L'excitation se fait à l'aide d'un spot de grande taille, qui couvre toute la longueur de la cavité ($L_{\text{cav}}=14 \mu\text{m}$). Le seuil laser à polaritons est de 2.4 W/cm^2 . Avec l'augmentation de la puissance, le maximum d'intensité de l'émission laser se décale de façon continue vers les basses énergies. Entre P_{th} et $20 P_{\text{th}}$, le maximum d'intensité passe de 3344

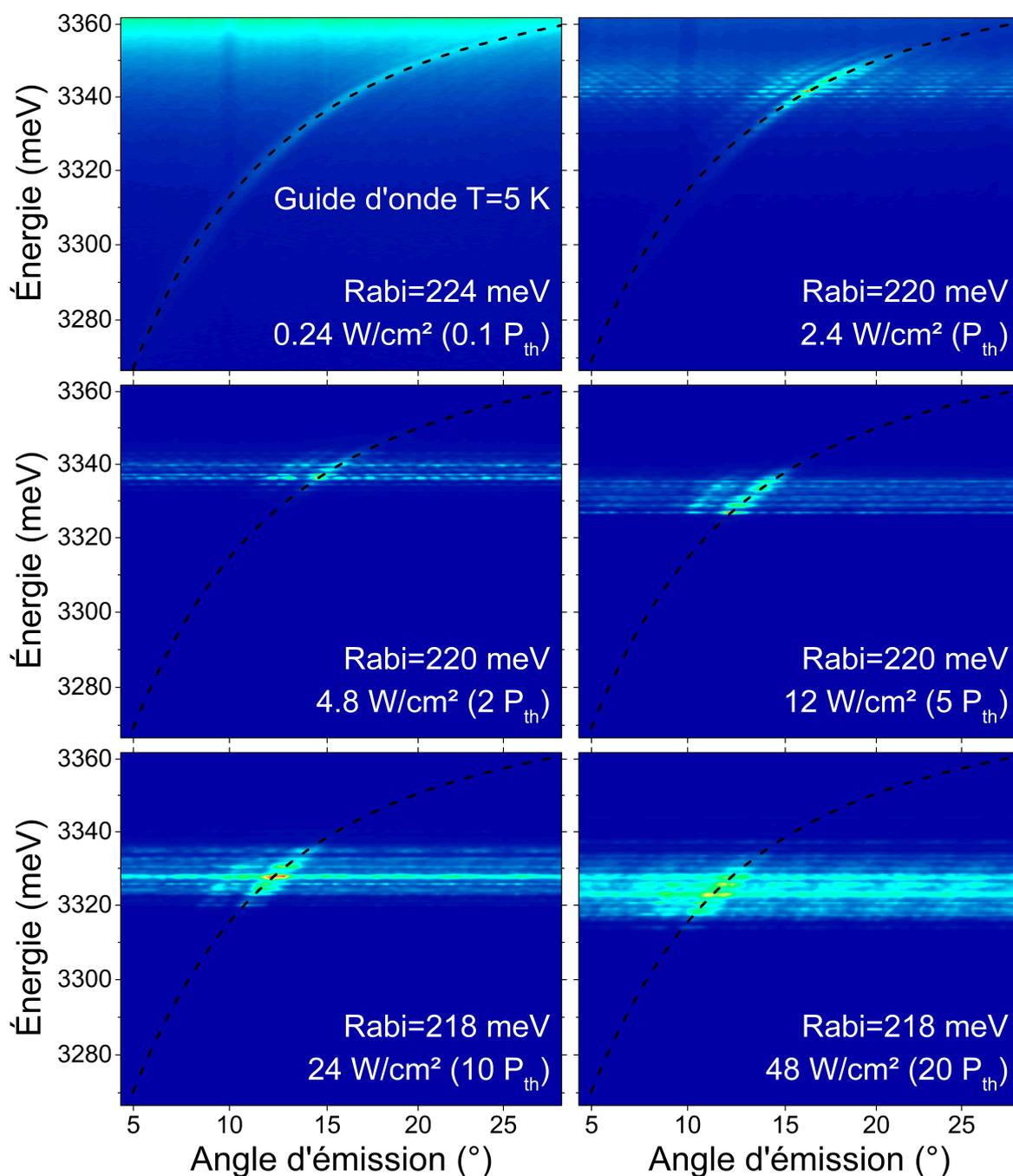


Fig. 3.17 – Guide d'onde. Relations de dispersion de la LPB mesurées à 5 K pour des puissances d'excitation allant de $0.1 P_{th}$ à $20 P_{th}$. Les dispersions sont reproduites par un calcul quasi-particule (pointillés noirs) qui permet d'estimer le dédoublement de Rabi.

meV à 3323 meV. Dans le même temps, les modes Fabry-Pérot ont un comportement opposé, ils se décalent de façon continue vers les hautes énergies. Ces deux mouvements opposés ont une origine commune : l'augmentation de la puissance d'excitation et de la densité d'excitons dans le réservoir. En effet, l'augmentation de la puissance d'excitation est d'une part responsable de l'écrantage du dédoublement de Rabi et du blueshift de la LPB, et d'autre part de la hausse de tous les taux de diffusions participant à la relaxation des polaritons. Cette amélioration des processus de relaxation permet l'établissement de l'effet laser à polaritons dans des états de plus en plus photoniques. La position des modes Fabry-Pérot les plus intenses reflètent la gamme d'énergie la plus favorable pour obtenir l'amplification stimulée.

Il est possible de reproduire le redshift de l'émission laser à l'aide de simulations numériques. La figure 3.18 présente les résultats issus de la résolution numérique de l'équation semi-classique de Boltzmann pour les polaritons guidés. L'équation est similaire à celle utilisée dans la référence [163] :

$$\frac{dn_k}{dt} = P_k - \Gamma_k n_k - n_k \sum_{k'} W_{k \rightarrow k'} (n_{k'} + 1) + (n_k + 1) \sum_{k'} W_{k' \rightarrow k} n_{k'} . \quad (3.2)$$

n_k représente la fonction de distribution d'un état polaritonique ou excitonique à un vecteur d'onde donné, P_k est le terme de pompe, qui agit seulement sur le réservoir excitonique, Γ_k est le taux de décroissance, déterminé par la vitesse de groupe et le coefficient de réflexion sur les fissures (un coefficient constant de 50 % a été choisi en accord avec les valeurs de la figure 3.10). Enfin, $W_{k \rightarrow k'}$ correspond aux taux de diffusion entre état associé aux interactions polariton-phonon (optique et acoustique) et polariton-polariton. Le dédoublement de Rabi utilisé pour ce calcul est égal à 200 meV. La résolution de cette équation a permis de calculer la population des différents états de la LPB pour trois densités d'excitation : $0.9 P_{th}$, $10 P_{th}$, et $100 P_{th}$. Comme sur les spectres expérimentaux, on observe le décalage des états les plus occupés vers les basses énergies lorsque la densité d'excitation augmente. La densité d'excitons dans le réservoir détermine, à travers les taux de diffusions entre états, les états polaritoniques qui seront les plus favorables d'un point de vue gain/perte.

Par analogie avec les microcavités, cette gamme d'énergie favorable est similaire au goulot d'étranglement. Dans une microcavité, pour un désaccord donné, si le temps de relaxation est supérieur au temps de vie des polaritons, ces derniers ne peuvent atteindre l'état fondamental et s'accumulent à plus haute énergie dans une région appelée "goulot d'étranglement" ("bottleneck" en anglais) [92]. En augmentant la puissance d'excitation et en améliorant la cinétique de relaxation, il est possible de surmonter le bottleneck et d'obtenir un condensat dans l'état fondamental. Pour un désaccord plus négatif, le piège sera plus profond et le temps de relaxation jusqu'à l'état fondamental sera plus

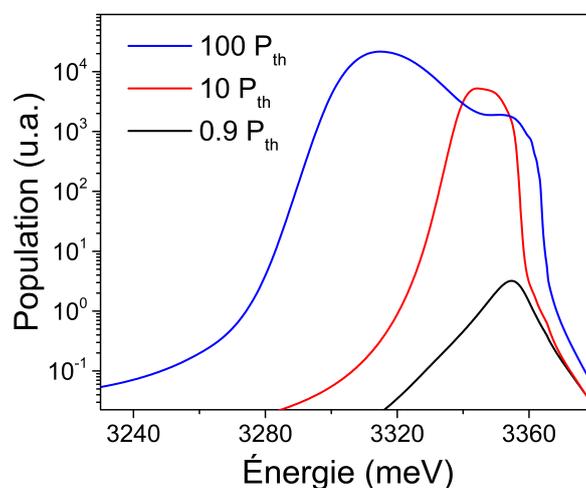


Fig. 3.18 – Population polaritonique calculée en fonction de l'énergie pour des puissances d'excitation de $0.9 P_{th}$ à $100 P_{th}$.

long. La puissance d'excitation qui était suffisante pour obtenir la condensation dans l'état fondamental dans le cas précédent mènera ici à la formation d'un bottleneck, et une augmentation supplémentaire de la puissance d'excitation sera nécessaire pour que les polaritons puissent atteindre l'état fondamental. La situation est identique dans le cas des guides d'ondes, à l'exception près que la dispersion de la LPB ne présente pas d'état fondamental. Le bottleneck correspond dans notre cas à la gamme d'énergie où le rapport gain-perte des états polaritoniques est le meilleur.

3.3.5 Influence de la taille de la cavité

L'espacement entre les fissures pouvant varier entre $5 \mu\text{m}$ et $100 \mu\text{m}$ sur les deux échantillons, nous avons pu étudier l'effet laser à polaritons pour différentes tailles de cavités horizontales. La figure 3.19a présente une étude en puissance réalisée sur la demi-cavité à 5 K. Les conditions expérimentales sont identiques à celles mises en œuvre pour la figure 3.12a, seule la taille de la cavité L_{cav} est différente. Dans le cas présent, le spot d'excitation est placé entre deux fissures séparées de $14 \mu\text{m}$. Le comportement en puissance est similaire à celui déjà observé : l'effet laser à polaritons se traduit par la présence de modes Fabry-Pérot dont l'espacement diminue en énergie et dont l'intensité évolue de façon non-linéaire. Néanmoins, on peut remarquer deux différences avec le cas présenté sur la figure 3.12a : l'espacement des modes est plus prononcé et le seuil laser à polaritons est plus faible. Ces deux différences sont uniquement liées au changement de taille de la cavité horizontale.

Une diminution de la longueur de la cavité implique une augmentation de l'écart $\Delta\beta$ entre les modes Fabry-Pérot dans l'espace réciproque. Cette augmentation se répercute sur l'espacement en énergie ΔE des modes Fabry-Pérot à travers la relation de dispersion de la LPB. Une cavité plus courte implique donc des écarts ΔE plus importants.

Une réduction de la taille de la cavité permet aussi de minimiser les pertes de polaritons ayant lieu sur la distance séparant le spot d'excitation et les fissures formant la cavité horizontale. La principale source de perte sur cette distance est due à l'absorption de la couche guidante. On distinguera l'absorption liée à la queue des résonances excitoniques, observable sur les spectres de la figure 3.9 à haute énergie, et l'absorption résiduelle de la couche, responsable de la longueur de propagation finie des polaritons très photoniques. Plus l'absorption sera élevée, plus le nombre de polaritons ayant

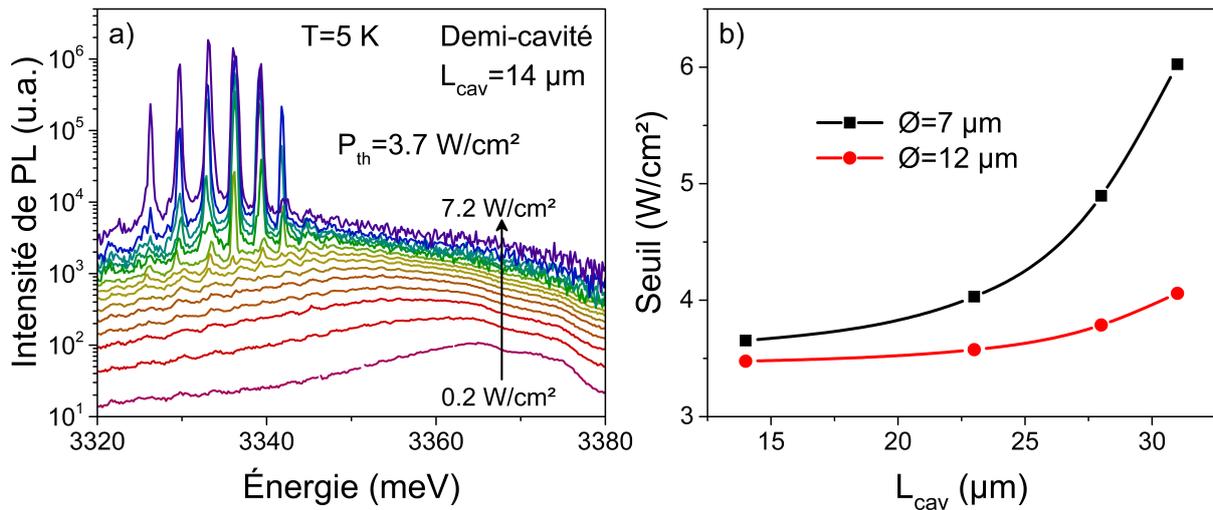


Fig. 3.19 – Demi cavité. a) Spectres de μPL enregistrés à 5 K au niveau d'une fissure pour des puissances d'excitation allant de 0.2 W/cm^2 à 7.2 W/cm^2 . La cavité horizontale et le diamètre du spot d'excitation mesurent respectivement $14 \mu\text{m}$ et $7 \mu\text{m}$. b) Seuil laser à polaritons en fonction de la taille L_{cav} de la cavité horizontale pour deux diamètres d'excitation : $7 \mu\text{m}$ (carrés noirs) et $12 \mu\text{m}$ (disques rouges). Le spot de $12 \mu\text{m}$ est obtenu en ajoutant un diaphragme sur le bras d'excitation.

parcouru la distance spot-fissure et fissure-spot sera faible et donc plus l'établissement d'une population suffisante pour déclencher la relaxation stimulée sera difficile. De façon similaire, une augmentation de la taille de la cavité se traduit par un plus grand nombre de polaritons absorbés en dehors du milieu amplificateur (réservoir excitonique) et par une hausse du seuil laser à polaritons.

La figure 3.19b présente l'évolution du seuil en fonction de la taille de cavité L_{cav} pour deux diamètres d'excitation : $\phi_{spot} = 7 \mu m$ et $\phi_{spot} = 12 \mu m$. L'expérience est réalisée en déplaçant le spot d'excitation sur une série de quatre cavités horizontales : $L_{cav}=14, 23, 28, 31 \mu m$. Pour chaque cavité, le seuil laser à polaritons est mesuré pour les deux diamètres d'excitation. Le spot de $12 \mu m$ est simplement obtenu à l'aide d'un pinhole placé devant l'objectif, sur la ligne d'excitation.

Comme attendu, on observe pour les deux diamètres d'excitations une augmentation du seuil laser à polaritons avec L_{cav} . Pour une même taille de cavité, le spot d'excitation de $12 \mu m$ possède un seuil moins élevé que celui de $7 \mu m$. L'écart entre les seuils des deux configurations d'excitations est d'autant plus marqué que la taille de la cavité est grande. Le ratio ϕ_{spot}/L_{cav} contrôle donc le seuil laser à polaritons. La configuration optimale est celle où le diamètre du spot d'excitation couvre toute la longueur de la cavité horizontale, autrement dit, lorsque le milieu amplificateur couvre toute la cavité. Au contraire, lorsque la cavité est très grande devant le spot d'excitation, par exemple dans le cas où $L_{cav}=80 \mu m$ et $\phi_{spot}=7 \mu m$, il n'est plus possible d'obtenir l'effet laser à polaritons. La distance de propagation des états polaritoniques situés dans la zone favorable à l'amplification devient inférieure à la longueur de la cavité : les pertes sont trop importantes et l'effet cavité induit par les fissures disparaît.

Les variations de l'espacement des modes Fabry-Pérot et du seuil laser à polaritons observées sur les figures 3.19 sont les preuves que la cavité horizontale initiant le laser à polaritons est uniquement formée par les fissures entourant le spot d'excitation. Aucune influence des cavités horizontales formées par les fissures voisines n'a été observée.

3.3.6 Amplification polaritonique

Jusqu'à présent nous avons étudié l'amplification bosonique uniquement à travers l'effet laser à polaritons. Les fissures forment une cavité horizontale et le réservoir excitonique joue le rôle du milieu amplificateur. En supprimant l'effet cavité, il est possible d'étudier seulement le processus d'amplification des polaritons guidés tel qu'il a été proposé par Solnyshkov *et al.* [163] : un état polaritonique possédant un facteur d'occupation proche de 1 se propage sous un réservoir excitonique ; si les processus de relaxation favorisent cet état durant son temps de passage sous le réservoir, autrement dit

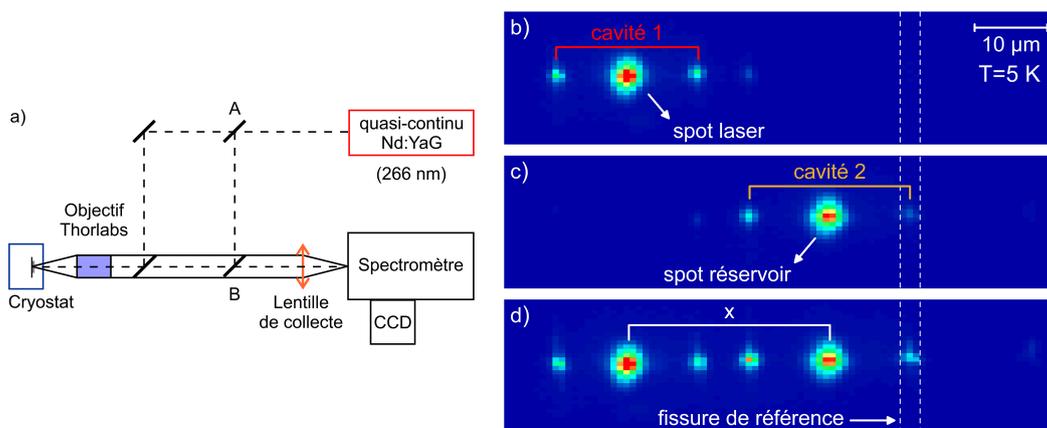


Fig. 3.20 – a) Schéma du dispositif expérimental à deux spots d'excitation. Figure pédagogique, images en espace réel réalisées à 5 K sur la demi-cavité présentant les trois configurations possibles d'excitation : b) Spot laser uniquement, c) Spot réservoir uniquement, d) Spot laser et spot réservoir simultanément. La luminescence est récoltée à chaque fois au niveau d'une même fissure.

si le taux de diffusion net vers cet état est supérieur à son taux de déclin, il sera amplifié.

Pour se concentrer uniquement sur l'amplification, et non sur l'effet laser à polaritons, nous avons mis en place le montage expérimental présenté sur la figure 3.20a. Deux séparatrices A et B ont été ajoutées à la chaîne d'excitation afin de pouvoir dédoubler le spot d'excitation. En jouant sur l'inclinaison de la séparatrice B, il est possible de déplacer le second spot d'excitation par rapport au premier. Le premier spot, que l'on appellera "spot laser", est placé dans une cavité appelée "cavité 1". Le spot laser va créer le signal à amplifier. Pour que la population soit suffisamment élevée pour déclencher la relaxation stimulée, la puissance d'excitation du spot laser P_{las} est fixée au dessus du seuil associé à la cavité 1. Cette configuration est imagée sur la figure 3.20b). Le deuxième spot, appelé "spot réservoir", est positionné à une distance x du spot laser, dans une cavité appelée "cavité 2". La puissance d'excitation associée au spot réservoir P_{res} est ajustable tant qu'elle est inférieure au seuil laser de la cavité 2. Comme son nom l'indique, le spot réservoir va jouer le rôle de réservoir d'excitons servant à amplifier le signal polaritonique. Cette configuration est imagée sur la figure 3.20c). Enfin, la configuration où les deux spots sont présents permet d'étudier l'amplification. Elle est illustrée sur la figure 3.20d). Pour déterminer le coefficient d'amplification, la luminescence est enregistrée pour chaque configuration au niveau d'une fissure de référence directement placée après le spot réservoir. Afin de pouvoir étudier l'amplification sur une large gamme de puissance, nous avons placé le spot réservoir dans une cavité horizontale longue de $63 \mu\text{m}$. Le spot laser est quant à lui placé dans une cavité horizontale $28 \mu\text{m}$. Sa puissance d'excitation est fixée à 6.9 W/cm^2 , soit environ $1.5 P_{\text{th}}$. Une distance de $60 \mu\text{m}$ sépare les deux spots. La figure 3.21a présente les spectres de μPL enregistrés au niveau de la fissure de référence pour une puissance d'excitation du spot réservoir égale à 1 W/cm^2 .

Aucune différence n'est visible si seul le spot laser est activé (spectre noir) ou si les deux spots sont activés (spectre rouge). Le facteur d'amplification, défini comme le rapport d'intensité du pic le plus intense dans les deux configuration est égal à 1. Pour cette puissance d'excitation, les taux de diffusion ne sont pas assez élevés et le temps de relaxation jusqu'aux états polaritoniques est plus long que le

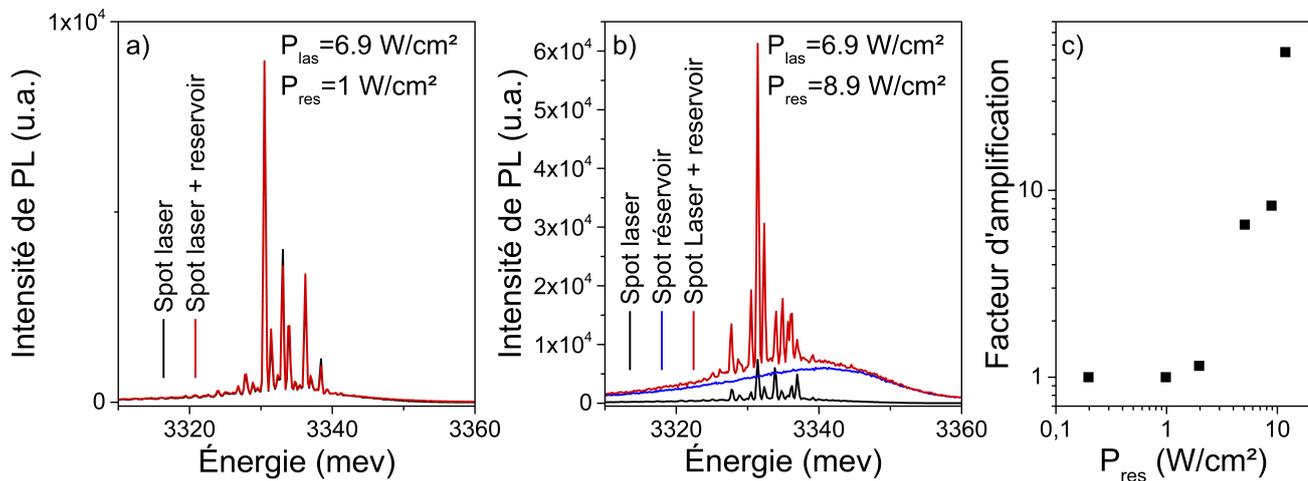


Fig. 3.21 – Demi-cavité. a) Spectres de μPL enregistrés à 5 K au niveau de la fissure de référence correspondant au cas où seul le spot laser est activé (noir) et où les deux spots laser et réservoir sont activés (rouge). La puissance d'excitation associée au spot laser est de 6.9 W/cm^2 et celle du spot réservoir est de 1 W/cm^2 . b) Spectres de μPL enregistrés à 5 K au niveau de la fissure de référence correspondant au cas où seul le spot laser est activé (noir), seul le spot réservoir est activé (bleu) et où les deux spots laser et réservoir sont activés (rouge). La puissance d'excitation associée au spot réservoir est de 8.9 W/cm^2 . c) Évolution du facteur d'amplification en fonction de la puissance P_{res} du spot réservoir. Le spot réservoir est placé dans une cavité horizontale de $63 \mu\text{m}$ et se trouve à $60 \mu\text{m}$ du spot laser.

temps de passage sous le réservoir : l'amplification polaritonique ne peut pas avoir lieu. En revanche, en augmentant la puissance d'excitation du réservoir à 8.9 W/cm^2 , il est possible d'obtenir un facteur d'amplification de 8. Comme on peut le voir sur la figure 3.21b, les énergies des pics Fabry-Pérot sont identiques dans les deux configurations, ce qui prouve que c'est bien le signal créé $60 \mu\text{m}$ en amont par le spot laser qui est amplifié. L'évolution du facteur d'amplification en fonction de la puissance d'excitation du spot réservoir est reportée sur la figure 3.21c. Dès que $P_{\text{res}}=2 \text{ W/cm}^2$, la cinétique de relaxation est assez rapide pour amplifier le flux de polaritons guidés. L'augmentation du facteur d'amplification en puissance est ensuite non-linéaire et peut atteindre 55 pour $P_{\text{res}}=11.8 \text{ W/cm}^2$.

3.3.7 Évolution en température

La figure 3.22 présente l'énergie moyenne de l'exciton A et des modes Fabry-Pérot au seuil laser à polaritons en fonction de la température pour le guide et la demi-cavité. L'énergie de l'émission laser est de plus en plus éloignée de celle de l'exciton A avec la température, ce qui démontre que l'effet laser à polaritons prend place dans des états de plus en plus photoniques. Ce comportement est similaire à ce qui a été observé dans les microcavités planaires du chapitre 2 : l'augmentation de la température, comme l'augmentation de la puissance d'excitation, permet d'accélérer les processus de relaxation, déplaçant ainsi la gamme d'énergie favorable à l'effet laser à polaritons vers des états plus photoniques.

Les énergies des modes lasers de la demi-cavité sont légèrement inférieures à celles du guide (10 meV). Cet écart s'explique par la différence de Rabi entre les deux structures. À énergie égale, les états de la demi-cavité possèdent une fraction excitonique plus grande que ceux du guide. Les états privilégiés de la demi-cavité et du guide possèdent la même fraction excitonique même si leur énergie est différente. Après 200 K , il n'est plus possible de détecter sur la demi-cavité le signal laser émis par les fissures : l'angle d'émission devient supérieur à l'ouverture numérique de nos objectifs.

Les seuils les plus bas mesurés pour chaque température sont reportés sur la figure 3.22b. De 5 K à 200 K , les seuils associés à la demi-cavité sont comparables à ceux mesurés sur la microcavité ZnO du chapitre 2. Pour cette gamme de température, le guide d'onde présente les seuils les plus bas. Au delà, les seuils sont comparables à ceux du laser à polariton vertical mesurés sur la microcavité. Il faut cependant noter que les seuils reportés ne tiennent pas compte de l'épaisseur des structures et ne correspondent pas aux mêmes densités injectées.

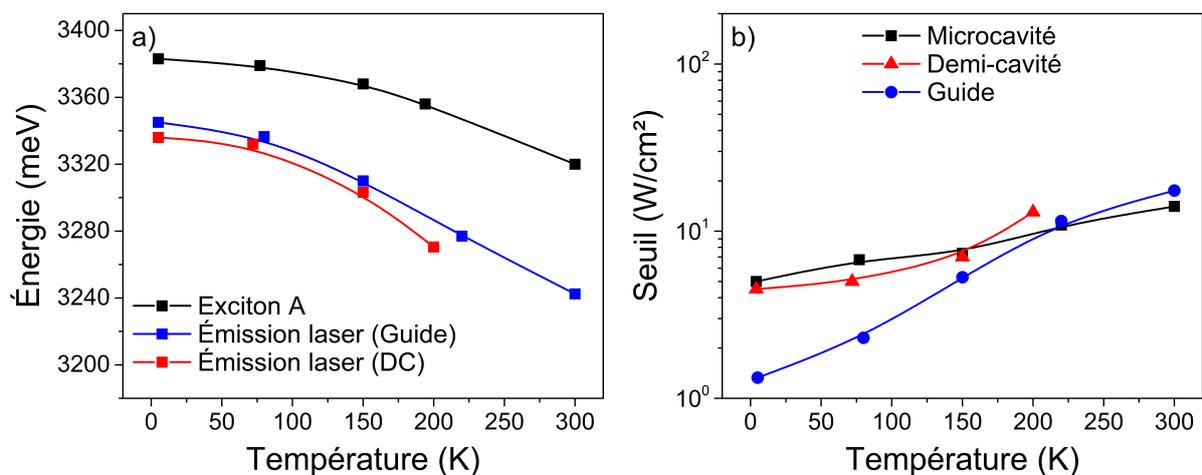


Fig. 3.22 – a) Évolution de l'énergie moyenne de l'exciton A (noir) et de l'émission laser à polaritons horizontal en fonction de la température pour le guide (bleu) et la demi-cavité (rouge). b) Évolution des seuils laser à polaritons du guide (ronds bleus) et de la demi-cavité (triangles rouges) en fonction de la température. Les seuils mesurés sur la microcavité ZnO (chapitre 2, laser à polaritons vertical) sont reportés (carrés noirs) pour la comparaison.

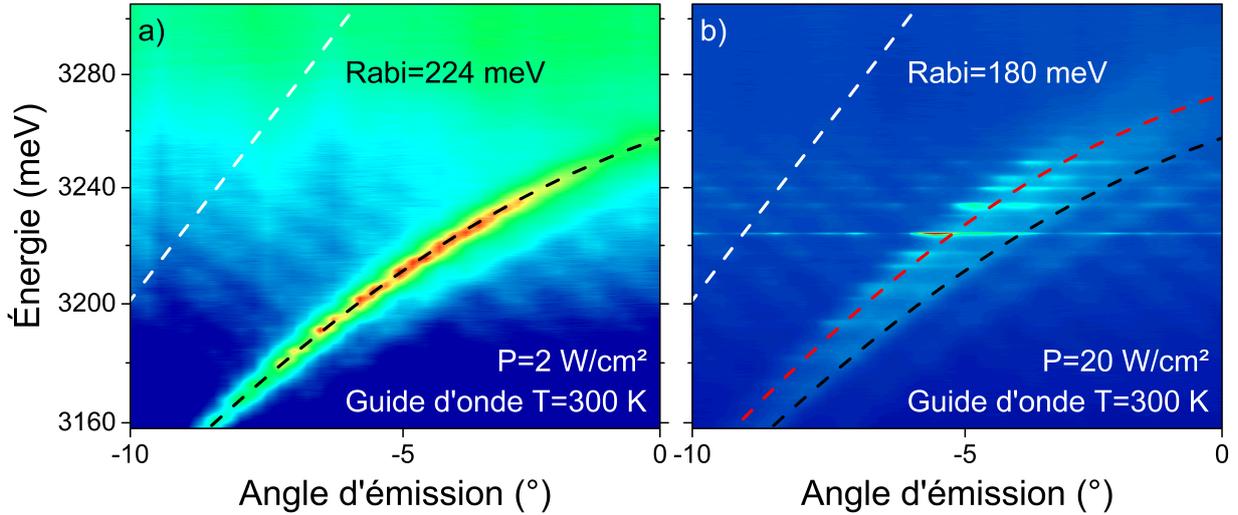


Fig. 3.23 – Guide d’onde. Relations de dispersion de la LPB mesurées sous le seuil (a) et au seuil (b) à 300 K. Le Rabi est extrait à l’aide d’un modèle quasi-particule 2×2 . Le calcul reproduisant la dispersion à $P=2 \text{ W/cm}^2$ est reporté en noir sur l’image à $P=20 \text{ W/cm}^2$. Le calcul correspondant à $P=20 \text{ W/cm}^2$ est tracé en rouge.

Les figures 3.23a et 3.23b correspondent aux dispersions de la LPB enregistrées à 300 K, avec un large spot d’excitation et pour des puissances de 2 W/cm^2 ($0.1 P_{th}$) et 20 W/cm^2 (P_{th}). La cavité horizontale mesure $26 \mu\text{m}$. La dispersion de la LPB au seuil est toujours fondamentalement différente de celle du mode nu. On peut cependant noter un blueshift plus marqué qu’à 5 K. En effet, le seuil plus élevé à 300 K implique une plus grande renormalisation des forces d’oscillateur des excitons et un blueshift plus élevé. Entre $0.1 P_{th}$ et P_{th} , l’énergie de la LPB augmente d’environ 15 meV. Cette renormalisation correspond à une diminution du dédoublement de Rabi de 44 meV. Le dédoublement de Rabi est donc de 180 meV au seuil.

3.4 Compétitions entre lasers à polaritons vertical et horizontal dans les microcavités

D’après la section précédente, nous pouvons extraire deux éléments clés nécessaires à l’effet laser à polaritons horizontal : l’existence d’un mode guidé en régime de couplage fort et la présence d’une cavité horizontale. Les microcavités planaires telles que celles étudiées dans le chapitre 2 peuvent naturellement supporter un ou plusieurs modes guidés. De plus, elles présentent inévitablement des fissures à leur surface, dont le nombre va augmenter au fur et à mesure des cycles de températures imposés à l’échantillon. Si un des modes non-radiatifs de la microcavité est assez bien confiné dans la couche active, le régime de couplage fort est possible et l’ensemble des conditions sont satisfaites pour l’établissement du laser à polaritons horizontal. Il est donc possible d’observer, dans une même structure, l’effet laser à polaritons vertical et horizontal.

La figure 3.24a est une image en espace réel enregistrée à 5 K en μ -réflectivité sur le bord d’une mesa de la microcavité ZnO étudiée dans le chapitre 2 qui présente un nombre important de fissures. Ces dernières apparaissent sous la forme de traînées sombres sur l’image. Le flanc de mesa, non visible en réflectivité, est démarqué par la ligne en pointillés blancs. La même zone de l’échantillon enregistrée en μPL à basse puissance et avec un grand spot d’excitation est présentée sur la figure 3.24b. Le spot d’excitation est placé sur une demi-dizaine de fissures et son centre se trouve à $20 \mu\text{m}$ du bord de la mesa. Il est visible sur la figure 3.24b sous la forme d’une ligne horizontale faiblement lumineuse.

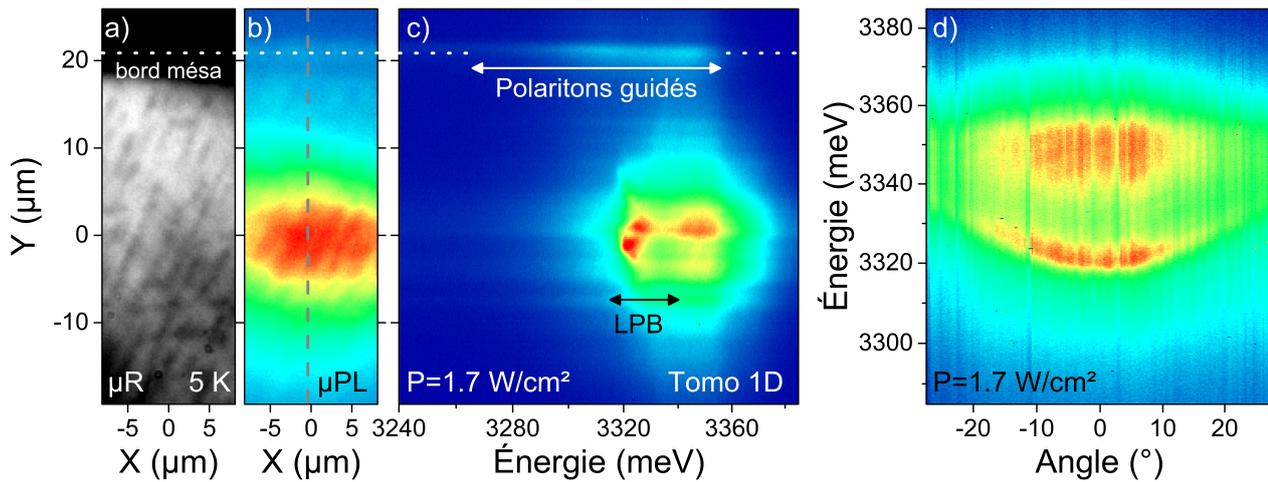


Fig. 3.24 – Microcavité ZnO. Image en espace réel réalisée en μR (a) et en μPL (b) à 5 K. Le bord du mesa est signalé par le trait en pointillé horizontal. c) Tomographie 1D centrée sur la ligne grise de la figure b). d) Imagerie de Fourier présentant la dispersion de la LPB. La puissance d'excitation est égale à 1.7 W/cm^2 .

Le flanc de mesa, comme les fissures, permet de coupler les modes non-radiatifs de la microcavité au cône de lumière. L'émission du flanc de mesa devrait donc être différente de l'émission radiative localisée sous le spot d'excitation.

Pour confirmer cela, nous avons eu recours à la technique de tomographie 1D. En fermant les fentes du spectromètre sur la ligne verticale représentée par les tirets gris sur la figure 3.24b, il est possible de différencier l'énergie d'émission en fonction de la hauteur Y . Le résultat est présentée sur la figure 3.24c. La ligne sondée englobe le bord de la mesa situé à $Y=21 \mu\text{m}$, le spot d'excitation compris entre $Y=-10 \mu\text{m}$ et $Y=10 \mu\text{m}$, et plusieurs fissures. Pour simplifier l'interprétation, la dispersion de la LPB enregistrée en imagerie de Fourier est reportée sur la figure 3.24d. Comme attendu, l'émission du spot d'excitation est dominée par la luminescence de la LPB, visible entre 3315 meV et 3340 meV. L'émission à 3350 meV reste encore à identifier. Elle pourrait être liée à un mode de Bragg du miroir nitrure en régime de couplage fort.

L'intensité d'émission décroît rapidement en s'éloignant du spot d'excitation avant d'augmenter au niveau du flanc de mesa. L'émission associée s'étend entre 3357 meV et 3270 meV et présente un profil similaire à celui observé à basse puissance sur la figure 3.12a pour la demi-cavité ZnO, ce qui semble confirmer la présence de modes guidés.

Les figures 3.25a,b,c correspondent à la même série d'images enregistrées pour une puissance d'excitation seuil de 18.3 W/cm^2 . À cette puissance, l'émission du bord de mesa en espace réel est très marquée et se compose, comme on peut le voir sur les figures 3.25b et 3.25c, d'une série de modes laser faiblement espacés, centrés vers 3319 meV, et non-dispersifs. Ces modes Fabry-Pérot sont issus d'une cavité horizontale formée par les fissures parallèles situées sous le spot d'excitation. Il n'a pas été possible de déterminer à l'aide de la figure 3.25a sur quelle cavité horizontale prenait place l'effet laser. En effet, le spot d'excitation couvre au moins trois cavités horizontales.

La longueur de la cavité horizontale étant inconnue, il n'est pas possible de reconstruire la dispersion du mode guidé comme cela a pu être fait pour la demi-cavité. Cependant, plusieurs indices fournis par la LPB permettent d'affirmer que l'effet laser observé ici correspond bien à l'effet laser à polaritons horizontal :

- L'énergie d'émission des modes laser se trouve dans une gamme d'énergie comparable à celle observée sur le guide d'onde et la demi-cavité pour le laser à polaritons horizontal.
- La puissance d'excitation au seuil (18.3 W/cm^2) est comparable à celles reportées dans les dia-

3.4 Compétitions entre lasers à polaritons vertical et horizontal dans les microcavités

grammes de phase du chapitre 2 pour le laser à polaritons vertical.

- La dispersion de la LPB "verticale" est toujours visible sur la figure 3.25c et présente une courbure très prononcée.

L'évolution en puissance de la LPB verticale et du laser à polaritons horizontal sont reportés sur la figure 3.26a. Chaque spectre correspond à l'émission en $\theta=0^\circ$ extraite d'une image en espace réciproque pour des puissances allant de 1.7 W/cm^2 à 69 W/cm^2 . On observe en puissance le blueshift continue de la LPB verticale, même une fois que le seuil laser à polariton horizontal est dépassé. L'émission laser, conformément à ce qui a été observé dans les structures guidantes, se décale progressivement vers les basses énergies à mesure que la puissance augmente.

Le blueshift de la LPB verticale est reportée sur la figure 3.26b. On peut observer un ralentissement du blueshift une fois que le seuil laser à polaritons horizontal est atteint, signe du verrouillage du réservoir excitonique. Cela indique que la LPB verticale et la LPB horizontale partagent le même réservoir excitonique. Ces deux modes polaritoniques sont donc en compétition.

Dans le cas de figure présenté ici, le laser à polaritons horizontal présente un seuil plus faible que le laser à polaritons vertical. Une fois le seuil horizontal dépassé, la relaxation des polaritons depuis le réservoir excitonique favorise le mode horizontal et l'effet laser à polaritons vertical ne peut plus être obtenu, quelque soit la puissance d'excitation.

Un large spot d'excitation favorise de façon générale le laser à polaritons horizontal car il permet d'optimiser le ratio $\phi_{\text{spot}}/L_{\text{cav}}$ (section 3.3.5), tandis qu'il défavorise le laser à polaritons vertical en raison des effets du désordre photonique (section 2.4.2). Pour cette raison, l'effet laser à polaritons vertical n'a pas pu être observé en configuration grand spot pour des LPBs d'énergies supérieures à 3320 meV : au delà de ce désaccord, le seuil laser à polaritons horizontal est plus faible que son homologue vertical.

La figure 3.27 présente l'émission en espace réciproque enregistrée sur une autre zone de la microcavité ZnO, encore une fois en bord de mesa. L'excitation se fait toujours à l'aide d'un large spot. La puissance d'excitation est de 21 W/cm^2 . L'image, centrée à plus basse énergie, permet de distinguer deux LPBs, une à très haute énergie (3330 meV), et une à plus basse énergie (3220 meV). En effet, à 5 K et pour ce point de la microcavité, l'épaisseur de la couche active permet d'obtenir deux branches

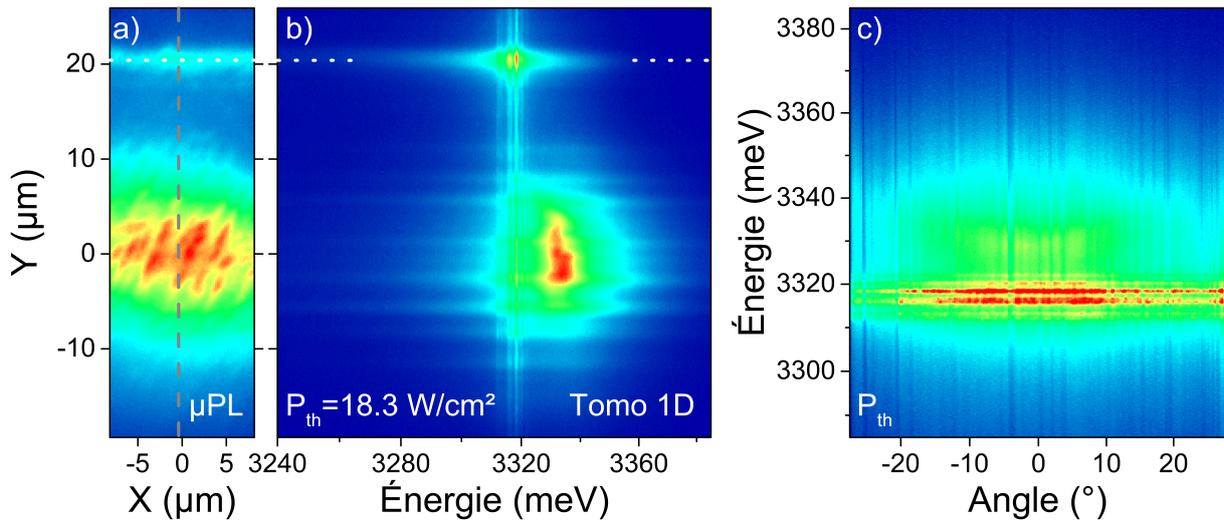


Fig. 3.25 – Microcavité ZnO. a) Image en espace réel réalisée en μPL à 5 K . Le bord du mesa est signalé par le trait en pointillé horizontal. b) Tomographie 1D centrée sur la ligne grise de la figure b). d) Imagerie de Fourier présentant la dispersion de la LPB et l'émission laser à polaritons horizontal au seuil. La puissance d'excitation est égale à 18.3 W/cm^2 .

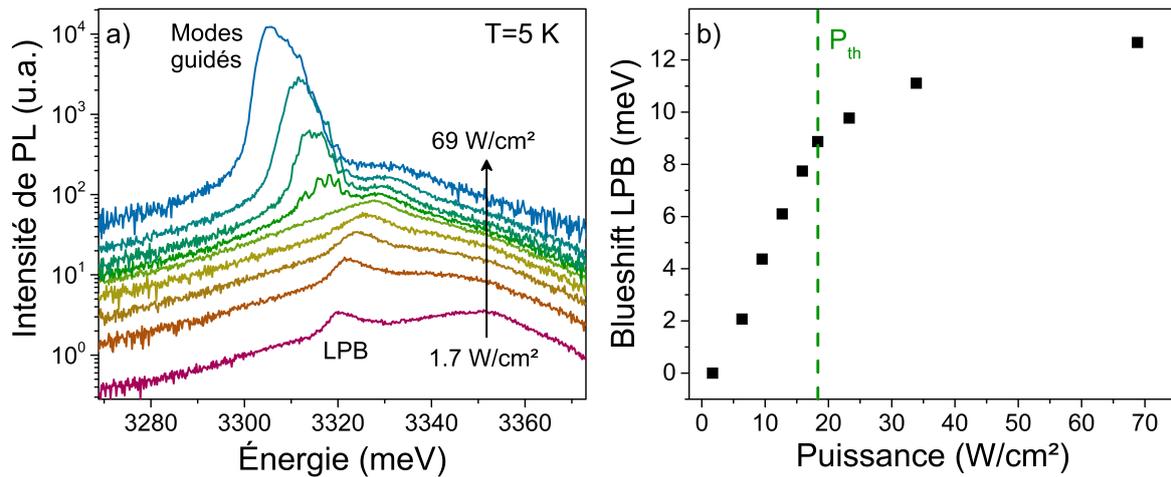


Fig. 3.26 – Microcavité ZnO. a) Spectres de μ PL enregistrés en $\theta=0^\circ$ pour des puissances d'excitation allant de 1.7 W/cm² à 69 W/cm². b) Évolution du blueshift de la LPB en fonction de la puissance d'excitation. La puissance seuil est marquée par la ligne en pointillé verte.

basses, qui correspondent chacune à un mode de cavité différent ($7\lambda/4$ et $5\lambda/4$).

Pour cette puissance d'excitation, le laser à polaritons horizontal et vertical coexistent. Ils n'ont cependant pas les mêmes seuils. Le laser à polaritons horizontal possède un seuil de 14.5 W/cm² tandis que le seuil du laser vertical est de 18 W/cm². Dans cette configuration où la LPB verticale est située à plus basse énergie que les modes lasers horizontaux, il est possible d'observer le laser à polaritons vertical même une fois le seuil du laser à polaritons horizontal dépassé. L'amélioration des processus de relaxation avec la puissance d'excitation favorise dans ce cas la LPB verticale située à basse énergie. Cette situation est analogue à la compétition observée entre plusieurs LPBs d'une microcavité par Li *et al.* dans la référence [19].

Ces deux cas de figures constituent une première approche au phénomène de compétition qui existe entre la relaxation vers la LPB verticale et la relaxation vers la LPB horizontale. Cette étude préliminaire a démontré que les modes guidés supportés par la couche active de la microcavité pouvaient constituer un mécanisme de perte non-négligeable pour la LPB verticale. Une étude plus approfondie

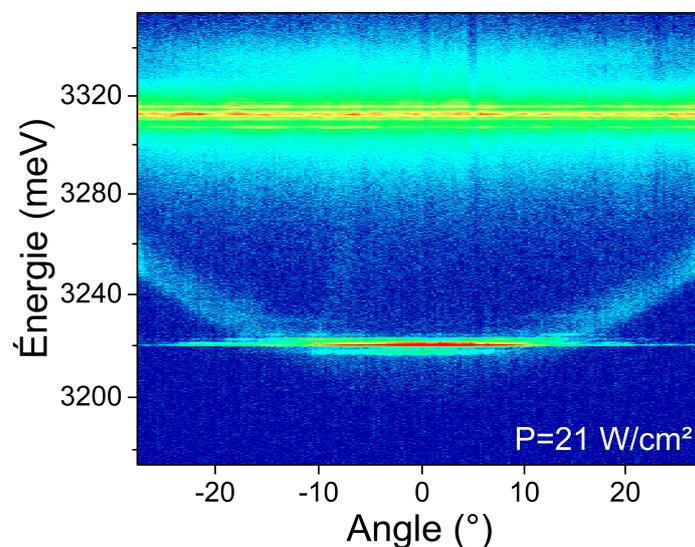


Fig. 3.27 – Microcavité ZnO. Imagerie de Fourier enregistrée pour une puissance d'excitation de 21 W/cm². Les lasers à polaritons vertical et horizontal sont visibles simultanément.

3.4 Compétitions entre lasers à polaritons vertical et horizontal dans les microcavités

die des seuils lasers verticaux et horizontaux, notamment en fonction du désaccord, est indispensable. Cette étude pourrait être appuyée par une résolution numérique de l'équation semi-classique de Boltzmann tenant compte à la fois de la LPB verticale et horizontale.

Conclusion et perspectives

Au cours de ce travail de thèse, nous avons pu étudier l'effet laser à polaritons à la fois dans des microcavités planaires à base de GaN et ZnO, et dans des structures guidantes à base de ZnO. L'objectif initial était de décrire et de comprendre l'action des différents paramètres (désaccord, température, désordre photonique) qui influencent le seuil laser à polaritons dans les microcavités planaires, et de comparer GaN et ZnO en tant que couche active, afin de déterminer les conditions les plus optimales pour la future création d'un laser à polaritons injectés électriquement. Cela a pu être réalisé grâce à des expériences de spectroscopie optique combinant micro-photoluminescence en espace réel et espace réciproque, sur deux microcavités planaires GaN et ZnO épitaxiées sur substrat Si patterné. La structuration du substrat en mésas a permis la croissance de miroirs de Bragg nitrures de 30 paires non-fissurés présentant des propriétés photoniques identiques pour les deux microcavités.

Suite à l'observation, lors de la caractérisation d'une demi-cavité ZnO homo-épitaxiée, d'un effet laser à très bas seuil, nous nous sommes focalisés sur la compréhension du phénomène d'amplification polaritonique qui permet d'obtenir l'effet à polaritons dans des structures supportant uniquement des modes guidés.

Le chapitre 2 concentre les résultats obtenus sur les deux microcavités planaires. En premier lieu, une étude de la couche active de la microcavité GaN a permis de situer l'état de contrainte des excitons libres au niveau de toute la structure et plus localement, au niveau d'une méso. Les résultats ont montré que le désordre excitonique au sein d'une même méso était inférieur à 2 meV. Nous avons ensuite caractérisé les propriétés photoniques des deux échantillons : les facteurs de qualité oscillent entre $Q=1000$ et $Q=2000$ et la variation d'énergie de la LPB sur une même mesa est inférieure à 6 meV, ce qui constitue l'état de l'art pour les microcavités GaN et ZnO. Après avoir calculé la variation du doublement de Rabi en fonction de la position du mode de cavité vis à vis des modes de Bragg du miroir nitrure, nous avons mis en évidence le régime de couplage fort à 300 K grâce à des mesures en espace réciproque. L'effet laser à polaritons a ensuite été démontré sous excitation non-résonante et à température ambiante pour les deux microcavités, ce qui constitue une première pour des microcavités sur substrat silicium.

Afin de comprendre l'aspect multimode de l'émission au delà du seuil, nous avons associé l'imagerie de Fourier avec l'imagerie en espace réel. Alors qu'au seuil laser, l'émission du condensat en espace réel est constituée d'une unique tache couvrant 1 % du spot d'excitation, de nombreuses tâches additionnelles apparaissent à plus hautes puissances. Grâce à la tomographie, nous avons pu comprendre que la variation locale du facteur de qualité était responsable de ce comportement : le point situé sous le spot d'excitation qui possède le facteur de qualité le plus élevé passe la condition de seuil en premier, puis, avec l'augmentation de la puissance, cette condition est progressivement remplie dans d'autres points. Pour quantifier l'impact du désordre photonique sur le seuil laser à polaritons nous avons mesuré sa variation en fonction de la taille du spot d'excitation. Un spot de 14 μm de diamètre permet d'obtenir le seuil le plus bas pour les deux structures. Ce diamètre optimal correspond à un compromis entre l'éjection des polaritons qui a lieu pour les petits spots et la compétition entre les différentes LPBs qui intervient pour les grands spots.

Nous avons ensuite étudié la dépendance du seuil laser en fonction du désaccord exciton-photon pour des températures allant de 10 K à 300 K. Chacun des diagrammes de phase peut être découpé en trois zones distinctes : le régime cinétique, le régime thermodynamique et le régime de compromis.

Dans le régime cinétique, le seuil laser à polaritons dépend de l'efficacité des processus de relaxation. Dans le régime thermodynamique, la masse des polaritons fixe le seuil. Finalement, entre ces deux régimes se trouve le régime de compromis, qui correspond aux désaccords pour lesquels la masse des polaritons est faible et la relaxation efficace. C'est dans ce régime que se trouvent les seuils laser les plus bas. Le seuil laser peut être localement abaissé pour les désaccords où l'état fondamental de la LPB est résonant avec la première ou la deuxième réplique phonon LO. Nous avons pu démontrer que, contrairement à l'idée générale, la condition de résonance seule ne suffisait pas à garantir la diminution du seuil. En effet, aucune réduction du seuil n'a pu être observée lorsque la résonance prenait place dans le régime thermodynamique. Pour que la diminution du seuil soit la plus importante possible, il est nécessaire que la résonance ait lieu dans le régime de compromis. Nous avons aussi pu relever le désaccord optimal associé au seuil le plus bas pour chaque température. Son évolution naturelle vers les désaccords négatifs avec l'augmentation de la température peut être perturbée par les résonances avec les répliques phonon LO. Nous avons pu vérifier, en étudiant le blueshift de la LPB pour différentes puissances seuil, que le régime de couplage fort était conservé pour l'ensemble des puissances d'excitations utilisées pour la réalisation des diagrammes de phase. Les seuils optimaux des microcavités GaN et ZnO ont pu être comparés en température. À température ambiante, les seuils des deux structures sont équivalents. Cependant, la stop-band étroite du miroir nitrure et sa position en énergie sont responsables du régime cinétique aggravé et ne permettent pas d'accéder au véritable désaccord/seuil optimal en raison de la fuite des polaritons dans les modes de Bragg du miroir.

La dernière partie du chapitre 2 est consacrée à l'étude du laser à polaritons à 350 K dans la microcavité GaN. Nous avons pu démontrer, en étudiant la variation de courbure de la LPB avec le désaccord, que le régime de couplage fort perdurait à cette température. Ce résultat constitue une première pour une microcavité planaire GaN. Nous nous sommes ensuite intéressés à l'effet laser à polaritons. L'imagerie de Fourier nous a permis de constater que la courbure de la LPB au seuil reste très différente de celle du mode de cavité nu, et ce même si le blueshift de la LPB et la renormalisation importantes des forces d'oscillateur semble indiquer que la transition couplage fort/couplage faible est proche. Le diagramme de phase de la microcavité GaN à 350 K a pu être réalisé avec le spot d'excitation de diamètre optimal. L'utilisation de ce dernier a permis d'abaisser les seuils d'un facteur deux. Au désaccord optimal, la densité d'excitation utilisée induit une renormalisation des forces d'oscillateur de près de 50 %, ce qui est comparable avec les valeurs mesurées à 300 K et compatible avec un effet laser basé sur la relaxation stimulée des polaritons.

Le chapitre 3 est dédié à l'étude de l'effet laser à polaritons horizontal prenant place dans la demi-cavité et le guide d'onde homoépitaxiés sur substrat ZnO. Ces échantillons ont la particularité de présenter des fissures parallèles régulièrement espacées qui proviennent du désaccord de maille entre le ZnMgO et le ZnO. Les études de μ PL menées sur les couches actives ont permis de mettre en lumière la relation particulière existante entre le taux de contrainte en compression du ZnO et la distance aux fissures. Grâce au formalisme des matrices S, le profil de champ et le dédoublement de Rabi de chaque mode guidé ont pu être calculés pour les deux échantillons.

Nous avons ensuite pu imager la relation de dispersion de la LPB grâce aux réseaux de diffraction gravés sur le guide d'onde et confirmer ainsi le régime de couplage fort de 5 K à 300 K. La demi-cavité ne possédant pas de réseaux de diffraction, nous avons dû employer une méthode alternative basée sur le signal de μ PL émis par les fissures. Le confinement induit par deux fissures parallèles se traduit par la présence de nombreux modes Fabry-Pérot sur les spectres de μ PL dont l'énergie permet de reproduire indirectement la dispersion de la LPB. Les études en puissance nous ont permis d'observer pour la première fois l'effet laser à polaritons dans des géométries guidantes. Ce phénomène, basé sur l'amplification bosonique des polaritons se propageant sous le réservoir d'excitons, prend place dans une gamme d'énergie spécifique résultant du compromis entre le temps de relaxation des polaritons et leur temps de passage sous le réservoir, ce dernier étant inversement proportionnelle à la vitesse de groupe des polaritons. L'évolution de la dispersion polaritonique a pu être enregistrée de $0.1 P_{th}$ à

$20 P_{th}$, confirmant la bonne tenue du régime de couplage fort. Avec l'augmentation de la puissance, l'émission laser se décale vers les basses énergies en raison de l'augmentation des taux de diffusion. Ce comportement a pu être modélisé grâce à la résolution de l'équation semi-classique de Boltzmann. Nous nous sommes ensuite intéressés à la variation du seuil laser à polaritons en fonction de la taille de cavité horizontale. Les résultats ont montré que les seuils optimaux étaient atteints lorsque le spot d'excitation couvrait toute la longueur de la cavité. Grâce à une expérience mêlant deux spots d'excitation, nous avons pu observer la ré-amplification du signal laser à polaritons, initié $60 \mu\text{m}$ en amont, lorsque celui-ci se propageait sous un réservoir excitonique. Enfin, nous avons étudié la dépendance de l'énergie d'émission et du seuil laser à polaritons en fonction de la température. L'augmentation des processus de diffusion en température permet à l'effet laser d'être initié dans des états polaritoniques de plus en plus photoniques. À 300 K , la dispersion au seuil, imagée par les réseaux de diffraction, a permis de confirmer la persistance de l'effet laser à polaritons horizontal. La dernière partie du chapitre 3 est consacrée à la compétition entre le régime laser à polaritons vertical et le laser à polaritons horizontal dans une microcavité ZnO. Sur un bord de méso présentant de nombreuses fissures parallèles, nous avons pu observer simultanément à 5 K la LPB liée au mode de cavité et l'effet laser à polaritons horizontal lié aux modes non-radiatifs de la couche active. L'étude en puissance a révélé que les deux branches polaritoniques partageaient le même réservoir et qu'elles étaient de fait en compétition. Pour les désaccords très positifs, l'effet laser à polaritons horizontal possède un seuil inférieur au laser à polaritons vertical et empêche toute condensation des polaritons dans l'état fondamental de la LPB. Au contraire, lorsque l'état fondamental de la LPB est situé sous la gamme d'énergie du laser à polaritons horizontal, une augmentation de la puissance d'excitation permet d'observer simultanément les deux modes lasers à polaritons.

L'ensemble de ces résultats sont très prometteurs pour la future création d'un laser à polaritons injectés électriquement. Des mesures de temps de vie effectifs des excitons permettront d'apporter la touche finale nécessaire pour comparer les densités associées aux seuils laser à polaritons mesurés dans nos microcavités GaN et ZnO. Ces mesures permettront aussi de situer plus précisément les densités des seuils vis à vis de la densité de saturation. Dans l'optique de diminuer les seuils laser aux hautes températures ($300\text{-}350 \text{ K}$), il est primordial de centrer les miroirs nitrures à plus basse énergie afin d'accéder à des désaccords plus négatifs. Parallèlement, une augmentation du nombre de paires permettrait aussi d'abaisser les seuils laser via l'amélioration du facteur de qualité des microcavités.

Au delà du choix du matériau déjà existant s'ajoute maintenant le choix de la géométrie la plus adaptée : microcavités ou guides d'onde. Du point de vue technologique, la géométrie horizontale est bien plus attractive, notamment du point de vue de l'injection électrique. La croissance de guides d'onde est aussi beaucoup moins contraignante que celle des microcavités. Du point de vue des seuils laser, les deux géométries sont équivalentes, même si une comparaison plus détaillée des densités est nécessaire. Les seuils du laser à polaritons horizontal pourraient être grandement réduits grâce à la gravure de ridges, qui permettrait de limiter les pertes dans la direction de propagation parallèle aux fissures. La compétition existante entre le laser à polaritons vertical et horizontal joue aussi en défaveur des microcavités. Une étude approfondie de cette compétition est nécessaire afin de quantifier les pertes dues aux modes guidés.

La géométrie guidante semble donc être la piste la plus favorable pour la réalisation d'un laser à polaritons injecté électriquement mais aussi pour la création de composants tout optique. Notre étude s'est pour l'instant focalisée sur les guides d'ondes ZnO mais pourra être étendue rapidement sur les guides d'onde GaN.

Bibliographie

- [1] SN Bose. Planck's law and light quantum hypothesis. *Z. Phys*, 26(1) :178, 1924.
- [2] Mike H Anderson, Jason R Ensher, Michael R Matthews, Carl E Wieman, Eric A Cornell, et al. Observation of bose-einstein condensation in a dilute atomic vapor. *science*, 269(5221) :198–201, 1995.
- [3] Kendall B Davis, M-O Mewes, Michael R Andrews, NJ Van Druten, DS Durfee, DM Kurn, and Wolfgang Ketterle. Bose-einstein condensation in a gas of sodium atoms. *Physical review letters*, 75(22) :3969, 1995.
- [4] SA Moskaleenko. Inverse optical-hydrodynamic phenomena in a non-ideal excitonic gas. *Fizika Tverdogo Tela*, 4 :276, 1962.
- [5] John M Blatt, KW Böer, and Werner Brandt. Bose-einstein condensation of excitons. *Physical Review*, 126(5) :1691, 1962.
- [6] Claude Weisbuch, Mr Nishioka, A Ishikawa, and Y Arakawa. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity. *Physical Review Letters*, 69(23) :3314, 1992.
- [7] Alberto Amo, Jérôme Lefrère, Simon Pigeon, Claire Adrados, Cristiano Ciuti, Iacopo Carusotto, Romuald Houdré, Elisabeth Giacobino, and Alberto Bramati. Superfluidity of polaritons in semiconductor microcavities. *Nature Physics*, 5(11) :805–810, 2009.
- [8] S Utsunomiya, L Tian, G Roumpos, CW Lai, N Kumada, T Fujisawa, M Kuwata-Gonokami, A Löffler, S Höfling, A Forchel, et al. Observation of bogoliubov excitations in exciton-polariton condensates. *Nature Physics*, 4(9) :700–705, 2008.
- [9] Konstantinos G Lagoudakis, Michiel Wouters, Maxime Richard, Augustin Baas, Iacopo Carusotto, Régis André, Le Si Dang, and B Deveaud-Plédran. Quantized vortices in an exciton-polariton condensate. *Nature Physics*, 4(9) :706–710, 2008.
- [10] KG Lagoudakis, T Ostatnický, AV Kavokin, Yuri G Rubo, Régis André, and Benoit Deveaud-Plédran. Observation of half-quantum vortices in an exciton-polariton condensate. *Science*, 326(5955) :974–976, 2009.
- [11] D Sanvitto, FM Marchetti, MH Szymańska, G Tosi, M Baudisch, FP Laussy, DN Krizhanovskii, MS Skolnick, L Marrucci, A Lemaitre, et al. Persistent currents and quantized vortices in a polariton superfluid. *Nature Physics*, 6(7) :527–533, 2010.
- [12] A Amo, D Sanvitto, FP Laussy, D Ballarini, E Del Valle, MD Martin, A Lemaitre, J Bloch, DN Krizhanovskii, MS Skolnick, et al. Collective fluid dynamics of a polariton condensate in a semiconductor microcavity. *Nature*, 457(7227) :291–295, 2009.
- [13] Alberto Amo, S Pigeon, D Sanvitto, VG Sala, R Hivet, Iacopo Carusotto, F Pisanello, G Leménager, R Houdré, E Giacobino, et al. Polariton superfluids reveal quantum hydrodynamic solitons. *Science*, 332(6034) :1167–1170, 2011.

-
- [14] M Sich, DN Krizhanovskii, MS Skolnick, Andriy V Gorbach, Robin Hartley, Dmitry V Skryabin, EA Cerda-Méndez, K Biermann, R Hey, and PV Santos. Observation of bright polariton solitons in a semiconductor microcavity. *Nature photonics*, 6(1) :50–55, 2012.
- [15] A Imamoglu, RJ Ram, S Pau, Y Yamamoto, et al. Nonequilibrium condensates and lasers without inversion : Exciton-polariton lasers. *Physical Review A*, 53(6) :4250, 1996.
- [16] Guillaume Malpuech, Aldo Di Carlo, Alexey Kavokin, Jeremy J Baumberg, Marian Zamfirescu, and Paolo Lugli. Room-temperature polariton lasers based on gan microcavities. *Applied physics letters*, 81(3) :412–414, 2002.
- [17] 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. *Physical Review B*, 65(16) :161205, 2002.
- [18] S Christopoulos, G Baldassarri Höger Von Högersthal, AJD Grundy, PG Lagoudakis, AV Kavokin, JJ Baumberg, G Christmann, R Butté, E Feltin, J-F Carlin, et al. Room-temperature polariton lasing in semiconductor microcavities. *Physical review letters*, 98(12) :126405, 2007.
- [19] Feng Li, Laurent Orosz, Olfa Kamoun, Sophie Bouchoule, Christelle Brimont, Pierre Disseix, Thierry Guillet, Xavier Lafosse, Mathieu Leroux, Joël Leymarie, et al. From excitonic to photonic polariton condensate in a zno-based microcavity. *Physical review letters*, 110(19) :196406, 2013.
- [20] E Wertz, A Amo, DD Solnyshkov, L Ferrier, Timothy Chi Hin Liew, D Sanvitto, P Senellart, I Sagnes, A Lemaître, AV Kavokin, et al. Propagation and amplification dynamics of 1d polariton condensates. *Physical review letters*, 109(21) :216404, 2012.
- [21] IA Shelykh, R Johne, DD Solnyshkov, and G Malpuech. Optically and electrically controlled polariton spin transistor. *Physical Review B*, 82(15) :153303, 2010.
- [22] D Ballarini, M De Giorgi, E Cancellieri, R Houdré, E Giacobino, R Cingolani, A Bramati, G Gigli, and D Sanvitto. All-optical polariton transistor. *Nature Communications*, 4 :1778, 2013.
- [23] A Amo, TCH Liew, C Adrados, R Houdré, E Giacobino, AV Kavokin, and A Bramati. Exciton-polariton spin switches. *Nature Photonics*, 4(6) :361–366, 2010.
- [24] TCH Liew, AV Kavokin, and IA Shelykh. Optical circuits based on polariton neurons in semiconductor microcavities. *Physical Review Letters*, 101(1) :016402, 2008.
- [25] Hai Son Nguyen, Dmitry Vishnevsky, Chris Sturm, Dimitrii Tanese, Dmitry Solnyshkov, Elisabeth Galopin, Aristide Lemaître, Isabelle Sagnes, Alberto Amo, Guillaume Malpuech, et al. Realization of a double-barrier resonant tunneling diode for cavity polaritons. *Physical review letters*, 110(23) :236601, 2013.
- [26] E Berkowicz, D Gershoni, G Bahir, E Lakin, D Shilo, E Zolotoyabko, AC Abare, S Pl Denbaars, and LA Coldren. Measured and calculated radiative lifetime and optical absorption of in x ga 1-x n/g a n quantum structures. *Physical Review B*, 61(16) :10994, 2000.
- [27] H Karzel, W Potzel, M Köfferlein, W Schiessl, M Steiner, U Hiller, GM Kalvius, DW Mitchell, TP Das, P Blaha, et al. Lattice dynamics and hyperfine interactions in zno and znse at high external pressures. *Physical Review B*, 53(17) :11425, 1996.
- [28] A Polian, M Grimsditch, and I Grzegory. Elastic constants of gallium nitride. *Journal of Applied Physics*, 79(6) :3343–3344, 1996.
- [29] G Carlotti, G Socino, A Petri, and E Verona. Acoustic investigation of the elastic properties of zno films. *Applied Physics Letters*, 51(23) :1889–1891, 1987.

-
- [30] Takafumi Yao and Soon-Ku Hong. *Oxide and nitride semiconductors : Processing, properties, and applications*, volume 12. Springer Science & Business Media, 2009.
- [31] Ramon Cuscó, Esther Alarcón-Lladó, Jordi Ibáñez, Luis Artús, Juan Jiménez, Buguo Wang, and Michael J Callahan. Temperature dependence of raman scattering in zno. *Physical Review B*, 75(16) :165202, 2007.
- [32] Masakatsu Suzuki, Takeshi Uenoyama, and Akira Yanase. First-principles calculations of effective-mass parameters of aln and gan. *Physical Review B*, 52(11) :8132, 1995.
- [33] Yefan Chen, DM Bagnall, Hang-jun Koh, Ki-tae Park, Kenji Hiraga, Ziqiang Zhu, and Takafumi Yao. Plasma assisted molecular beam epitaxy of zno on c-plane sapphire : growth and characterization. *Journal of Applied Physics*, 84(7) :3912–3918, 1998.
- [34] P Perlin, I Gorczyca, NE Christensen, I Grzegory, H Teisseyre, and T Suski. Pressure studies of gallium nitride : crystal growth and fundamental electronic properties. *Physical Review B*, 45(23) :13307, 1992.
- [35] Anderson Janotti and Chris G Van de Walle. Fundamentals of zinc oxide as a semiconductor. *Reports on progress in physics*, 72(12) :126501, 2009.
- [36] Claus F Klingshirn. *Semiconductor optics*. Springer Science & Business Media, 2012.
- [37] Joseph L Birman. Some selection rules for band-band transitions in wurtzite structure. *Physical Review*, 114(6) :1490, 1959.
- [38] Walter RL Lambrecht, Anna V Rodina, Sukit Limpijumnong, B Segall, and Bruno K Meyer. Valence-band ordering and magneto-optic exciton fine structure in zno. *Physical review B*, 65(7) :075207, 2002.
- [39] AV Rodina, M Strassburg, M Dworzak, U Haboek, A Hoffmann, A Zeuner, HR Alves, DM Hofmann, and BK Meyer. Magneto-optical properties of bound excitons in zno. *Physical Review B*, 69(12) :125206, 2004.
- [40] Claus F Klingshirn, Andreas Waag, Axel Hoffmann, and Jean Geurts. *Zinc oxide : from fundamental properties towards novel applications*, volume 120. Springer Science & Business Media, 2010.
- [41] S Biernacki, U Scherz, and BK Meyer. Temperature dependence of optical transitions between electronic energy levels in semiconductors. *Physical Review B*, 49(7) :4501, 1994.
- [42] Yatendra Pal Varshni. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *physica*, 34(1) :149–154, 1967.
- [43] YC Yeo, TC Chong, and MF Li. Electronic band structures and effective-mass parameters of wurtzite gan and inn. *Journal of applied physics*, 83(3) :1429–1436, 1998.
- [44] M Hadis and Ö Ümit. *Zinc Oxide : Fundamentals, Materials and Device Technology*. WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, 2009.
- [45] J Frenkel. On the transformation of light into heat in solids. *Physical Review*, 37(1) :17, 1931.
- [46] Gregory H Wannier. The structure of electronic excitation levels in insulating crystals. *Physical Review*, 52(3) :191, 1937.
- [47] NF Mott. Conduction in polar crystals. ii. the conduction band and ultra-violet absorption of alkali-halide crystals. *Transactions of the Faraday Society*, 34 :500–506, 1938.

-
- [48] DG Thomas. The exciton spectrum of zinc oxide. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 15(1-2) :86–96, 1960.
- [49] O Aoudé, P Disseix, J Leymarie, A Vasson, M Leroux, E Aujol, B Beaumont, A Trassoudaine, and Y André. Continuous-wave and ultrafast coherent reflectivity studies of excitons in bulk gan. *Physical Review B*, 77(4) :045206, 2008.
- [50] DC Reynolds, David C Look, B Jogai, AW Saxler, SS Park, and JY Hahn. Identification of the γ 5 and γ 6 free excitons in gan. *Applied Physics Letters*, 77(18) :2879–2881, 2000.
- [51] Robert Laskowski and Niels Egede Christensen. Ab initio calculation of excitons in zno. *Physical Review B*, 73(4) :045201, 2006.
- [52] DG Thomas. The exciton spectrum of zinc oxide. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 15(1-2) :86–96, 1960.
- [53] SL Chuang and CS Chang. k.p method for strained wurtzite semiconductors. *Physical Review B*, 54(4) :2491, 1996.
- [54] G Rossbach. *High-Density Excitonic Effects in GaN : Mott-Transition and Polariton Lasing*. PhD thesis, PhD Thesis, Ecole polytechnique federale de Lausanne, Lausanne, 2014.
- [55] Emilien Mallet. *Etude des propriétés polaritoniques de ZnO et GaN. Application à l'étude de l'effet laser à polaritons dans une microcavité*. PhD thesis, Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II, 2014.
- [56] S Rudin, TL Reinecke, and B Segall. Temperature-dependent exciton linewidths in semiconductors. *Physical Review B*, 42(17) :11218, 1990.
- [57] GL Bir and GE Pikus. Symmetry and deformation effects in semiconductors, 1972.
- [58] H Fröhlich, H Pelzer, and S Zienau. Polarons in ionic crystals and polar semiconductors. 1972.
- [59] Ouloum Aoudé. *Etude des propriétés excitoniques de GaN par spectroscopies continue et résolue en temps à l'échelle de la femtoseconde*. PhD thesis, Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II, 2006.
- [60] NF Mott. The transition to the metallic state. *Philosophical Magazine*, 6(62) :287–309, 1961.
- [61] Euan Hendry, Mattijs Koeberg, and Mischa Bonn. Exciton and electron-hole plasma formation dynamics in zno. *Physical Review B*, 76(4) :045214, 2007.
- [62] Claus Klingshirn, Robert Hauschild, Johannes Fallert, and Heinz Kalt. Room-temperature stimulated emission of zno : Alternatives to excitonic lasing. *Physical Review B*, 75(11) :115203, 2007.
- [63] Takehiko Nagai, Takeshi J Inagaki, and Yoshihiko Kanemitsu. Band-gap renormalization in highly excited gan. *Applied physics letters*, 84(8) :1284–1286, 2004.
- [64] F Binet, JY Duboz, J Off, and F Scholz. High-excitation photoluminescence in gan : Hot-carrier effects and the mott transition. *Physical Review B*, 60(7) :4715, 1999.
- [65] R Cingolani, M Ferrara, and M Lugara. Electron-hole plasma generation in gallium nitride. *Solid state communications*, 60(9) :705–708, 1986.
- [66] C Klingshirn, J Fallert, O Gogolin, M Wissinger, R Hauschild, M Hauser, H Kalt, and H Zhou. Linear and nonlinear optics, dynamics, and lasing in zno bulk and nanostructures. *Journal of Luminescence*, 128(5) :792–796, 2008.

-
- [67] K Kyhm, RA Taylor, JFR Ryan, B Beaumont, and P Gibart. Electron-hole plasma mott transition and stimulated emission in gan. 2004.
- [68] Marijn AM Versteegh, Tim Kuis, HTC Stoof, and Jaap I Dijkhuis. Ultrafast screening and carrier dynamics in zno : Theory and experiment. *Physical Review B*, 84(3) :035207, 2011.
- [69] CK Choi, YH Kwon, JS Krasinski, GH Park, G Setlur, JJ Song, and YC Chang. Ultrafast carrier dynamics in a highly excited gan epilayer. *Physical Review B*, 63(11) :115315, 2001.
- [70] Roland Zimmermann. *Many-particle theory of highly excited semiconductors*, volume 18. Vch Pub, 1988.
- [71] H Schweizer, A Forchel, A Hangleiter, S Schmitt-Rink, JP Löwenau, and H Haug. Ionization of the direct-gap exciton in photoexcited germanium. *Physical Review Letters*, 51(8) :698, 1983.
- [72] TJ Schmidt, JJ Song, YC Chang, R Horning, and B Goldenberg. Large optical nonlinearities near the band gap of gan thin films. *Applied physics letters*, 72(12) :1504–1506, 1998.
- [73] S Wachter, M Maute, H Kalt, and I Galbraith. Coherent exciton interactions : Dependence on excitation fluence and polarization. *Physical Review B*, 65(20) :205314, 2002.
- [74] G Manzke, QY Peng, K Henneberger, U Neukirch, K Hauke, K Wundke, J Gutowski, and D Hommel. Density dependence of the exciton energy in semiconductors. *Physical review letters*, 80(22) :4943, 1998.
- [75] Maurice GA Bernard and Georges Duraffourg. Laser conditions in semiconductors. *physica status solidi (b)*, 1(7) :699–703, 1961.
- [76] Georg Rossbach. High-density excitonic effects in gan. 2014.
- [77] TJ Schmidt, AJ Fischer, and JJ Song. Optical nonlinearities in the band edge region of highly excited (in) gan thin films studied via femtosecond and nanosecond optical pump–probe spectroscopy. *physica status solidi (b)*, 216(1) :505–509, 1999.
- [78] P Vashishta and RK Kalia. Universal behavior of exchange-correlation energy in electron-hole liquid. *Physical Review B*, 25(10) :6492, 1982.
- [79] Giovanna Panzarini, Lucio Claudio Andreani, A Armitage, D Baxter, MS Skolnick, VN Astratov, JS Roberts, Alexey V Kavokin, Maria R Vladimirova, and MA Kaliteevski. Exciton-light coupling in single and coupled semiconductor microcavities : Polariton dispersion and polarization splitting. *Physical Review B*, 59(7) :5082, 1999.
- [80] H Benisty, Hans De Neve, and Cl Weisbuch. Impact of planar microcavity effects on light extraction-part i : Basic concepts and analytical trends. *IEEE Journal of quantum electronics*, 34(9) :1612–1631, 1998.
- [81] Feng Li. *Fabrication et caractérisation des microcavités à base de ZnO en régime de couplage fort : laser à polaritons*. PhD thesis, Nice, 2013.
- [82] DM Whittaker, P Kinsler, TA Fisher, MS Skolnick, A Armitage, AM Afshar, MD Sturge, and JS Roberts. Motional narrowing in semiconductor microcavities. *Physical review letters*, 77(23) :4792, 1996.
- [83] Josselin Defrance, Caroline Lemaître, Rabih Ajib, Jessica Benedicto, Emilien Mallet, Rémi Pollès, Jean-Pierre Plumey, Martine Mihailovic, Emmanuel Centeno, Cristian Ciraci, et al. Moosh : A numerical swiss army knife for the optics of multilayers in octave/matlab. *Journal of Open Research Software*, 4(1), 2016.

-
- [84] Edward Mills Purcell. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. In *Confined Electrons and Photons*, pages 839–839. Springer, 1995.
- [85] JJ Hopfield. Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals. *Physical Review*, 112(5) :1555, 1958.
- [86] John Michael Kosterlitz and David James Thouless. Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 6(7) :1181, 1973.
- [87] Daniele Bajoni. Polariton lasers. hybrid light–matter lasers without inversion. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 45(31) :313001, 2012.
- [88] Jacek Kasprzak, M Richard, S Kundermann, A Baas, P Jeambrun, JMJ Keeling, FM Marchetti, MH Szymanska, R Andre, JL Staehli, et al. Bose-einstein condensation of exciton polaritons. *Nature*, 443(7110) :409, 2006.
- [89] Hadis Morkoç. *Handbook of nitride semiconductors and devices, Materials Properties, Physics and Growth*, volume 1. John Wiley & Sons, 2009.
- [90] KT Tsen, DK Ferry, A Botchkarev, B Sverdlov, A Salvador, and H Morkoc. Direct measurements of electron-longitudinal optical phonon scattering rates in wurtzite gan. *Applied physics letters*, 71(13) :1852–1853, 1997.
- [91] Alexey V Kavokin, Jeremy J Baumberg, Guillaume Malpuech, and Fabrice P Laussy. *Microcavities*, volume 21. Oxford University Press, 2017.
- [92] F Tassone, C Piermarocchi, V Savona, A Quattropani, and P Schwendimann. Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons. *Physical Review B*, 56(12) :7554, 1997.
- [93] Jacques Levrat. Physics of polariton condensates in gan-based planar microcavities. 2012.
- [94] J Kasprzak, DD Solnyshkov, Régis André, Le Si Dang, and Guillaume Malpuech. Formation of an exciton polariton condensate : Thermodynamic versus kinetic regimes. *Physical review letters*, 101(14) :146404, 2008.
- [95] Esther Wertz, Lydie Ferrier, Dmitry D Solnyshkov, Pascale Senellart, Daniele Bajoni, Audrey Miard, Aristide Lemaître, Guillaume Malpuech, and Jacqueline Bloch. Spontaneous formation of a polariton condensate in a planar gaas microcavity. *Applied Physics Letters*, 95(5) :051108, 2009.
- [96] Georg Rossbach, Jacques Levrat, Eric Feltin, Jean-François Carlin, Raphaël Butté, and Nicolas Grandjean. Impact of saturation on the polariton renormalization in iii-nitride based planar microcavities. *Physical Review B*, 88(16) :165312, 2013.
- [97] Thierry Guillet, Christelle Brimont, Pierre Valvin, Bernard Gil, Thierry Bretagnon, F Médard, Martine Mihailovic, Jesús Zúñiga-Pérez, Mathieu Leroux, F Semond, et al. Laser emission with excitonic gain in a zno planar microcavity. *Applied Physics Letters*, 98(21) :211105, 2011.
- [98] Ying-Yu Lai, Yu-Hsun Chou, Yu-Pin Lan, Tien-Chang Lu, Shing-Chung Wang, and Yoshihisa Yamamoto. Crossover from polariton lasing to exciton lasing in a strongly coupled zno microcavity. *Scientific reports*, 6, 2016.
- [99] Le Si Dang, D Heger, R André, F Boeuf, and R Romestain. Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity. *Physical Review Letters*, 81(18) :3920, 1998.

-
- [100] Hui Deng, Gregor Weihs, David Snoke, Jacqueline Bloch, and Yoshihisa Yamamoto. Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 100(26) :15318–15323, 2003.
- [101] R Balili, V Hartwell, D Snoke, L Pfeiffer, and K West. Bose-einstein condensation of microcavity polaritons in a trap. *Science*, 316(5827) :1007–1010, 2007.
- [102] Daniele Bajoni, Pascale Senellart, Esther Wertz, Isabelle Sagnes, Audrey Miard, Aristide Lemaitre, and Jacqueline Bloch. Polariton laser using single micropillar gas-gaas semiconductor cavities. *Physical review letters*, 100(4) :047401, 2008.
- [103] P Tsotsis, PS Eldridge, T Gao, Simeon I Tsintzos, Zacharias Hatzopoulos, and Pavlos G Savvidis. Lasing threshold doubling at the crossover from strong to weak coupling regime in gas microcavity. *New Journal of physics*, 14(2) :023060, 2012.
- [104] N Antoine-Vincent, F Natali, D Byrne, Aime Vasson, Pierre Disseix, Joël Leymarie, M Leroux, F Semond, and J Massies. Observation of rabi splitting in a bulk gas microcavity grown on silicon. *Physical Review B*, 68(15) :153313, 2003.
- [105] F Semond, IR Sellers, F Natali, D Byrne, M Leroux, J Massies, N Ollier, Joël Leymarie, P Disseix, and A Vasson. Strong light-matter coupling at room temperature in simple geometry gas microcavities grown on silicon. *Applied Physics Letters*, 87(2) :021102, 2005.
- [106] R Shimada, J Xie, Vitaliy Avrutin, Ü Özgür, and H Morkoç. Cavity polaritons in zno-based hybrid microcavities. *Applied Physics Letters*, 92(1) :011127, 2008.
- [107] Stéphane Faure, Christelle Brimont, Thierry Guillet, T Bretagnon, B Gil, François Médard, D Lagarde, Pierre Disseix, Joël Leymarie, Jesús Zúñiga-Pérez, et al. Relaxation and emission of bragg-mode and cavity-mode polaritons in a zno microcavity at room temperature. *Applied Physics Letters*, 95(12) :121102, 2009.
- [108] Goro Oohata, Takashi Nishioka, Daegwi Kim, Hajime Ishihara, and Masaaki Nakayama. Giant rabi splitting in a bulk cucl microcavity. *Physical Review B*, 78(23) :233304, 2008.
- [109] A Pawlis, A Khartchenko, O Husberg, DJ As, K Lischka, and D Schikora. Large room temperature rabi-splitting in a znse/(zn, cd) se semiconductor microcavity structure. *Solid state communications*, 123(5) :235–238, 2002.
- [110] K Sebald, Aurélien Trichet, Maxime Richard, LS Dang, M Seyfried, S Klemmt, Carola Kruse, and D Hommel. Optical polariton properties in znse-based planar and pillar structured microcavities. *The European Physical Journal B*, 84(3) :381–384, 2011.
- [111] Gabriel Christmann, Raphaël Butté, Eric Feltin, Jean-Francois Carlin, and Nicolas Grandjean. Room temperature polariton lasing in a gas/algan multiple quantum well microcavity. *Applied Physics Letters*, 93(5) :051102, 2008.
- [112] Aurélien Trichet, Emilien Durupt, François Médard, Sanjoy Datta, Anna Minguzzi, and Maxime Richard. Long-range correlations in a 97% excitonic one-dimensional polariton condensate. *Physical Review B*, 88(12) :121407, 2013.
- [113] Dan Xu, Wei Xie, Wenhui Liu, Jian Wang, Long Zhang, Yinglei Wang, Saifeng Zhang, Liaoxin Sun, Xuechu Shen, and Zhanghai Chen. Polariton lasing in a zno microwire above 450 k. *Applied Physics Letters*, 104(8) :082101, 2014.
- [114] S Kéna-Cohen and SR Forrest. Room-temperature polariton lasing in an organic single-crystal microcavity. *Nature Photonics*, 4(6) :371, 2010.

-
- [115] Johannes D Plumhof, Thilo Stöferle, Lijian Mai, Ullrich Scherf, and Rainer F Mahrt. Room-temperature bose–einstein condensation of cavity exciton–polaritons in a polymer. *Nature materials*, 13(3) :247, 2013.
- [116] Rui Su, Carole Diederichs, Jun Wang, Timothy CH Liew, Jiabin Zhao, Sheng Liu, Weigao Xu, Zhanghai Chen, and Qihua Xiong. Room-temperature polariton lasing in all-inorganic perovskite nanoplatelets. *Nano letters*, 17(6) :3982–3988, 2017.
- [117] Pallab Bhattacharya, Thomas Frost, Saniya Deshpande, Md Zunaid Baten, Arnab Hazari, and Ayan Das. Room temperature electrically injected polariton laser. *Physical review letters*, 112(23) :236802, 2014.
- [118] Benoit Deveaud. Comment on “room temperature electrically injected polariton laser”. *Physical review letters*, 117(2) :029701, 2016.
- [119] Konstantinos Lagoudakis. *The Physics of Exciton-polariton Condensates*. CRC Press, 2013.
- [120] Yasuzi Suzaki and Atsushi Tachibana. Measurement of the μm sized radius of gaussian laser beam using the scanning knife-edge. *Applied Optics*, 14(12) :2809–2810, 1975.
- [121] T Hossain, J Wang, E Frayssinet, S Chenot, M Leroux, B Damilano, F Demangeot, L Durand, A Ponchet, MJ Rashid, et al. Stress distribution of 12 μm thick crack free continuous gan on patterned si (110) substrate. *physica status solidi (c)*, 10(3) :425–428, 2013.
- [122] Benjamin Damilano, Stéphane Brochen, Julien Brault, Tasnia Hossain, François Réveret, Eric Frayssinet, Sébastien Chenot, Aimeric Courville, Yvon Cordier, and Fabrice Semond. Growth of nitride-based light emitting diodes with a high-reflectivity distributed bragg reflector on mesa-patterned silicon substrate. *physica status solidi (a)*, 212(10) :2297–2301, 2015.
- [123] AJ Fischer, W Shan, JJ Song, YC Chang, R Horning, and B Goldenberg. Temperature-dependent absorption measurements of excitons in gan epilayers. *Applied physics letters*, 71(14) :1981–1983, 1997.
- [124] PR Hageman, S Haffouz, V Kirilyuk, A Grzegorzczuk, and PK Larsen. High quality gan layers on si (111) substrates : Aln buffer layer optimisation and insertion of a sin intermediate layer. *PHYSICA STATUS SOLIDI A APPLIED RESEARCH*, 188(1/2) :523–526, 2001.
- [125] Jesús Zúñiga-Pérez, E Mallet, Rereao Hahe, MJ Rashid, Sophie Bouchoule, Christelle Brimont, Pierre Disseix, Jean-Yves Duboz, Guillaume Gomme, Thierry Guillet, et al. Patterned silicon substrates : A common platform for room temperature gan and zno polariton lasers. *Applied Physics Letters*, 104(24) :241113, 2014.
- [126] F Réveret, L Bignet, W Zhigang, X Lafosse, G Patriarche, P Disseix, F Médard, M Mihailovic, J Leymarie, J Zúñiga-Pérez, et al. High reflectance dielectric distributed bragg reflectors for near ultra-violet planar microcavities : $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ versus SiO_2/SiNx . *Journal of Applied Physics*, 120(9) :093107, 2016.
- [127] F Réveret, F Médard, P Disseix, J Leymarie, M Mihailovic, A Vasson, IR Sellers, F Semond, M Leroux, and J Massies. Optical investigations of bulk and multi-quantum well nitride-based microcavities. *Optical Materials*, 31(3) :505–509, 2009.
- [128] François Médard, Jesús Zúñiga-Pérez, Pierre Disseix, Martine Mihailovic, Joël Leymarie, Aime Vasson, Fabrice Semond, Eric Frayssinet, Jean-Christophe Moreno, Mathieu Leroux, et al. Experimental observation of strong light-matter coupling in zno microcavities : Influence of large excitonic absorption. *Physical Review B*, 79(12) :125302, 2009.

-
- [129] Laurent Orosz, François Réveret, François Médard, Pierre Disseix, Joël Leymarie, Martine Mihailovic, Dimitri Solnyshkov, Guillaume Malpuech, Jesús Zúñiga-Pérez, Fabrice Semond, et al. Lo-phonon-assisted polariton lasing in a zno-based microcavity. *Physical Review B*, 85(12) :121201, 2012.
- [130] Michiel Wouters and Iacopo Carusotto. Excitations in a nonequilibrium bose-einstein condensate of exciton polaritons. *Physical review letters*, 99(14) :140402, 2007.
- [131] R Jayaprakash, FG Kalitizakis, G Christmann, K Tsagaraki, Moïra Hocevar, B Gayral, E Monroy, and NT Pelekanos. Ultra-low threshold polariton lasing at room temperature in a gan membrane microcavity with a zero-dimensional trap. *Scientific Reports*, 7(1) :5542, 2017.
- [132] Jacek Kasprzak, R André, Le Si Dang, IA Shelykh, AV Kavokin, Yuri G Rubo, KV Kavokin, and Guillaume Malpuech. Build up and pinning of linear polarization in the bose condensates of exciton polaritons. *Physical Review B*, 75(4) :045326, 2007.
- [133] Gunnar Björk, Henrich Heitmann, and Yoshihisa Yamamoto. Spontaneous-emission coupling factor and mode characteristics of planar dielectric microcavity lasers. *Physical Review A*, 47(5) :4451, 1993.
- [134] A Baas, KG Lagoudakis, M Richard, R André, Le Si Dang, and B Deveaud-Plédran. Synchronized and desynchronized phases of exciton-polariton condensates in the presence of disorder. *Physical review letters*, 100(17) :170401, 2008.
- [135] Gabriela Slavcheva and Philippe Roussignol. *Optical Generation and Control of Quantum Coherence in Semiconductor Nanostructures*. Springer Science & Business Media, 2010.
- [136] AI Tartakovskii, M Emam-Ismaïl, RM Stevenson, MS Skolnick, VN Astratov, DM Whittaker, Jeremy J Baumberg, and JS Roberts. Relaxation bottleneck and its suppression in semiconductor microcavities. *Physical Review B*, 62(4) :R2283, 2000.
- [137] F Boeuf, R André, R Romestain, Le Si Dang, Emmanuel Peronne, JF Lampin, D Hulin, and Antigonis Alexandrou. Evidence of polariton stimulation in semiconductor microcavities. *Physical Review B*, 62(4) :R2279, 2000.
- [138] M Maragkou, AJD Grundy, T Ostatnický, and PG Lagoudakis. Longitudinal optical phonon assisted polariton laser. *Applied Physics Letters*, 97(11) :111110, 2010.
- [139] Laurent Orosz, François Réveret, François Médard, Pierre Disseix, Joël Leymarie, Martine Mihailovic, Dimitri Solnyshkov, Guillaume Malpuech, Jesús Zúñiga-Pérez, Fabrice Semond, et al. Lo-phonon-assisted polariton lasing in a zno-based microcavity. *Physical Review B*, 85(12) :121201, 2012.
- [140] Pierre Corfdir, Jacques Levrat, Georg Rossbach, Raphaël Butté, Eric Feltin, J-F Carlin, Gabriel Christmann, Pierre Lefebvre, J-D Ganière, Nicolas Grandjean, et al. Impact of biexcitons on the relaxation mechanisms of polaritons in iii-nitride based multiple quantum well microcavities. *Physical Review B*, 85(24) :245308, 2012.
- [141] F Stokker-Cheregi, A Vinattieri, F Semond, M Leroux, IR Sellers, J Massies, D Solnyshkov, G Malpuech, M Colocci, and M Gurioli. Polariton relaxation bottleneck and its thermal suppression in bulk gan microcavities. *Applied Physics Letters*, 92(4) :042119, 2008.
- [142] Jacques Levrat, Raphaël Butté, Eric Feltin, Jean-François Carlin, Nicolas Grandjean, Dmitry Solnyshkov, and Guillaume Malpuech. Condensation phase diagram of cavity polaritons in gan-based microcavities : Experiment and theory. *Physical Review B*, 81(12) :125305, 2010.

-
- [143] E Gross, S Permogorov, and B Razbirin. Free exciton motion in crystals and exciton-phonon interaction. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 27(10) :1647–1651, 1966.
- [144] B Segall and GD Mahan. Phonon-assisted recombination of free excitons in compound semiconductors. *Physical Review*, 171(3) :935, 1968.
- [145] 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(7) :073044, 2009.
- [146] O Aoudé, P Disseix, J Leymarie, A Vasson, M Leroux, E Aujol, B Beaumont, A Trassoudaine, and Y André. Continuous-wave and ultrafast coherent reflectivity studies of excitons in bulk gan. *Physical Review B*, 77(4) :045206, 2008.
- [147] Valerio D’Innocenzo, Giulia Grancini, Marcelo JP Alcocer, Ajay Ram Srimath Kandada, Samuel D Stranks, Michael M Lee, Guglielmo Lanzani, Henry J Snaith, and Annamaria Petrozza. Excitons versus free charges in organo-lead tri-halide perovskites. *Nature communications*, 5 :3586, 2014.
- [148] P Tsotsis, PS Eldridge, T Gao, Simeon I Tsintzos, Zacharias Hatzopoulos, and Pavlos G Savvidis. Lasing threshold doubling at the crossover from strong to weak coupling regime in gaas microcavity. *New Journal of physics*, 14(2) :023060, 2012.
- [149] Claudéric Ouellet-Plamondon. On the physics of multimode polaritons. 2017.
- [150] Tien-Chang Lu, Ying-Yu Lai, Yu-Pin Lan, Si-Wei Huang, Jun-Rong Chen, Yung-Chi Wu, Wen-Feng Hsieh, and Hui Deng. Room temperature polariton lasing vs. photon lasing in a zno-based hybrid microcavity. *Optics express*, 20(5) :5530–5537, 2012.
- [151] T Gao, PS Eldridge, Timothy Chi Hin Liew, SI Tsintzos, George Stavriniadis, G Deligeorgis, Z Hatzopoulos, and PG Savvidis. Polariton condensate transistor switch. *Physical Review B*, 85(23) :235102, 2012.
- [152] Tal Ellenbogen and Kenneth B Crozier. Exciton-polariton emission from organic semiconductor optical waveguides. *Physical Review B*, 84(16) :161304, 2011.
- [153] PM Walker, L Tinkler, DV Skryabin, A Yulin, B Royall, I Farrer, DA Ritchie, MS Skolnick, and DN Krizhanovskii. Ultra-low-power hybrid light–matter solitons. *Nature communications*, 6 :8317, 2015.
- [154] Giovanni Lerario, Dario Ballarini, Antonio Fieramosca, Alessandro Cannavale, Armando Genco, Federica Mangione, Salvatore Gambino, Lorenzo Dominici, Milena De Giorgi, Giuseppe Gigli, et al. High-speed flow of interacting organic polaritons. *Light : Science & Applications*, 6(2) :e16212, 2017.
- [155] Joachim Ciers, Jonas G Roch, J-F Carlin, Gwénoél Jacopin, Raphaël Butté, and Nicolas Grandjean. Propagating polaritons in iii-nitride slab waveguides. *Physical Review Applied*, 7(3) :034019, 2017.
- [156] Emiliano Descrovi, Tristan Sfez, Lorenzo Dominici, Wataru Nakagawa, Francesco Michelotti, Fabrizio Giorgis, and Hans-Peter Herzig. Near-field imaging of bloch surface waves on silicon nitride one-dimensional photonic crystals. *Optics express*, 16(8) :5453–5464, 2008.
- [157] Pochi Yeh, Amnon Yariv, and AY Cho. Optical surface waves in periodic layered media. *Applied Physics Letters*, 32(2) :104–105, 1978.

-
- [158] Alberto Sinibaldi, Norbert Danz, Emiliano Descrovi, Peter Munzert, Ulrike Schulz, Frank Sonntag, Lorenzo Dominici, and Francesco Michelotti. Direct comparison of the performance of bloch surface wave and surface plasmon polariton sensors. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 174 :292–298, 2012.
- [159] Xiu-Bao Kang, Li-Wei Wen, and Zhi-Guo Wang. Design of guided bloch surface wave resonance bio-sensors with high sensitivity. *Optics Communications*, 383 :531–536, 2017.
- [160] Stefano Pirotta, Maddalena Patrini, Marco Liscidini, Matteo Galli, Giacomo Dacarro, Giancarlo Canazza, Giorgio Guizzetti, Davide Comoretto, and Daniele Bajoni. Strong coupling between excitons in organic semiconductors and bloch surface waves. *Applied Physics Letters*, 104(5) :051111, 2014.
- [161] Giovanni Lerario, Alessandro Cannavale, Dario Ballarini, Lorenzo Dominici, Milena De Giorgi, Marco Liscidini, Dario Gerace, Daniele Sanvitto, and Giuseppe Gigli. Room temperature bloch surface wave polaritons. *Optics letters*, 39(7) :2068–2071, 2014.
- [162] Lloyd Tinkler. *Optical nonlinearities in semiconductor polariton waveguides*. PhD thesis, University of Sheffield, 2015.
- [163] DD Solnyshkov, H Terças, and G Malpuech. Optical amplifier based on guided polaritons in gan and zno. *Applied Physics Letters*, 105(23) :231102, 2014.
- [164] Zhe Chuan Feng. *Handbook of zinc oxide and related materials : volume two, devices and nano-engineering*, volume 2. CRC press, 2012.
- [165] Marius Grundmann and Jesús Zúñiga-Pérez. Pseudomorphic zno-based heterostructures : From polar through all semipolar to nonpolar orientations. *physica status solidi (b)*, 253(2) :351–360, 2016.
- [166] Markus Raphael Wagner. *Fundamental properties of excitons and phonons in ZnO : A spectroscopic study of the dynamics, polarity, and effects of external fields*. PhD thesis, Technische Universität Berlin, 2010.
- [167] A Teke, Ü Özgür, S Doğan, X Gu, Hadis Morkoç, B Nemeth, J Nause, and HO Everitt. Excitonic fine structure and recombination dynamics in single-crystalline zno. *Physical Review B*, 70(19) :195207, 2004.
- [168] Daniel Vanmaekelbergh and Lambert K Van Vugt. Zno nanowire lasers. *Nanoscale*, 3(7) :2783–2800, 2011.
- [169] Marijn AM Versteegh, Daniël Vanmaekelbergh, and Jaap I Dijkhuis. Room-temperature laser emission of zno nanowires explained by many-body theory. *Physical review letters*, 108(15) :157402, 2012.