



Etude des microcavités planaires ZnO dans le régime de coupage fort

Laurent Orosz

► To cite this version:

Laurent Orosz. Etude des microcavités planaires ZnO dans le régime de coupage fort. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2013. Français. NNT : 2013CLF22412 . tel-02122747

HAL Id: tel-02122747

<https://theses.hal.science/tel-02122747>

Submitted on 7 May 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.

Numéro d'ordre :DU 2412

UNIVERSITE BLAISE PASCAL - CLERMONT-FERRAND II

(UFR de Recherche Scientifique et Technique)

Ecole doctorale des Sciences Fondamentales

N°777

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

(Spécialité : Physique des matériaux)

par

Laurent OROSZ

**Etude des microcavités planaires ZnO dans le régime de
couplage fort**

Soutenue publiquement le 12 Décembre 2013, devant la commission d'examen :

Raphaël BUTTÉ	Examineur
Emmanuelle DELEPORTE	Rapporteur
Pierre DISSEIX	Président de jury
Bruno GAYRAL	Rapporteur
Joël LEYMARIE	Directeur de thèse
Martine MIHAILOVIC	Directeur de thèse

Institut Pascal - Axe Photon

"When I was 5 years old, my mother always told me that happiness was the key to life. When I went to school, they asked me what I wanted to be when I grew up. I wrot down 'happy'. They told me I didn't understand the asignement, and I told them they didn't understand life"

John Lennon

Remerciements

Ces trois années de thèse sont la conclusion de mes études supérieures et si je le vois comme un aboutissement, je ressens aussi un petit pincement au cœur. Une période de ma vie prends fin, celle des études, et une nouvelle commence, celle de la vie professionnelle. Ma vie ne serait pas la mienne aujourd'hui si au cours des années et notamment au cours des trois dernières, je n'avais pas été soutenu. C'est un exercice délicat de remercier tous ceux, qui ont su par leurs conseils, leurs aides et leurs présences, me donner la chance de passer ces trois années extrêmement enrichissantes au sein de l'Institut Pascal. Je m'excuse par avance au prêt de ceux que j'oublierais en chemin, et au prêt de ceux à qui mes mots ne rendront pas assez honneur.

Avant tous autres, je souhaite remercier mes directeurs de thèse. Merci à toi Joël Leymarie et à toi Martine Mihailovic, je ne pouvais pas rêver un meilleur duo de directeur de thèse. Vous avez su me diriger tout en prenant en compte mes choix et en restant patient. Les nombreuses discussions scientifiques que nous avons eu, ont fait évoluer mon esprit scientifique. Au delà de l'aspect professionnel, je vous apprécie beaucoup. Merci Martine de m'avoir chouchouté et tant aidé pour l'écriture de ce manuscrit. Merci aussi pour tes gâteaux délicieux (ceux où il n'y a pas les raisins secs). Si toutes les Universités étaient peuplées de personnes comme toi, alors la fac serait un monde merveilleux. Merci Joël de m'avoir fait confiance il y a trois ans. Merci pour avoir su resté patient et de m'avoir guidé lorsque nous parlions des sujets théoriques. Tu ne m'as jamais mis la pression et c'est grâce à toi que l'atmosphère de travail pouvait être si agréable.

Bien évidemment mes remerciements vont aussi à Emmanuelle Deleporte et Bruno Geyral qui ont acceptés de rapporter mon manuscrit. Vos remarques franches et honnêtes ont grandement aidées à améliorer la qualité scientifique de ce manuscrit. Merci aussi à Raphaël Butté pour les nombreuses remarques et corrections. Merci à vous pour la qualité des rapports et la pertinence de vos questions.

Je veux aussi remercier Pierre Disseix. Personne n'est aussi à l'aise pour parler de physique en faisant l'équilibriste sur un ballon. Même si ton équilibre était parfois précaire, tes explications étaient toujours claires et j'ai compris beaucoup grâce à toi. Quand je t'entendais venir de l'autre bout du couloir, je savais qu'on allait bien travailler 10% du temps et s'amuser les 90% restant. Ton duo dans le bureau avec Emilien n'aidait pas forcément à ma production scientifique mais m'aidait à me sentir bien dans l'équipe. Grâce à toi je rigole quand les gens râlent autour de moi, ça me rappelle de bons souvenirs.

Un très grand merci à toi aussi François Reveret. Travailler avec toi sur les expériences est l'un de mes meilleurs souvenirs que je garderais du labo. Tes explications et tes schémas

griffonnés au coin d'une carte de visite m'ont souvent aidés à comprendre et à apprendre. Ton calme contrastait beaucoup avec l'agitation de mon bureau. Face à des acrobates-jongleurs-clowns-équilibristes qui se produisaient en 1119, être avec toi en salle d'optique m'offrait un havre de paix. Je me rappellerais aussi longtemps de notre combat perdu face à toutes ces pintes de Despés dans ce bar Parisien. J'espère qu'on aura l'occasion de prendre notre revanche quand je repasserais au Nota.

Même si tu n'étais pas encore là lors de mon arrivée, ma thèse n'aurait pas été la même sans toi Emilien Mallet. Grâce à toi ma concentration était toujours à son maximum.. ou pas. Les différents sports improbables qu'on a pu inventer finiront un jour j'en suis sûr au programme des jeux olympiques. La peur de recevoir un ballon en pleine tête rendait la journée palpitante et remplie de suspense. Grâce, légèreté et délicatesse, ce sont les mots qui me viennent à l'esprit lorsque je me rappelle de tes acrobaties. Tu es capable de parler de la condensation de Bose Einstein tout en grimpant sur le bureau pour voir si ça tient quand on saute dessus. Si les scientifiques sont tous des fous, alors tu es l'un des meilleurs.

Je ne veux pas oublier François Médard. Grâce à ton travail des années précédentes j'ai obtenu de supers résultats et je te dois beaucoup. Je te souhaite le meilleur pour ton retour et j'espère que tu prendras soin de ton vieux directeur de thèse qui continue toujours à perdre ses affaires aux quatre coins de la fac.

De manière générale, un grand merci à cette équipe qui m'a dorloté comme peut de thésards ont eu la chance de l'être. Vous resterez tous gravés dans ma mémoire et dans mon cœur. Venir travailler les matins était un vrai plaisir.

Bonne chance aussi à Elissa Roch, on a pas eu l'occasion de travailler beaucoup ensemble mais je sais que tu te plaira dans cette équipe. Je remercie Guillaume Malpuech et Dmitry Solnyshkov pour leur aide importante lors de l'interprétation des résultats et pour beaucoup d'autres explications. Merci à Pierre BigenWald pour ces pâtisseries délicieuses et à Françoise Bohaud qui mérite la médaille d'or des secrétaires.

Merci à Jessica Bénédicto avec qui j'ai passé le plus clair de mon temps. Tu m'as supporté pendant très longtemps. Je ne retiens que de bons souvenirs et bien sûr bonne chance pour ton Postdoc. Je te souhaite de revenir vite en Auvergne. Tu ferais un super Maître de Conférence.

Je tiens évidemment à remercier toutes les personnes avec lesquels j'ai travaillé en collaboration. Je pense particulièrement à Jésus Zúñiga-Pérez et Feng Li. Je salue le travail de Feng qui m'a permis de travailler sur du ZnO de grande qualité et je le remercie pour sa gentillesse. Merci à Sophie Bouchoule pour la réalisation des miroirs diélectriques et merci à Thierry Guillet pour nos collaborations fructueuses.

Je voulais aussi exprimer des remerciements plus personnels. Autour de moi désormais beau-

coup de personnes connaissent les polaritons. En effet j'ai bassiné nombre d'amis avec mes explications sur mon sujet de thèse. Je tiens à les remercier de ne pas m'en vouloir et de toujours être mes amis. En Auvergne il existe maintenant une fine équipe de pilots trial capable de parler des polaritons. Merci pour toutes ces sorties du lundi soir. Parco, beaulieu, europe, les remparts, tant de lieux mythiques. Je pense à vous en écrivant ces dernières lignes ; Cyril, Ben, Max, Jey, Nono, Clem, Toto, Romain, mais aussi Muss, Mat, Dodu, Marie, Laétitia, Fred, Lucile, Emilie, Jojo, Grazou . . .

Finalement de gros remerciements pour ma famille. Merci de m'avoir permis de faire les études qui me plaisaient même si je ne ramenaient pas les meilleures notes de la promo. Sans se soutenir rassurant derrière moi je n'aurais pas pu réaliser tout cela.

Table des matières

Introduction	1
1 Notions fondamentales : le ZnO et les microcavités à base de semi-conducteurs	5
1.1 Introduction à l'oxyde de zinc	7
1.2 Propriétés du ZnO	8
1.2.1 Technique d'élaboration des couches minces	9
L'épitaxie en phase liquide	9
L'épitaxie par jets moléculaires	9
L'épitaxie en phase vapeur	10
1.2.2 Système cristallin et structure de bandes	10
1.2.3 Masse effective des porteurs de charge	14
1.3 L'exciton	16
1.3.1 Modèle hydrogénéoïde	17
1.3.2 L'exciton dans un champ électromagnétique	20
1.4 Confinement de la lumière dans les cavités	23
1.4.1 Structure multicouches : miroirs de Bragg	25
1.4.2 Mode photonique de cavité	28
1.4.3 Relation de dispersion du mode photonique	29
1.5 Couplage fort : modèle quasi-particule	31
1.6 Condensation de Bose-Einstein	33
1.6.1 Condensation dans les microcavités	35
1.7 Laser à polaritons	36
1.8 Etat de l'art et problématique	37
Dans ZnO	38
Dans GaN	38
2 Méthodes expérimentales	41
2.1 Equipement	42
Sources LASER	42
Sources lumineuses	42
Detection	42
2.2 Source d'excitation laser	43
Laser de pompe Verdi	43
Oscillateur Mira	43

Obtention d'harmoniques double et triple	43
2.3 Réflectivité	44
2.3.1 Réflectivité sous incidence normale	44
2.3.2 Réflectivité en angle	46
Système cryogénique	46
2.4 Modèle des matrices de transfert	47
2.4.1 Coefficients de Fresnel	48
Polarisation TE	48
Polarisation TM	50
2.4.2 Structure multi-couches et modèle matriciel	50
Matrice interface	52
Matrice couche	53
Matrice S et coefficients de Fresnel	54
2.5 Micro-photoluminescence	54
Imagerie de Fourier	56
Imagerie 2D	58
3 Microcavités hybrides en couplage fort et résultats	61
3.1 Cavité hybride	63
3.2 Réflectivité en angle	67
3.3 Étude en puissance	69
3.3.1 Conclusion	71
3.4 Cavité semi-hybride	73
3.5 Mise en évidence du couplage fort	75
3.6 Laser à polaritons	76
3.6.1 Caractéristique de l'émission pour un detuning faible	76
3.6.2 Influence du detuning sur les phénomènes de relaxation	79
Synthèse	80
3.7 Etude du blue-shift	81
3.8 Conclusion	82
4 Microcavité à haute qualité cristalline	85
4.1 Cavité semi-épitaxiée	86
4.2 Homogénéité de la cavité	87
4.3 Profil d'épaisseur de la cavité	89
4.4 Effet laser de 5 à 300 K	91
4.5 Compétition entre modes	96
4.5.1 Modélisation du condensat de polaritons	99
4.6 Propagation du condensat	101
4.6.1 Synthèse	105
Conclusion	107
Bibliographie	117

Introduction

La genèse des travaux que nous allons présenter dans ce manuscrit vient des études théoriques développées au cours des années 1920. On découvre alors la physique quantique. Les études de Bose soutenues plus tard par celles d'Einstein prédisent que la matière peut prendre un quatrième état, le condensat de Bose-Einstein.

Dans les trois états classiques, solide, liquide et gazeux, les atomes ont un comportement individuel. Selon l'état de la matière les interactions entre atomes sont différentes, mais on peut décrire chaque état en modélisant un atome interagissant plus ou moins avec son voisinage.

Dans le cas du condensat de Bose-Einstein, ce caractère individuel n'est plus observé. Une fraction macroscopique des particules se regroupe dans un même état quantique. Les atomes n'existent plus individuellement mais font partie d'un ensemble possédant à son tour un caractère unique. L'idée de Bose est d'appliquer les lois mathématiques qui décrivent le comportement des particules légères aux particules lourdes comme les atomes. En descendant à de très basses températures et dans certaines conditions, il est possible d'obtenir un état régi par les principes de la physique quantique.

Il est facile de se représenter un gaz, un liquide, ou un solide, nous pensons aisément à l'exemple simple de l'eau, mais il est beaucoup plus compliqué d'appréhender un condensat de Bose-Einstein. C'est pourquoi la théorie de Bose a eu beaucoup de mal à se faire une place dans la communauté scientifique. Pendant plus de soixante dix ans, cet état n'était que théorique, et aucune observation expérimentale n'avait pu être réalisée. Les conditions extrêmes que nécessite cet état sont en effet difficiles à mettre en oeuvre. Dans un premier temps les expérimentateurs ont pensé que les atomes légers comme l'hydrogène seraient les meilleurs candidats pour observer un condensat de Bose-Einstein. Il fallait obtenir des densités 1000 fois plus importantes que celles atteintes jusqu'alors et descendre à des températures extrêmement basses. Après de nombreuses années infructueuses, plusieurs équipes se tournent vers des atomes lourds et des nouvelles techniques afin de refroidir les atomes jusqu'à quelques milliardièmes de Kelvin au dessus de zéro. En 1995 on observe pour la première fois un condensat grâce à des atomes de rubidium puis de sodium.

De nos jours la condensation d'atomes reste difficile à observer. Cependant, dans les années 90, l'idée d'une alternative aux atomes émerge. En effet, les progrès technologiques de la fin du XX siècle sont portés par les travaux dans le domaine de l'électronique et de l'optique. Les semi-conducteurs sont alors à la base de nombreuses recherches. L'idée d'obtenir l'état de condensation à l'aide de ces matériaux est lancée. On cherche à travailler avec les électrons et les photons au travers de particules composites alliant les propriétés de ces deux particules.

Elles sont plusieurs milliers de fois plus légères que les atomes les moins lourds. L'état de condensat est alors en théorie plus simple à obtenir.

De là naît un intérêt grandissant pour le domaine de la physique des condensats dans les cavités à semi-conducteur. Ce champ de recherche est depuis 20 ans maintenant très important. Au cours des dernières années, des progrès majeurs ont été obtenus, notamment en croissance des matériaux et dans la compréhension des phénomènes physiques. L'évolution rapide des techniques permet aujourd'hui d'observer et même de contrôler certains phénomènes qui auparavant étaient inaccessibles et seulement prédits par les équipes théoriciennes. Ce manuscrit, présentant mes travaux de thèse est une contribution à l'observation et à la compréhension des phénomènes qui mènent à la condensation de Bose-Einstein dans les microcavités à base de semi-conducteurs et plus particulièrement de ZnO.

Le premier chapitre introduit les notions principales nécessaires pour l'étude des microcavités planaires et fournit aux lecteurs les notions fondamentales à la compréhension des résultats présentés dans ce manuscrit. Les propriétés générales de l'oxyde de zinc en tant que semi-conducteur permettront de définir les atouts de ce matériau pour l'obtention d'une émission non-linéaire de lumière à bas seuil. Les miroirs de Bragg seront présentés pour introduire les microcavités et le phénomène de couplage fort. Enfin une introduction au "laser à polaritons" présentera les conditions requises pour son obtention et un bref état de l'art indiquera le contexte de ces études.

Le deuxième chapitre s'attarde sur les installations expérimentales utilisées lors de ces travaux. Le matériel ainsi que les dispositifs seront décrits de façon approfondie afin de comprendre précisément quels phénomènes peuvent être observés. Les caractéristiques des sources utilisées, les montages de détection ainsi que le matériel spécifique seront passés en revue.

Le troisième chapitre est consacré à la présentation des microcavités ZnO hybrides. Les résultats majeurs qui conduisent à l'observation du laser à polaritons seront exposés à travers les études menées sur deux cavités. Nous présentons tout d'abord, grâce aux mesures de réflectivité résolue en angle, l'observation du couplage fort qui est le premier pas vers l'obtention du laser à polaritons. Puis à partir d'études de spectroscopie en fonction de l'intensité d'excitation, utilisant l'imagerie dans l'espace de Fourier, le phénomène de relaxation des polaritons le long de la branche polaritonique basse sera discuté. Nous montrerons l'influence de l'inhomogénéité des échantillons sur la relaxation des polaritons et l'effet d'accumulation des particules pour un vecteur d'onde non nul de la relation de dispersion (effet "Bottleneck") sera mis en évidence. Grâce à l'utilisation de montages expérimentaux en micro-photoluminescence nous verrons qu'il est possible de s'affranchir des problèmes d'inhomogénéité de surface et l'effet laser à polaritons sera étudié à basse température. Enfin, l'importance du désaccord optique de la cavité sur le seuil laser sera étudiée et l'influence des phonons longitudinaux optiques (LO) lors de la relaxation sera démontrée.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude d'une cavité ZnO à haute qualité cristal-

line. La couche active est obtenue à partir d'un échantillon massif et présente de nombreux avantages face aux cavités conventionnelles. Le facteur de qualité optique mesuré est très important pour une cavité planaire ($Q > 3000$) et permet d'observer l'émission laser à polaritons de 5 K jusqu'à 300 K. Nous verrons aussi que la structure de cette cavité permet d'étudier cette émission sur une plage de désaccords optiques sans précédent : l'écart d'énergie entre l'énergie des excitons et l'énergie du mode optique varie de plus de 600 meV. Ces deux degrés de liberté (température et désaccord) nous permettent de reporter l'évolution du seuil laser en fonction de la température et du désaccord. Ce "diagramme de phase" n'avait pas encore été rapporté dans le cas des cavités de ce type à base de ZnO . Dans une deuxième partie, nous montrerons que le profil d'épaisseur de la cavité permet d'observer plusieurs modes couplés situés à des énergies très proches. Il est alors possible de contrôler l'énergie du pic d'émission en ajustant l'intensité de l'excitation. Enfin, l'utilisation de la spectroscopie dans l'espace réel permettra d'observer le déplacement du condensat. Le facteur de qualité important permet d'obtenir un temps de vie des particules très grand et d'étudier leur propagation. On discutera alors de l'influence de l'intensité d'excitation et du gradient d'épaisseur sur cette propagation.

Chapitre 1

Notions fondamentales : le ZnO et les microcavités à base de semi-conducteurs

Sommaire

1.1	Introduction à l'oxyde de zinc	7
1.2	Propriétés du ZnO	8
1.2.1	Technique d'élaboration des couches minces	9
1.2.2	Système cristallin et structure de bandes	10
1.2.3	Masse effective des porteurs de charge	14
1.3	L'exciton	16
1.3.1	Modèle hydrogénoïde	17
1.3.2	L'exciton dans un champ électromagnétique	20
1.4	Confinement de la lumière dans les cavités	23
1.4.1	Structure multicouches : miroirs de Bragg	25
1.4.2	Mode photonique de cavité	28
1.4.3	Relation de dispersion du mode photonique	29
1.5	Couplage fort : modèle quasi-particule	31
1.6	Condensation de Bose-Einstein	33
1.6.1	Condensation dans les microcavités	35
1.7	Laser à polaritons	36
1.8	Etat de l'art et problématique	37

Dans ce premier chapitre, nous allons développer les notions essentielles qui nous permettront d'appréhender confortablement les résultats présentés dans les chapitres suivants. La première partie sera consacrée à l'étude du ZnO, matériau sur lequel ces travaux sont basés. Nous mettrons en avant ses points forts à travers ses propriétés qui permettent de comprendre pourquoi ce semi-conducteur est l'un des plus étudiés en microcavité. On s'intéressera à sa structure cristalline ainsi qu'à sa structure de bande, et nous citerons quelques méthodes de croissance couramment utilisées pour réaliser des microcavités planaires. La

deuxième partie aborde les points principaux relatifs aux cavités résonnantes à miroirs de Bragg et au confinement de la lumière. La dernière partie introduit la notion d'exciton et de polariton de cavité à travers le couplage fort et le modèle quasi-particule. Les bases seront alors posées et nous terminerons ce chapitre par une introduction au laser à polaritons qui est l'un des thèmes principaux de ce manuscrit.

1.1 Introduction à l'oxyde de zinc

L'oxyde de Zinc (ZnO) est un semi-conducteur II-VI. On trouve le ZnO à l'état naturel, il se nomme alors zinkit. Sa couleur va du jaune au rouge en fonction des impuretés incorporées comme le Mn ou le Fe. Le ZnO pur obtenu en laboratoire est, quant à lui, transparent pour l'oeil.

Plusieurs centaines de milliers de tonnes de ZnO sont utilisées par an dans des activités aussi nombreuses que variées. Ainsi on le retrouve sous forme d'additif dans la fabrication de pneus, il est aussi utilisé dans l'industrie agroalimentaire, et bien sûr dans l'électronique, notamment dans la conception de certains capteurs.

L'attention portée au ZnO au cours des années présente une évolution en dents de scie. Les premières études publiées remontent à la première partie du 20ème siècle [10] (détermination du paramètre de maille). Elles portaient déjà sur les propriétés électriques et optiques avec les travaux de D.G Thomas (mesure de la réflectivité et de l'absorption de ZnO [89]). L'intérêt pour ce matériau allait plus ou moins grandissant jusqu'à la fin des années 60 durant lesquelles il a été largement étudié [57].

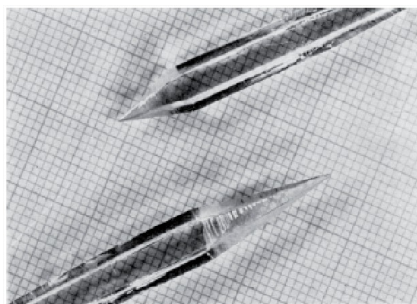


FIGURE 1.1 – "Aiguilles" hexagonales de ZnO [38]

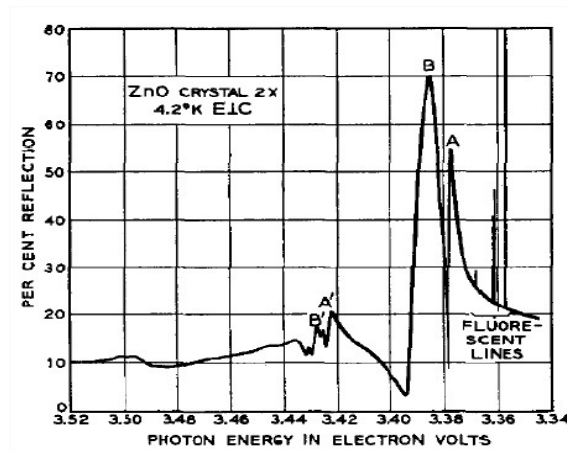


FIGURE 1.2 – Réflectivité de ZnO à basse température [89]

L'attention reste constante jusqu'aux années 80, puis ce matériau a progressivement été mis de côté. A l'époque, l'objectif était la réalisation de diodes laser émettant dans l'UV à base de ZnO. Ce composant nécessite obligatoirement un dopage p (déficit d'électrons) qui aujourd'hui reste difficile. Ce type de dopage permet une excitation électrique du matériau. Même si certaines diodes laser ZnO ont été réalisées [92], le procédé de dopage reste encore à valider et pour le moment aucun développement industriel n'est envisageable. Certaines publications rapportent quelques résultats discutables, mais surtout difficilement reproductibles. Les années suivantes ont vu l'avènement des matériaux III-V et principalement GaN avec le dopage p [1][67] pour des applications dans les mêmes gammes de longueur d'onde. Les nombreuses études menées sur ces matériaux mettaient en avant de nouvelles structures comme les puits quantiques et ne laissaient que peu de place à l'étude d'autres semi-conducteurs. Les composants ont évolué et l'intérêt pour de nouvelles sources émettant

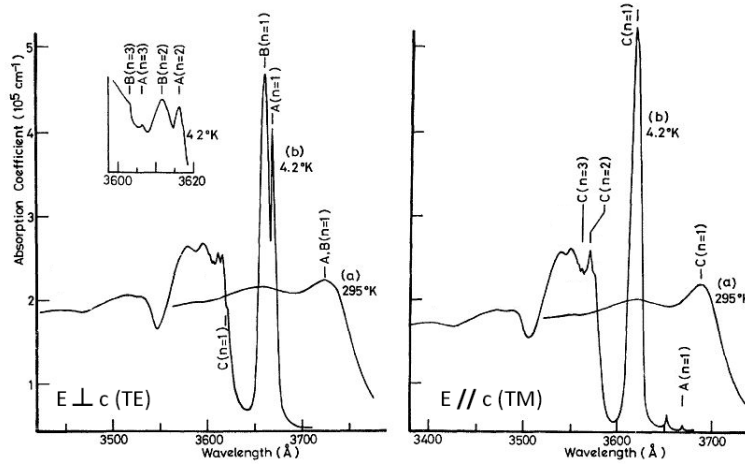


FIGURE 1.3 – Spectres d’absorption de ZnO à basse température, (gauche) $E \perp c$, (droite) $E \parallel c$ [57].

dans l’UV est redevenu important. Du fait de nombreux brevets déposés sur GaN (famille III-V) au cours des ans et de la pénurie de certains précurseurs (gallium, indium [61]) les recherches se sont à nouveau portées sur le ZnO qui a des caractéristiques assez proches et même certains avantages en matière d’épitaxie et de toxicité. Depuis le milieu des années 90 le ZnO devient progressivement un des semiconducteurs les plus étudiés dans le domaine de la recherche en optoélectronique. Les nouveaux procédés d’épitaxie et l’expérience acquise au cours des années donnent aujourd’hui un avenir prometteur à ce semi-conducteur longtemps oublié.

1.2 Propriétés du ZnO

L’oxyde de zinc est un semi-conducteur de la famille II-VI. C’est un matériau à large bande interdite (gap), autour de 3,3 eV à température ambiante, c’est à dire correspondant au proche UV ($\lambda \approx 365$ nm). Il a tendance à cristalliser préférentiellement dans la structure hexagonale de type wurtzite du fait de sa forte polarité qui rend cette structure plus stable. Chaque ion zinc est voisin de quatre ions oxygène et vice versa. On peut obtenir un arrangement cubique de type blende de zinc si la croissance a été faite sur un substrat lui aussi de type blende de zinc (figure 1.4). Cette structure est composée de deux réseaux cubiques à faces centrées décalés d’un quart de diagonale. Une dernière structure cubique plus rare, est possible si le cristal est soumis à de fortes pressions, le type halite. Il est formé de deux réseaux cubiques à face centrée décalés d’un demi côté de la maille [64].

Le ZnO utilisé pour le développement de composants est exclusivement obtenu par synthèse. On utilise des techniques dites d’épitaxie, elles permettent de faire croître un matériau en empilant des couches cristallines de façon orientée et ordonnée.

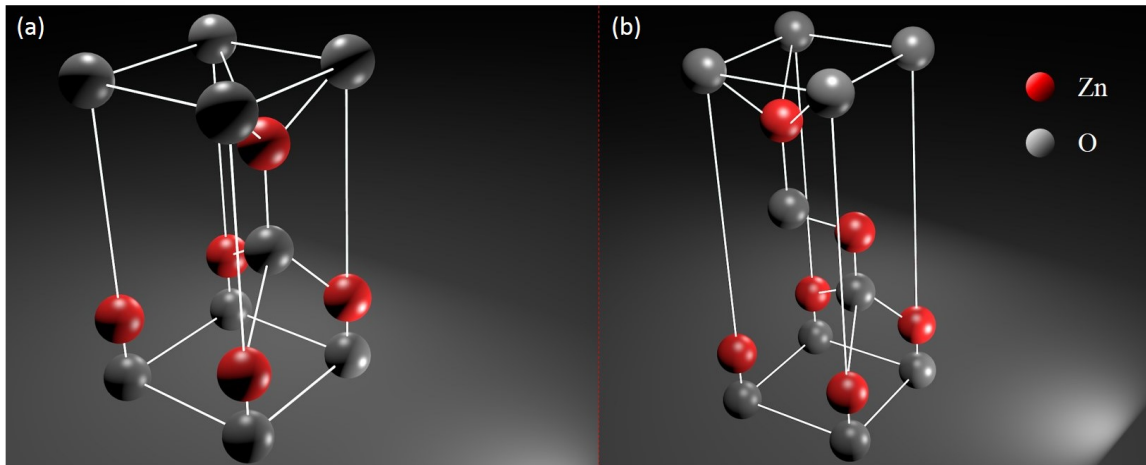


FIGURE 1.4 – Représentation cristallographique de ZnO pour une maille de type wurtzite (a) et blende de zinc (b). La distance entre un atome de zinc et un atome d'oxygène est de 1,96 Å suivant l'axe c et 1,98 Å suivant les trois autres axes

1.2.1 Technique d'élaboration des couches minces

L'épitaxie des couches minces se fait par croissance orientée d'une couche monocristalline sur un substrat lui-même monocristallin, dont la nature diffère par la composition de sa structure. Lorsque la différence entre le substrat et la couche déposée réside seulement dans le taux de dopage, on emploie le terme d'homoépitaxie (deux matériaux de même nature). À l'inverse, le dépôt d'un composant de nature différente du substrat est appelé hétéroépitaxie. Les réactions de dépôts peuvent avoir lieu en phase liquide, gazeuse ou sous ultra-vide ; on parle alors respectivement d'épitaxie en phase liquide, gazeuse, et d'épitaxie par jets moléculaires.

L'épitaxie en phase liquide

Le substrat est mis en contact avec un bain liquide de composition adéquate sous température contrôlée. Cette technique de croissance est à la fois simple, souple et peu coûteuse. La qualité électronique des matériaux semi-conducteurs est excellente. Malheureusement cette technique est très sensible à la température et la vitesse de croissance dépend fortement de ce paramètre. L'uniformité de l'épaisseur des couches pour des surfaces de plusieurs cm^2 est problématique. Il faut ajouter à cela la difficulté de réaliser de bonnes interfaces d'hétérojonction à cause de l'obligation de glisser le substrat d'un bain à l'autre lors du changement de composition. Au niveau de la qualité de la surface, on note fréquemment la présence de défauts tels que des gouttelettes de métal et des terrasses macroscopiques. [13][66][104]

L'épitaxie par jets moléculaires

L'épitaxie par jets moléculaires est une méthode de croissance qui consiste à obtenir un dépôt sur un substrat chauffé à une température de l'ordre de $\approx 500\text{ }^{\circ}C$ à partir de jets de molécules produits dans une enceinte sous ultra-vide. Les flux moléculaires peuvent être

obtenus soit en évaporant les différents constituants à partir de sources liquides ou solides (MBE - Molecular Beam Epitaxy)[14], soit à partir de sources gazeuses contenant les éléments chimiques requis (CBE - Chemical Beam Epitaxy)[70][95]. Dans ces deux cas, les sources peuvent être des organométalliques ou des hydrures. La très faible vitesse de croissance et la courte durée des transitoires permettent de contrôler des épaisseurs de l'ordre de la monocouche et ainsi de réaliser des structures modulées à l'échelle de quelques monocouches (super réseaux et puits quantiques).

L'épitaxie en phase vapeur

L'épitaxie en phase vapeur (Vapor Phase Epitaxy) aussi appelée CVD (chemical vapor deposition) est fondée sur le principe du transport par gaz vecteur, d'espèces gazeuses contenant les éléments adéquats jusqu'au substrat sur lequel se fera le dépôt. Parmi les méthodes en phase vapeur on distingue celles dites :

- à "murs froids" ou aux organométalliques (MOVPE : metalorganic vapor phase epitaxy). Seuls le substrat et son support sont chauffés par induction. La décomposition des molécules s'effectue au voisinage du substrat dans une zone de fort gradient de température ou sur la surface du substrat. Cette technique permet des durées transitoires faibles lors du changement de composition et de réaliser des interfaces de quelques monocouches [39][68]. Elle est en outre simple à mettre en oeuvre. L'inconvénient majeur est la toxicité posée par les forts débits d'hydrures utilisés. L'uniformité des couches en MOVPE et en MBE est comparable, cependant la MOVPE, du fait de sa possibilité de mise en oeuvre à grande échelle, est généralement préférée pour les réalisations à échelle industrielle.
- à "murs chauds" où les composés sont des chlorures ou hydrures. Ici c'est tout le réacteur de croissance qui est chauffé. Même si cette méthode est différente d'un point de vue du montage expérimental, elle présente des résultats très proches de la VPE sur murs froids.

1.2.2 Système cristallin et structure de bandes

Un cristal est l'arrangement d'une cellule de base répétée périodiquement. Selon la nature des opérations de symétrie qui laissent la structure cristalline inchangée, on définit un système cristallin. Le système cubique est le plus répandu. Comme nous l'avons vu précédemment, le ZnO a tendance à s'organiser en une structure de type wurtzite qui est un système quasi-cubique.

Si l'on s'intéresse à la structure de bande au centre de la zone de brillouin, on distingue deux types de semi-conducteurs : ceux pour lesquels le haut de la bande de valence et le bas de la bande de conduction sont à la même valeur de vecteur d'onde $\vec{k}$, sont appelés semi-conducteurs à gap direct, et les autres semi-conducteurs à gap indirect. Cette nature du gap influe fortement sur l'interaction du matériau avec un rayonnement électromagnétique et en particulier avec la lumière. Il aura par conséquent une influence importante sur les propriétés optiques du matériau. On représente ces deux types sur la figure 1.5. ($E_C(\vec{k})$ et

$E_V(\vec{k})$) sont les relations de dispersions où E_C est la bande de conduction, E_V la bande de valence et $\vec{k}$ le vecteur d'onde associé à l'électron (quantité de mouvement $\vec{p} = m\vec{v} = \hbar\vec{k}$).

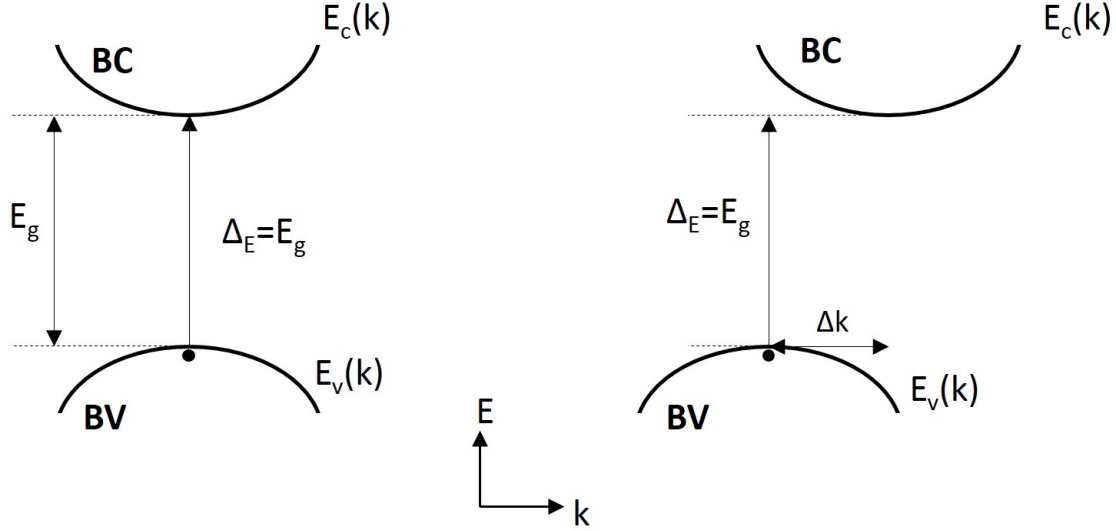


FIGURE 1.5 – Structure de bandes directe et indirecte.

Lors d'une transition entre niveaux d'énergie, on applique les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement.

On appelle p_{ph} la quantité de mouvement associée à un photon :

$$p_{ph} = \frac{E_{ph}}{c} = \frac{h\nu}{c} = \frac{h}{\lambda} = \hbar k_{ph} \quad (1.1)$$

A l'échelle de la première zone de Brillouin, on peut négliger cette quantité de mouvement apporté par le photon. En effet p_{ph} est généralement 10^3 fois plus petite que la variation Δk présente dans la majorité des semi-conducteurs à gap indirect. Dans le cas d'une transition optique dans un matériau à gap indirect, on distingue alors deux cas. Dans le premier, le photon absorbé devra avoir une énergie supérieure au gap et suffisamment grande pour permettre la migration directe d'un électron jusqu'à la bande de conduction. La quantité de mouvement alors nécessaire pour tenir compte de Δk est obtenue par émission d'un ou plusieurs phonons.

Dans le deuxième cas, la transition est obtenue par absorption d'un photon et d'un phonon. Cette absorption conjointe d'un photon et d'un phonon rend ce cas moins probable que le précédent. On peut noter que la transition optique peut avoir lieu aussi avec émission d'un phonon si $h\nu > E_g$.

Le ZnO entre dans la famille des semi-conducteurs à gap direct.

Un atome de zinc possède 30 électrons et un atome d'oxygène 8 électrons, organisés sur différentes orbitales (figure 1.6). Les valeurs d'électronégativité du zinc et de l'oxygène sont respectivement 1,65 et 3,44. L'oxygène attire donc fortement les électrons du zinc, on obtient

alors des ions Zn^{2+} et O^{2-} ; ainsi le cristal de ZnO est fortement polaire [52].

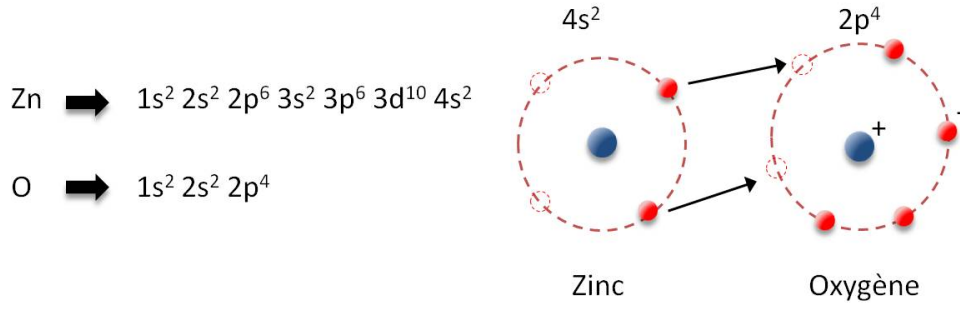


FIGURE 1.6 – Remplissage des orbitales du zinc et de l’oxygène et création des ions Zn^{2+} et O^{2-} (dans l’approximation d’un cristal de ZnO purement ionique).

L’état de plus basse énergie de la bande de conduction est défini par les états vides de l’orbitale 4s sur les cations Zn^{2+} . La bande de valence vient des états occupés sur les orbitales 2p des anions O^{2-} . Les semi-conducteurs de structure würtzite hexagonale font partie du groupe de symétrie C_{6v} (notation de Schönflies) et sont majoritairement à gap direct. Ce groupe rassemble les composés II-VI comme ZnO, ZnS, ... mais aussi des composés III-V comme GaN.

La bande de valence est scindé par le couplage spin-orbite et le champ cristallin en trois niveaux d’énergie. Du plus haut niveau d’énergie vers le plus bas, ces bandes sont communément appelées A, B et C et sont de symétrie respectives Γ_9 , Γ_7 , Γ_7 . Dans ZnO, la symétrie des deux bandes supérieures est inversée [96].

Les masses effectives des bandes de valences sont fortement anisotropes pour le groupe C_{6v} , $m_{\perp}$ est plus faible que $m_{\parallel}$. Les indices $\perp$ et $\parallel$ réfèrent au vecteur d’onde $k_{\perp}$ et $k_{\parallel}$ que l’on présentera dans la partie 1.4.3 et qui sont les directions perpendiculaire et parallèle à l’axe cristallographique c (axe de croissance du ZnO dans ces travaux).

La température modifie l’énergie de la bande interdite du matériau, et influe sur l’énergie des excitons. La figure 1.8 montre l’évolution en énergie des excitons en fonction de la température. Les mesures de réflectivité et de photoluminescence sont superposées. Les mesures de photoluminescence ne sont reportées que jusqu’à 150 K. En effet, au-delà de cette température l’élargissement homogène est très important, et l’émission des excitons se confond avec la première réplique phonon (l’élargissement inhomogène à l’inverse ne varie pas avec la température et est lié aux contraintes et dislocations ainsi qu’aux impuretés). Les lignes noires représentent l’évolution de énergies des excitons A et B en fonction de la température, modélisée par la loi de Varshni [93].

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (1.2)$$

où $E_g(T)$ est la valeur du gap à une température donnée et où α et β sont des valeurs empiriques déterminées en fonction du semiconducteur utilisé.

L’évolution du gap en fonction de la température est due à deux mécanismes : l’expansion

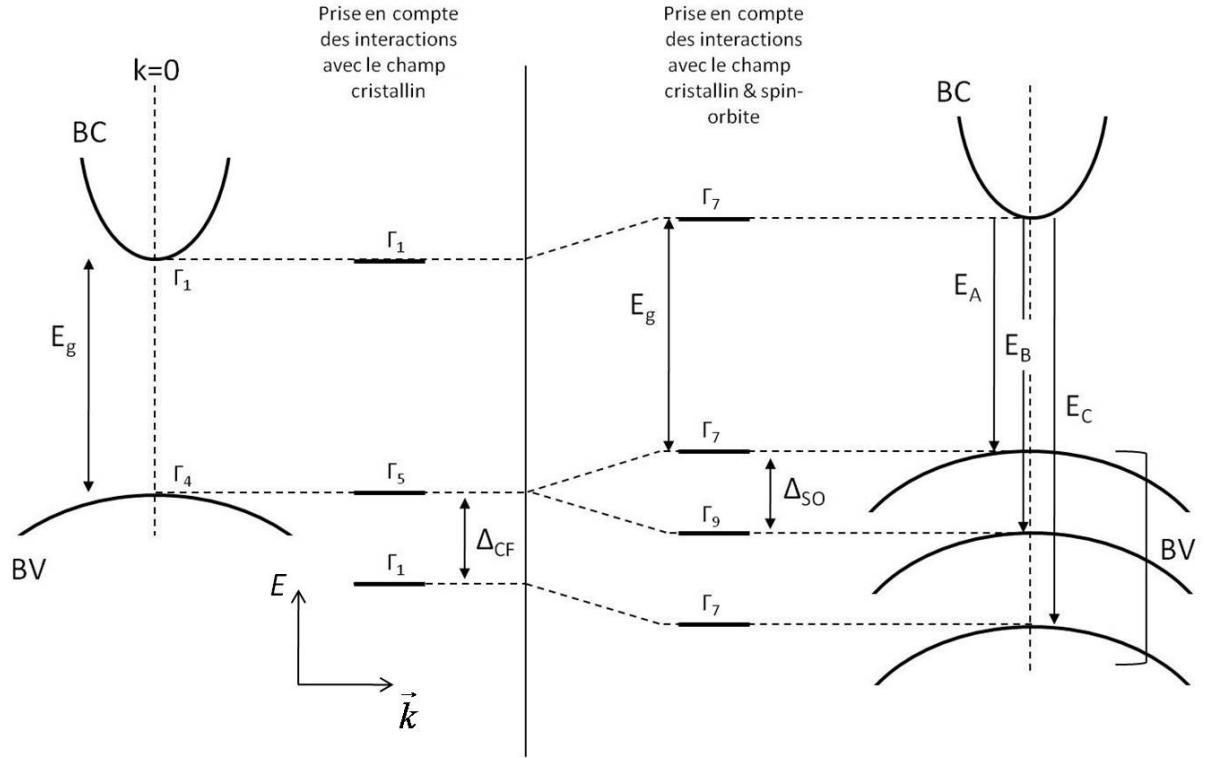


FIGURE 1.7 – Structure de bande au voisinage de $k = 0$. La levée de dégénérescence de la bande de valence est due au champ cristallin (CF) et à l'interaction spin-orbite (SO). Les transitions excitoniques sont liées à cet éclatement de la bande de valence.

sion thermique et les interactions électron-phonon. La variation d'énergie due à la première contribution s'écrit sous la forme suivante [37] :

$$\Delta E_g^{reseau}(T) = B \frac{dE_g}{dP} \int_0^T \alpha_v(T') dT' \quad (1.3)$$

avec B le coefficient de compressibilité qui représente la capacité de la maille à se déformer. Dans ZnO massif, $B \approx 160$ GPa ; $\frac{dE_g}{dP}$ est la dépendance en pression du gap, et $\alpha_v(T)$ le coefficient d'expansion thermique [83].

La deuxième contribution s'écrit [37] :

$$\Delta E_g^{el-ph}(T) = \frac{\alpha_a}{k_B} \int_0^\infty \frac{\epsilon w(\epsilon)}{e^{\epsilon/k_B T} - 1} d\epsilon \quad (1.4)$$

avec k_B la constante de Boltzmann ϵ l'énergie du phonon et $w(\epsilon)$ la densité d'états normalisée des phonons. Le coefficient α_a est déterminé en ajustant la modélisation aux résultats expérimentaux.

L'évolution du gap est ainsi la somme de ces deux effets.

$$\Delta E_g(T) = \Delta E_g^{reseau}(T) + \Delta E_g^{el-ph}(T) \quad (1.5)$$

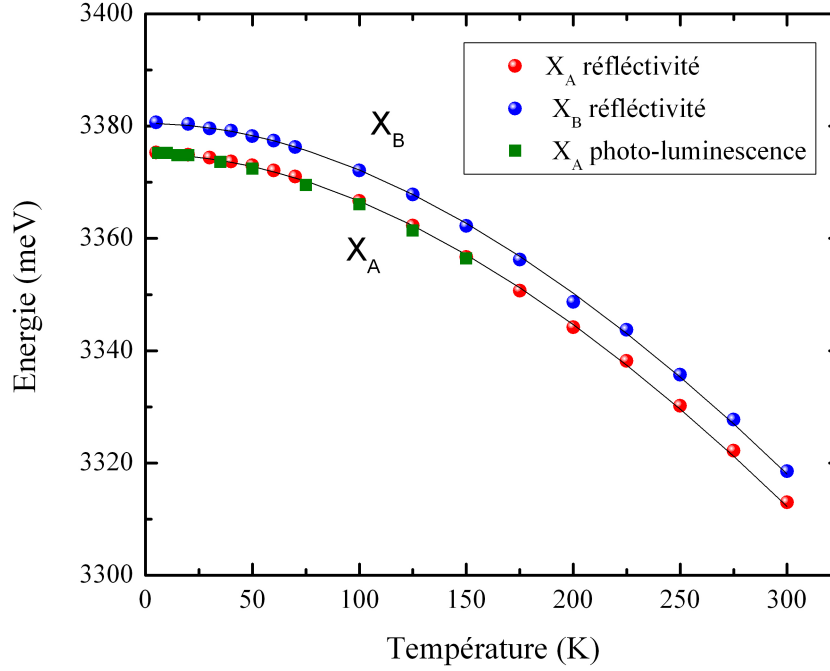


FIGURE 1.8 – Évolution de l'énergie des excitons A et B en fonction de la température pour un échantillon massif de ZnO. L'évolution déduite d'expériences de réflectivité et de photoluminescence est modélisée par la loi de Varshni.

1.2.3 Masse effective des porteurs de charge

Si on apporte de l'énergie (lumineuse ou autre) au système, on peut arracher un ou plusieurs électrons engagés dans des liaisons. On fait donc passer un électron de la BV dans la BC. S'il ne participe plus à la liaison cristalline, il peut en revanche participer à la conduction électrique tout comme les électrons apportés par le dopage et peut être vu comme une particule libre. Cet électron est cependant sensible au potentiel cristallin qui réduit sa mobilité et ne peut donc pas circuler complètement librement. C'est en fait une particule quasi-libre (figure 1.9).

Pour modéliser ce phénomène on attribue à l'électron une masse effective qui diffère de la masse m_0 ($m_0 = 9,11 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$) de l'électron libre dans le vide. Les relations de dispersion $E(k)$ de la BC et de la BV au voisinage de leurs extremums peuvent être approchées par un développement limité :

$$E(k) \approx E_C + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 E}{\partial k^2} k^2 + \dots \quad (1.6)$$

avec E_C l'énergie du minimum de la bande de conduction.

Le développement au deuxième ordre de l'énergie $E(k)$ conduit à l'approximation parabolique (avec la quantité de mouvement $\vec{p} = \hbar \vec{k}$) :

$$E(p) - E_C \approx \frac{1}{2} \frac{\partial^2 E}{\partial p^2} p^2 = \frac{p^2}{2m_e} \quad (1.7)$$

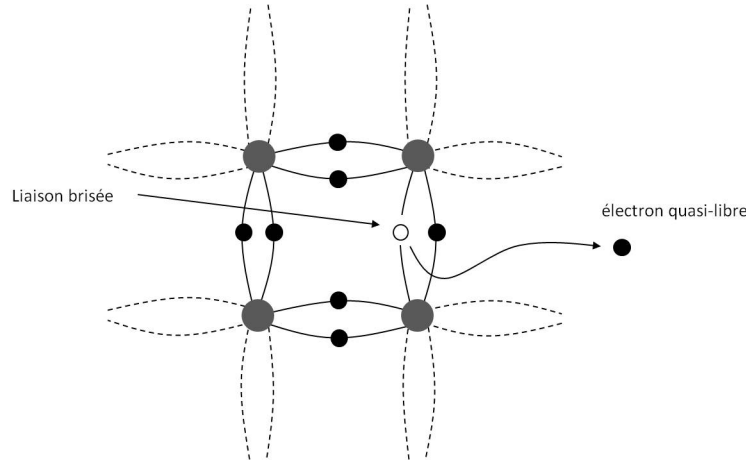


FIGURE 1.9 – Apparition d'un électron quasi-libre lors d'une rupture d'une liaison covalente.

$p^2/2m_e$ est l'énergie cinétique de l'électron libre. Ainsi les électrons ont une énergie cinétique supplémentaire (par rapport à E_C seule).

On exprime alors la masse effective de l'électron par :

$$m_e = \left[\frac{\partial^2 E}{\partial p^2} \right]^{-1} = \hbar^2 \left(\frac{\partial^2 E}{\partial k^2} \right)^{-1} \quad (1.8)$$

Dans l'état fondamental et à la température de 0 K, la bande de valence est complètement occupée par des électrons et la bande de conduction est totalement vide. Sous l'action d'une excitation élémentaire, un électron chargé négativement migre dans la bande de conduction et laisse une place libre dans la bande de valence qui est appelée "trou" et qui est chargée positivement.

La masse effective des trous m_h correspondant à chaque bande de valence est environ deux fois supérieure à m_e [24]. Pour une même différence de potentiel, les électrons seront de fait plus mobiles que les trous. La conduction électrique est donc majoritairement prise en charge par les électrons de la BC plutôt que par les trous de la BV. Les masses effectives des quasi-particules au centre de la zone de Brillouin dans ZnO pour une symétrie wurtzite sont reportées dans la table 1.1 [64].

	ZnO (wurtzite)	
	Calculé	Expérimental
$m_{e\parallel}^*$	0.28, 0.21, 0.30, 0.181 0.14, 0.19	0.265, 0.24, 0.3, 0.210
$m_{e\perp}^*$	0.24, 0.25, 0.177 0.13, 0.14, 0.21	0.24(0.29), 0.28 0.23(0.29), 0.242
$m_{hh\parallel}^*$	0.67, 1.98, 2.74 2.45, 2.27, 0.21	0.45, 0.59
$m_{hh\perp}^*$	0.63, 0.54, 0.35	0.59
$m_{lh\parallel}^*$	0.67, 3.03, 2.98, 3.23, 4.33	0.45, 0.59
$m_{lh\perp}^*$	0.63, 0.55, 0.23, 0.30	0.59
$m_{ch\parallel}^*$	0.25, 0.27, 0.17, 0.33	0.31
$m_{ch\perp}^*$	2, 1.12, 0.29, 0.54, 0.27	0.55

TABLE 1.1 – Masses effectives des électrons et des trous calculées et mesurées dans ZnO [64].

1.3 L'exciton

À l'état fondamental et à la température de 0 K, la bande de valence est complètement occupée par des électrons et la bande de conduction est totalement vide. Sous l'action d'une excitation élémentaire, un électron chargé négativement migre dans la bande de conduction et laisse une place libre dans la bande de valence qui est appelée trou et qui est chargée positivement. La charge négative (e^-) de la BC et la charge positive (h^+) de la BV sont en interaction Coulombienne.

La quasi-particule formée par ces deux particules est appelée exciton.

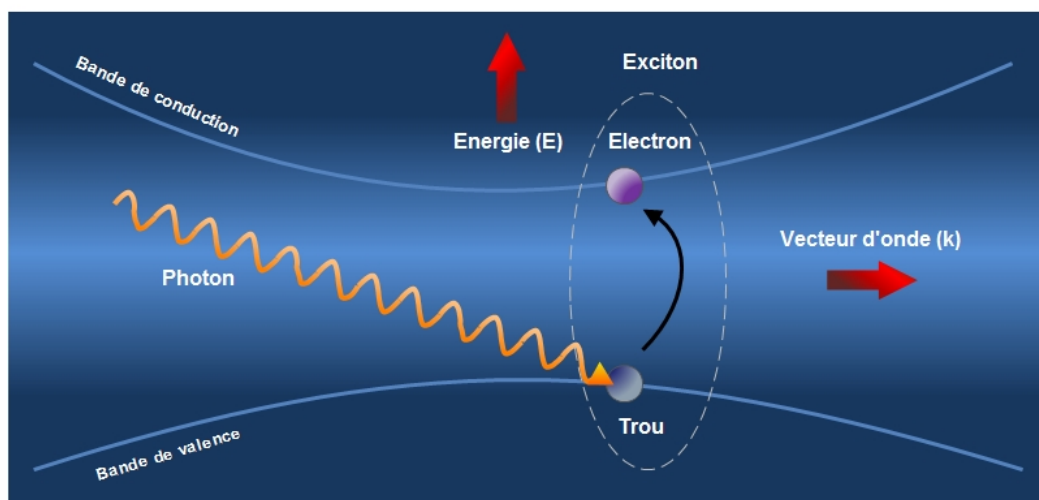


FIGURE 1.10 – Représentation simple de la création d'un exciton. Le vecteur d'onde ici est le vecteur d'onde de l'électron.

Si l'excitation élémentaire est un photon (figure 1.10), il faut qu'il cède une énergie au moins supérieure au gap telle que :

$$h\nu = h\frac{c}{\lambda} \geq E_G \quad (1.9)$$

avec λ la longueur d'onde du photon. On en déduit :

$$\lambda \leq \frac{hc}{E_G} \quad (1.10)$$

Ainsi chaque semi-conducteur sera sensible à une longueur d'onde particulière en fonction de son gap (figure 1.11). L'absorption de la radiation incidente s'opère selon la loi de Beer-Lambert :

$$I(x) = I_0 \exp(-\alpha x) \quad \leftrightarrow \quad \phi(x) = \phi_0 \exp(-\alpha x) \quad (1.11)$$

où $I(x)$ est l'intensité lumineuse, et $\phi(x)$ le flux de photons à la distance x du matériau. α est le coefficient d'absorption.

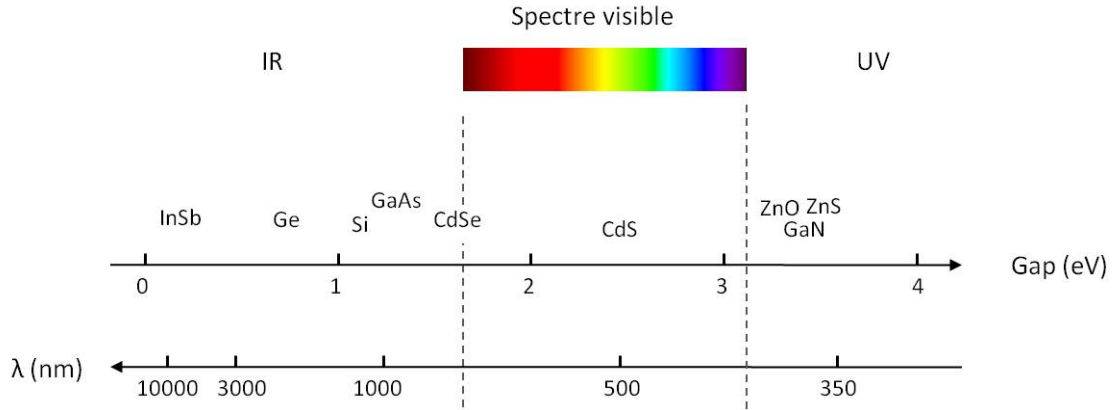


FIGURE 1.11 – Diagramme des longueurs d'onde absorbées pour quelques semiconducteurs

1.3.1 Modèle hydrogénoïde

On étudie le problème d'interaction électron-trou par analogie avec un autre problème d'interaction entre une charge positive et une charge négative, celui de l'atome d'hydrogène. Dans le cadre du formalisme de la fonction enveloppe, l'équation de Schrödinger du système (l'exciton) s'écrit :

$$\left[\frac{P^2}{2m_e} + \frac{P^2}{2m_h} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon \|\vec{r}_e - \vec{r}_h\|} \right] \Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = (E - E_g) \Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) \quad (1.12)$$

où $\vec{r}_e$ et $\vec{r}_h$ sont les vecteurs position de l'électron et du trou.

Soit encore avec $\vec{P} = -i\hbar\vec{\nabla}$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \vec{\nabla}_{r_e}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h} \vec{\nabla}_{r_h}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon \|\vec{r}_e - \vec{r}_h\|} \right] \Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = (E - E_g) \Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) \quad (1.13)$$

De façon à séparer le mouvement du centre de masse et le mouvement relatif entre le trou et l'électron, on effectue le changement de variable $(\vec{r}_e, \vec{r}_h) \rightarrow (\vec{R}, \vec{r})$ [105].

$$\begin{cases} \vec{r} = \vec{r}_e - \vec{r}_h \\ (m_e + m_h)\vec{R} = m_e\vec{r}_e + m_h\vec{r}_h \end{cases} \quad (1.14)$$

La masse de l'exciton est définie par $M = m_e + m_h$, la masse réduite s'exprime par $\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}$ et $\vec{K}_{ex}$ est le vecteur d'onde relatif au centre de masse.

On exprime $\nabla\vec{r}_e$ et $\nabla\vec{r}_h$ en fonction de $\nabla\vec{r}$ et $\nabla\vec{R}$

$$\begin{cases} \nabla\vec{r}_e = \nabla\vec{r} + \frac{m_e}{M}\nabla\vec{R} \\ \nabla\vec{r}_h = -\nabla\vec{r} + \frac{m_h}{M}\nabla\vec{R} \end{cases} \quad (1.15)$$

Remplaçons $\Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$ par $\Psi(\vec{r}, \vec{R})$ qui est supposé être un produit de deux fonctions $\Phi(\vec{r})$ et $g(\vec{R})$ où $g(\vec{R}) = e^{i\vec{K}_{ex} \cdot \vec{R}}$.

On réécrit alors l'équation 1.13 :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla_{\vec{r}}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon r} \right] \Phi(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{K}_{ex} \cdot \vec{R}} + \frac{\hbar^2 K_{ex}^2}{2M} \Phi(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{K}_{ex} \cdot \vec{R}} = (E - E_g) \Phi(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{K}_{ex} \cdot \vec{R}} \quad (1.16)$$

Il vient après simplification par $e^{i\vec{K}_{ex} \cdot \vec{R}}$:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla_{\vec{r}}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon r} \right] \Phi(\vec{r}) = \underbrace{\left(E - E_g - \frac{\hbar^2 K_{ex}^2}{2M} \right)}_{E_n} \Phi(\vec{r}) \quad (1.17)$$

En posant :

$$E_n = E_{ex} - E_g - \frac{\hbar^2 K_{ex}^2}{2M} \quad (1.18)$$

Cette équation devient analogue à l'équation de Schrödinger décrivant l'atome d'hydrogène

$$E_n = -\frac{R_y}{n^2} \quad (1.19)$$

R_y est le Rydberg de l'exciton. $R_y = \frac{13,6}{\epsilon_r^2} \cdot \frac{\mu}{m_0}$ (60 meV dans ZnO)[89]. R_y est l'énergie qu'il faut pour séparer l'électron du trou, c'est l'énergie d'ionisation qui est ici l'énergie de liaison des excitons.

Le rayon de Bohr de l'exciton s'écrit a_{ex} :

$$a_{ex} = a_B \cdot \frac{\epsilon_r}{\mu/m_0} \quad (1.20)$$

avec m_0 la masse de l'électron au repos et a_B le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène dans l'état fondamental. L'exciton peut donc exister sur une série d'états discrets. Le niveau d'énergie le plus bas sera l'état fondamental ($n = 1$).

$$E_{ex} = E_g - \frac{R_y}{n^2} + \frac{\hbar^2 K_{ex}^2}{2M} \quad (1.21)$$

L'énergie de l'exciton est légèrement inférieure à la valeur du gap ; $E_{ex} = E_g - E_n$ avec E_n l'énergie de liaison qui évolue en $\frac{1}{n^2}$ (figure 1.12).

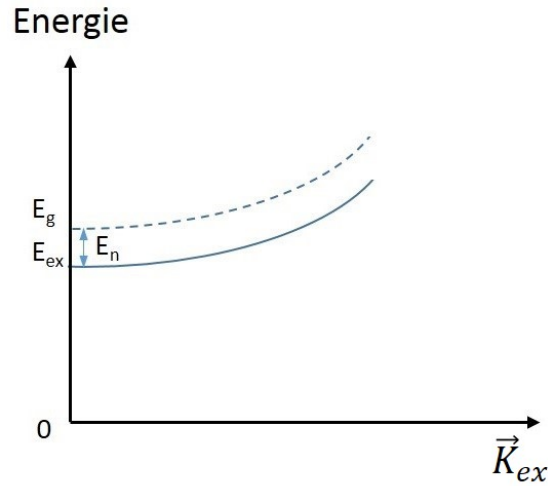


FIGURE 1.12 – Relation de dispersion de l'exciton.

Le rayon de Bohr a_{ex} dans ZnO qui est la distance moyenne entre l'électron et le trou est environ de 1,8 nm [77] et les paramètres de la maille cristalline sont $a = b = 0,3249 \text{ nm}$ et $c = 0,52042 \text{ nm}$ [38], on parle alors d'exciton de Wannier. Dans d'autres composés (NaCl, NaBr ...) où le rayon de Bohr est comparable à la maille cristalline, on parle d'excitons de Frenkel (figure 1.13)[29].

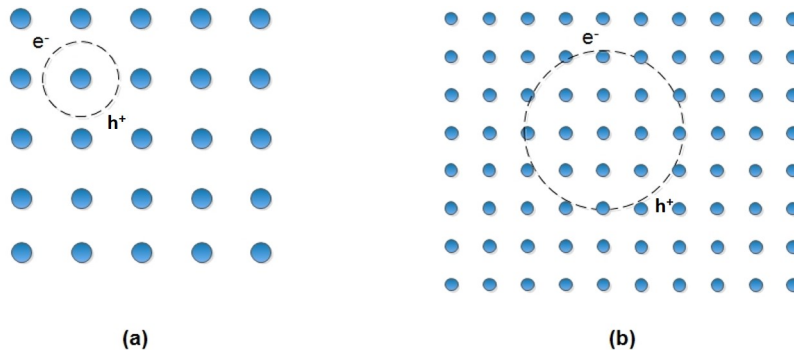


FIGURE 1.13 – (a) Représentation schématisée des excitons de Frenkel, où la distance électron-trou est comparable au paramètre de maille du réseau cristallin. (b) Exciton de Wannier. La distance électron-trou est plus grande que le paramètre de maille du réseau cristallin.

1.3.2 L'exciton dans un champ électromagnétique

Le comportement de l'exciton soumis au champ électrique d'une onde électromagnétique est caractérisé par sa fonction diélectrique ϵ_r . On détermine cette fonction en utilisant le modèle de l'oscillateur harmonique de Lorentz. C'est un modèle simple qui suppose l'évolution d'un dipôle indépendant dans un champ électromagnétique moyen.

Un dipôle oscillant à une fréquence ν_0 émet une onde électromagnétique de même fréquence (émission). D'autre part, un dipôle de fréquence ν_0 soumis à un rayonnement électromagnétique de fréquence ν entrera en résonance si $\nu_0 \approx \nu$ et absorbera une partie de l'onde incidente (absorption). Si ν est très différent de ν_0 alors le milieu est transparent et il n'y a pas d'interaction.

Au voisinage d'une résonance excitonique, l'interaction entre le photon et l'exciton est très forte. Cela induit une grande variation de la constante diélectrique et donc de l'indice de réfraction du matériau et du coefficient d'absorption.

Afin de calculer la constante diélectrique d'un matériau au voisinage d'une résonance excitonique, les excitons sont assimilés à des oscillateurs harmoniques. On tient compte de la force de rappel de la charge "-" (e^-) liée à la charge "+" (noyau), $-\beta\vec{u}$, d'une force de frottement visqueux de l'électron dans le cristal, $-C\frac{d\vec{u}}{dt}$, et de la force électrique, $-e\vec{E}$. (due à l'onde électromagnétique $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-i\omega t}$).

La relation fondamentale de la dynamique appliquée à un électron de masse m_0 s'écrit :

$$m_0 \frac{d^2\vec{u}}{dt^2} = -\beta\vec{u} - C\frac{d\vec{u}}{dt} - e\vec{E} \quad (1.22)$$

soit encore

$$m_0 \frac{d^2\vec{u}}{dt^2} = -m_0\omega_0^2\vec{u} - m_0\Gamma\frac{d\vec{u}}{dt} - e\vec{E} \quad (1.23)$$

Où β est la constante de rappel de l'oscillateur harmonique et C le coefficient de frottement visqueux, ω_0 la pulsation de résonance de l'exciton, Γ le paramètre lié à l'élargissement homogène de l'exciton, $-e$ la charge de l'électron, $\vec{E}$ le champ électrique du champ électromagnétique et $\vec{u}$ le déplacement de l'électron par rapport à sa position d'équilibre.

On identifie donc trois forces :

- $m_0\omega_0^2\vec{u}$: la force de rappel de l'électron
- $m_0\Gamma\frac{d\vec{u}}{dt}$: la force de frottement visqueux
- $-e\vec{E}$: la force électrique

Il convient de définir plus précisément ce que représente réellement cet élargissement homogène. Si un exciton est isolé du milieu qui l'entoure, son énergie sera bien définie. Cependant l'exciton est dans un milieu cristallin qu'il ne peut ignorer et il entre en interaction avec, par exemple, des phonons (cas d'un élargissement homogène) ou des impuretés (cas

d'un élargissement inhomogène) qui affectent plus ou moins son énergie.

On exprime $\vec{u}$ à partir de l'équation 1.23 :

$$\vec{u} = \frac{-e\vec{E}}{m_0(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega)} \quad (1.24)$$

et la polarisation induite (produit de la charge totale et du déplacement) :

$$\vec{P} = -eN\vec{u} = \frac{Ne^2}{m_0(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega)}\vec{E} \quad (1.25)$$

avec N le nombre d'éléments polarisables par unité de volume.

Le vecteur déplacement $\vec{D} = \epsilon_0\vec{E} + \vec{P}$ s'écrit donc :

$$\vec{D} = \epsilon_0\vec{E} \left(1 + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} \right) \quad (1.26)$$

$$\vec{D} = \epsilon_0\epsilon_r\vec{E} \quad (1.27)$$

avec :

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega)} \quad (1.28)$$

Le terme $\frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} = \omega_p^2$ correspond au couplage entre l'oscillateur (exciton) et le champ électromagnétique, où ω_p est la pulsation plasma. De façon générale, on peut considérer plusieurs niveaux d'énergie atteignables par les électrons. On peut alors sommer sur toutes les transitions, de l'état initial vers les états j possibles. L'équation 1.28 s'écrit alors :

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \sum_j \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{1}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\Gamma_{j\omega})} \quad (1.29)$$

Pour simplifier cette expression on peut considérer une seule transition et ajouter une constante diélectrique dite de "background" $\epsilon_b = n_c^2$ (où n_c est l'indice optique du milieu) qui tient compte de toutes les transitions hors résonance.

$$\boxed{\epsilon_r(\omega) = \epsilon_b + \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}} \quad (1.30)$$

Dans les chapitres suivants, nous verrons que l'excitation du ZnO a exclusivement été faite de façon optique. Ils est donc intéressant d'exprimer ϵ_r en fonction de l'énergie du photon $E = \hbar\omega$:

$$\epsilon_r = \epsilon_b + \frac{f}{E_{exc}^2 - E^2 - i\hbar\Gamma E} \quad (1.31)$$

où f la force d'oscillateur $f = (\hbar\omega_p)^2$, E_{exc} l'énergie de l'exciton $E_{exc} = \hbar\omega_0$ et $\hbar\Gamma$ son élargissement homogène.

A partir de cette constante diélectrique on peut calculer l'indice optique du matériau au

voisinage des excitons. ϵ_1 est la partie réelle et ϵ_2 la partie imaginaire, elles sont reliées à l'indice complexe par :

$$N = n + iK = \sqrt{\epsilon_r} = \sqrt{\epsilon_1 + i\epsilon_2} \quad (1.32)$$

On a alors :

$$\begin{cases} \epsilon_1 = n^2 - K^2 \\ \epsilon_2 = 2nK \end{cases} \quad (1.33)$$

et on tire la valeur de n et K :

$$\begin{cases} n = \sqrt{\frac{\epsilon_1 + \sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}}{2}} \\ K = \sqrt{\frac{-\epsilon_1 + \sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}}{2}} \end{cases} \quad (1.34)$$

Sur la figure 1.14 sont représentées en bleu et noir respectivement les parties réelle et imaginaire de l'indice. Les lignes pointillées montrent l'évolution de l'indice en l'absence des excitons. On remarque que les transitions excitoniques modifient de façon importante le profil d'indice. Le "plateau" d'absorption au dessus de l'énergie des excitons est dû à l'absorption supplémentaire bande à bande qui est induite par tous les états autorisés dans les niveaux supérieurs de la bande de conduction.

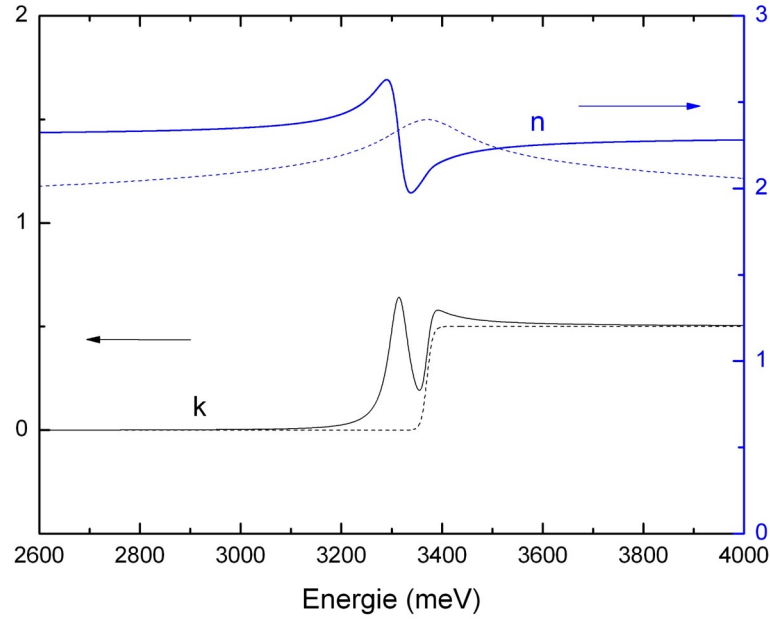


FIGURE 1.14 – Calcul de la partie réelle (n) et imaginaire (K) de l'indice de ZnO à 300K. Les traits pleins montrent l'indice en tenant compte des excitons. Les traits pointillés montrent l'évolution de l'indice hors excitons. Les transitions excitoniques modifient de façon importante les parties réelle et imaginaire de l'indice.

1.4 Confinement de la lumière dans les cavités

Les échantillons que nous étudions dans ce travail sont constitués d'une couche de ZnO placée entre deux miroirs. Ce dispositif est appelé microcavité. Ce sont des cavités Fabry-Perot de taille réduite. Simplifions donc les choses en considérant deux miroirs très fins M_1 et M_2 de réflectivité et de transmission notées, respectivement, r_1 , r_2 et t_1 , t_2 . Ils sont séparés par une couche d'épaisseur L_{cav} et d'indice n_{cav} (figure 1.15).

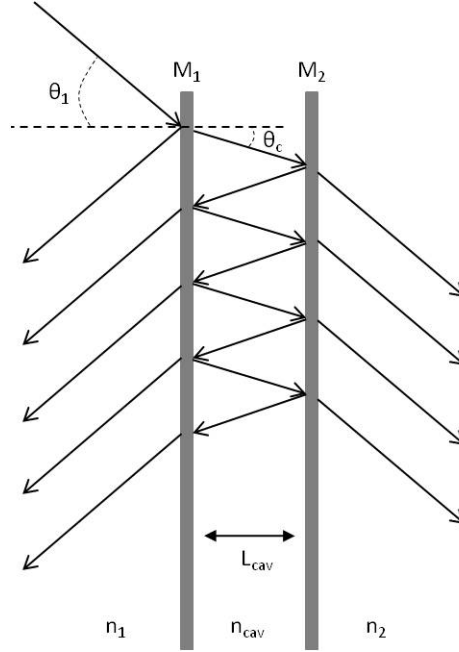


FIGURE 1.15 – Représentation simple d'une cavité Fabry-Perot

L'onde électromagnétique plane incidente arrive avec un angle d'incidence θ_1 sur M_1 . Elle est transmise dans la cavité avec un angle θ_c . Une partie est transmise à travers M_2 et sort avec un angle θ_2 . A chaque interface, une partie de l'onde est réfléchi et contribue au phénomène d'interférences aussi bien à l'intérieur qu'à l'extérieur de la cavité. On notera le champ électrique de l'onde incidente sous la forme :

$$\vec{E}_i = \vec{A}_0 e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} \quad (1.35)$$

avec $k = \frac{2\pi}{\lambda}$. L'amplitude du champ transmis par la cavité est donnée par l'expression suivante :

$$A = A_0 t_1 t_2 e^{-i\varphi} (1 + r_2 r_1 e^{-i\varphi} + (r_2 r_1)^2 e^{-2i\varphi} + \dots) \quad (1.36)$$

ou encore :

$$A = A_0 t_1 t_2 \frac{e^{-2i\varphi}}{1 - r_2 r_1 e^{-2i\varphi}} \quad (1.37)$$

avec $\varphi = \frac{2\pi n_{cav} L_{cav} \cos(\theta_c)}{\lambda}$ le déphasage entre deux rayons successifs dans la cavité. On peut aussi exprimer le coefficient de transmission de la cavité en intensité, T_{FP} :

$$T_{FP} = \left(\frac{|A|}{|A_0|} \right)^2 = \frac{(t_1 t_2)^2}{(1 - r_1 r_2)^2} \underbrace{\frac{1}{1 + M \sin^2 \frac{\varphi}{2}}}_{\text{fonction d'Airy}} \quad (1.38)$$

$$\text{avec } M = \frac{4r_1 r_2}{(1 - r_1 r_2)^2} \quad (1.39)$$

La fonction d'Airy permet de calculer la modulation d'intensité en fonction du déphasage introduit par la propagation de l'onde dans la cavité. Quand le déphasage est égal à $\varphi = k\pi$, alors les ondes interfèrent de façon constructive, cette fonction vaut 1, l'intensité est maximum et la transmission de la cavité se concentre autour des pics d'amplitudes. Les coefficients de réflectivité et de transmission en énergie sont $R_i = |r_i|^2$ et $T_i = |t_i|^2$. L'équation 1.38 peut alors s'écrire (dans le cas d'un milieu non absorbant $T_i + R_i = 1$) :

$$T_{FP} = \frac{(1 - R_1)(1 - R_2)}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \frac{1}{1 + \frac{4\sqrt{R_1 R_2}}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \sin^2 \frac{\varphi}{2}} \quad (1.40)$$

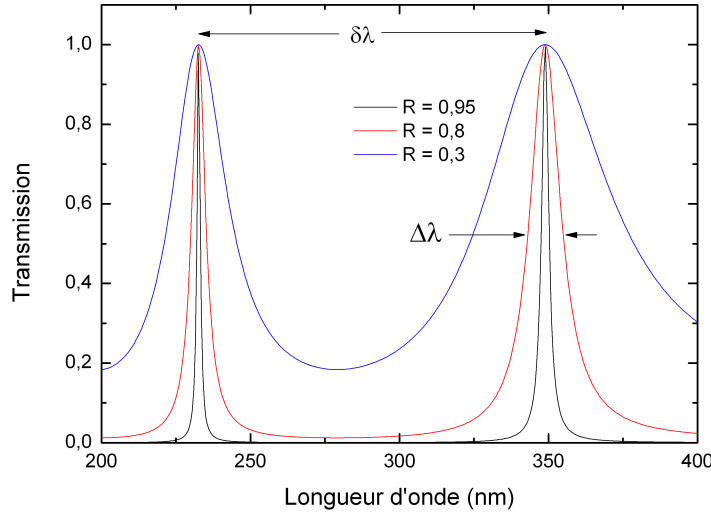


FIGURE 1.16 – Calcul de la transmission d'une cavité Fabry-Perot pour $R_1 = R_2 = R$ sous incidence normale. Pour L_{cav} et n_{cav} fixés, on regarde l'influence du coefficient de réflexion sur la transmission de la cavité.

Les interférences constructives à l'intérieur de la cavité donnent naissance à une succession de modes d'intensité d'ordre croissant ($m = 1, 2, 3 \dots$). La position de chaque mode dépend en particulier de l'indice optique de la cavité et de la longueur de la cavité :

$$\lambda_m = \frac{2n_{cav}L_{cav}\cos\theta_c}{m} \quad (1.41)$$

Sous incidence normale, on obtient : $\lambda_m = (2n_{cav}L_{cav})/m$.

On exprime la finesse F de la cavité par :

$$F = \frac{\delta\lambda}{\Delta\lambda} \approx \frac{\pi(\sqrt{R_1 R_2})^{\frac{1}{2}}}{1 - \sqrt{R_1 R_2}} \quad (1.42)$$

avec $\delta\lambda$ et $\Delta\lambda$ respectivement l'écart entre deux modes de transmission et la largeur à mi-hauteur du pic de transmission.

Une cavité optique est un piège à photons qui confine des photons dans une enceinte. Il est alors judicieux de calculer le temps de vie des photons dans la cavité.

Imaginons un photon allant et venant dans la cavité avec une vitesse $c' = c/n_{cav}$. La probabilité à chaque aller et retour du photon de quitter la cavité est $d\alpha_p - \ln(r_1 r_2)$ avec α_p un coefficient d'atténuation parasite. Cette probabilité peut aussi être considérée comme le rapport entre la longueur de la cavité L_{cav} et le libre parcours moyen λ_c du photon avant qu'il ne s'échappe de la cavité. Ce libre parcours moyen est le produit de la vitesse du photon $c' = c/n_{cav}$ par le temps de vie du photon dans la cavité τ_{ph} qui est donc donné par :

$$\tau_{ph} = \frac{1}{(\alpha_p - \frac{1}{2d} \ln R_1 R_2) c'} \quad (1.43)$$

On introduit un facteur appelé facteur de qualité qui est le rapport entre l'énergie stockée dans la cavité et les pertes par unité de temps. Il reflète l'amortissement des oscillations dans la cavité lorsque l'excitation cesse [51] [76].

$$Q = \frac{\text{énergie stockée}}{\text{énergie perdue}} = \frac{E}{dE/dt} = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \quad (1.44)$$

Ce facteur est lié au temps de vie du photon :

$$\tau_{ph} = \frac{Q}{\omega_0} = \frac{Q\lambda_0}{2\pi c} \quad (1.45)$$

Les défauts des cavités auront un impact direct sur le temps de vie des photons ainsi que sur la transmission du résonateur.

1.4.1 Structure multicouches : miroirs de Bragg

Les miroirs de Bragg aussi appelés DBR (distributed Bragg reflectors) sont des structures composées d'un empilement de couches transparentes d'indices de réfraction différents. Ils sont utilisés pour obtenir des coefficients de réflectivité très élevés en récupérant l'énergie lumineuse transmise à chaque interface. Une représentation schématique de ces miroirs est donnée figure 1.17. Considérons deux matériaux d'épaisseur d_1 et d_2 et d'indice n_1 et n_2 avec $n_1 < n_2$. On peut obtenir une réflectivité maximum en jouant sur l'épaisseur d de la couche. Ainsi pour une longueur d'onde dans le vide λ_0 , la réflectivité optimale est donnée par cette relation :

$$d_i = \frac{\lambda_0}{4n_i} \quad (1.46)$$

Le faisceau réfléchi subira un changement de phase aux interfaces. Compte tenu de l'épaisseur d_i choisie, lorsque le faisceau traverse une couche, le déphasage est de $\pi/2$. De plus, le faisceau réfléchi par une interface est déphasé de π si la couche inférieure est d'indice plus

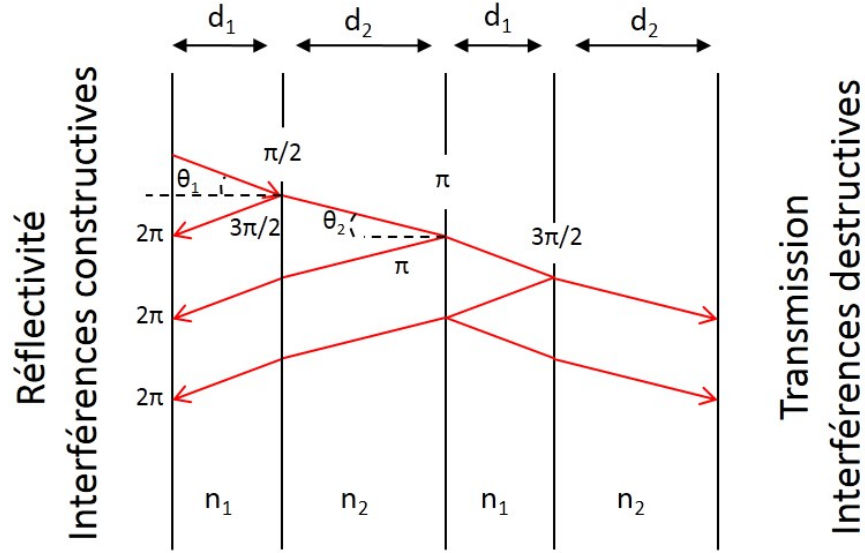


FIGURE 1.17 – Schéma du fonctionnement d'un miroir de Bragg.

faible. Le déphasage est nul dans le cas contraire. Sous incidence normale, le coefficient de réflexion en intensité d'un miroir est donné par la relation suivante [72] :

$$R_N = \left(\frac{1 - \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^{2N}}{1 + \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^{2N}} \right)^2 \quad (1.47)$$

Avec N le nombre de bicouches quart d'onde.

Il est facile de comprendre que plus le nombre de couches est important, plus le coefficient de réflexion est fort, cependant le facteur clef pour une réflexion maximum (au regard de l'équation 1.47) est le contraste d'indice entre les couches [71].

La stop-band (aussi appelée bande d'arrêt) correspond à l'intervalle spectral où le coefficient de réflexion en intensité est de 50% supérieur à la valeur maximale de la réflectivité du miroir de Bragg. Elle est définie par l'expression suivante :

$$\Delta_{stop-band} = \frac{\frac{4\lambda_0}{\pi} \sin^{-1} \left(\frac{|n_2 - n_1|}{n_2 + n_1} \right)}{1 - \left(\frac{4\lambda_0}{\pi} \sin^{-1} \left(\frac{|n_2 - n_1|}{n_2 + n_1} \right) \right)^2} \quad (1.48)$$

Il apparaît clairement que le contraste d'indice joue fortement sur la largeur de la stop-band. Les miroirs de Bragg sont un empilement de couches successives qui chacune réfléchit une partie de l'onde. L'onde pénètre donc dans le miroir et dans le cas d'une microcavité, il faut tenir compte de cette longueur de pénétration pour connaître la longueur exacte de la cavité et ainsi estimer le temps d'un aller-retour de la lumière dans le résonateur. On note cette longueur de pénétration L_{DBR} . Cette valeur dépend de l'angle d'incidence et de la polarisation. Sous incidence normale et en polarisation TE, on la définit comme étant deux fois la distance à laquelle doit être placé un miroir à phase fixe pour obtenir un déphasage équivalent entre l'onde incidente et réfléchie [71] [6] (figure 1.19).

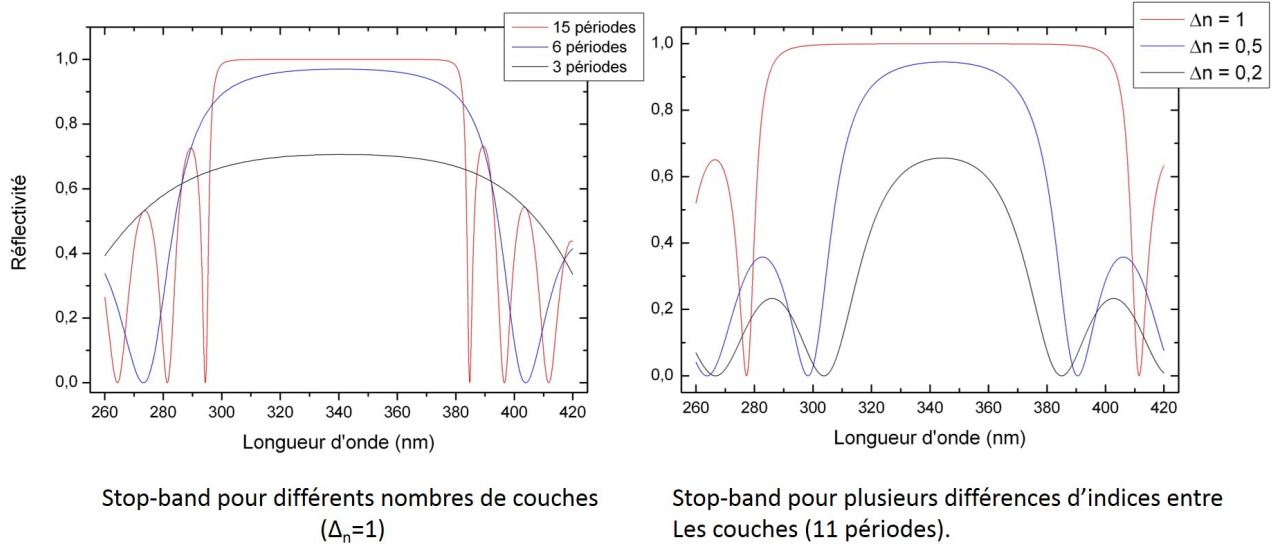


FIGURE 1.18 – Simulation à l'aide du modèle des matrices de transfert (Chapitre 2.4) de l'évolution de la bande d'arrêt (stop band) en fonction de la différence d'indice entre les couches et de leur nombre.

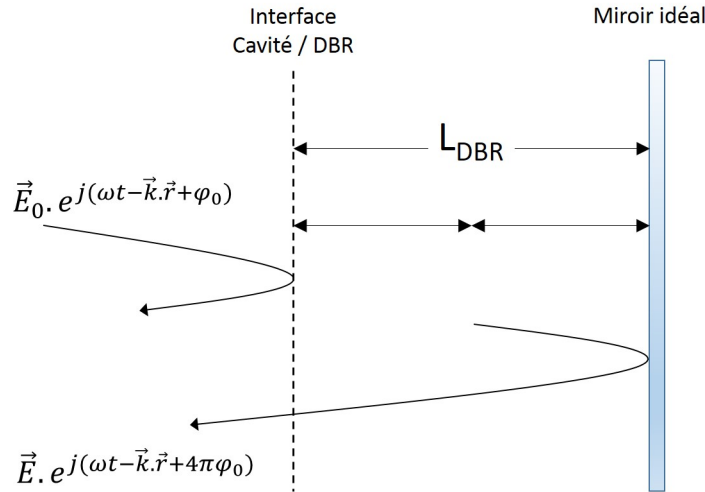


FIGURE 1.19 – La longueur de pénétration dans un miroir de Bragg est définie comme la distance à laquelle il faut placer un miroir à phase fixe pour obtenir le même déphasage que le DBR.

Dans le cas simple d'une incidence normale avec un nombre N de bicouches important et avec l'épaisseur des couches qui respecte l'équation 1.46, la longueur L_{DBR} vaut [6] :

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_0}{2} \frac{1}{n_1 - n_2} \quad si \quad n_1 > n_2 \quad (1.49)$$

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_0}{2} \frac{n_1 n_2}{n_{cav}^2 (n_2 - n_1)} \quad si \quad n_1 < n_2 \quad (1.50)$$

Les miroirs de Bragg présentent au final de nombreux avantages. En jouant sur l'indice des couches nous pouvons augmenter ou diminuer la largeur de la stop-band. Le contrôle

de l'épaisseur nous permet également de sélectionner une longueur d'onde centrale. Enfin, le nombre de couches nous permet d'ajuster la valeur du maximum de réflexion. Nous pouvons définir tous les paramètres de la stop-band et l'ajuster selon les besoins.

1.4.2 Mode photonique de cavité

Les microcavités utilisées dans les travaux que nous présentons ici sont simplement constituées d'une couche de semiconducteur prise en sandwich entre deux miroirs de Bragg. Le fait de créer une cavité donne naissance à des interférences internes qui ne laisseront se propager que certaines longueurs d'onde dans la cavité. Nous venons de voir qu'en fonction de l'indice et de l'épaisseur des couches, nous pouvons choisir les caractéristiques de la stop band. De façon similaire, en utilisant la formule 1.41, nous pouvons choisir quelles longueurs d'ondes seront acceptées dans la cavité. En choisissant une longueur de cavité suffisamment faible, l'écart entre deux modes est suffisamment grand devant la largeur de la bande d'arrêt, et nous pouvons faire en sorte qu'un seul mode optique soit autorisé.

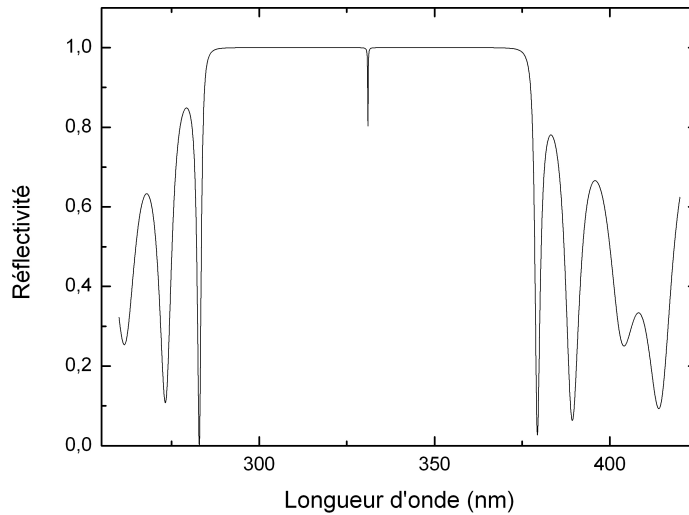


FIGURE 1.20 – Réflectivité calculée pour une cavité de ZnO (épaisseur 2λ). Pour simplifier cette représentation, nous n'avons utilisé que la partie réelle de l'indice optique (cavité non absorbante).

Les figures 1.20 et 1.21 montrent une simulation des caractéristiques d'une microcavité ZnO avec deux miroirs de Bragg SiO_2/HfO_2 (9 paires pour M_1 et 6,5 paires pour M_2). Les résultats obtenus avec cette cavité sont présentés dans le chapitre 4.

La figure 1.21 représente la cavité à travers son profil d'indice et nous montre le confinement du module au carré du champ électrique $|E|^2$. Pour obtenir un maximum de champ au centre de la cavité, nous ajustons les épaisseurs des couches en suivant les indications présentées dans le paragraphe précédent. Ainsi, nous avons une cavité de longueur $m\frac{\lambda}{2}$ et des couches pour les miroirs de Bragg d'épaisseur $\lambda/4$. Nous remarquons que le champ pénètre dans les miroirs, il ne faut alors plus parler de longueur de cavité, mais de longueur effective L_{eff} qui

dans le cas d'une cavité asymétrique s'exprime par [71] :

$$L_{eff} = L_{cav} + \frac{1}{2}(L_{DBR1} + L_{DBR2}) \quad (1.51)$$

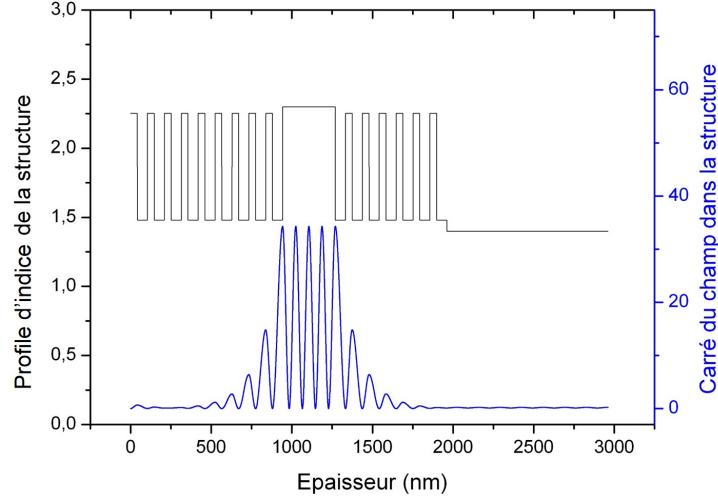


FIGURE 1.21 – (Noir) Exemple d'un profil d'indice d'une cavité 2λ . La forte différence d'indice entre chaque couche du DBR explique la finesse du pic de transmission de la figure 1.20. (Bleu) Allure du module au carré du champ électrique à l'intérieur de la cavité. Pour simplifier cette représentation, nous n'avons utilisé que la partie réelle de l'indice optique (cavité non absorbante).

1.4.3 Relation de dispersion du mode photonique

Nous venons de voir que le confinement des photons dans la cavité a lieu dans le sens perpendiculaire aux couches (direction de la croissance des matériaux). Le confinement n'est pas latéral, les photons sont donc confinés selon un seul axe. Le nom de microcavité planaire vient en partie de ce constat. Les photons ainsi confinés, ont un vecteur d'onde $\vec{k}$ que l'on peut séparer selon deux composantes telles que $k^2 = k_{\parallel}^2 + k_{\perp}^2$, $k_{\perp}$ et $k_{\parallel}$ étant respectivement les composantes perpendiculaire et parallèle aux couches.

$k_{\perp}$ est dans la direction de confinement de la lumière, il est donc discrétisé :

$$k_{\perp} = \frac{m\pi}{L_{cav}} \quad (1.52)$$

L'énergie du photon s'écrit :

$$E_{ph}(k) = \frac{\hbar c}{n_{cav}} k = \frac{\hbar c}{n_{cav}} \sqrt{k_{\parallel}^2 + k_{\perp}^2} \quad (1.53)$$

Le confinement étant suivant $k_{\perp}$, on peut considérer $k_{\perp} \gg k_{\parallel}$ et développer au premier ordre l'équation précédente :

$$E_{ph}(k) \approx \frac{\hbar c k_{\perp}}{n_{cav}} \left(1 + \frac{k_{\parallel}^2}{2k_{\perp}^2} \right) = E_0 + \frac{\hbar c k_{\parallel}^2}{2n_{cav} k_{\perp}} = E_0 + \frac{\hbar^2 c^2 k_{\parallel}^2}{2n_{cav}^2 E_0} \quad (1.54)$$

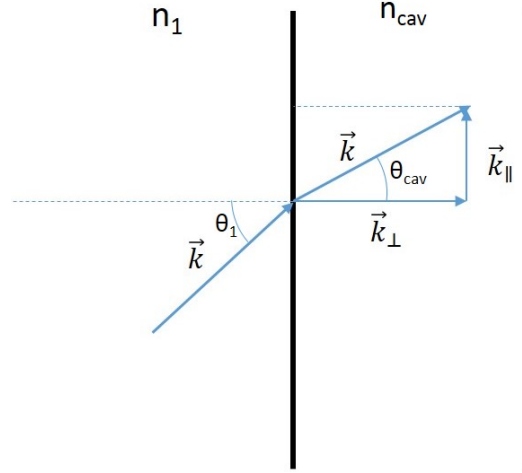


FIGURE 1.22 – Représentation de la décomposition du vecteur d'onde d'une onde incidente.

Avec $E_0 = \frac{\hbar c k_{\perp}}{n_{cav}}$.

On introduit dans cette expression, la masse effective du photon de cavité M_{ph} définie par :

$$E_{ph}(k) = E_0 + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2M_{ph}} \quad (1.55)$$

Avec

$$M_{ph} = \frac{n_{cav}^2 E_0}{c^2} = m \frac{\hbar \pi n_{cav}}{L_{cav}} \quad (1.56)$$

Les allures des dispersions sont souvent représentées par souci de clarté en fonction de l'angle d'incidence et non du vecteur d'onde. Il convient alors de lier ces deux paramètres.

$$k_{\parallel} = k \sin \theta_{cav} \quad (1.57)$$

θ_{cav} est l'angle d'incidence à l'intérieur de la cavité, il peut être relié à l'angle d'incidence réel dans l'air θ (angle externe) par la loi de Snell-Descartes $n_1 \sin \theta_1 = n_{cav} \sin \theta_{cav}$ ($n_1 = 1$), ainsi :

$$k_{\parallel} = \frac{E_{ph}(k) \sin \theta_1}{\hbar c} \quad (1.58)$$

La relation de dispersion en fonction de l'angle d'incidence est obtenue en utilisant la précédente équation 1.52

$$E_{ph}(\theta) = \frac{E_0}{\sqrt{1 - \frac{\sin^2 \theta_1}{n_c^2}}} \quad (1.59)$$

La masse effective du photon est très faible, ce qui explique la forme parabolique de sa dispersion pour les angles peu importants. A titre d'exemple, pour une cavité d'indice $n_{cav} = 2,3$ (ZnO) et de longueur $L_{cav} = 300 \text{ nm}$, la masse du photon M_{ph} est environ

10^4 fois plus faible que la masse de l'électron libre. La masse effective de l'exciton qui est l'addition de la masse de l'électron et du trou est de l'ordre de 1 comparée à celle de l'électron. La figure 1.23 montre ces dispersions en fonction de l'angle d'incidence.

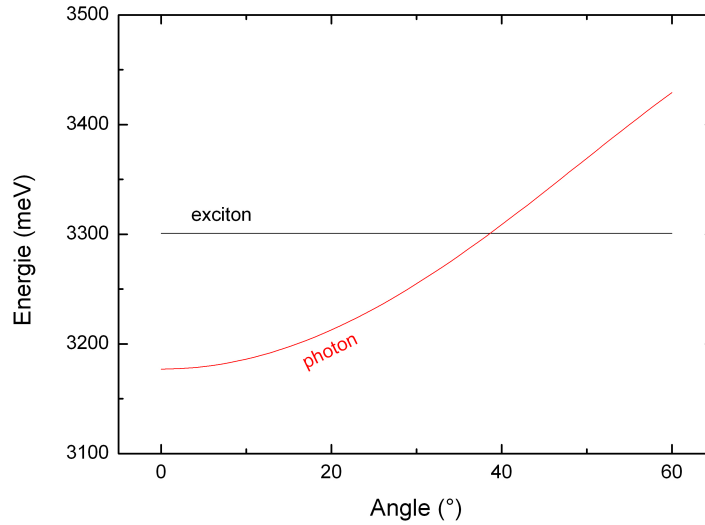


FIGURE 1.23 – Allure de la dispersion du photon E_{ph} et de l'exciton E_{exc} en fonction de l'angle (externe) d'incidence sur la cavité

1.5 Couplage fort : modèle quasi-particule

Les parties précédentes nous montrent que deux entités existent dans la microcavité ; le mode photonique et l'exciton. Sous certaines conditions, ces deux particules vont pouvoir interagir (couplage fort) et donner naissance à une nouvelle entité, une quasi-particule nommée polariton de cavité [40]. Il a fallu attendre 1992 pour voir la première observation expérimentale du couplage fort en microcavité planaire avec un semi-conducteur, dans une structure à base d'arséniure de gallium à basse température [97]. L'énergie de liaison des excitons dans GaAs est bien inférieure à l'énergie d'agitation thermique à 300 K (26 meV) ; il est donc impossible de concevoir des dispositifs destinés au grand public ou à l'industrie à partir de ce matériau. En 1998 [48] GaN est annoncé comme le matériau idéal pour l'observation du couplage fort en microcavité. En 2002, le GaN est proposé pour l'obtention d'un laser à polaritons à 300 K par Malpuech *et al* [60]. Puis en 2003 et 2005 l'observation expérimentale du couplage fort est rapporté à 5 K puis à 300 K [4][82]. L'oxyde de zinc présente de nombreux points forts dont notamment une énergie de liaison de 60 meV et une force d'oscillateur cinq fois plus forte que dans GaN. Cela en fait un candidat de choix pour la réalisation de dispositifs fonctionnant à température ambiante. Zamfirescu *et al* ont démontré théoriquement la possibilité d'utiliser l'oxyde de zinc pour la conception d'un laser à polaritons [106], ce qui explique l'engouement de la dernière décennie pour ce matériau. Le polariton est une particule composite, modélisée mathématiquement comme une quasi-particule. Dans une approche quantique, une particule est définie par sa fonction d'onde ;

ainsi le polariton qui est une particule composite est décrite par la combinaison linéaire des fonctions d'ondes de ses deux composantes, l'exciton et le photon. L'Hamiltonien est défini par une matrice 2×2 où E_{ph} et E_{exc} sont les expressions de l'énergie du photon et de l'exciton et Γ_{ph} et Γ_{exc} sont les termes d'amortissement associés à ces deux oscillateurs harmoniques. V est le terme de couplage qui lie l'exciton au photon.

$$H = \begin{pmatrix} E_{ph} - j\Gamma_{ph} & V \\ V & E_{exc} - j\Gamma_{exc} \end{pmatrix} \quad (1.60)$$

Pour déterminer les valeurs propres, on résout l'équation $\det(H - E.I) = 0$. Il vient :

$$(E_{ph} - j\Gamma_{ph} - E)(E_{exc} - j\Gamma_{exc} - E) - V^2 = 0 \quad (1.61)$$

$$E = \frac{1}{2} \left[(E_{ph} - j\Gamma_{ph} + E_{exc} - j\Gamma_{exc}) \pm \sqrt{[(E_{ph} - j\Gamma_{ph}) - (E_{exc} - j\Gamma_{exc})]^2 + 4V^2} \right] \quad (1.62)$$

La différence entre l'énergie de l'exciton et du photon est appelée désaccord et est notée $\delta = E_{ph} - E_{exc}$. La partie réelle de la solution de l'équation précédente définit la dispersion du polariton, alors que la partie imaginaire est liée à la durée de vie de l'oscillateur (amortissement). Si δ est nul alors on voit apparaître deux cas pour les solutions de E .

- les deux solutions ont la même partie réelle. Il n'y a qu'une seule valeur d'énergie possible et le mode photonique croise le mode excitonique. C'est le régime de couplage faible. Les deux oscillateurs n'interagissent pas entre eux.
- Les deux solutions ont une partie réelle différente. Il apparaît alors deux modes polaritoniques appelés branche haute (ou UPB) et branche basse (ou LPB) qui caractérisent le régime de couplage fort lumière-matière. Pour les désaccords inférieurs à zéro et jusqu'à nul, la différence d'énergie au niveau de l'anti-croisement est appelée dédoublement ou éclatement de Rabi (splitting Ω).

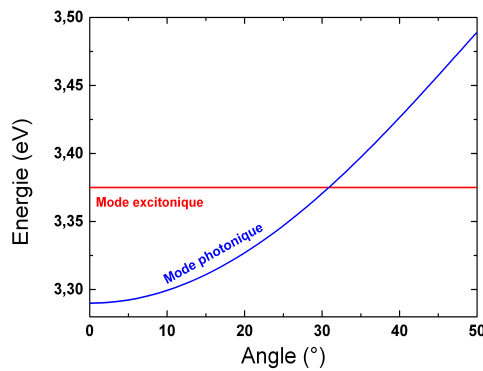


FIGURE 1.24 – Couplage faible. Dispersion angulaire du mode photonique de cavité (bleu), et des excitons (rouge).

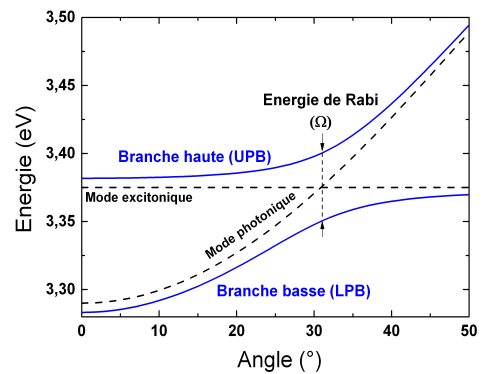


FIGURE 1.25 – Couplage fort. Dispersion angulaire des modes polaritoniques haut et bas.

La valeur du dédoublement de Rabi détermine l'intensité du couplage entre les deux oscillateurs ; elle est liée au terme de couplage V qui dépend du matériau par l'intermédiaire

de la force d'oscillateur f des excitons et de l'indice mais aussi des paramètres de la cavité (L_{cav}, L_{eff}) [71].

$$V = \sqrt{\frac{f L_{cav}}{n_{cav} L_{eff}}} \quad (1.63)$$

On détermine le dédoublement de Rabi à partir de l'expression suivante :

$$\Omega = 2\sqrt{V^2 - \frac{1}{4}\Delta_\Gamma} \quad avec \quad \Delta_\Gamma = \Gamma_{exc} - \Gamma_{ph} \quad (1.64)$$

Il apparait alors que le terme de couplage V et donc Ω sont des paramètres importants pour obtenir le couplage fort dans les microcavités planaires. Dans l'équation 1.63 nous voyons qu'il est nécessaire de travailler avec une force d'oscillateur la plus grande possible. Avec $f \approx 200000 \text{ meV}^2$, le ZnO présente une force d'oscillateur bien supérieure à de nombreux autres semi-conducteurs. L_{eff} joue en défaveur du terme de couplage, il faut donc le minimiser en jouant sur les sauts d'indices dans les miroirs de Bragg, c'est pourquoi nous verrons dans les chapitres suivants qu'une attention particulière a été portée sur le choix des matériaux utilisés dans ces couches. Enfin dans l'équation 1.64 nous voyons que les élargissements des photons et des excitons doivent être le plus proche possible afin de maximiser l'énergie de Rabi. La figure 1.25 nous montre l'évolution des dispersions polaritoniques lorsque les conditions du couplage fort sont réunies. On rappelle que E_{ph} varie en fonction de l'angle d'incidence (1.59). A la résonance ($E_{ph} = E_{exc}$) on observe l'anticroisement et les deux branches sont séparées par l'énergie de Rabi. Dans cette situation les polaritons présentent aussi bien les caractéristiques du photon que de l'exciton. Hors résonance, les dispersions polaritoniques tendent vers les énergies des modes non couplés, ils adoptent alors plus les caractéristiques du photon pour la LPB et celle de l'exciton pour la UPB. Cette fraction excitonique et photonique (aussi appelée poids) varie hors résonance en fonction du désaccord δ . On peut calculer les composantes excitonique (α_i) et photonique (β_i) en recherchant les vecteurs propres associés aux modes couplés dans la base des modes non couplés. α_i et β_i sont appelés coefficients de Hopfield et portés au carré, ils représentent les poids excitonique et photonique du polariton [79].

$$\alpha_{LPB}^2 = \frac{4V^2}{4V^2 + (\delta + \hbar\Omega)^2} \quad (1.65)$$

$$\beta_{LPB}^2 = \frac{(\delta + \hbar\Omega)^2}{4V^2 + (\delta + \hbar\Omega)^2} \quad (1.66)$$

La figure 1.26 illustre l'influence de δ sur la composition de la LPB.

1.6 Condensation de Bose-Einstein

Les particules élémentaires peuvent être classées en deux catégories selon la valeur de leur spin. Celles de spin entier sont des bosons et celles de spin demi-entier sont des fermions. Pour une température donnée, les bosons suivent la statistique de Bose-Einstein et les fermions la statistique de Fermi-Dirac. Contrairement aux fermions qui ne peuvent occuper le même

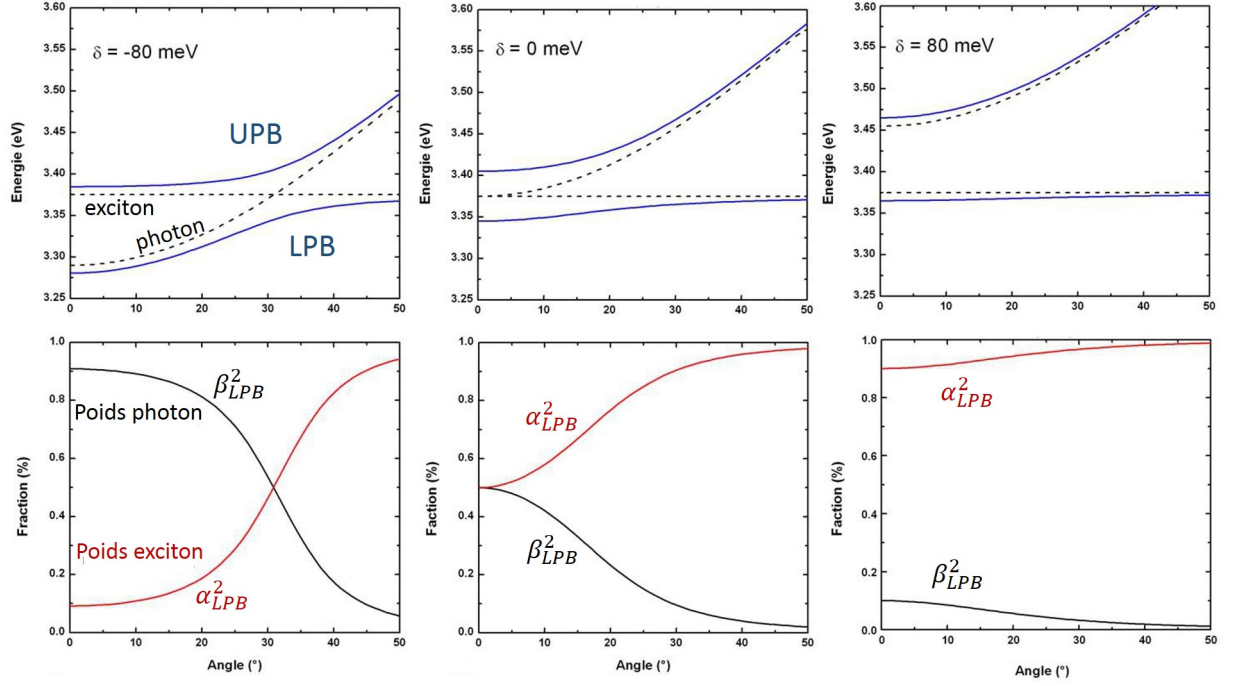


FIGURE 1.26 – (lignes pointillées) Position des modes non couplés (photonique et exciton). (lignes bleu) modes couplés, UPB et LPB . (ligne noire) β_{LPB}^2 : fraction photonique. (ligne rouge) α_{LPB}^2 : fraction excitonique

état quantique du fait du principe d'exclusion de Pauli, les bosons peuvent atteindre l'état de condensation de Bose-Einstein quand la distance qui les sépare est inférieure ou égale à la longueur d'onde de De Broglie :

$$\lambda_T = \frac{\hbar}{\sqrt{2\pi m k_B T}} \quad (1.67)$$

Dans un gaz de bosons, le nombre moyen de particules occupant un état α d'énergie ϵ_α est donné par :

$$\bar{N}_\alpha = \frac{1}{\exp^{\beta(\epsilon_\alpha - \mu)} - 1} \quad (1.68)$$

avec $\beta = \frac{1}{kT}$ et μ le potentiel chimique.

On exprime le nombre de particules (de spin S) dans le système par :

$$N = (2S + 1) \frac{2\pi}{\hbar^3} (2m)^{3/2} V \int_0^\infty \frac{\sqrt{\epsilon} d\epsilon}{\exp^{\beta(\epsilon - \mu)} - 1} \quad (1.69)$$

On peut aussi l'exprimer à l'aide d'une somme :

$$N = \sum_i \bar{N}_i(\mu, T) \quad (1.70)$$

Si on considère un espace de volume V ; la densité de bosons n est donnée par $n = \frac{N}{V}$. En diminuant la température du gaz de bosons on atteint une température critique appelée température de Bose T_B pour laquelle le potentiel chimique μ est nul. A partir de cette

température, les bosons vont se regrouper dans l'état fondamental du système. On donne l'expression de la température de Bose :

$$T_B = \frac{h^2}{2\pi mk} \left(\frac{N}{V} \right)^{2/3} \left(\frac{1}{\zeta(3/2)(2S+1)} \right)^{(2/3)} \quad (1.71)$$

avec $\zeta(3/2)$ la fonction de Riemann $\approx 2,612$. On remarque que cette température est inversement proportionnelle à la masse m des particules. Ainsi, plus les particules sont légères, plus la condensation sera facile à observer. Les polaritons sont donc des candidats parfaits pour l'observation de ce phénomène [49],[42].

On appelle N_0 le nombre de particules occupant le niveau fondamental :

$$N_0 = N \left(1 - \left(\frac{T}{T_B} \right)^{3/2} \right) \quad (1.72)$$

Dès 1962, l'idée d'utiliser les excitons des semi-conducteurs est proposée [8],[65]. Les progrès techniques en matière d'épitaxie des semi-conducteurs ont permis d'observer le couplage fort lumière matière [97],[4], (développé dans la partie 1.5) et de nombreux travaux portent désormais sur la condensation de polaritons de cavité.

1.6.1 Condensation dans les microcavités

Dans les microcavités, la transition de phase jusqu'à la condensation de Bose-Einstein est régie par le phénomène de relaxation. Son étude permet de comprendre le comportement des polaritons de cavité ; leur thermodynamique, leur cohérence spatiale et temporelle, mais aussi leur état de superfluidité et leur polarisation de spin [47] [23] [21]. La figure 1.27 schématise l'évolution des polaritons le long de la branche basse (LPB).

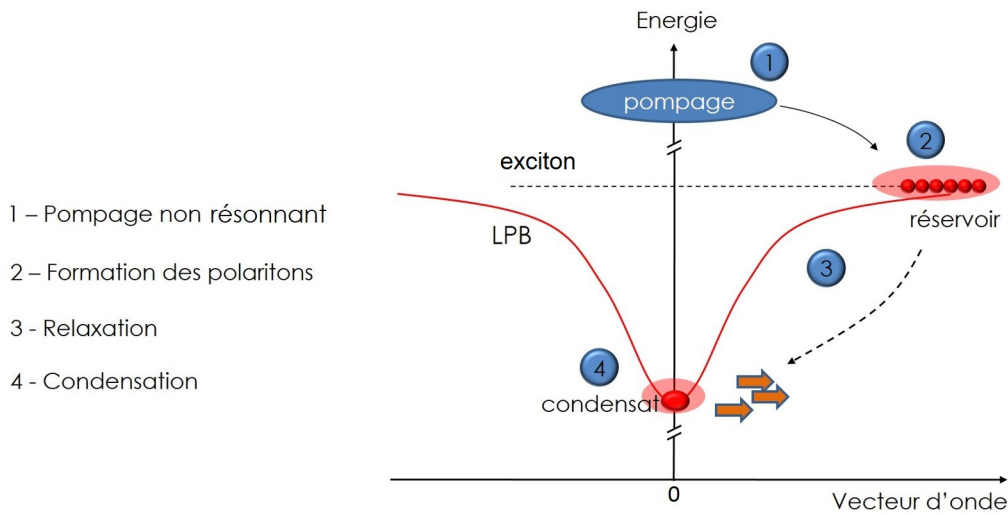


FIGURE 1.27 – Création et relaxation des polaritons le long de la branche basse.

Dans le cas de notre étude, nous utilisons un pompage optique non résonnant. A 266 nm l'excitation est située plusieurs centaines de meV au dessus de l'énergie des excitons. Les paires électron trou créées par le pompage vont perdre de l'énergie par émission de phonons

[88]. Les paires présentes dans le cône de lumière vont se regrouper à grand $\vec{k}_{||}$ dans ce que l'on appelle communément le réservoir à excitons qui est en fait un état polaritonique où la composante excitonique est forte. Ce réservoir est constamment alimenté par le pompage. Les particules vont alors perdre de l'énergie pour atteindre le niveau fondamental du système en suivant les états autorisés le long de la dispersion polaritonique basse (LPB). Les mécanismes et leur importance suivant différents paramètres entrant en jeu dans ce processus seront discutés dans la partie 4.4 du chapitre 4. Ce processus prend fin si le minimum ($\vec{k}_{||} = 0$) de la LPB est atteint. Ce minimum énergétique est propice à l'accumulation des polaritons et par conséquent à l'obtention du laser à polaritons.

L'une des propriétés intéressantes des bosons est que la diffusion des polaritons vers l'état final est proportionnelle à la population de cet état plus un [18].

$$\mathcal{R}^{k_{||},0} = \mathcal{R}_0^{k_{||},0} (1 + \langle \mathcal{N}_0 \rangle) \quad (1.73)$$

avec $\mathcal{R}_0^{k_{||},0}$ la probabilité d'un polariton à relaxer d'un état à vecteur d'onde $k \neq 0$ vers un état où la population est nulle [87]. $\langle \mathcal{N}_0 \rangle$ est le facteur d'occupation de l'état final.

C'est cette observation qui mène à l'idée du laser à polaritons. En effet, dès que le facteur d'occupation est supérieur à 1, la diffusion jusqu'à l'état final à $\vec{k}_{||} = 0$ est favorisée. L'effet laser à polaritons vient du fait qu'au delà d'une population seuil, un effet non-linéaire est obtenu et la population de l'état final s'accroît exponentiellement lorsque le pompage est augmenté. On peut alors faire une analogie avec un laser classique en parlant de relaxation amplifiée par l'occupation de l'état final.

Le terme "laser" à polaritons est bien sur un abus de langage car il s'agit d'une relaxation stimulée de particules et non pas d'émission stimulée.

1.7 Laser à polaritons

Dans l'introduction nous avons vu que la théorie de la condensation de Bose Einstein (BEC) a été développée dans les années vingt. C'est un état qui regroupe des particules de spin entier (bosons) et dans lequel le comportement collectif domine sur les comportements individuels. Finalement, grâce aux progrès en matière de refroidissement, ce phénomène fut observé 70 ans plus tard, avec des atomes lourds de rubidium.

Au milieu des années 90 Imamoglu *et al* [42] proposent un nouveau type de laser basé sur la condensation de Bose Einstein. L'aspect novateur de ce laser vient du fait qu'il ne nécessite pas d'inversion de population et qu'il présente donc un seuil de fonctionnement très faible. Ce nouveau laser utilise la relaxation des polaritons décrite dans le précédent paragraphe.

Ce chapitre nous a montré que dans une microcavité en régime de couplage fort, on crée des polaritons. Ces quasi-particules bosoniques mixtes, formées d'un exciton et d'un photon peuvent thermaliser jusqu'à un même état quantique appelé état fondamental. Les polaritons alors piégés dans cet état ont un temps de vie court et finissent par libérer un photon. L'énergie de ce photon est définie par l'énergie de bande interdite du matériau utilisé. On obtient alors une émission de photons cohérents, monochromatiques et unidirectionnels.

La température nécessaire pour obtenir la thermalisation des particules est inversement

proportionnelle à la masse. Un polariton est 4 ordres de grandeur plus léger que la masse de l'électron libre, la condensation est alors facilitée expérimentalement. Si la condensation d'atomes avait besoin de température très basse ($< 1\text{K}$), l'utilisation de semi-conducteurs avec de grandes forces d'oscillateur permet d'observer les excitons (et aussi les polaritons) jusqu'à température ambiante. Afin de comprendre quels sont les avantages du ZnO dans ce type de dispositif, nous devons rappeler que les photons émis par les polaritons ont une énergie qui dépend du semi-conducteur utilisé. Dans ZnO, l'énergie de bande interdite vaut $3,37\text{ eV}$ ce qui permet l'obtention d'une émission dans le proche UV, une gamme de longueur d'onde qui, jusqu'à maintenant, était inaccessible par les sources laser classiques. Un autre aspect et certainement le plus important qui fait que le ZnO est d'intérêt majeur pour ce dispositif, est l'énergie de liaison extrêmement forte de ses excitons (60 meV), la plus forte de la famille des II-VI. Il est alors possible d'obtenir un laser moins gourmand en énergie, dans une gamme de longueurs d'ondes intéressante et qui peut fonctionner jusqu'à haute température. L'observation de cet effet laser dans une microcavité CdTe est rapportée en 1998 [19].

Cet effet est surtout relié à deux paramètres que l'on s'efforce d'optimiser, le facteur de qualité et le dédoublement de Rabi.

1.8 Etat de l'art et problématique

Le régime de couplage fort entre les excitons et les photons mis en évidence en 1992 par Weisbuch *et al.* [97] permet aujourd'hui aux microcavités d'être un support majeur pour l'étude de l'électrodynamique quantique. Du fait de l'analogie avec les atomes froids, on a vite cherché à montrer un état macroscopique de la matière cohérent.

Les premières expériences montrant le couplage fort puis la condensation de polaritons ont été obtenues à basse température (de l'ordre de la dizaine de Kelvin) avec GaAs, CdTe et InGaAs [22] [75] [45] [78]. Dans un premier temps, la qualité des miroirs limitait le temps de vie des photons de cavité et les défauts des couches donnaient une finesse spectrale médiocre. L'évolution rapide des techniques a permis, dès 1998, d'observer pour la première fois une émission cohérente dans une structure à base de CdTe à basse température [19].

En 2002 [106] il a été montré théoriquement que les propriétés du ZnO sont particulièrement adaptées pour obtenir un laser à polaritons (table 1.2).

	Energie de liaison (meV)	Splitting longitudinal- transverse	Couplage exciton-photon (Ω)(meV)
GaAs	4, 2	$0,08(X_{HH})$	5 – 10
GaN	25	$4,7(X_A + X_B)$	30 – 60
ZnO	60	$6,3(X_A + X_B)$	60 – 200

TABLE 1.2 – Propriétés des excitons dans des matériaux couramment utilisés en microcavité [53] [81] [31] [32] [106] [86].

L'avantage d'utiliser un matériau pour lequel l'énergie de liaison des excitons est forte, est qu'il permet un fonctionnement à température ambiante, condition absolue pour un composant commercialisable. De gros efforts ont portés sur l'obtention du laser à polaritons fonctionnant à température ambiante et des micro-cavités à base de GaN ont donné les premiers succès [[16]]. Dans ces structures l'énergie de Rabi qui, on le rappelle est l'énergie minimum entre la branche haute et basse, est de l'ordre de 50 meV.

La technologie ZnO qui était en retard sur GaN a, peu de temps après, permis de mettre en évidence des couplages forts avec des Rabi deux fois plus importants ($\approx 100\text{meV}$)[[26]]. Les avancées sont progressives et constantes comme le montre l'évolution des facteurs de qualité, de l'ordre de 100 pour les premières générations [85] [25] à 4000 pour les plus élaborées [15]. En parallèle du développement des microcavités, d'autres structures ZnO (micro-piliers, micro-disques ...) ont aussi montré le couplage fort à température ambiante [80].

En 2002, les calculs négligeaient le temps de vie fini des polaritons. Un Rabi plus grand conduisait alors à un seuil théorique plus bas. La course aux Rabi de plus en plus grands était lancée.

En 2008 [46] le temps de vie des polaritons a été pris en compte dans les calculs. Pour un Rabi grand, les particules doivent dissiper une quantité importante d'énergie pour atteindre le niveau de plus basse énergie depuis le réservoir excitonique. Si le temps de relaxation devient supérieur au temps de vie des particules, alors le système n'est plus à l'équilibre thermodynamique et le seuil est augmenté.

On peut alors se demander si le ZnO est réellement un si bon candidat pour obtenir un laser à polaritons à faible seuil.

Nous allons voir qu'il s'agit en fait de trouver le bon équilibre entre tous les paramètres de cavité. On doit ajuster au mieux l'énergie de Rabi, le facteur de qualité ainsi que le désaccord.

Dans ZnO

Le Rabi très grand donne un piège profond et oblige les particules à perdre beaucoup d'énergie pour atteindre l'état fondamental. Si le piège est trop profond, le temps de relaxation devient plus grand que le temps de vie des particules et l'état de plus basse énergie n'est jamais atteint.

Pour réduire la profondeur du piège, on joue sur le detuning. Le detuning optimal pour les microcavités ZnO est $\delta \approx 0\text{ meV}$ [56].

Dans GaN

Le Rabi modéré donne un piège peu profond et les particules peuvent aisément atteindre l'état fondamental. Cependant comme le piège est peu profond, les particules peuvent s'échapper (interactions exciton-exciton à haute température). Pour éviter cela, on joue encore sur le detuning qui nous permet d'avoir un piège légèrement plus profond. Le detuning optimal pour les microcavités GaN est autour de $\delta \approx -40\text{ meV}$.

On pourrait alors conclure qu'aucun de ces deux matériaux n'est favorable à la condensation. Cependant, le fait de travailler à detuning plus grand dans ZnO, donne aux polaritons un

poids excitonique plus important que dans GaN. De ce fait, les interactions entre particules sont favorisées et la densité de particules nécessaire pour atteindre l'état de plus basse énergie est plus basse. Le seuil est alors abaissé. C'est cette raison qui fait que le ZnO est un client idéal pour l'obtention du laser à bas seuil à température ambiante.

Nous détaillerons au cours du chapitre 4 les phénomènes qui influent sur la valeur de la densité critique.

On comprend que le seuil dépend de deux paramètres, le facteur de qualité, qui gouverne le temps de vie des particules, et le detuning qui permet d'ajuster la profondeur du piège.

La figure 1.28 issue de [43] montre l'évolution du seuil en fonction du Rabi et du facteur de qualité.

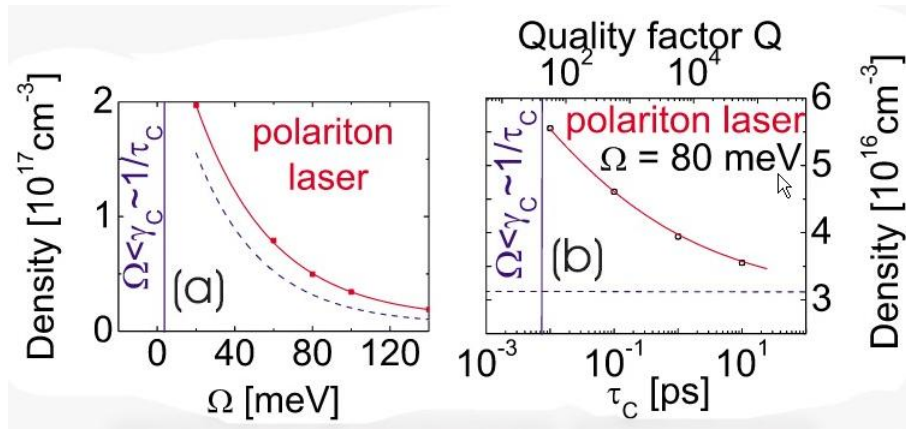


FIGURE 1.28 – (a) (ligne rouge) Densité de particules au seuil en fonction du Rabi (Ω) pour un temps de vie photon $\approx 0,1 ps$. (ligne bleue) Limite en dessous de laquelle on passe en régime de couplage faible. (ligne pointillé) Seuil calculé sans prendre en compte le temps de vie des polaritons. (b) Densité de particules au seuil en fonction du facteur de qualité calculé pour un Rabi de 80 meV.

Le challenge, qui est la motivation de cette thèse, est donc de concevoir des cavités en optimisant les paramètres que sont le Rabi et le facteur de qualité.

Le premier laser à polaritons à base de ZnO à température ambiante a été observé en 2012 dans une cavité planaire ZnO [69]. Au même moment l'étude de fils de semi-conducteurs, notamment de ZnO ont donné des résultats notables [91]. Les axes de recherche évoluent constamment et la tendance s'oriente vers les études des propriétés du condensat en tant que tel. Les polaritons permettent de manipuler le condensat comme jamais auparavant et les études de superfluidité sont très prometteuses.

La physique des polaritons a maintenant une vingtaine d'années et beaucoup de voies, au départ théoriques, sont maintenant maîtrisées expérimentalement. Ainsi les propriétés des excitons dans les semi-conducteurs, les phénomènes de relaxation, les méthodes d'excitation, les différents types de structures, sont autant de paramètres qui maintenant sont maîtrisés. C'est dans ce contexte de dynamisme fort que mes travaux doctoraux prennent place.

Chapitre 2

Méthodes expérimentales

Sommaire

2.1	Equipement	42
2.2	Source d'excitation laser	43
2.3	Réflectivité	44
2.3.1	Réflectivité sous incidence normale	44
2.3.2	Réflectivité en angle	46
2.4	Modèle des matrices de transfert	47
2.4.1	Coefficients de Fresnel	48
2.4.2	Structure multi-couches et modèle matriciel	50
2.5	Micro-photoluminescence	54

Exciter un matériau avec de la lumière et étudier la lumière qui est réémise sont l'objet des spectroscopies optiques. En étudiant la lumière absorbée, réfléchie et transmise, nous avons accès à un vaste champ d'informations. Les mesures de spectroscopie demandent des installations optiques très exigeantes impliquant une grande précision et une forte stabilité. Ce chapitre a pour but de décrire en détail toutes les méthodes de spectroscopie expérimentale utilisées lors de ces travaux et de montrer leurs intérêts respectifs.

Dans une première partie, nous nous intéresserons aux dispositifs de macro-réflectivité et de réflectivité en angle utilisés. Nous avons notamment étudié les miroirs multi-couches et montré le couplage fort. Nous verrons aussi comment il est possible de modéliser la réponse optique du système grâce au formalisme des matrices de transfert.

La seconde partie est dédiée au montage de micro-photoluminescence. Selon les différentes configurations expérimentales, nous pouvons étudier la réponse des échantillons dans l'espace réel et réciproque. Les dispositifs permettant de faire des études en fonction de la température sont aussi décrits.

2.1 Equipement

Le laboratoire dispose de plusieurs sources laser servant à l'excitation optique :

Sources LASER

- Un laser YAG doublé intra-cavité, pompé à l'aide de deux barrettes de diodes pouvant délivrer jusqu'à 36 W. En sortie le faisceau continu délivre jusqu'à 10 Watt à 532 nm.
- A l'aide d'un module dédié, ce faisceau peut être doublé et on obtient un faisceau continu à 266 nm.
- Il peut aussi être utilisé pour pomper une cavité femto-secondes comportant un cristal titane-saphir. Cette cavité est accordable en longueur d'onde entre 700 et 1000 nm. Les impulsions obtenues ont une largeur de 130 femto-seconde cadencées à 76 MHz. La puissance moyenne en sortie de cette ligne peut monter jusqu'à 1.40 W.
- L'émission femto-seconde peut être doublée et triplée. On peut alors obtenir une émission femto-seconde jusqu'à 233 nm.

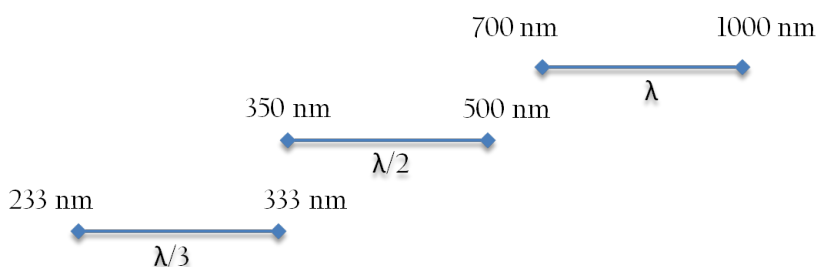


FIGURE 2.1 – Gamme de longueurs d'ondes accessibles (excitation continue et femto-seconde)

Sources lumineuses

- Une lampe halogène émettant une lumière continue sur une large bande spectrale.
- Une lampe U.V émettant à partir de 230 nm.

Detection

Quatre systèmes d'analyse et de détection pouvant être associés les uns aux autres suivant les besoins :

- Un spectromètre HR 1000 de distance focale 1 m utilisant des réseaux 2400 ou 1800 traits. Résolution maximum de $0,3\text{\AA}$.
- Deux spectromètres HR-640. Distance de travail 64 cm. Réseau 2400 traits/mm. Résolution maximum de $0,5\text{\AA}$.
- Une caméra CCD à température contrôlée par effet Peltier (-70°C). 256×1024 pixels. Surface d'un pixel $26\mu\text{m}^2$.
- Une caméra CCD à température contrôlée par effet Peltier (-70°C). 512×2048 pixels. Surface d'un pixel $13\mu\text{m}^2$.

Les études en température sont possibles grâce à 3 cryostats :

- Deux cryostats fixes à circulation de fluide. L'hélium liquide permet de descendre jusqu'à $4,2\text{ K}$
- Un cryostat à bain d'hélium permettant la rotation de l'échantillon sur 360°

Les sources et composants sont installés dans trois salles d'expériences équipées de bancs et de tables optiques.

2.2 Source d'excitation laser

La majorité des mesures présentées dans ce manuscrit ont été obtenues sous excitation femto-seconde à la longueur d'onde de 266 nm. Il convient de présenter cette source qui est le résultat d'une ligne laser complète.

Laser de pompe Verdi

Le laser de pompe est un laser continu fonctionnant à 532 nm qui délivre jusqu'à 10 W. Il utilise un cristal de vanadate d'yttrium dopé avec des ions néodymes (Nd-YAG, acronyme anglais : *neodymium-doped yttrium aluminium garnet*). De la marque COHERENT et nommé Verdi V-10, c'est un laser à faible bruit (bruit optique $< 0.003\%$ rms) pompé optiquement par des diodes laser AAA (Aluminium-free Active Area) de forte puissance à 808 nm (longueur d'onde d'absorption du cristal). En sortie de pompe, on obtient un faisceau de 2,25 mm de diamètre avec une divergence inférieure à 0,5 mrad.

Oscillateur Mira

Le laser Verdi nous permet de pomper un cristal de saphir dopé par des ions titane. La longueur d'onde est accordable entre 700 et 1000 nm. L'émission dans un premier temps continue est focalisée dans un cristal à effet Kerr (l'indice de ce cristal varie en fonction de la puissance de l'onde incidente) les modes de forte puissance vont alors être séparés des modes de faible puissance. Un deuxième cristal, par vibration, va créer des interférences entre les modes à l'origine des pulses. Un jeu de prismes permet de compenser le déphasage dans la cavité et ainsi de garder le fonctionnement en mode pulsé pour chaque configuration des miroirs. En sortie du Mira-900 on peut obtenir des pulses femto-seconde (130 fs cadencés à 76 MHz) de 1,4 W à 800 nm.

Obtention d'harmoniques double et triple

Un étage composé d'un doubleur et d'un tripleur nous permet de générer une seconde ou troisième harmonique. En utilisant un faisceau d'entrée centré à 800 nm, on peut obtenir une émission à 266 nm de puissance moyenne 50 mW. C'est cette configuration standard qui servira à l'étude des microcavités présentées dans les chapitres 3 et 4.

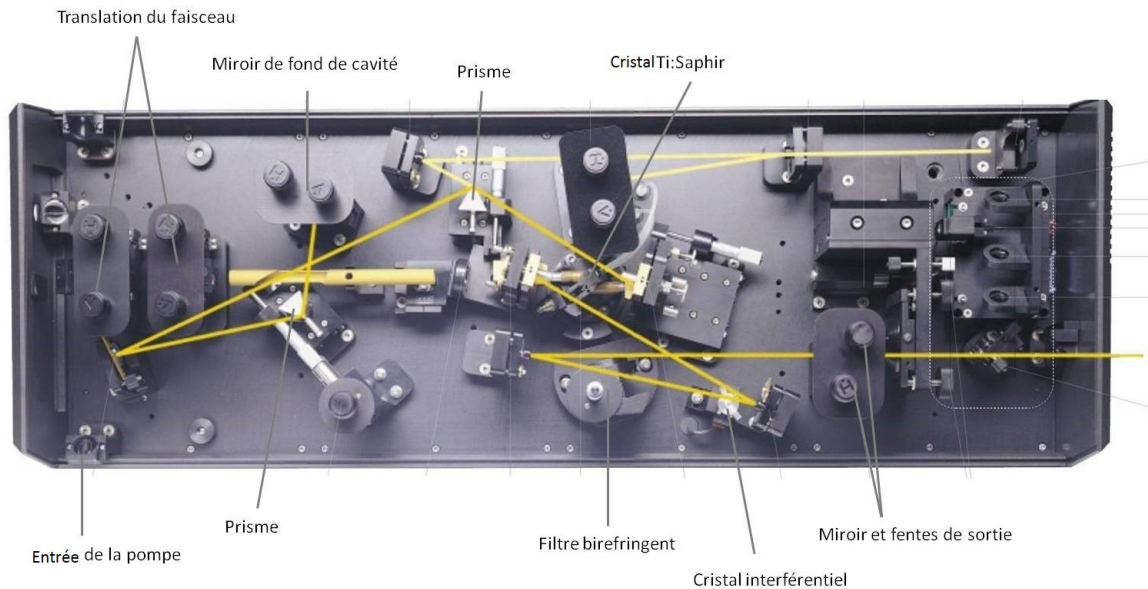


FIGURE 2.2 – Schéma du laser femto-seconde Mira-900. Le trajet du faisceau ainsi que les éléments principaux sont indiqués

2.3 Réflectivité

La spectroscopie de réflectivité permet l'étude de l'intensité réfléchiée par un matériau, en fonction de la longueur d'onde. Dans le cas de l'oxyde de zinc, cette technique nous permet de mettre en évidence les transitions excitoniques car la valeur du coefficient de réflexion est fortement perturbé par les résonances excitoniques. Appliquée aux microcavités, cette technique nous permet de caractériser précisément notre structure ; ainsi on mesure la longueur de la stop-band et la position du ou des modes optiques.

2.3.1 Réflectivité sous incidence normale

L'utilisation de cette technique nous permet de remonter aux propriétés intrinsèques du matériau. La figure 2.3, reporte un spectre de réflectivité en fonction de l'énergie pour un échantillon de ZnO épitaxié sur un substrat saphir.

On repère trois zones. (1) Le matériau est transparent, cependant le coefficient de réflexion n'est pas nul à cause du saut d'indice à l'interface. (2) On observe des pics de réflectivité associés aux excitons libres du matériau. A l'inverse d'autres techniques comme la luminescence, la réflectivité met en évidence principalement les états intrinsèques qui sont en nombre conséquent. La densité d'états excitoniques intrinsèque est très grande devant la densité d'états des excitons liés à des impuretés. La réflectivité, très sensible à l'absorption et par conséquent à la densité d'états permet de révéler les états intrinsèques du matériau. A ces énergies le matériau répond différemment à l'excitation optique, la constante diélectrique est modifiée ainsi que le coefficient de réflexion. Si le ZnO est inséré dans une microcavité, ce sont à ces énergies que les photons du mode de cavité vont interagir avec les excitons. (3) Au dessus de 3,41 eV (valeur du gap) le matériau devient très absorbant (voir figure 1.14).

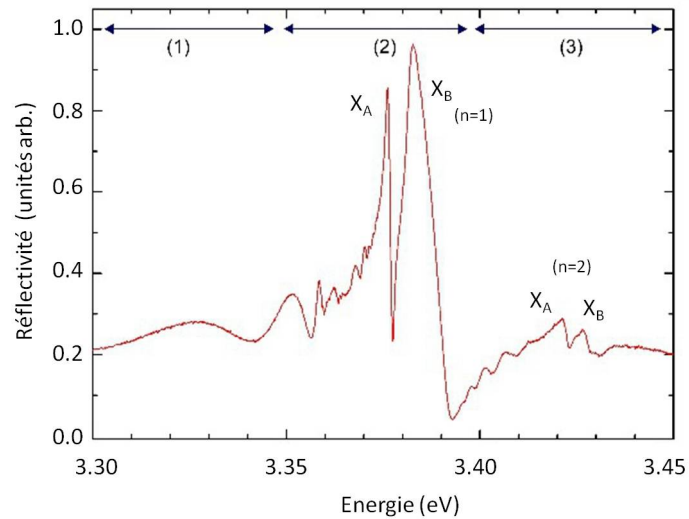


FIGURE 2.3 – Mesure de réflectivité sur un échantillon de ZnO épitaxié sur une couche de saphir

La figure 2.4 montre le dispositif expérimental utilisé.

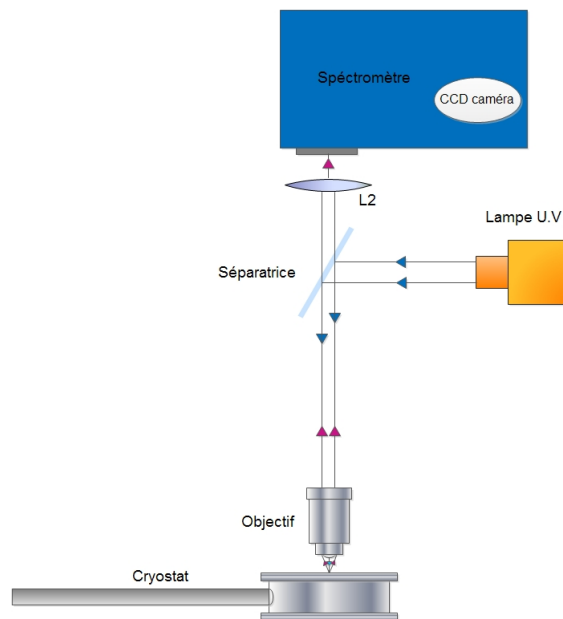


FIGURE 2.4 – Schéma du montage de micro-réflectivité

La source lumineuse est une lampe UV, elle nous permet d'étudier l'échantillon sur un spectre très large (> 2000 nm) commençant à 230 nm. La séparatrice envoie une partie du faisceau en direction de l'échantillon et l'objectif de microscope focalise l'excitation sur l'échantillon (spot $\varnothing = 2\mu m$). La température de travail est contrôlée grâce à un cryostat. Un contrôleur nous permet de stabiliser la température au centième de degré près sur une plage de 4 à 300K grâce à une résistance chauffante. La collecte se fait par l'objectif qui renvoie le faisceau à l'infini. La lentille L2 focalise l'image sur la fente d'entrée du spectromètre. Le réseau motorisé du spectromètre est un 2400 traits par mm. Le spectre est alors enregistré

à l'aide d'une caméra CCD 256×1024 pixels. En une acquisition on enregistre une plage de 79 meV de large (autour de 320 nm), et le système motorisé du réseau nous permet de balayer l'intervalle souhaité. La source n'est pas une source blanche parfaite, il faut donc normaliser les spectres obtenus. Pour cela, dans les mêmes conditions d'expérience, on remplace l'échantillon par un miroir et le spectre obtenu sera utilisé comme référence. Ainsi, tous les spectres seront divisés par cette référence.

2.3.2 Réflectivité en angle

La figure 2.5 montre le dispositif expérimental.

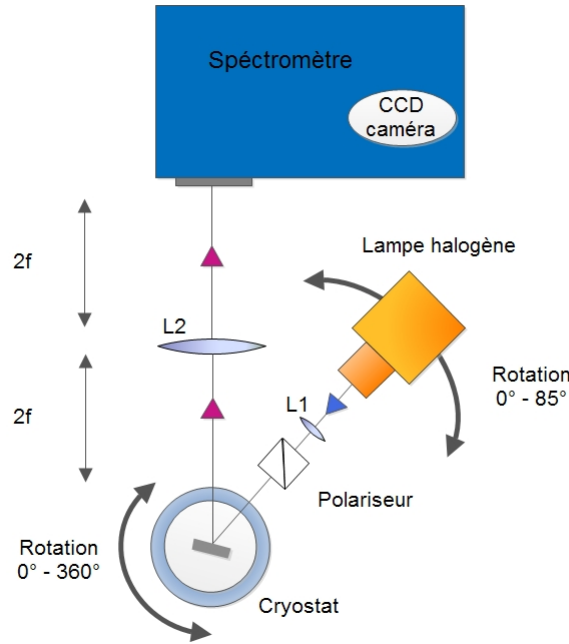


FIGURE 2.5 – Schéma du montage de spectroscopie résolue en angles

L'échantillon est placé dans un cryostat à fenêtre circulaire transparente pouvant tourner sur 360° . La source lumineuse est une lampe halogène émettant un spectre de 230 à 2500 nm. La lumière traverse la lentille pour former un faisceau parallèle et passe ensuite dans le polariseur. Le système "lampe, lentille, polariseur" est fixé sur un bâti qui autorise une rotation autour de l'échantillon. L'axe de rotation est le même que celui du cryostat. La lentille L2 ainsi que le spectromètre sont quant à eux fixes. Pour étudier la réflectivité de l'échantillon en angle, on tourne le cryostat d'un angle α et le système d'excitation de 2α . La lentille L2 est placée de telle sorte à obtenir un montage 4f (grandissement = -1). Ce système permet l'étude en réflectivité des angles d'incidence allant de 0° à 90° .

Système cryogénique

Les transitions excitoniques évoluent de façon significative en fonction de la température. En photoluminescence notamment, les excitons liés dominent complètement l'émission à basse température. À l'inverse, au dessus de 70 K, cette émission s'élargit du fait de l'agitation thermique et l'émission (souvent appelé D^0X) n'est plus distincte. Suivant l'in-

formation recherchée, il est nécessaire de pouvoir mener les expériences sur une large plage de températures (entre 5 et 300 K). On utilise pour cela un cryostat à doigt froid (figure 2.6).

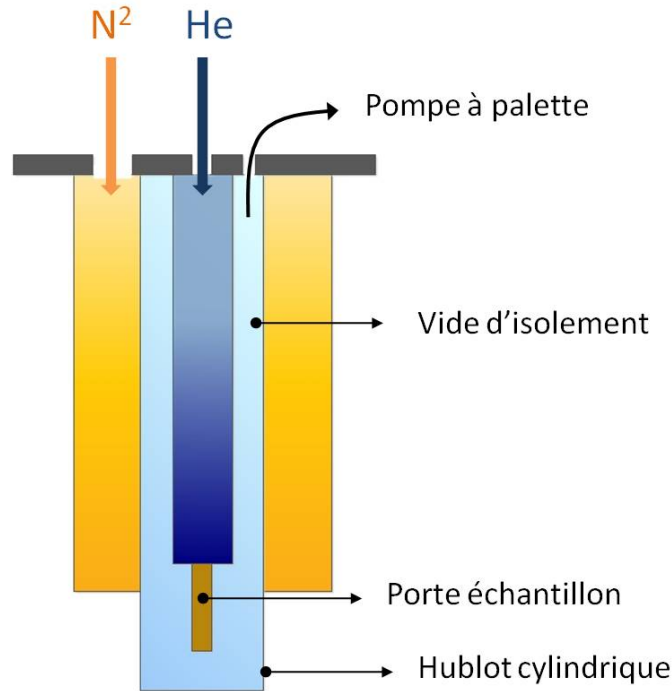


FIGURE 2.6 – Schéma d'un cryostat à bain d'hélium. L'enceinte d'isolement et le réservoir d'azote permettent de garder l'échantillon à très basse température

L'atout de ce cryostat est de garder l'échantillon à basse température sur une longue période sans consommer beaucoup d'hélium mais surtout grâce à sa fenêtre circulaire, d'étudier les réflexions pour une gamme d'angles importantes (0° à $\approx 85^\circ$). Le porte échantillon est en cuivre et possède une très bonne conductivité thermique. Il est placé dans un vide primaire et son extrémité haute est en contact direct avec l'hélium liquide. L'échantillon est collé sur cette partie (appelée doigt froid) à l'aide de laque d'argent qui est un très bon conducteur thermique.

Le vide est obtenu grâce à une pompe à deux étages constituée d'une pompe primaire et d'une pompe turbo-moléculaire. Le vide est constamment maintenu à 10^{-6} mbar.

2.4 Modèle des matrices de transfert

Les microcavités planaires sont constituées à l'aide de miroirs de Bragg. Ces miroirs, présentés dans le premier chapitre sont un empilement successif de deux matériaux d'indices différents. Afin de modéliser la réponse optique de ces cavités, nous devons déterminer les équations qui définissent l'évolution du champ électrique, du champ magnétique et du vecteur d'onde. Ainsi dans un premier temps nous calculerons les coefficients de réflexion et de transmission dans le cas simple où l'on se place sur une interface entre deux milieux. Dans un deuxième temps nous verrons que l'on peut utiliser des matrices 2×2 pour exprimer la propagation de la lumière à cette interface. Enfin, en généralisant ce procédé à un nombre

N d'interfaces (et en tenant compte des couches) nous pourrions modéliser complètement un système complexe d'empilement de couches.

2.4.1 Coefficients de Fresnel

Les coefficients de Fresnel interviennent dans la description du phénomène de réflexion et réfraction d'une onde à l'interface entre deux milieux d'indice différent. Ils permettent d'exprimer un lien entre les amplitudes des ondes réfléchies et transmises par rapport à l'amplitude de l'onde incidente.

Pour cela on introduit le coefficient de réflexion r et le coefficient de transmission t du champ électrique tel que :

$$r = \frac{E_r}{E_i} \quad \text{et} \quad t = \frac{E_t}{E_i} \quad (2.1)$$

Où E_i , E_r et E_t sont les amplitudes respectives des champs électrique incident, réfléchi et transmis.

Le champ électrique et magnétique sont définis sous la forme :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} \quad \text{et} \quad \vec{B} = \vec{B}_0 e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} \quad (2.2)$$

La loi de Snell-Descartes $n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2$ nous permet de calculer l'angle de réfraction du faisceau transmis en fonction de l'angle d'incidence et de l'indice réel des milieux.

A l'interface, suivant la polarisation TE ou TM (transverse électrique et transverse magnétique) il y aura continuité totale ou partielle des champs électrique et magnétique. Il faut donc distinguer ces deux cas.

Polarisation TE

En polarisation transverse électrique, le champ électrique est orienté dans le plan de l'interface comme représenté sur la figure 2.7.

A l'interface, il y a donc continuité de $\vec{E}$ (car il n'est défini que suivant l'axe x) et de la composante y du champ $\vec{B}$.

Suivant l'axe ox

$$E_i \vec{u}_x + E_r \vec{u}_x = E_t \vec{u}_x \quad (2.3)$$

Si on divise par E_i on trouve :

$$1 + r = t \quad (2.4)$$

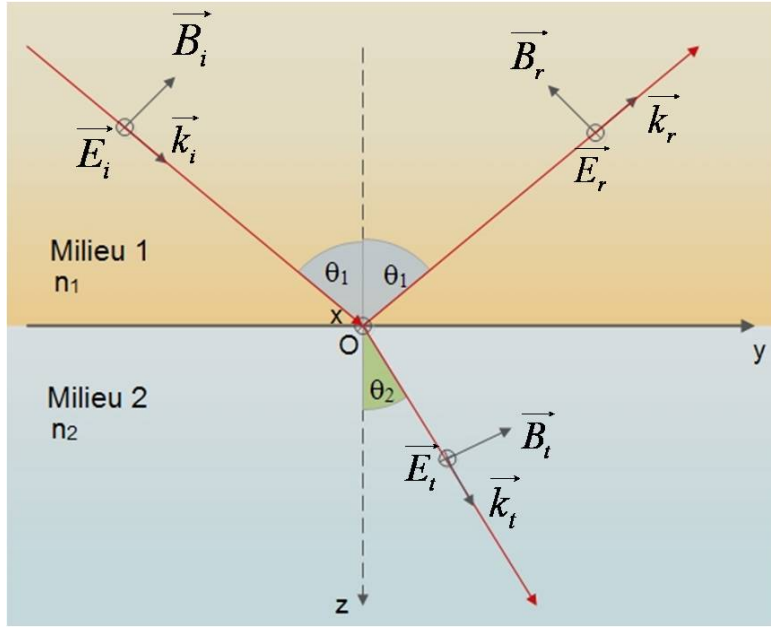


FIGURE 2.7 – Polarisation TE. Orientation des vecteurs $\vec{E}$, $\vec{B}$ et $\vec{k}$.

Rmq : Cette représentation n'est valable que dans le cas où le milieu 2 est transparent

Suivant l'axe oy

Il y a continuité de la composante suivant y de $\vec{B}$ (en l'absence de courant surfacique)

$$B_i \cos \theta_1 - B_r \cos \theta_1 = B_t \cos \theta_2 \quad (2.5)$$

Ou encore

$$(B_i - B_r) \cos \theta_1 = B_t \cos \theta_2 \quad (2.6)$$

On utilise alors l'équation de Maxwell qui nous permet de lier $\vec{B}$ et $\vec{E}$ dans un milieu homogène, linéaire et isotrope,

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -i\vec{k} \wedge \vec{E} = -iw\vec{B} \quad (2.7)$$

et

$$\vec{B} = \frac{\vec{k} \wedge \vec{E}}{w} \quad (2.8)$$

On sait que $k = nk_0$ donc :

$$\frac{k}{w} = \frac{n}{c} \quad (2.9)$$

Ainsi :

$$B = \begin{cases} B_i = E_i \frac{n_1}{c} \\ B_r = E_r \frac{n_1}{c} \\ B_t = E_t \frac{n_2}{c} \end{cases} \quad (2.10)$$

On remplace alors les expressions B_i , B_r , B_t dans l'équation 2.8, pour obtenir :

$$n_1(1 - r) \cos \theta_1 = n_2 t \cos \theta_2 \quad (2.11)$$

Cela permet de calculer les coefficients de Fresnel, grâce aux équations 2.1, 2.4 et 2.11

$$r = \frac{n_1 \cos \theta_1 - n_2 \cos \theta_2}{n_2 \cos \theta_2 + n_1 \cos \theta_1} \quad (2.12)$$

$$t = \frac{2n_1 \cos \theta_1}{n_1 \cos \theta_1 + n_2 \cos \theta_2} \quad (2.13)$$

Polarisation TM

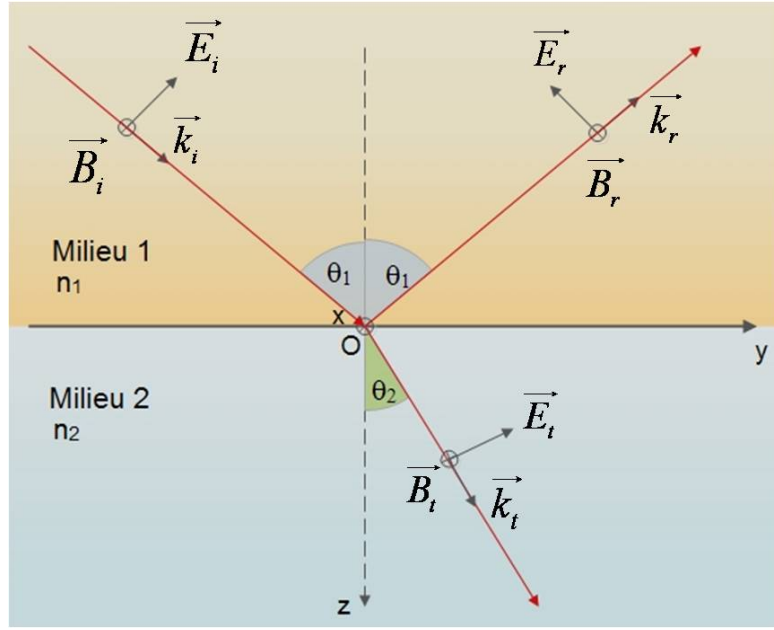


FIGURE 2.8 – Polarisation TM. Orientation des vecteurs $\vec{E}$, $\vec{B}$ et $\vec{k}$

En polarisation transverse magnétique, comme le montre la figure 2.8 il y a continuité à l'interface de $\vec{B}$ (car il n'est défini que suivant l'axe x) et de la composante y de $\vec{E}$.

En suivant le même raisonnement que dans la partie précédente on trouve :

$$r = \frac{n_2 \cos \theta_1 - n_1 \cos \theta_2}{n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2} \quad (2.14)$$

$$t = \frac{2n_1 \cos \theta_1}{n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2} \quad (2.15)$$

2.4.2 Structure multi-couches et modèle matriciel

Comme nous l'avons précisé au début de la partie 2.3, nous cherchons à étudier des structures multicouches. Pour cela nous utilisons le formalisme d'Azzam et Bashara [5] qui nous permet de modéliser chaque couche par une matrice couche et chaque interface par une

matrice interface.

Ce modèle matriciel permet de calculer la réflectivité, la transmission et l'absorption d'une structure multicouches et nécessite l'utilisation de la forme complexe des indices des matériaux.

L'indice complexe N est relié à la constante diélectrique :

$$N = n - iK = \sqrt{\epsilon_r} = \sqrt{\epsilon_1 + i\epsilon_2} \quad (2.16)$$

avec n l'indice de réfraction, K le coefficient d'extinction, ϵ_1 et ϵ_2 les parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique ϵ_r . La partie imaginaire K est reliée au coefficient d'absorption α du matériau :

$$\alpha = \frac{2\omega K}{c} = \frac{4\pi K}{\lambda_0} \quad (2.17)$$

On vient de voir que lorsque la lumière traverse une interface, on conservait les composantes tangentielles des champs, et ce, dans les deux cas, TE et TM. Pour cette raison et car les équations de propagation de la lumière sont linéaires, on peut utiliser une matrice 2×2 pour décrire la propagation de la lumière dans une structure multi-couches.

Ce formalisme nous permet de décomposer en deux composantes le champ électrique $E(z)$ dans une couche (le champ se propageant suivant l'axe de croissance z des matériaux) : $E^+(z)$ se propage dans le sens de z positif et $E^-(z)$ dans le sens inverse de z .

$$E(z) = \begin{bmatrix} E^+(z) \\ E^-(z) \end{bmatrix} \quad (2.18)$$

Suivons le sens de propagation de la lumière et dirigeons nous d'un milieu 1 vers un milieu 2. On travaille alors avec deux champs, $E_1(z)$ et $E_2(z)$. Et comme dans l'équation 2.11 on peut décomposer ces champs en deux. On obtient alors $E_1^+(z)$, $E_1^-(z)$ et $E_2^+(z)$, $E_2^-(z)$. On peut les relier grâce à une matrice $\mathbb{S}$:

$$E(z) = \begin{bmatrix} E_1^+(z) \\ E_1^-(z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_2^+(z) \\ E_2^-(z) \end{bmatrix} \quad (2.19)$$

Cette matrice $\mathbb{S}$, qui lie le champ sortant au champ entrant, est obtenue en faisant le produit des différentes matrices interfaces et couches. Le système multi-couches est représenté sur la figure 2.9.

En prenant l'exemple d'une structure à N couches et en nommant respectivement $\mathbb{I}$ et $\mathbb{D}$ les matrices interfaces et couches, on obtient $\mathbb{S}$ de la manière suivante :

$$S = \mathbb{I}_0 \times \mathbb{D}_1 \times \mathbb{I}_1 \times \mathbb{D}_2 \times \mathbb{I}_2 \cdots \mathbb{D}_N \times \mathbb{I}_N \quad (2.20)$$

Ainsi pour utiliser la matrice $\mathbb{S}$, nous devons déterminer, les matrices interface et couche ($\mathbb{I}$ et $\mathbb{D}$).

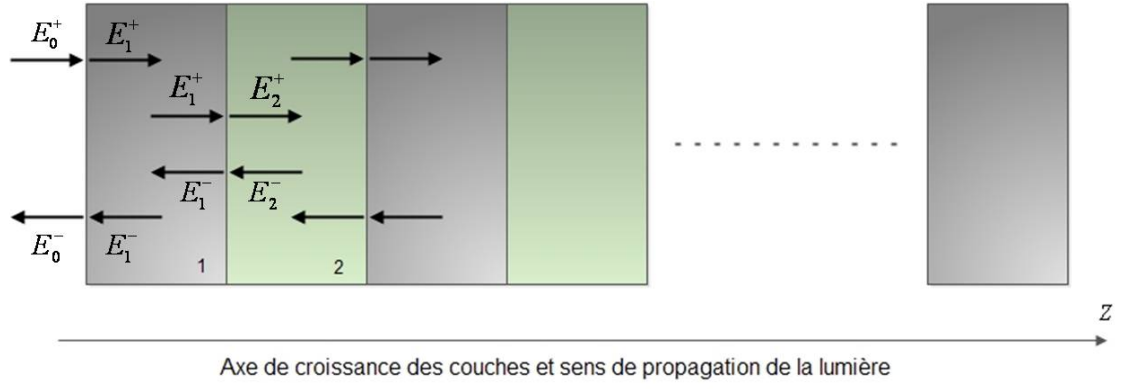


FIGURE 2.9 – Représentation du formalisme d’Azzam et Bashara dans une structure multicouche.

Matrice interface

Avec le même principe que l’équation 2.12, on lie le champ électrique entre un milieu 1 et un milieu 2. Pour cela on utilise une matrice $\mathbb{I}$ (interface) :

$$\begin{bmatrix} E_1^+(z) \\ E_1^-(z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_{11} & I_{12} \\ I_{21} & I_{22} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_2^+(z) \\ E_2^-(z) \end{bmatrix} \quad (2.21)$$

La figure 2.10 indique comment est repérée chaque composante du champ.



FIGURE 2.10 – représentation du champ électrique à une interface

Dans le cas de gauche, où la lumière incidente E_1^+ provient du milieu 1 on exprime les amplitudes des ondes résultantes :

$$\begin{cases} E_1^- = r_{12} E_1^+ \\ E_2^+ = t_{12} E_1^+ \\ E_2^- = 0 \end{cases} \quad (2.22)$$

Avec r_{12} et t_{12} les coefficients de Fresnel (déterminés dans les parties 2.3.2 et 2.3.3). En

faisant l'analogie avec l'équation 2.19, on peut identifier deux termes de la matrice $\mathbb{I}$:

$$\begin{cases} I_{11} = 1/t_{12} \\ I_{21} = r_{12}/t_{12} \end{cases} \quad (2.23)$$

Dans le cas de droite, où la lumière incidente E_2^- provient du milieu 2 on exprime les amplitudes des ondes résultantes :

$$\begin{cases} E_1^- = t_{21}E_2^- \\ E_1^+ = 0 \\ E_2^+ = r_{21}E_2^- \end{cases} \quad (2.24)$$

De la même façon, on peut déterminer les deux autres termes de la matrice $\mathbb{I}$:

$$\begin{cases} I_{12} = -r_{21}/t_{12} \\ I_{22} = (r_{12}(t_{12} - r_{21}))/t_{12} \end{cases} \quad (2.25)$$

Les coefficients de Fresnel vérifient $r_{12} = -r_{21}$ et $t_{12} = (1 - r_{12}^2)/t_{12}$. On trouve alors l'expression de la matrice interface :

$$\mathbb{I}_{12} = \frac{1}{t_{12}} \cdot \begin{bmatrix} 1 & r_{12} \\ r_{12} & 1 \end{bmatrix} \quad (2.26)$$

Matrice couche

Lors de la traversée d'une couche, une onde subit un déphasage du fait de l'indice de cette couche. Pour prendre en compte ce déphasage lors de la propagation, on utilise une matrice $\mathbb{D}$ telle que :

$$\begin{bmatrix} E_1^+(z) \\ E_1^-(z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_{11} & I_{12} \\ I_{21} & I_{22} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_2^+(z) \\ E_2^-(z) \end{bmatrix} \quad (2.27)$$

Le champ électrique s'écrit sous la forme $\vec{E} = \vec{E}_0 \exp i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{z})$ avec $\beta = \vec{k} \cdot \vec{z}$ le terme de déphasage.

$\beta = kd \cos \theta_t$ ou encore :

$$\beta = \frac{2\pi}{\lambda_0} N d \cos \theta_t \quad (2.28)$$

Et la matrice couche est de la forme :

$$\mathbb{D} = \begin{bmatrix} e^{j\beta} & 0 \\ 0 & e^{-j\beta} \end{bmatrix} \quad (2.29)$$

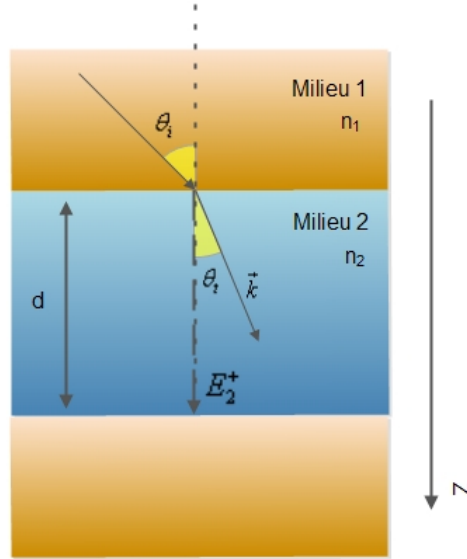


FIGURE 2.11 – Représentation du formalisme d’Azzam et Bashara dans une structures multi-couches

Matrice S et coefficients de Fresnel

En reprenant l’équation 2.12 et dans le cas où le milieu de sortie de l’onde (milieu 2) est semi-infini (E_2^-), on exprime le champ sortant en fonction du champ entrant :

$$\begin{bmatrix} E_1^+(z) \\ E_1^-(z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_2^+(z) \\ 0 \end{bmatrix} \Rightarrow \begin{aligned} E_1^+ &= S_{11}E_2^+ \\ E_1^- &= S_{21}E_2^+ \end{aligned} \quad (2.30)$$

On peut alors déterminer les coefficients de Fresnel en amplitude (r, t) et en intensité (module au carré) (R, T) :

$$\begin{aligned} r &= \frac{E_1^-}{E_1^+} = \frac{S_{21}}{S_{11}} \\ t &= \frac{E_2^+}{E_1^+} = \frac{1}{S_{11}} \end{aligned} \quad (2.31)$$

$$\begin{aligned} R &= rr^* = |r|^2 = \left| \frac{S_{21}}{S_{11}} \right|^2 \\ T &= tt^* = |t|^2 = \left| \frac{1}{S_{11}} \right|^2 \end{aligned} \quad (2.32)$$

2.5 Micro-photoluminescence

La photoluminescence est une méthode de spectroscopie qui permet l’étude de la lumière émise par un matériau. C’est une technique utilisée dans de nombreux domaines. En biologie, cette technique, généralement basée sur l’utilisation de lanthanides, donne des informations sur les tissus vivants. Il est notamment possible de suivre la propagation d’un médicament dans l’organisme pour mieux cibler son impact. L’étude de la lumière émise par un corps est donc une méthode puissante pour les études physiques.

Dans le cas de l’étude des semi-conducteurs, la photoluminescence consiste à exciter le matériau à l’aide d’une source lumineuse et à étudier les photons qui sont ré-émis. Si la réflectivité

donne accès aux propriétés intrinsèques des matériaux, la photoluminescence renseigne sur les propriétés intrinsèques et principalement extrinsèques. On aura alors des informations sur les défauts et les impuretés du matériau. On utilise une source lumineuse d'énergie supérieure à l'énergie de bande interdite. De par l'absorption du matériau, une certaine fraction des électrons de la bande de valence va migrer dans la bande de conduction (photo-excitation). L'électron se thermalise et perd de l'énergie en émettant un(des) phonon(s) et il atteint le bas de la bande de conduction tandis que le trou atteint le haut de la bande de valence (thermalisation). Après un temps relatif au matériau, l'électron retourne dans la bande de valence (recombinaison).

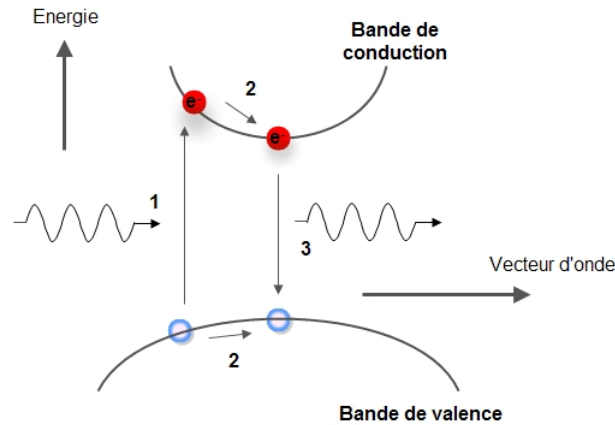


FIGURE 2.12 – Représentation du processus de photoluminescence. ① Photo-excitation, ② Thermalisation, ③ Recombinaison

Il existe deux types de recombinaison. Quand la perte d'énergie est liée à l'émission d'un photon, on l'appelle "radiative", elle donne naissance à la photoluminescence. La quantité d'énergie perdue nous renseigne sur la nature de l'émetteur. La figure 2.13 montre un spectre de photoluminescence de ZnO présentant de nombreuses transitions excitoniques [59].

A basse température la recombinaison des excitons liés à des impuretés (donneurs) domine le spectre d'émission alors qu'à haute température les excitons libres sont révélés. On peut observer jusqu'à 11 recombinaisons excitoniques liées à des donneurs ou accepteurs neutres [89] [90] [41] [73] [74]. Dans le ZnO massif les excitons libres sont observés à 3,377 eV à 5 K. L'émission à 3,367 eV est généralement attribuée à des excitons liés à des donneurs ionisés [73] [63] alors que les excitons liés à des donneurs neutres émettent entre 3,3628 et 3,359 eV. Des expériences de magnéto-photoluminescence attribuent toutes les recombinaisons de I_5 à I_{10} à des excitons liés à des accepteurs [34]. A l'inverse d'autres études expliquent que les raies I_4 jusqu'à I_8 sont dues à des excitons liés à des donneurs neutres [58]. Toutes les raies d'émission sont donc soumises à controverse et de façon simple on peut résumer ces émissions à des excitons liés aux impuretés du cristal. Les raies TES (*two electron satellite*) correspondent à une désexcitation "non complète" des excitons liés et peuvent aider à déterminer l'énergie de liaison des donneurs [63]. Les raies DAP (*donor acceptor pair*) sont des émissions liées à une paire donneur-accepteur.

Nous nous concentrerons particulièrement sur les excitons libres (*FX*) et liés (*BE*) dont les

énergies de recombinaison sont présentées dans l'équation (2.33) :

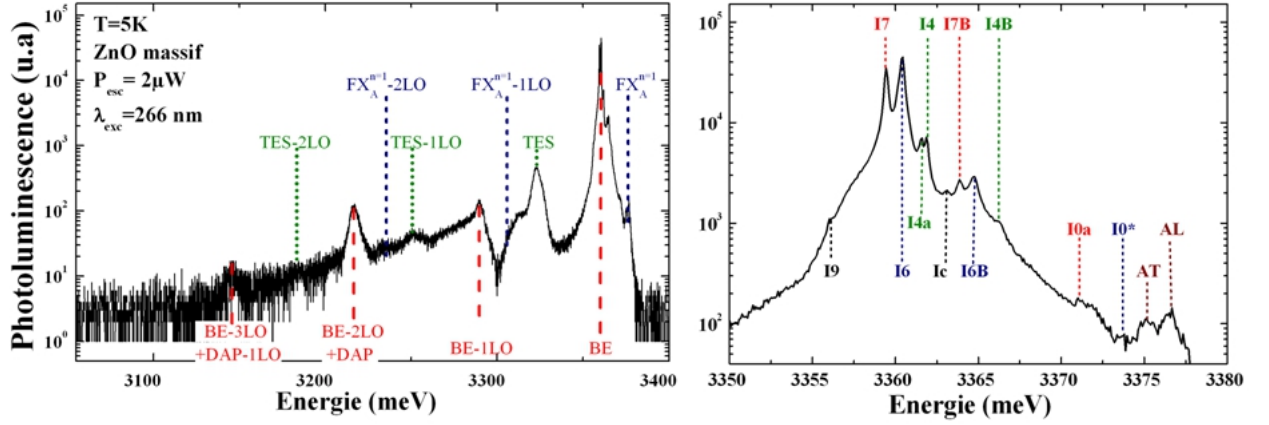


FIGURE 2.13 – Spectre de photoluminescence de ZnO [59]

$$\begin{aligned} E_x &= E_g - E_n \\ E_I &= E_g - E_n - E_l \end{aligned} \quad (2.33)$$

E_x est l'énergie de l'exciton, E_g l'énergie de bande interdite, E_n l'énergie de liaison de l'exciton et E_l l'énergie qui lie l'exciton à une impureté.

La seconde recombinaison est appelée "non radiative". L'électron perd de l'énergie par émission de phonons. L'émission non radiative abaisse le rendement de photoluminescence.

La figure 2.14 montre le montage expérimental utilisé. La source laser est celle décrite dans la première partie de ce chapitre.

On utilise un faisceau laser (130 fs, 76 MHz, 266 nm) de diamètre 1 cm. La puissance est contrôlée grâce à une densité linéaire. Le faisceau est mis en forme par un collimateur et la lame séparatrice réfléchit une partie du faisceau (70%) en direction de l'échantillon. 30% du faisceau incident est transmis et la mesure de puissance est vérifiée continuellement grâce à un puissance-mètre. L'objectif de microscope (x 20) focalise le faisceau (diamètre $\approx 2 \mu\text{m}$) sur l'échantillon placé dans le cryostat. L'objectif a une focale de 1 cm et une distance de travail de 4 mm. La différence entre ces deux valeurs vient du fait que l'objectif est constitué de plusieurs lentilles. La focale est donnée à partir d'un point dans le système alors que la distance de travail tient compte de l'encombrement et est donnée à partir de l'extrémité physique du système. L'ouverture angulaire de l'objectif permet de récolter l'émission de -23° à $+23^\circ$. Le diaphragme, en fonction de son ouverture sélectionne les angles d'émission récoltés. La lentille L2 focalise le signal envoyé à l'infini sur la fente d'entrée du spectromètre.

Imagerie de Fourier

Le montage d'imagerie dans l'espace de Fourier nous permet d'observer directement les photons émis par les polaritons de la branche basse en fonction de l'angle d'émission. La figure

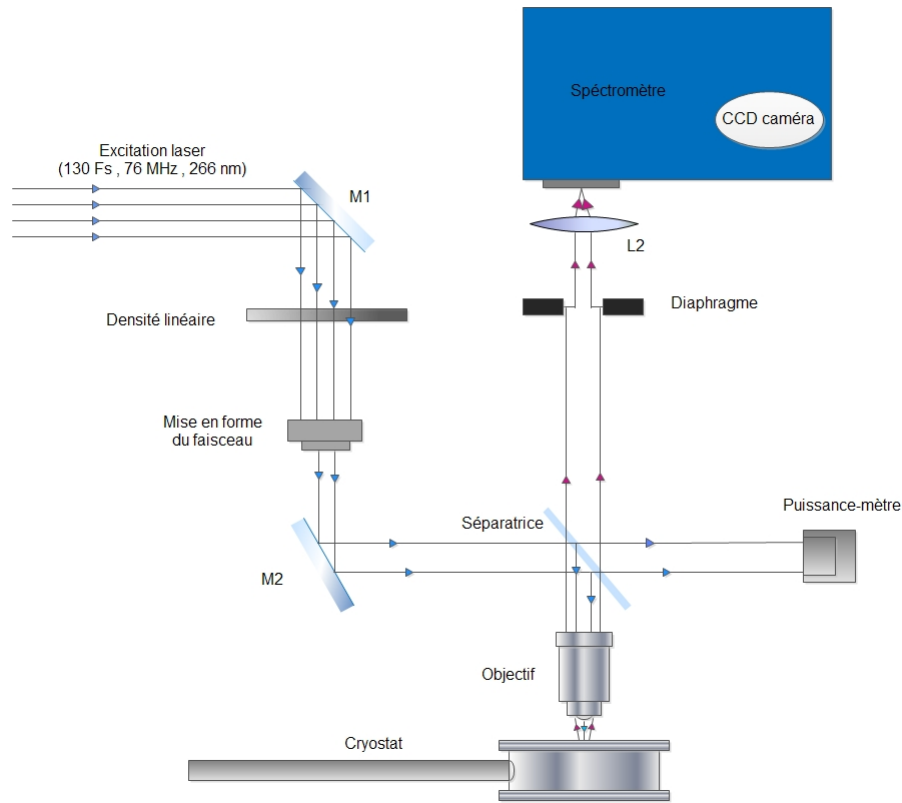


FIGURE 2.14 – Montage expérimental de micro-photoluminescence

2.15 schématise le montage optique. Tous les photons émis avec un angle α de l'échantillon, seront focalisés en un point du plan de Fourier. Ce plan est le 'plan image' de la lentille L1 et la lentille L2 permet d'imager ce plan sur la fente d'entrée du spectromètre. On obtient alors des images comme celle de la figure 2.16 où l'information en énergie est obtenue grâce à la dispersion du réseau.

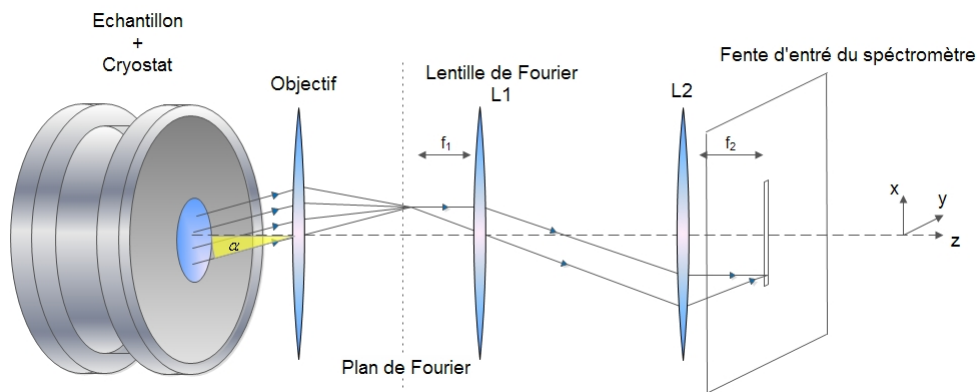


FIGURE 2.15 – Montage optique permettant une spectroscopie par imagerie de Fourier

L'ouverture numérique de l'objectif permet de récolter du signal sur 46° et la CCD associée au réseau 2400 traits du spectromètre permet d'observer un intervalle d'énergie de 79 meV par acquisition.

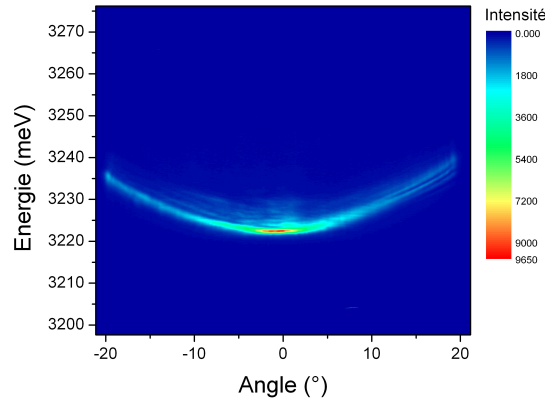


FIGURE 2.16 – Exemple de mesure en micro-photoluminescence dans l'espace réciproque à 300 K pour une excitation faible (microcavité ZnO).

Imagerie 2D

Nous l'avons vu précédemment, si on enlève la lentille L1 (figure 2.17), on enregistre un spectre classique de photoluminescence donnant l'intensité du signal en fonction de la longueur d'onde.

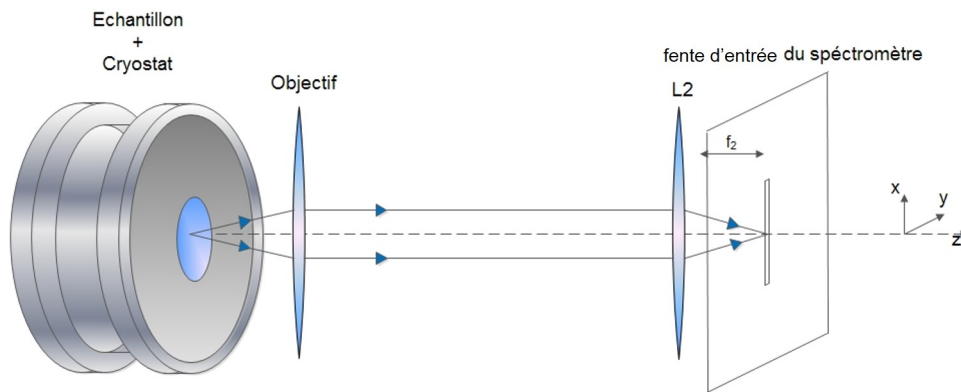


FIGURE 2.17 – Tracé optique de l'imagerie 2D

On utilise un capteur CCD de dimension $1024 \text{ pixels} \times 256 \text{ pixels}$. En fonctionnement classique, chaque colonne de cette matrice est associée à une énergie (1024 par acquisition), et l'intensité est intégrée sur les 256 pixels de la colonne.

En utilisant un mode appelé image, on utilise l'ordre zéro du réseau qui se comporte alors comme un miroir et l'image de la fente d'entrée est directement envoyée sur la caméra CCD. On peut dire que l'on enregistre une photo de l'émission de l'échantillon. On obtient une image comme présentée en figure 2.18 où l'axe des abscisses et des ordonnées représente une unité métrique.

L'ouverture maximale de la fente d'entrée du spectromètre limite notre observation de l'échantillon. Ainsi pour une ouverture de 2,5 mm, on ne peut utiliser que 85 colonnes de la CCD sur les 1024 disponibles.

L'objectif a une distance de travail de 10 mm et la focale de la lentille L2 est de 250 mm.

La zone observée par un pixel est définie par l'angle sous lequel on observe l'échantillon, ce qui revient à faire le rapport des focales :

$$\frac{f_2}{f_{\text{objectif}}} = \frac{250}{10} = 25 \quad (2.34)$$

La taille d'un pixel est de $26 \times 26 \mu m^2$, on observe alors une zone de $1,04 \mu m^2$ de l'échantillon par pixel.

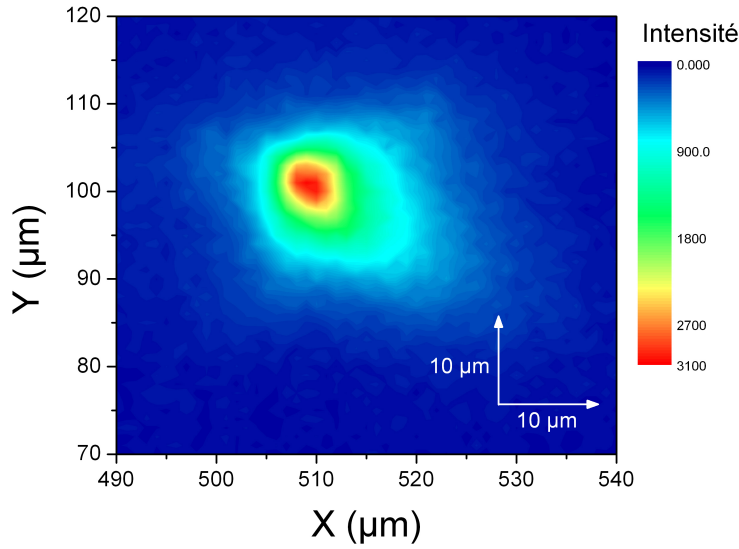


FIGURE 2.18 – Exemple de mesure en micro-photoluminescence 2D dans l'espace réel (microcavité ZnO).

L'ensemble des techniques expérimentales présentées dans ce chapitre ont été utilisées pour aider à la conception puis pour analyser les échantillons. Au cours de la fabrication des microcavités, plusieurs étapes de contrôle sont nécessaires. Ainsi nous utiliserons toutes ces techniques pour caractériser les miroirs utilisés ainsi que les demi-cavités avant bien entendu d'étudier les cavités complètes. En plus d'aider à prévoir les caractéristiques des cavités, les matrices de transfert et le modèle quasi-particule nous aideront à reproduire et à interpréter les résultats expérimentaux.

Chapitre 3

Microcavités hybrides en couplage fort et résultats

Sommaire

3.1	Cavité hybride	63
3.2	Réflectivité en angle	67
3.3	Étude en puissance	69
3.4	Cavité semi-hybride	73
3.5	Mise en évidence du couplage fort	75
3.6	Laser à polaritons	76
3.7	Etude du blue-shift	81
3.8	Conclusion	82

Ce chapitre est consacré à l'étude de deux structures.

Dans une première partie, nous présenterons la cavité nommée Z617. On abordera deux résultats majeurs obtenus sur cette cavité. Nous démontrerons l'état de couplage fort grâce aux mesures de réflectivité et de photoluminescence. Nous verrons qu'en dépit de quelques défauts sur certaines couches cristallines de la structure, les caractéristiques de la cavité prédites par les matrices de transfert, et notamment le facteur de qualité sont proches des valeurs expérimentales. Enfin, nous verrons que les polaritons lors de la relaxation peuvent rencontrer des difficultés à atteindre le niveau de plus basse énergie et forment un bottleneck qu'il est possible de casser.

Dans la deuxième partie on présentera la cavité nommée Z739. Cette structure a été élaborée à partir des résultats obtenus sur la cavité précédente et nous montrent que ses caractéristiques, compte tenu de nos conditions expérimentales, permettent d'obtenir plus facilement la condensation des polaritons et l'obtention d'une émission cohérente. Nous montrerons cette émission à basse température toujours dans le régime de couplage fort. A la fin de cette partie nous montrerons qu'il est possible de casser le couplage fort et d'obtenir une émission laser de type VCSEL.

Dans toutes ces études nous combinerons mesures expérimentales et calculs (obtenus avec les deux modèles présentés dans les chapitres 1 et 2) afin de valider les conclusions.

Ce travail est le fruit d'une collaboration entre plusieurs laboratoires qui ont tous des spécialités complémentaires. L'épitaxie des nitrures et des couches de ZnO a été réalisée au CRHEA (Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications) par l'équipe de Jesús Zúñiga-Pérez. Les DBR diélectriques ont été réalisés au LPN (Laboratoire de Photonique et de Nanostructures) par l'équipe de Sophie Bouchoule. Enfin les couches ont été étudiées par spectroscopie optique au LCC (Laboratoire Charles Coulomb) par l'équipe de Thierry Guillet et à l'Institut Pascal par l'équipe de Joël Leymarie.

3.1 Cavité hybride

La cavité Z617 est présentée sur la figure 3.1. Le ZnO est déposé par EJM (épitaxie par jets moléculaires, aussi appelé MBE) sur trois paires de nitrures $Al/AlGaN$. Le nombre de couches est volontairement réduit ; en effet, le but n'est pour l'instant pas d'obtenir un coefficient de réflexion important, mais de créer un support tampon qui permet d'obtenir une bonne qualité cristalline. La croissance de ZnO sur nitrure est bien maîtrisée par les épitaxieurs du CRHEA (Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications) avec lesquels nous avons collaboré de façon étroite.

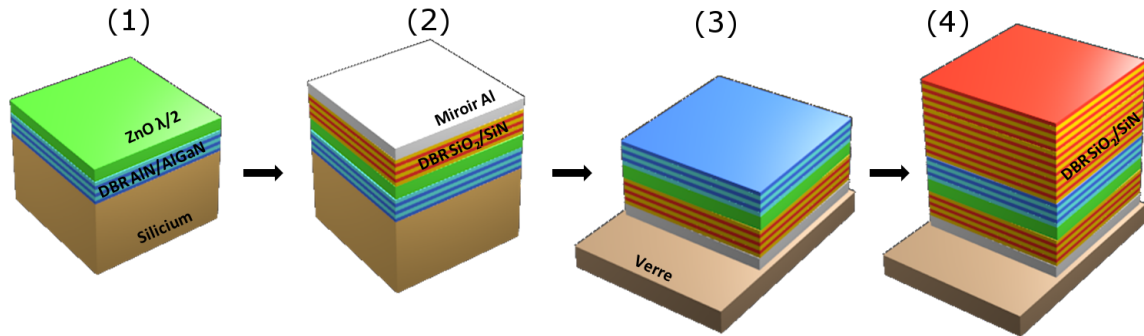


FIGURE 3.1 – Etapes de réalisation de la cavité Z617 : (1) ZnO ($\lambda/2$) sur nitrure, 3 paires $AlN/AlGaN$. (2) dépôt du miroir inférieur, 3,5 paires $SiO_2/SiN+Al$. (3) Retrait du substrat silicium. (4) On ferme la cavité par le miroir supérieur, 10 paires SiO_2/SiN .

Un DBR diélectrique (SiO_2/SiN) de trois paires et demi est ensuite déposé par PE-CVD (croissance en phase vapeur). Associé à une couche épaisse d'aluminium, il constituera le miroir inférieur de la cavité. En plus de réduire considérablement le temps de croissance, cette couche d'aluminium permet de limiter la longueur de pénétration du champ électrique dans le miroir inférieur et permet d'obtenir un éclatement de Rabi plus important.

L'étape suivante consiste à coller l'échantillon par collage anodique sur un substrat de verre et à retirer le substrat de silicium par attaque chimique. Cette méthode dite par voie humide utilise un mélange d'acide fluorhydrique, nitrique et acétique. Cette méthode est rapide et permet de retirer le silicium en quelques minutes, cependant elle n'est pas sélective et il faut faire attention à ne pas attaquer les nitrures qui eux aussi sont très sensibles à cette solution. On arrête alors le procédé avant le retrait complet du silicium et on termine par une gravure plasma, dite gravure par voie sèche. On observe au terme de cette étape la surface de l'échantillon et comme le montre la figure 3.2, les nitrures présentent des craquelures et certaines parties se décollent. Ceci est dû à la relaxation de l' $AlGaN$ après l'ablation du substrat.

A la fin de cette étape, des mesures de micro-photoluminescence ont montré que la couche de ZnO n'a pas été attaquée et qu'elle conserve entièrement sa qualité, tout comme les couches inférieures de nitrures.

Le substrat de verre permet de retourner l'échantillon et de compléter la cavité par un DBR diélectrique (SiO_2/SiN) de 10 paires. Le collage anodique du substrat de verre est un procédé de collage puissant qui utilise la formation de liaisons covalentes à partir d'anions d'oxygène O_2^- .

Le facteur de qualité théorique visé est de l'ordre de 1000. Cette valeur a été calculée à l'aide des matrices de transfert qui ne tient pas compte de l'élargissement photonique du aux défauts. Les craquelures créées lors du retrait du silicium vont donc abaisser localement cette valeur.

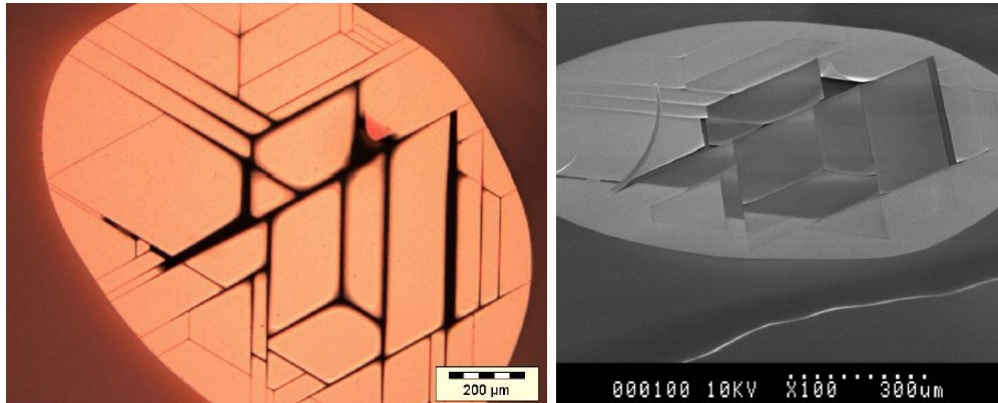


FIGURE 3.2 – Etude de la couche d'AlN après retrait du silicium. (A gauche) imagerie par microscope optique. (A droite) image SEM (microscopie électronique). Le silicium n'est pas retiré complètement et on remarque la présence de fissures dans les nitrures. Des traces de silicium restent visibles à l'intérieur des craquelures.

L'échantillon présente une grande inhomogénéité de surface comme le montre la figure 3.3 et on peut repérer plusieurs zones d'étude.

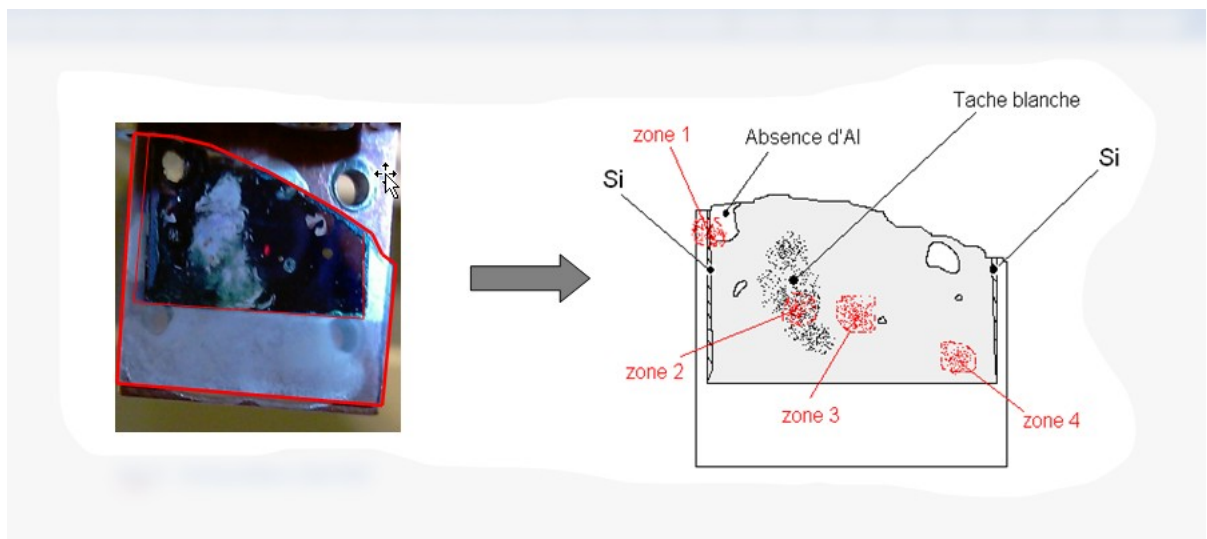


FIGURE 3.3 – Echantillon Z617

- La zone 1 présente trois parties différentes : une partie dégradée où il n'y a plus d'Al,

une partie non grav e (o  le silicium est apparent) et une partie o  la cavit  est compl te.

- La zone 2 est "granuleuse" et pr sente des traces de Si.
- La zone 3 pr sente de nombreuses dislocations.
- La zone 4 semble la moins craqu e.

Toutes ces zones ont  t  observ es par microscope optique avec un faible grossissement qui suffit   r v ler les diff rences entre chaque zone.

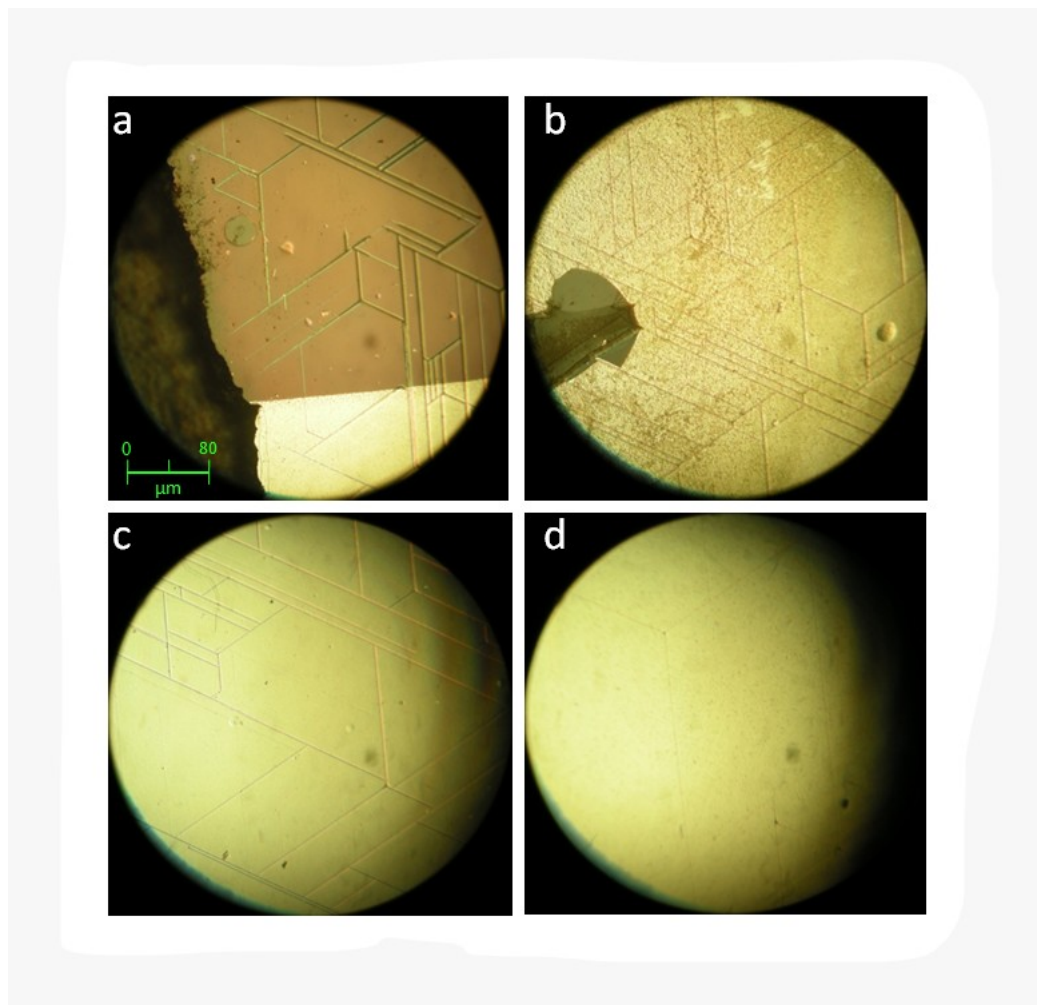


FIGURE 3.4 – Images de microscopie optique pour diff rentes zones sur l' chantillon Z617. Grossissement $\times 10$. (a) zone 1. (b) zone 2. (c) zone 3. (d) zone 4.

L'inhomog n it  de la couche sup rieure du nitrure emp che d'obtenir des mesures exploitables avec un spot d'excitation macroscopique de $300\text{ }\mu\text{m}$   $20\text{ }\mu\text{m}$ de diam tre. Les d fauts observ s sur la couche de nitrure sont de cet ordre de grandeur et affectent les param tres de la cavit . En effet, suivant la qualit  et l' paisseur des couches, le mode optique de la cavit  peut changer sensiblement d' nergie. Une  tude de macro-r flectivit  montre une

grande variation de la position du mode de cavité en fonction de la position sur l'échantillon (figure 3.5). L'utilisation d'un objectif de microscope nous permet de travailler avec un spot de $2\ \mu\text{m}$ de diamètre environ et les études à cette échelle nous permettent de nous affranchir des problèmes d'inhomogénéité.

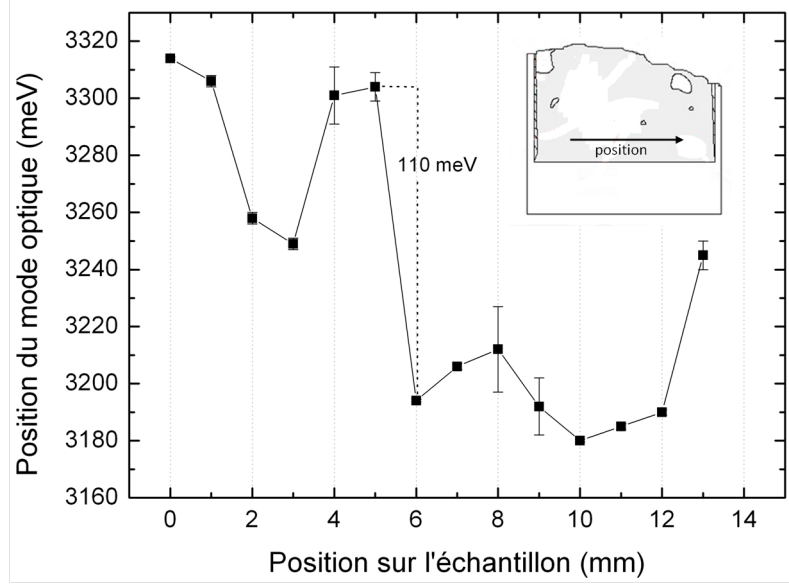


FIGURE 3.5 – Position en énergie du mode optique en fonction de la position sur l'échantillon. Mesures de macro-photoluminescences réalisée avec un spot d'excitation de $300\ \mu\text{m}$. Mise en évidence du gradient d'épaisseur.

Chaque zone présente un facteur de qualité différent, or le temps de vie des photons de cavité est directement lié à cette valeur par l'équation suivante :

$$Q = 2\pi\nu_0\tau_{\text{photon}} \quad \Rightarrow \quad \tau_{\text{photon}} = \frac{Q\hbar}{E} \quad (3.1)$$

Avec $2\pi\nu_0 = E/\hbar$

Ce facteur varie de 150 (avec un spot de $300\ \mu\text{m}$) à plus de 600 (spot de $2\ \mu\text{m}$) en fonction des zones étudiées sur l'échantillon. On atteint donc plus de 60% de la valeur théorique estimée, ce qui reste correct au vu de la qualité du DBR nitrure. La zone 3 présente les valeurs les plus importantes ($Q=650$, figure 3.6) et nous concentrerons nos mesures sur cette zone.

Le temps de vie des photons de cavité dans cette zone est de 0,1 à 0,2 ps.

L'objectif visé était une cavité avec une bande passante très large, un mode optique centré autour de 3262 meV et un facteur de qualité proche de 1000. Les figures 3.6 et 3.7 nous montrent que les valeurs expérimentales sont proches des valeurs attendues, même si le facteur de qualité reste en deçà des objectifs. On peut alors conclure que le design ainsi que la composition de la microcavité sont bons, même si la qualité cristalline n'est pas parfaite. Les figures ci-dessous montrent les caractéristiques de la cavité mesurées en micro-photoluminescence et micro-réflexivité. Des cartographies de l'échantillon montrent que ces caractéristiques varient fortement à l'échelle du micron (figure 3.8).

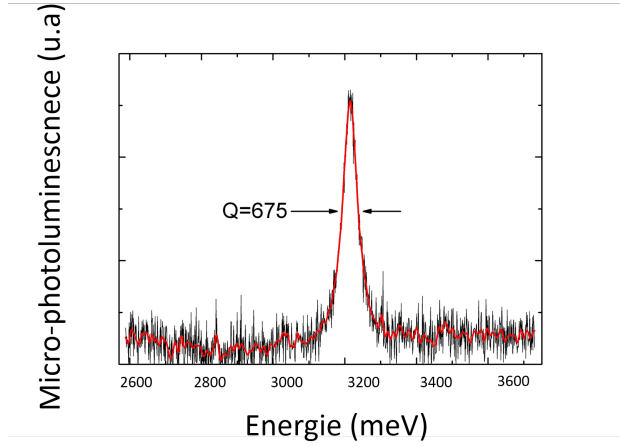


FIGURE 3.6 – Mesure de micro-photoluminescence dans la zone 3 de l'échantillon Z617. $\tau_{\text{photon}} = 0,13 \text{ ps}$

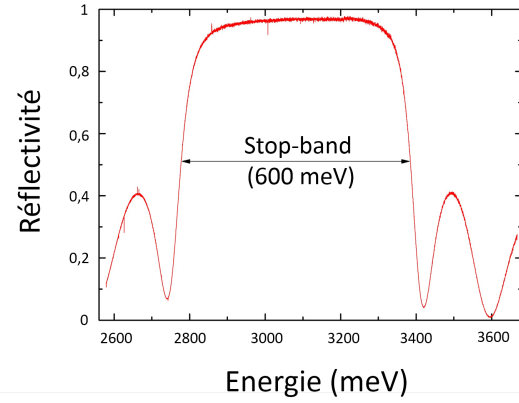


FIGURE 3.7 – Mesure de micro-réflectivité dans la zone 3 de l'échantillon (spot de $2 \mu\text{m}$ de diamètre)

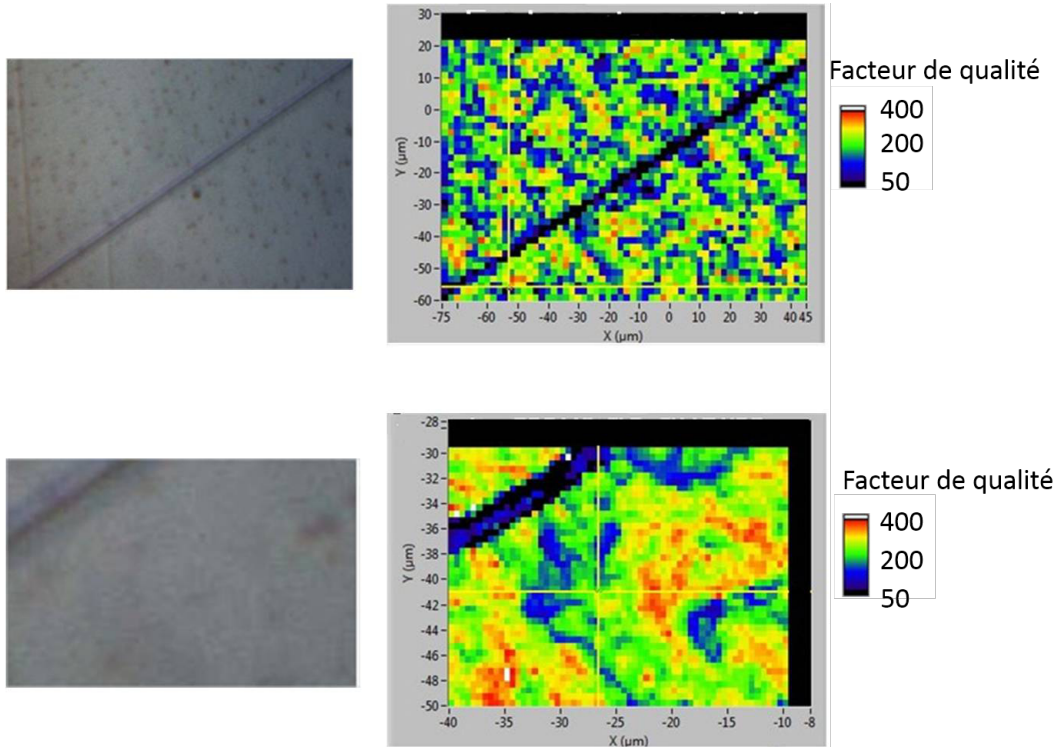


FIGURE 3.8 – Cartographie du facteur de qualité pour deux zones voisines de la zone 3. Mesures réalisées au LCC.

3.2 Réflectivité en angle

Le mode photonique de cavité est centré autour des excitons et le gradient d'épaisseur du ZnO introduit lors de l'épitaxie nous permet de mettre en évidence le couplage fort. On utilise à 300 K le montage de réflectivité en angle présenté dans le chapitre 2.

Quelle que soit la polarisation (TE à gauche et TM à droite), les résultats sont comparables, comme le montre la figure 3.9. Les miroirs sont très réfléchissants et la couche de $\lambda/2$

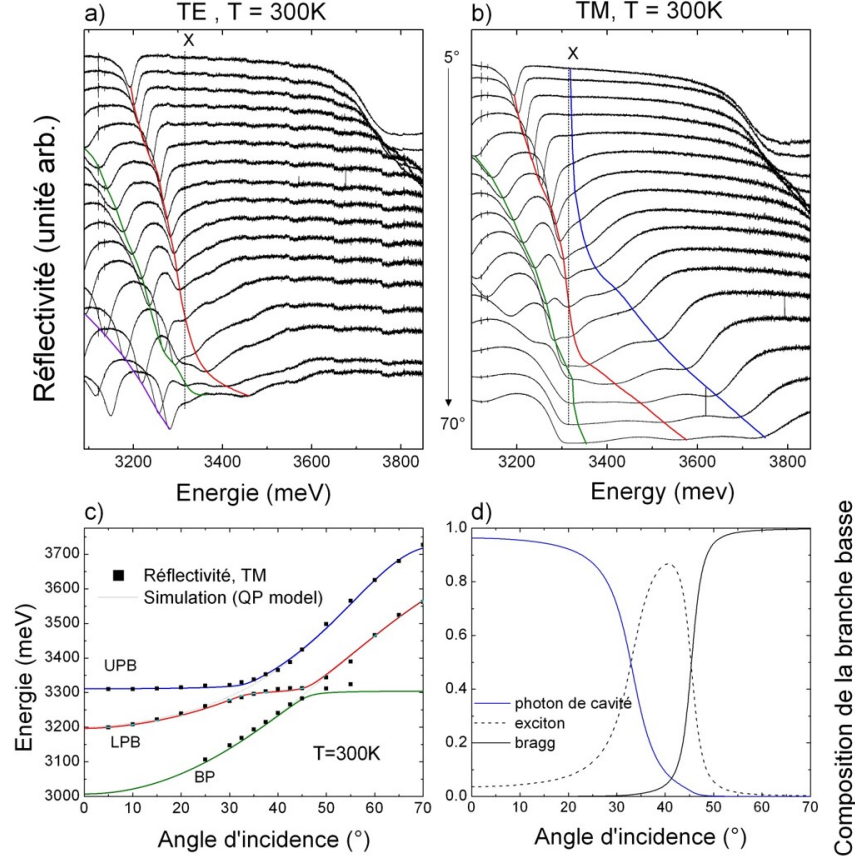


FIGURE 3.9 – Mesures de macro-réflectivité résolues en angle. a),b) montrent les mesures pour les polarisations TE et TM. On repère la UPB en bleu, la LPB en rouge et les modes de Bragg en vert et violet. c) On utilise le modèle quasi particule pour retrouver les mesures du panneau b). d) Composition de la branche basse en fonction de l'angle d'incidence. Pour des angles inférieurs à 30° la LPB est loin des excitons et le poids photonique est fort. Entre 30° et 50° la LPB est très excitonique. Après 50° le premier mode de Bragg repousse le mode couplé et la LPB suit la dispersion du mode de Bragg

de ZnO est très absorbante, c'est pourquoi la branche haute (UPB) est difficile à repérer. Elle n'est visible qu'en polarisation TM et nous nous pencherons donc plus sur le panneau b) de la figure 3.9. Le mode polaritonique bas (LPB) en rouge est clairement affecté par la présence des excitons ($E_x \approx 3,31\text{eV}$ à 300K) et tend vers une asymptote en énergie quand l'angle d'incidence augmente. Cela met en évidence le fait que le mode photonique n'existe plus dans la cavité. Il est couplé aux excitons et ne présente plus la même dispersion. En dehors de la stop-band, la réflectivité des miroirs n'est pas nulle (figure 3.7) et présente des "rebonds" et des minimas. Ces derniers correspondent à des modes photoniques très larges appelés mode de Bragg ou modes de fuite (BP), ou le temps de vie des photons est très court dû à un facteur de qualité très bas. Les photons ont alors tendance à "fuir" la cavité par ces modes [75]. Cependant, comme le mode de cavité, ils se couplent avec les excitons (courbes verte et violette) et interagissent avec la LPB qui est alors repoussée.

Dans le panneau c), les positions de chaque mode sont reportées. Le modèle quasi-particule permet de modéliser ces résultats (traits pleins) et de donner (panneau d)) la part de chaque composante qui constitue la LPB en fonction de l'angle.

On mesure un dédoublement de Rabi de $45 \text{ meV} \pm 2 \text{ meV}$. Cette valeur est légèrement inférieure à celle attendue dans une cavité $\text{ZnO } \lambda/2$. Cela s'explique par l'amplitude du champ dans la cavité qui n'est pas maximum dans la couche de ZnO (figure 3.10).

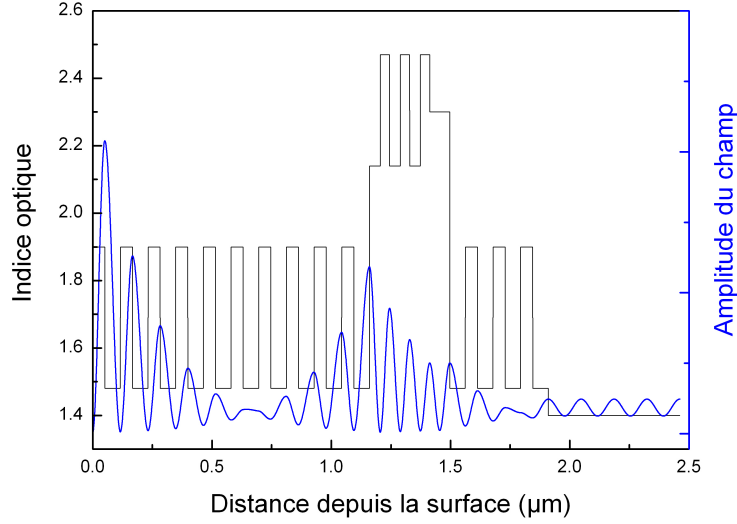


FIGURE 3.10 – Répartition du champ électrique dans la cavité Z617. (Noir) profil d'indice de la cavité Z617. (Bleu) allure du module au carré du champ électrique à l'intérieur de la cavité.

Les mêmes mesures ont été faites à basse température (5K). De la même manière on observe un anticroisement entre les branches qui montre bien l'état de couplage fort. La valeur de l'éclatement de Rabi mesurée est légèrement supérieure à celle mesurée à 300K ($55 \text{ meV} \pm 4 \text{ meV}$). Cela s'explique simplement par la diminution de l'élargissement des excitons (Γ_{exc}) qui se rapproche de celui du mode optique (Γ_{ph})(se reporter à l'équation 1.63).

3.3 Étude en puissance

Avec un dédoublement de Rabi de l'ordre de 50 meV , et un temps de vie des particules de $0,13 \text{ ps}$, on se retrouve dans des conditions acceptables pour observer l'émission cohérente de lumière [43].

Les mesures de photoluminescence effectuées avec un spot de $300 \mu\text{m}$ sont représentées figure 3.11. A faible puissance d'excitation (16 W/cm^2) le maximum de l'émission se situe autour de 15° . L'augmentation de la puissance à 40 W/cm^2 diminue l'importance de ce maximum sans changer sa position. En revanche à 170 W/cm^2 l'émission est maximale à 0° .

Si la relaxation est complète, la majorité des particules se regroupent en bas de la LPB et l'émission a lieu pour un angle de 0° . Si la relaxation n'est pas parfaite, l'accumulation de particules se produit en un point appelé "bottleneck" et le maximum d'émission lumineuse

a lieu pour un angle supérieur à 0° [11][7].

C'est ce que nous observons à faible puissance d'excitation en raison d'un temps de vie des particules faible et d'un désaccord δ trop négatif. Pour permettre aux particules de relaxer plus facilement, il faut augmenter la probabilité de collisions et donc injecter plus de particules en augmentant la puissance d'excitation. Cependant la densité doit rester inférieure à la densité de Mott pour conserver les conditions du couplage fort. Cette densité représente la limite pour laquelle les excitons sont conservés. En effet quand la densité d'exciton est trop importante, les interactions entre ces particules deviennent trop importantes.

A 16 W/cm^2 , la relaxation est incomplète, l'augmentation à 40 W/cm^2 ne suffit pas à "casser" l'effet "bottleneck" et la relaxation n'est complète qu'avec une puissance d'excitation de 170 W/cm^2 .

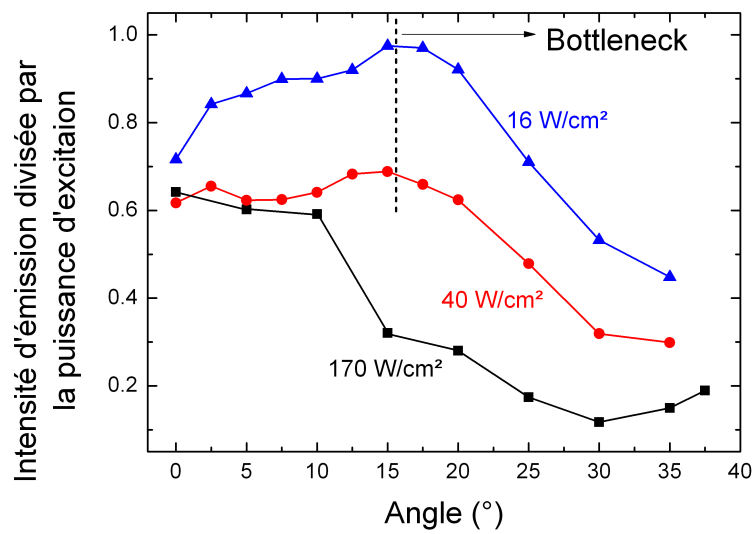


FIGURE 3.11 – Mesures de photoluminescence à 70 K résolues en angle (spot de $300 \mu\text{m}$). Pour trois puissances d'excitation, l'intensité de l'émission est tracée en fonction de l'angle.

Si les caractéristiques de la cavité sont comparables à celles des études menées sur GaN on peut se demander pourquoi ici l'effet laser à polaritons n'est pas observé.

On peut en fait donner deux raisons pour répondre à cette question. La première découle de l'observation de la figure 3.11. Chaque courbe est normalisée par l'intensité d'excitation. L'aire sous la courbe devrait donc être la même pour les trois séries de mesures, or ce n'est pas le cas. Plus l'intensité d'excitation est forte, plus l'aire sous la courbe diminue. Cela signifie que l'injection de particules dans la LPB est de moins en moins efficace quand le pompage augmente. Il y a donc une "fuite" dans le mode de Bragg évoqué dans le paragraphe précédent. Cette fuite est visible sur les mesures de la figure 3.12 où l'on observe l'émission pour les angles allant de 0° à 40° .

La deuxième et certainement la plus importante vient du problème évoqué en début de chapitre. La surface étudiée avec un spot macroscopique ($300 \mu\text{m}$) est trop inhomogène, le facteur de qualité est alors diminué par les différents défauts des couches. On utilise alors un objectif de microscope qui permet de focaliser la zone d'excitation sur une région assez

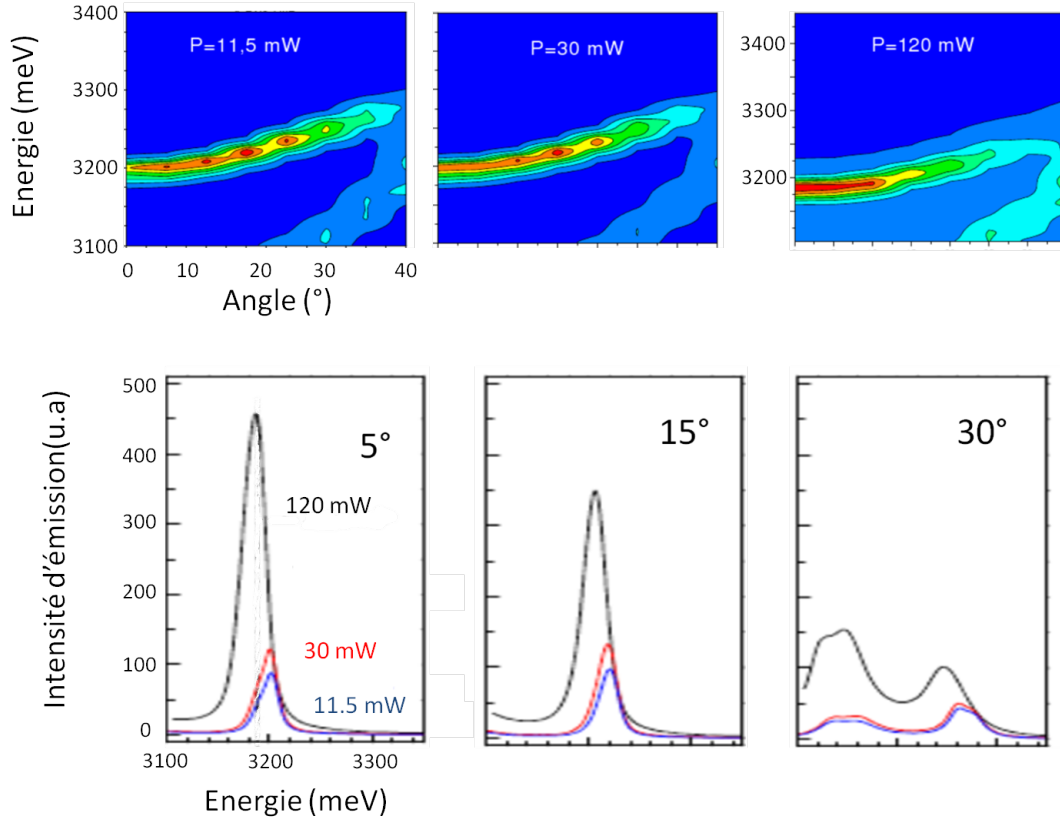


FIGURE 3.12 – Mesures de spectroscopie résolue en angle. Plus l'excitation est importante, plus les fuites dans le mode de Bragg augmentent. Mesures effectuées au laboratoire L2C à Montpellier.

petite pour s'affranchir de ce problème. On utilise le montage de micro-photoluminescence résolue en angle dans la configuration "imagerie de Fourier". L'avantage de cette méthode est d'avoir accès directement à la dispersion angulaire en fonction de l'énergie en une seule acquisition provenant d'une zone restreinte et donc homogène. La figure 3.13 montre pour deux excitations différentes (faible et forte), la dispersion de la branche basse polaritonique. Dans les deux cas, la relaxation est complète et on ne retrouve plus de bottleneck autour de 15° .

3.3.1 Conclusion

Cette cavité est la première cavité planaire utilisant deux miroirs diélectriques montrant le couplage fort jusqu'à température ambiante. Ce nouveau processus d'épitaxie utilise la sélectivité de gravure entre le silicium et le nitrure et permet d'obtenir un facteur de qualité suffisant pour obtenir une relaxation des polaritons jusqu'au niveau fondamental. Elle permet aussi de conserver une couche de ZnO de haute qualité optique. Les études macroscopiques ont révélé que le facteur de qualité varie selon la position et qu'il est possible de s'en affranchir en restreignant la surface étudiée. Enfin on montre que sous faible excitation et pour une région de plusieurs micromètres, la relaxation des polaritons est efficace jusqu'à $k = 0$ même pour une excitation très faible.

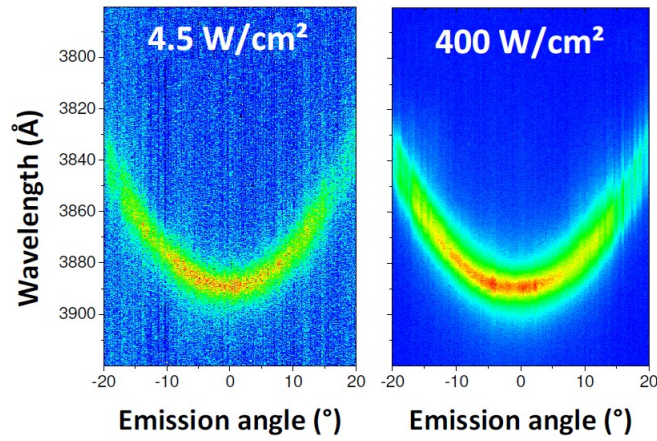


FIGURE 3.13 – Imagerie de Fourier à 70 K montrant la relaxation des particules sans bottleneck sous très faible et forte excitation.

Les bicouches AlN/AlGa_N absorbent le pompage à 266 nm et nous empêchent d'atteindre une densité d'excitation suffisante pour observer le laser à polaritons. La solution est de diminuer l'énergie d'excitation afin de pomper au dessus de la stop-band tout en restant en dessous de l'absorption de l'AlGa_N. Cependant, pour des raisons expérimentales, nous n'avons pas accès à cette gamme de longueur d'onde.

Dans l'étude qui suit, nous présentons une cavité toute hybride qui utilise un nombre important de bicouches AlN/AlGa_N pour le DBR inférieur. Ce miroir de Bragg améliore les caractéristiques optiques de la cavité et le DBR diélectrique n'absorbe pas l'excitation.

3.4 Cavité semi-hybride

La structure de la cavité Z739 est schématisée sur la figure 3.14. 13 paires d'un DBR nitrure AlN/AlGaN ont été déposées sur un substrat Si. Contrairement à la cavité Z617, ce miroir ne sera pas complété par un second miroir durant la fabrication de la cavité, c'est pourquoi on cherche à obtenir directement le meilleur coefficient de réflexion possible. L'utilisation de 13 paires de nitrures (AlN/AlGaN) permet d'obtenir un coefficient de réflexion simulé $> 98\%$. Au delà de 13 paires, la croissance ne permet pas de garantir une qualité optimum des nitrures. Une couche épaisse de ZnO est déposée par EJM. Le temps d'épitaxie est ajusté pour obtenir une épaisseur nominale de 200 nm. La cavité est enfin complétée par un DBR diélectrique HfO_2/SiO_2 de 10 paires obtenues par Ion-beam-assisted electron-beam vacuum evaporation. On remarque que ce dernier miroir est utilisé en lieu et place du miroir précédemment utilisé pour la cavité Z 617 (DBR SiO_2/SiN). Il présente un contraste d'indice plus fort qui améliore la réflectivité et diminue la pénétration du champ dans le DBR.

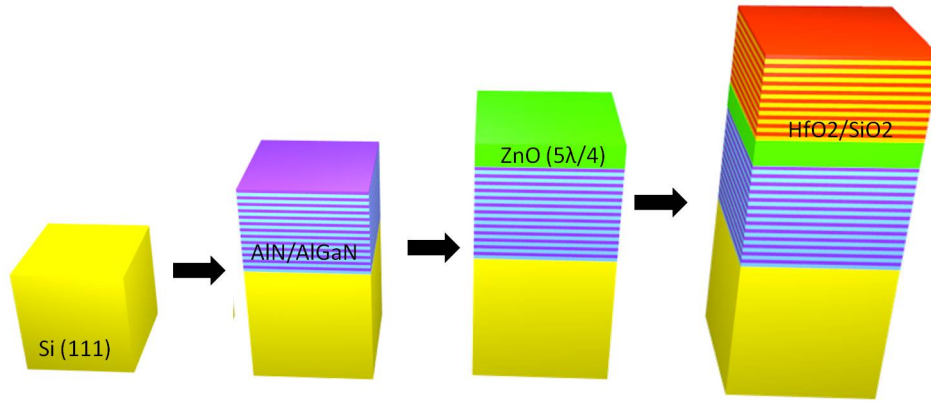


FIGURE 3.14 – Etapes de réalisation de la cavité Z739. (1) On dépose 13 paires d'AlN/AlGaN sur un substrat Si orienté (111). (2) ZnO $5\lambda/4$ sur nitrures. (3) la cavité est complétée par un DBR diélectrique 10 paires HfO_2/SiO_2

La fabrication de cette cavité est plus simple que celle de la cavité Z617. Le but est toujours d'optimiser le temps de croissance tout en améliorant les caractéristiques optiques de la cavité. Avec un facteur de qualité attendu de 700 le temps de vie des photons dans la cavité est comparable à celui de la cavité Z617 (0,12 ps). Cependant, comme nous l'avons vu à la fin du chapitre 1, un deuxième paramètre joue un rôle très important pour obtenir la relaxation des polaritons : le dédoublement de Rabi. En adoptant cette nouvelle structure, nous avons augmenté l'épaisseur de la couche de ZnO, cela augmente le dédoublement de Rabi. Si pour la cavité précédente nous avions $\Omega = 50$ meV, cette cavité devrait avoir un dédoublement deux à trois fois plus important. Rappelons qu'un dédoublement de Rabi important permet d'avoir un piège profond à $k_{||} = 0$ tout en gardant une composante excitonique forte (favorisant la relaxation).

La figure 3.15 montre le substrat sur lequel a été réalisé l'épitaxie. Ce support d'un rayon de 2 pouces est fractionné en plusieurs échantillons qui vont permettre plusieurs études en

parallèles. Les études expérimentales ont été réalisées sur l'échantillon cerclé en rouge sur la figure 3.15. La figure 3.16 montre les calculs réalisés avec le modèle des matrices de transfert des spectres de réflectivité pour différentes épaisseurs de couche active et différents angles d'incidence. Ces calculs ont servi au "design" de la structure Z739.

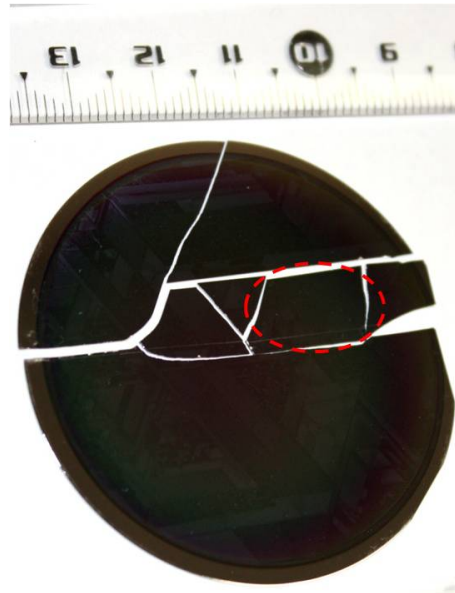


FIGURE 3.15 – Photographie du wafer après épitaxie. Le morceau entouré en rouge est utilisé pour les mesures expérimentales

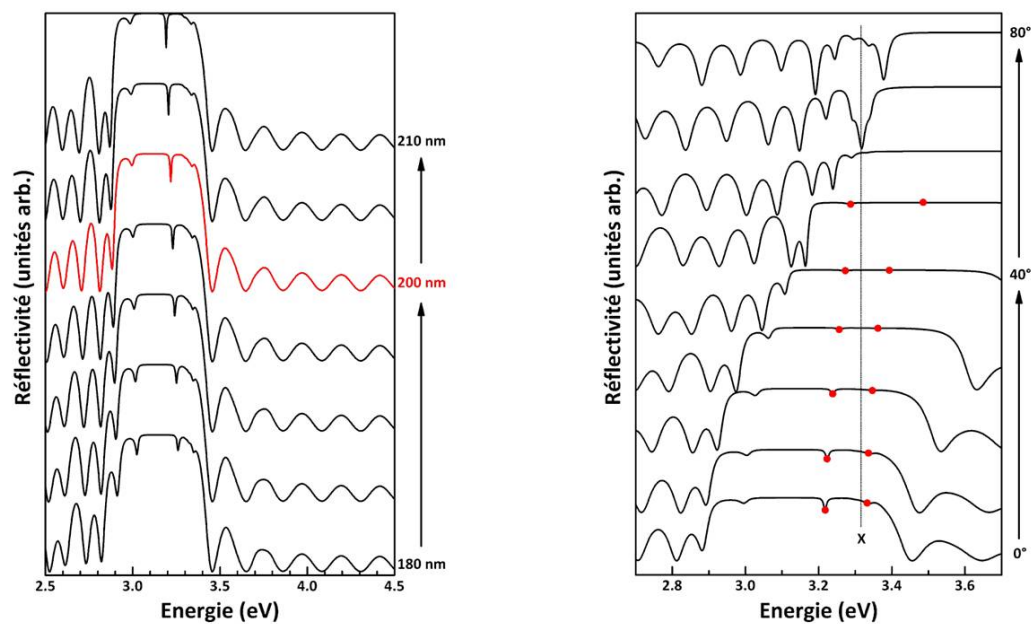


FIGURE 3.16 – Simulations de la structure Z739 utilisant le modèle des matrices de transfert. Variation d'épaisseur de la couche active sous incidence normale et variation de l'angle d'incidence pour une épaisseur nominale de 200 nm.

3.5 Mise en évidence du couplage fort

Les premières mesures sur cette cavité ont été réalisées en macro-réflexivité avec un spot de $300\ \mu\text{m}$ de diamètre. Comme pour la cavité Z617, nous avons constaté que l'homogénéité des couches ne permet pas de travailler sur une surface aussi grande. Toutes les mesures suivantes ont donc été réalisées à l'aide de l'objectif de microscope présenté à la fin de la partie 2.5, le diamètre du spot est alors de $2\ \mu\text{m}$.

Comme le montre la figure 3.17, le facteur de qualité dépend de la zone étudiée, mais atteint par endroits la valeur de 650 qui est très proche de la valeur issue de la simulation (700). Le detuning est aussi variable d'une zone à l'autre de $\delta = 0$ à $\delta = -80\ \text{meV}$.

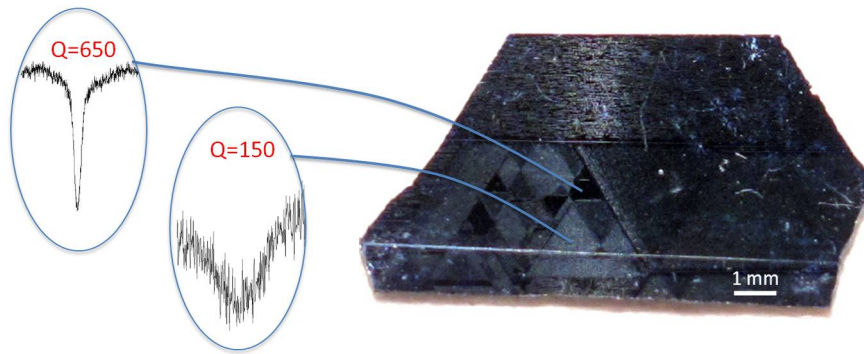


FIGURE 3.17 – La cavité est inhomogène et nous oblige à travailler avec un spot d'excitation de l'ordre de $2\ \mu\text{m}$ de diamètre pour avoir un facteur de qualité élevé.

Sur la figure 3.18 a) et b) sont présentés les spectres de réflectivité en angle pour les modes TE et TM à 300 K dans une zone où le detuning négatif est important $\delta = -65\ \text{meV}$. L'excitation a été réalisée avec un spot de $0,5\ \text{cm}$ de diamètre. Nous pouvons identifier clairement la LPB et les modes de Bragg. L'épaisseur de la couche de ZnO (valeur nominale 200 nm) rend impossible l'observation de la branche haute sur les mesures de réflectivité. On ne peut donc pas observer l'anti-croisement. Cependant, la courbure de la branche basse est caractéristique du couplage fort.

Des simulations ont été réalisées avec les modèles des matrices de transfert et le modèle quasi-particules (figures 3.18 c) et d)). L'ajustement calcul-expérience est fait grâce aux mesures sur la LPB et le mode de Bragg. Ensuite, le modèle des matrices de transfert nous permet en ne prenant pas en compte l'absorption bande à bande de "révéler" la branche haute dans la simulation et d'estimer Ω , que nous ne pouvions pas mesurer directement. $\Omega = 120\ \text{meV}$ à 300 K et $125\ \text{meV}$ à 90 K.

La décomposition de la fonction d'onde de la LPB sur la base des modes non couplés (photon, exciton, mode de Bragg) nous indique l'évolution des poids photonique et excitonique en fonction de l'angle d'incidence (figure 3.18 d))

Pour des angles inférieurs à 30° la LPB est loin des excitons et le poids photonique est fort. Entre 30° et 50° le poids excitonique de la LPB est très important. Après 50° le premier mode de Bragg repousse le mode couplé et la LPB suit la dispersion du mode de Bragg.

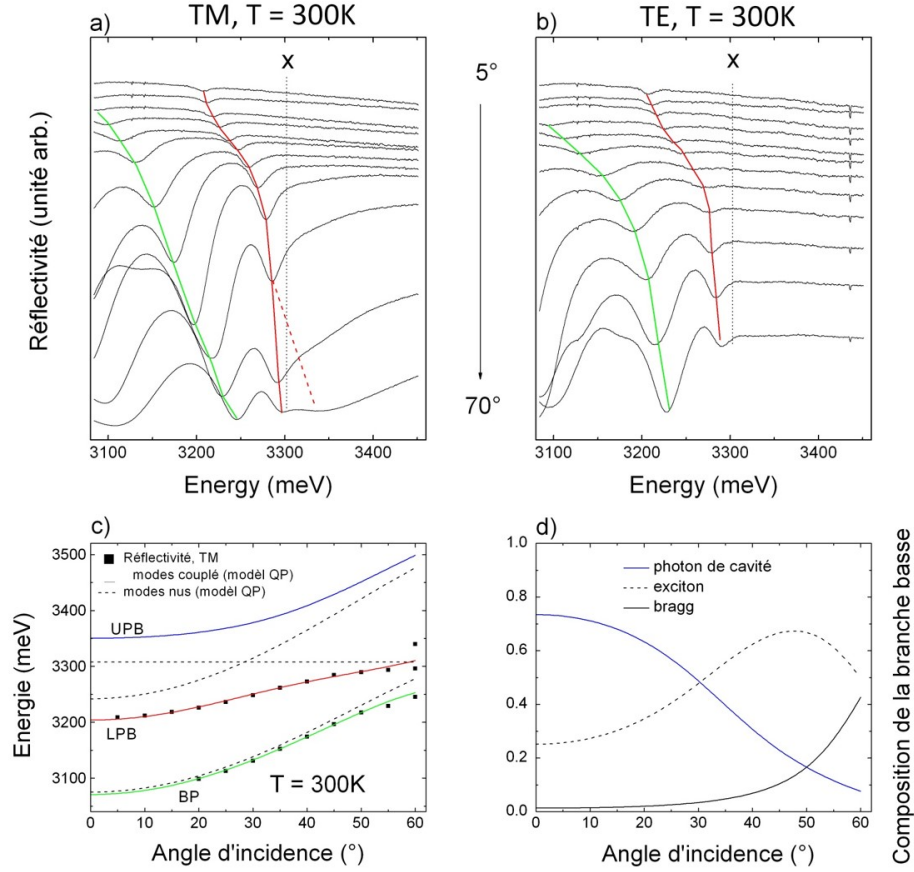


FIGURE 3.18 – Mesures de macro-réflectivité résolues en angle. a),b) montrent les mesures pour les polarisations TM et TE. On repère la UPB en bleu, la LPB en rouge et les modes de Bragg en vert. c) On utilise le modèle QP pour simuler les mesures de la figure a). d) Décomposition de la LPB sur la base des modes non couplés (photon, exciton, et mode de Bragg) en fonction de l’angle d’incidence.

3.6 Laser à polaritons

3.6.1 Caractéristique de l’émission pour un detuning faible

On utilise le montage de micro-photo-luminescence permettant d’imager le plan de Fourier sur la CCD (partie 2.5 du chapitre 2). Cela nous permet d’étudier l’émission en fonction de l’angle d’incidence pour une zone homogène en terme de facteur de qualité et de detuning. La figure 3.19 montre l’émission de la cavité en champ lointain à 90 K sous une excitation à 266 nm pulsé (130 fs). On utilise quatre puissances d’excitation croissantes et un detuning faible et constant, $\delta = -15 \text{ meV}$. Le mode non couplé, les excitons libres ainsi que la dispersion de la LPB sont reportés en lignes pointillées et pleines. Elles sont obtenues à l’aide du modèle quasi particule.

A faible excitation, l’émission est répartie sur tous les angles le long de la LPB. Elle se situe très en dessous du mode nu (-60 meV à $k_{||} = 0$) ce qui confirme le régime de couplage fort. Le profil d’émission ne laisse apparaître aucun bottleneck ce qui est conforme à nos observations

sur la cavité Z617 où cet effet n'apparaissait qu'en macro-photoluminescence.

Avec l'augmentation de la puissance d'excitation, l'intensité d'émission du niveau fondamental devient de plus en plus importante et présente un régime non linéaire à partir d'un certain seuil ($P_{th} = 0,7 mJcm^{-2}$ par pulse). On observe alors une forte augmentation de l'intensité d'émission associée à un affinement de la raie d'émission. C'est l'effet appelé laser à polaritons introduit dans le chapitre 1. On remarque aussi que le maximum d'émission se déplace continument vers les hautes énergies avec l'augmentation de l'intensité d'excitation. La dispersion de l'émission devient plate; ce comportement a déjà été rapporté dans CdTe et GaN. Il est du à la localisation du condensat de polaritons causée par l'inhomogénéité de l'échantillon [44] [12]. L'étendue angulaire du maximum d'émission (18° à mi-hauteur) nous permet d'estimer le rayon de la zone de localisation (r_{loc}) de l'ordre de $0,4 \mu m$ ($r_{loc} = k_{loc}^{-1}$).

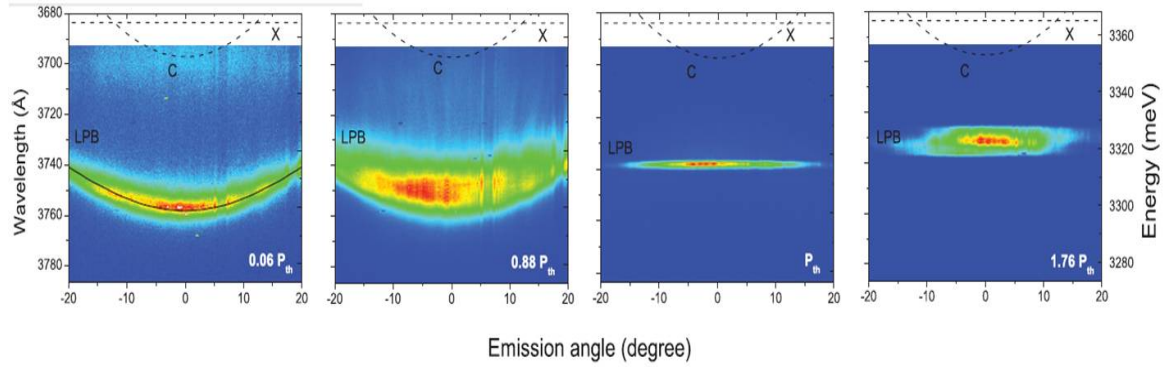


FIGURE 3.19 – Emission dans l'espace de Fourier à 90K pour quatre puissances d'excitation croissantes. $\delta = -15 meV$. Les lignes pointillées représentent la dispersion angulaire du mode de cavité nu (C) et l'énergie des excitons (X). La ligne continue représente la dispersion du mode couplé calculé en utilisant le modèle Q.P

La figure 3.20 montre l'évolution des spectres d'émission sous incidence normale obtenus à partir des mesures de la figure 3.19. En mesurant la largeur spectrale de l'émission sous faible excitation et en tenant compte du poids photonique déduit du modèle quasi-particule, on estime le facteur de qualité local à 600.

Les mesures présentées figure 3.20 sont intégrées sur un temps beaucoup plus important que la durée d'un pulse, c'est pourquoi on observe une émission relativement constante à 3300 meV; elle est due aux émissions collectées longtemps après l'arrivée du pulse. L'encart de la figure 3.20 montre l'évolution de la position en énergie du pic d'émission en fonction de l'intensité d'excitation. Au seuil, le maximum d'émission s'est déplacé vers les hautes énergies de $\Omega/10$. Il reste difficile au vu de ces mesures de conclure si le blue-shift doit être attribué à l'écrantage de la force d'oscillateur ou aux interactions polariton-polariton [17]. En effet l'observation du comportement de la UPB est la seule façon de prouver que les forces d'oscillateurs sont affectées par la puissance de pompage [12], malheureusement l'épaisseur importante de la couche de ZnO ne permet pas cette observation. L'absence de shift aux angles importants sur la LPB serait un autre indicateur, cependant il faut observer plus loin que 20° . Malgré tout, même sous forte excitation, l'émission reste éloignée en énergie du mode de cavité nu et ce résultat suffit à montrer que le régime de couplage fort est conservé

et que l'émission est bien un laser à polaritons.

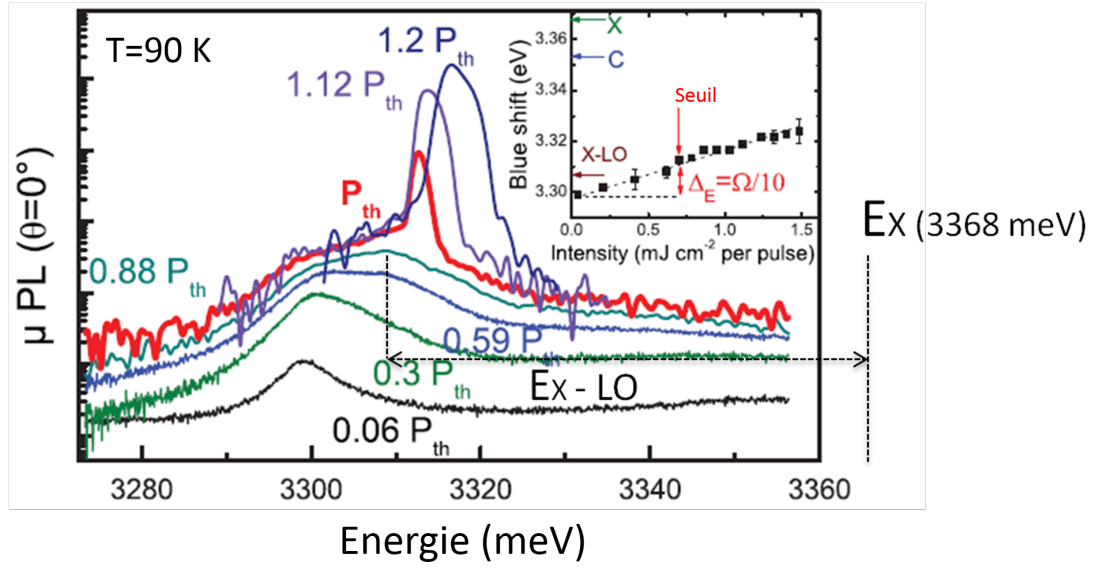


FIGURE 3.20 – Spectres de micro-photo-luminescence sous incidence normale pour différentes intensités d'excitation ($P_{th} = 1,7 \text{ mW}$ à l'entrée de l'objectif). Ces mesures sont extraites de l'expérience présentée figure 3.15. $\delta = -15 \text{ meV}$. L'encart montre le blue shift de l'émission provenant de la LPB en fonction de la puissance d'excitation.

L'intensité et la largeur à mi-hauteur du pic d'émission sont reportées en fonction de la puissance d'excitation (P) sur la figure 3.21.

En dessous du seuil, l'intensité évolue proportionnellement à P . Cela traduit une relaxation des polaritons assistée par les phonons LO (longitudinal optique) [69]. Ce processus de relaxation intervient car sous le seuil, le bas de la branche basse des polaritons est en résonance avec la première réplique phonon L.O des excitons libres (72 meV à 5 K et 60 meV à 90 K)[84]. De plus, à ce detuning la part exciton des polaritons est de 45%, ce qui assure un processus de diffusion efficace.

Au seuil, l'intensité d'excitation est multipliée par 1,14 (par rapport à la dernière puissance d'excitation sous le seuil) alors que l'intensité augmente de 2 décades et dans le même temps la largeur à mi-hauteur passe de 7 à 2 meV, largeur bien inférieure à la largeur estimée du mode de cavité non couplé (5,5 meV). Cela atteste de la cohérence temporelle de l'émission. Au dessus du seuil, la largeur de l'émission augmente, du fait du caractère multimodes de l'émission. En effet la condensation crée un état macroscopique qui spatialement s'étale sur différentes zones de l'échantillon. L'inhomogénéité de la cavité, due notamment à la variation d'épaisseur de la couche de ZnO, induit plusieurs modes optiques séparés de quelques meV. L'émission se localise donc en plusieurs endroits et élargit par conséquent le spectre d'émission.

Pour un detuning proche de $\delta = 0$, les phonons LO favorisent donc la condensation des polaritons et permettent d'obtenir l'effet laser à polaritons pour un seuil bas ($0,7 \text{ mJ cm}^{-2}$ par pulse). Il est important de préciser qu'un piège polaritonique profond ($9k_B T$, $T = 90 \text{ K}$)

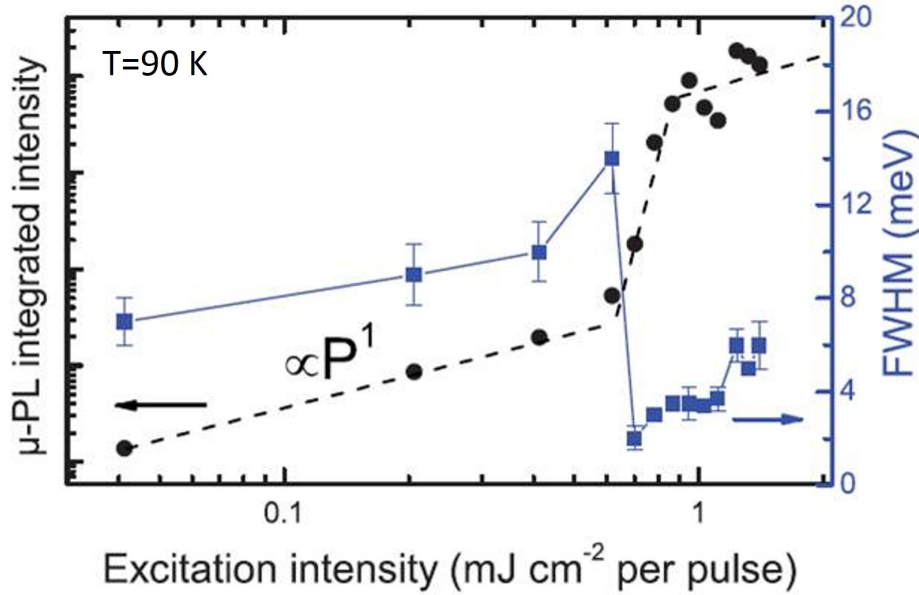


FIGURE 3.21 – (noir) Intensité intégrée en fonction de la puissance d’excitation. (bleu) Largeur à mi-hauteur du pic principal d’émission en fonction de la puissance d’excitation.

en résonance avec les phonons LO est spécifique à ZnO et qu’il n’est pas possible de retrouver ces conditions avec d’autres semi-conducteurs comme GaN ou CdTe. Cela permet d’obtenir un effet laser à polaritons à bas seuil, même si le facteur de qualité est faible comparé à celui obtenu dans d’autres structures.

Il est intéressant de comparer ces résultats avec un cas plus général où le detuning est plus négatif et où le mode polaritonique ne rentre pas en résonance avec les phonons LO. Quels processus vont alors aider à la relaxation et le seuil va-t-il être affecté par ces processus.

3.6.2 Influence du detuning sur les phénomènes de relaxation

Pour étudier les phénomènes de relaxation, nous refaisons les mêmes mesures que précédemment pour un detuning cette fois très négatif, $\delta = -52 \text{ meV}$ à 120 K. Les mesures sont effectuées dans une zone bien entendu différente, mais le facteur de qualité est similaire. Les deux mesures pourront ainsi être comparées.

La figure 3.22 montre les spectres de micro-photo-luminescence sous incidence normale pour différentes puissances d’excitation.

Même si le detuning est très différent comparé aux mesures précédentes, on remarque beaucoup de similitudes entre les spectres (figure 3.20 3.22 a)).

Au seuil, l’émission devient très étroite (moins de 2 meV). Le blue-shift varie linéairement en fonction de la puissance d’excitation, en dessous et au dessus du seuil. Au dessus du seuil, l’émission est toujours située à basse énergie du mode photonique non couplé (20 meV). Enfin, on observe également une émission constante à basse énergie, toujours due au temps d’intégration des mesures plus grand que la durée entre deux pulses.

La comparaison s’arrête là. En dessous du seuil, l’intensité intégrée évolue en $P^{1,8}$ pour $\delta = -52 \text{ meV}$ alors qu’on observait une évolution en P pour $\delta = -15 \text{ meV}$. Les figures 3.21 et 3.22 b) présentent des différences remarquables. La diffusion par les phonons devient

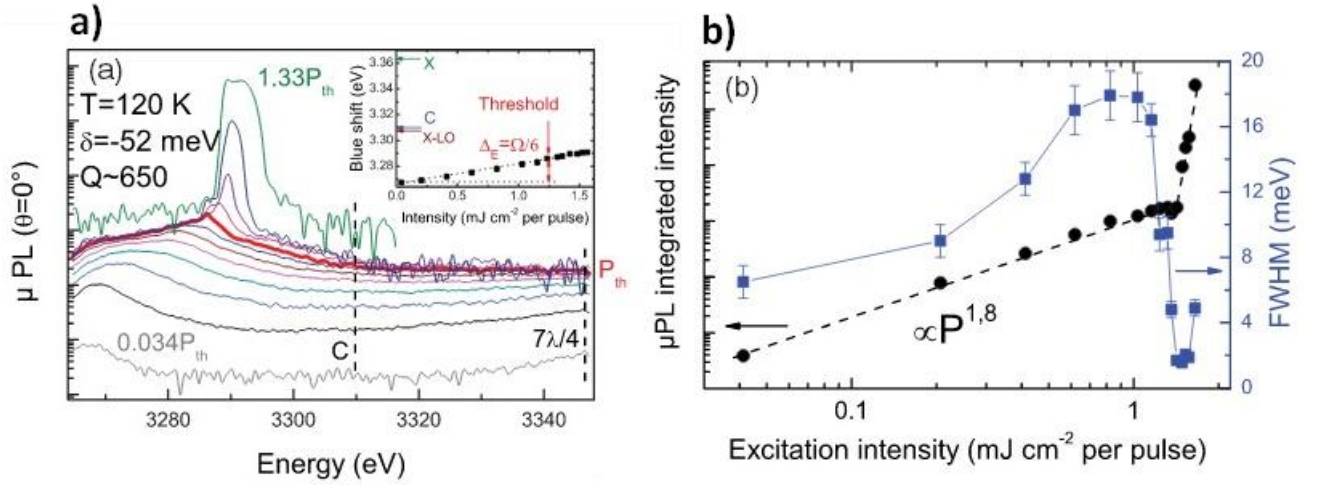


FIGURE 3.22 – (a) Spectres de micro-photo-luminescence à 120 K sous incidence normale pour différentes puissances d'excitation ($\delta = -52 \text{ meV}$). L'encart montre le blue-shift de la LPB en fonction de la puissance incidente. (b) Intensité intégrée (noir) du pic principal d'émission et sa largeur à mi-hauteur (bleu) en fonction de l'intensité d'excitation.

moins efficace et la relaxation implique les interactions exciton-exciton. On remarque qu'à faible excitation ($0,034P_{th}$), le bas de la branche basse est situé 39,5 meV en dessous de la réplique phonon LO des excitons libres alors que pour l'excitation maximale, ($1,33P_{th}$) l'émission est encore 16 meV en dessous. Le bas de la LPB n'est plus résonnante avec les phonons LO et ce sont les interactions exciton-exciton qui entrent en jeu [56]. Avec $\delta = -52 \text{ meV}$, le piège est profond, et la part exciton à $\vec{k} = 0$ de la LPB n'est que de 30%. Les interactions ne sont donc pas très efficaces et le seuil est alors plus important que dans le cas précédent (facteur 1,8).

Afin de valider ces observations, une simulation basée sur les équations semi-classiques de Boltzmann a été réalisée par l'équipe de G. Malpuech, elle est présentée figure 3.23

Cette simulation évalue l'occupation de l'état fondamental en fonction de la puissance incidente. Sous faible excitation, les deux simulations ($\delta = -15 \text{ meV}$ et $\delta = -52 \text{ meV}$) montrent une évolution linéaire. On remarque que l'état fondamental est moins peuplé pour $\delta = -52 \text{ meV}$. En effet, le bas de la branche basse est loin en dessous des excitons et est plus difficile à atteindre.

Dans le cas du détuning fortement négatif, l'évolution linéaire de l'occupation change progressivement en évolution quadratique. Le seuil est alors 2,5 fois plus important que dans le cas du detuning plus positif. Cela confirme les observations expérimentales, même s'il faut garder à l'esprit que ces simulations ne tiennent pas compte du désordre photonique du système. Le caractère qualitatif de cette modélisation permet tout de même d'asseoir l'analyse faite précédemment.

Synthèse

Le seuil laser minimum est donc observé quand le bas de la branche basse est résonnante avec les phonons L.O. Pour des detunings plus négatifs, la relaxation reste possible grâce

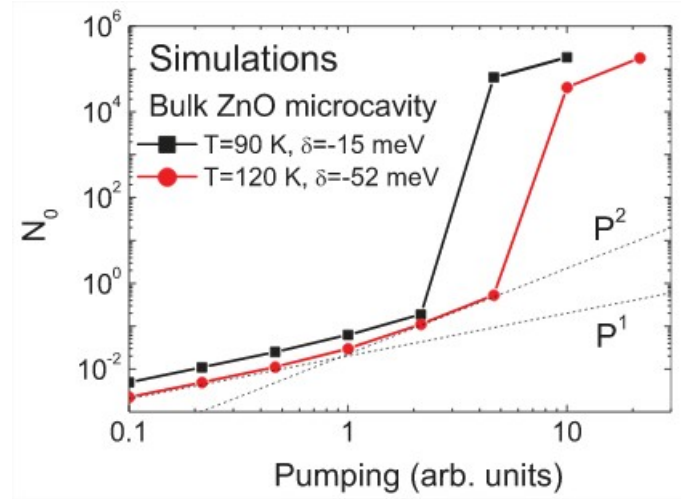


FIGURE 3.23 – Simulation de l’occupation du bas de la LPB obtenue par les équations semi-classiques de Boltzmann en fonction de l’intensité d’excitation. (noir) $\delta = -15\text{meV}$ (rouge) $\delta = -52\text{meV}$. Les lignes pointillées indiquent les pentes linéaires et quadratiques.

aux interactions polariton-polariton. Cependant le caractère trop photonique des polaritons conduit à un seuil plus important.

Les phonons LO peuvent sans doute conduire à l’obtention d’un laser à polaritons à température ambiante, malheureusement, expérimentalement le taux de répétition du laser d’excitation provoque l’échauffement de la cavité avant d’atteindre le seuil du laser à polaritons. Ces études sont cependant une étape importante dans l’optimisation des seuils et vont servir à concevoir de futures cavités toujours plus adéquates au laser à polaritons fonctionnant à haute température.

Pour compléter l’étude de la cavité Z739, nous nous sommes aussi intéressés à l’origine du blue-shift (observé figure 3.20 et 3.22 a)) et à l’émission VCSEL obtenue à très forte excitation.

3.7 Etude du blue-shift

Nous avons vu dans les mesures expérimentales précédentes (figure 3.20 et 3.22 a)), que le bas de la branche basse polaritonique se déplace vers les hautes énergies quand la puissance d’excitation augmente.

Plus le pompage est fort, plus la population d’excitons créée est importante. La force d’oscillateur f diminue ce qui se traduit par une diminution du dédoublement de Rabi et donc un blue shift de la LPB et un red shift de la UPB. Si la couche de ZnO avait été plus fine, au maximum 120 nm [62], nous aurions pu observer le déplacement de la branche haute. D’autre part lorsque la puissance d’excitation augmente, les interactions polariton-polariton entraînent un blue shift des deux branches polaritoniques [17][12].

Il est difficile de dissocier l’importance de ces deux effets sur nos mesures expérimentales étant donné que l’observation de la branche haute n’est pas possible (épaisseur du ZnO trop importante). Néanmoins une mesure de micro-photoluminescence effectuée sur un échantillon de ZnO massif ne montre aucun blue shift de la transition excitonique lorsque la puis-

sance augmente (figure 3.24). Cette observation tend donc à démontrer que les interactions polariton-polariton ne sont pas à l'origine du bleu shift observé expérimentalement.

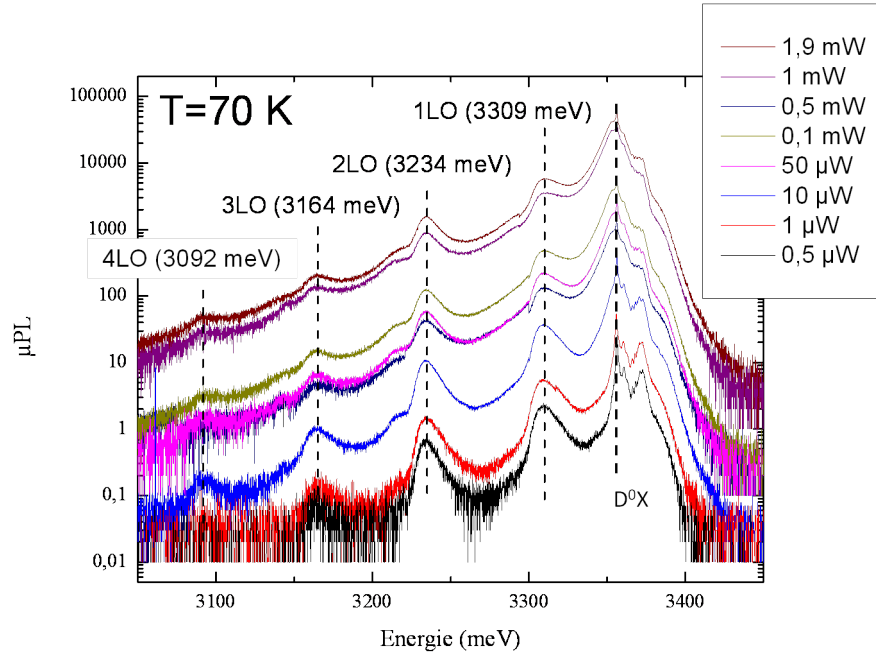


FIGURE 3.24 – Evolution des excitons liés aux donneurs en fonction de la puissance de pompage dans un échantillon de ZnO massif.

Sur la figure 3.25, nous avons tracé l'évolution du blue shift en fonction de la puissance seuil pour différentes températures. Les facteurs de qualité et l'épaisseur du ZnO varient d'un point à l'autre, c'est pourquoi l'émission laser n'est pas obtenue pour la même valeur de puissance. Cependant nous remarquons que plus la puissance seuil est élevée, plus le blue-shift est important (variation linéaire). D'autre part, des mesures effectuées à différentes températures mais à seuils comparables, présentent le même blue-shift. Il semblerait donc que le blue-shift observé lors des expériences précédentes soit indépendant de la température et n'évolue qu'en fonction de la puissance seuil.

En conclusion, nous attribuons le blue-shift à l'écrantage de la force d'oscillateur et non aux interactions polariton-polariton.

3.8 Conclusion

Nous avons montré que l'homogénéité des couches qui composent les microcavités est un paramètre important qui influe sur le phénomène de relaxation des polaritons et qu'il convient d'optimiser. L'effet Bottleneck lié aux problèmes de relaxation est corrigé grâce aux études en micro-photoluminescences qui permettent de travailler dans une zone homogène et d'obtenir l'effet laser à polaritons à basse température.

Les processus impliqués dans la relaxation des polaritons ont été étudiés pour deux valeurs de detuning différentes, et nous avons montré le rôle des phonons LO. Une étude plus pous-

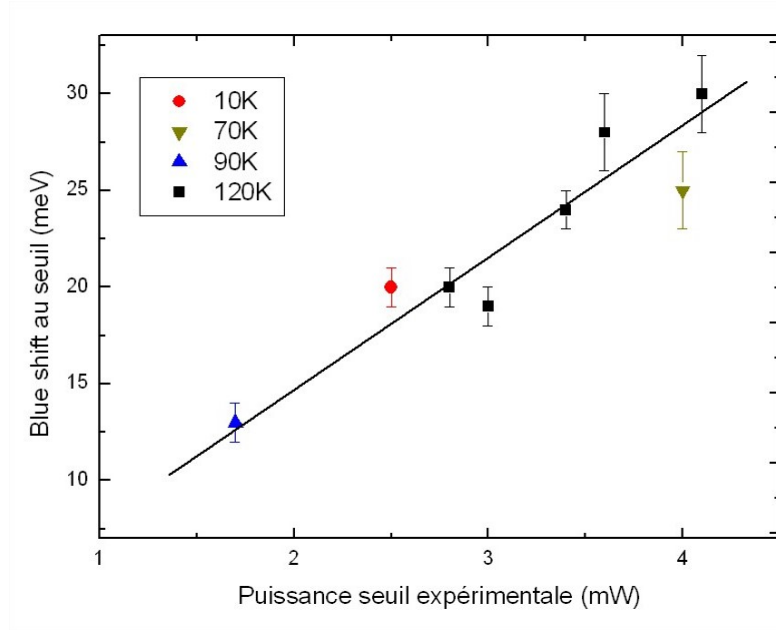


FIGURE 3.25 – Etude du blue-shift à différents points et différentes températures en fonction de la puissance seuil pour les études menées sur la cavité Z739.

sée du seuil en fonction de la température et du detuning sera présentée dans le chapitre suivant à travers un diagramme de phase.

La technique de fabrication de la cavité Z739 a permis de s'affranchir de l'absorption des bicouches l'AlN/AlGaIn présentes dans la cavité Z617 et d'améliorer considérablement la densité d'excitation. La cavité présentée dans le chapitre suivant tient compte de cette amélioration et grâce à un nouveau procédé d'épitaxie, apporte de nouvelles perspectives.

Chapitre 4

Microcavité à haute qualité cristalline

Sommaire

4.1	Cavité semi-épitaxiée	86
4.2	Homogénéité de la cavité	87
4.3	Profil d'épaisseur de la cavité	89
4.4	Effet laser de 5 à 300 K	91
4.5	Compétition entre modes	96
4.5.1	Modélisation du condensat de polaritons	99
4.6	Propagation du condensat	101
4.6.1	Synthèse	105

Au cours de ce chapitre sont présentés les résultats obtenus sur un nouveau type de cavité. L'expérience acquise grâce aux résultats précédents a permis de concevoir une cavité répondant mieux aux exigences qui visent à obtenir un laser à polaritons à température ambiante. Tous les paramètres influant sur la relaxation des polaritons sont ici mieux maîtrisés et nous permettent d'étudier la formation des condensats ainsi que l'émission laser sur une gamme de température s'étendant, de 4 à 300 K.

Le profil d'épaisseur de cette cavité permet de travailler dans un cas de figure singulier où les polaritons peuvent exister dans deux branches basses à des énergies différentes. Cela permettra de compléter l'analyse faite sur la relaxation du chapitre précédent et on verra que certains composants optiques pourraient exploiter ces résultats. Enfin une technique d'imagerie nous permettra de visualiser l'émission du condensat dans l'espace réel. Les paramètres influant sur le déplacement de ce dernier seront décrits et leur importance sera discutée.

4.1 Cavité semi-épitaxiée

Contrairement aux échantillons classiques où la couche active de la microcavité est directement épitaxiée sur un DBR, l'originalité de cette microcavité réside dans l'utilisation d'une couche de ZnO massif d'une épaisseur de 500 μm . La figure 4.1 montre les étapes nécessaires à la conception de cet échantillon.

(1) La croissance du DBR inférieur constitué de six paires et demi HfO_2/SiO_2 sur l'échantillon massif d'oxyde de zinc (orienté suivant l'axe c) est réalisée par la technique ion-beam-assisted electron-beam vacuum evaporation. (2) Une couche d'Al de 100 nm puis un substrat de silice sont placés sur le DBR. (3) la structure est retournée et la couche active est amincie (mécaniquement puis chimiquement) jusqu'à une épaisseur de quelques centaines de nanomètres. Ce travail fastidieux a été réalisé par Li Feng, doctorant sous la direction de Jesús Zúñiga-Pérez au CRHEA. (4) la cavité est fermée par un second DBR HfO_2/SiO_2 de neuf paires.

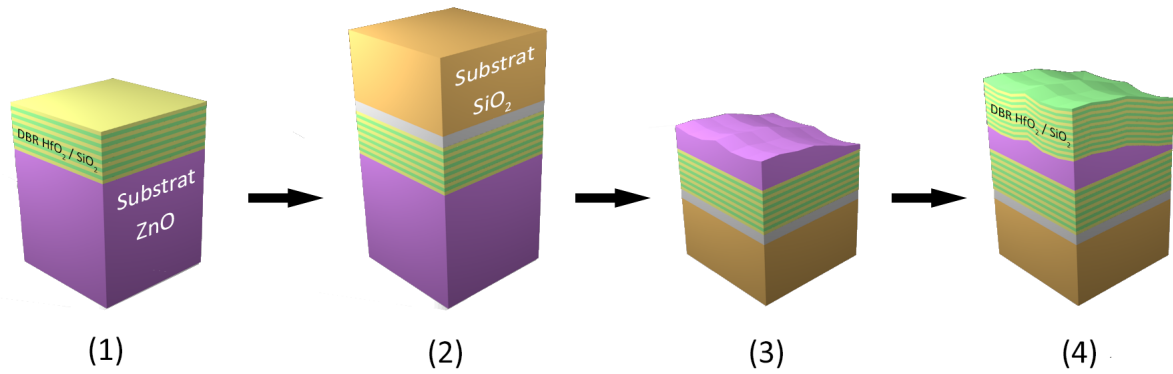


FIGURE 4.1 – (1) croissance du DBR inférieur, (2) dépôt d'une couche d'aluminium et du substrat SiO_2 (3) retournement de la structure et amincissement de la couche de ZnO.(4) croissance du DBR supérieur.

L'utilisation de ce nouveau type de microcavité combine deux avantages.

- La qualité cristalline de la couche active est la meilleure possible, en effet le ZnO massif est exempt de défauts, ce qui n'est pas le cas avec une couche épitaxiée (quelle que soit la méthode utilisée).
- Un fort contraste d'indice pour les deux DBR($n_{HfO_2} = 2,148$ et $n_{SiO_2} = 1,514$ à l'énergie des excitons).

La cavité a été conçue pour obtenir un coefficient de réflexion des DBR très important (99,8% à 380 nm) et permettre d'atteindre un facteur de qualité de l'ordre de 5000, qui n'a jamais été atteint dans ce type de structure jusqu'à maintenant sur ZnO. Ce facteur était auparavant limité à 500 quand le ZnO était épitaxié sur $AlN/AlGaN$ [33] [69] et atteignait au maximum 1000 sur des DBRs YSZ/Al_2O_3 (YSZ : yttria stabilized zirconia) [27]. Ce facteur de qualité nous permettra de travailler avec des photons de cavité ayant un temps de vie de l'ordre de la pico-seconde.

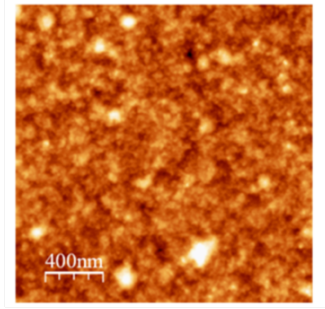


FIGURE 4.2 – Rugosité de surface de la cavité observée par AFM. Mesure réalisée au CRHEA

Par ailleurs, cette technique de fabrication entraîne une variation d'épaisseur importante de la couche de ZnO (100 nm à plus de 800 nm). Cela permet d'étudier la condensation et le laser à polaritons sur une gamme de detunings sans précédent. De plus l'énergie du dédoublement de Rabi dépend de cette épaisseur [56] et on peut alors travailler avec des valeurs de dédoublement allant de 180 à 260 meV. Ces valeurs jusqu'à deux fois plus importantes que ce qui est généralement rapporté, associées à une stop-band de 500 meV nous permettent d'éviter tout couplage avec les modes de Bragg.

La qualité du procédé d'aminçissement est reflété par la figure 4.2 qui est une image prise par AFM (microscope à force atomique) montrant une rugosité de surface de l'échantillon de l'ordre de 5 à 10 Å.

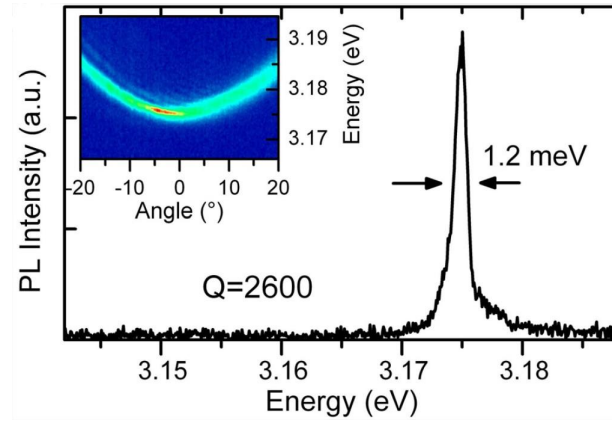


FIGURE 4.3 – Facteur de qualité mesuré sur un spectre de micro-photoluminescence collecté pour $\theta = 0^\circ$ à $T=300$ K sous très faible excitation. L'insert montre l'imagerie de Fourier de l'émission pour la même mesure.

4.2 Homogénéité de la cavité

La figure 4.3 montre la mesure du facteur de qualité obtenue pour $\delta = 0$ meV. Les estimations théoriques donnent $Q \approx 5000$, or ici cette valeur est deux fois moins élevée. La raison vient du fait que le facteur de qualité doit être mesuré sur un mode purement photonique. Ici, pour un dé-tuning de 0 meV, la part excitonique du mode polaritonique est de 50%. Le

Rabi est tellement important que l'élargissement excitonique influe sur le mode couplé quelle que soit sa position dans la stop band. Trichet *et al* [91] estiment que l'élargissement induit par les excitons à ce détuning est de l'ordre de 2-3 meV. Cette valeur est surestimée dans notre cas (1,2 meV figure 4.3) mais indique que la valeur du coefficient de qualité déduite de notre mesure de photoluminescence est sous-estimée.

Une autre mesure, figure 4.4, montre que le facteur de qualité varie selon l'épaisseur de la cavité. En effet la méthode d'amincissement de la couche de ZnO induit une inhomogénéité de la couche qui conduit à un gradient en forme de marches d'escalier de hauteur de l'ordre de 10 Å. Dans l'insert de la figure 4.4 on distingue clairement plusieurs branches basses à des énergies légèrement différentes associées aux marches d'épaisseurs successives. Le condensat émet cependant à une énergie constante. En effet le condensat est créé sur une marche, puis est éjecté et se propage le long du gradient vers une marche de potentiel plus faible. Cette diminution d'énergie potentielle est compensée par un gain d'énergie cinétique. L'énergie totale du condensat est donc conservée.

La mesure du facteur de qualité pour chaque marche, montre des valeurs différentes. Le fait que l'indice de ZnO varie fortement au voisinage des excitons pourrait justifier cette différence. Cependant, les modes observés ne sont séparés que de quelques meV et les excitons sont localisés à plus haute énergie (plusieurs dizaines de meV). Il faut donc justifier ces mesures.

Pour cela, on simule à l'aide du modèle des matrices de transfert la cavité à 70 K. On ajuste l'épaisseur de la cavité pour obtenir dans un premier temps un mode à 3305 meV puis dans un deuxième temps un mode à 3310 meV. La différence de facteur de qualité mesuré n'est alors pas significative et ne permet pas d'observer des variations importantes comme sur les mesures expérimentales. On explique donc cette variation par la qualité de surface de chaque marche.

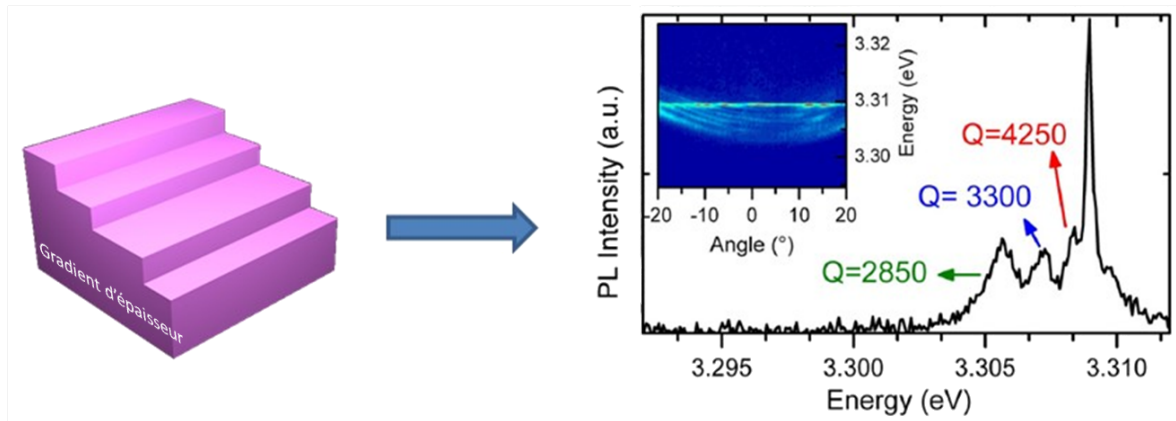


FIGURE 4.4 – Facteurs de qualité mesurés sur un spectre de micro-photoluminescence collecté pour $\theta = 0^\circ$ à 70 K. Le facteur de qualité est différent selon l'épaisseur de la cavité. L'effet laser est observé à 3309 meV. L'insert montre l'imagerie de Fourier de l'émission pour la même mesure.

La quasi totalité des points étudiés lors des expériences montrent une condensation des

polaritons et une émission laser. Les mesures de micro-photo-luminescence montrent une émission non-linéaire au seuil typiquement de l'ordre de deux à quatre décades accompagnée d'un affinement de raie d'une décade avec au minimum de l'affinement, moins de 1 meV de largeur (jusqu'à 0,4 meV). Un blue-shift linéaire en fonction du pompage est toujours observé mais reste petit comparé au dédoublement de Rabi (de l'ordre de 1 à 10 meV soit 4% du Rabi). Cette mesure montre par ailleurs que le système est dans l'état de couplage fort. En effet les modes changent de courbure quand ils approchent de l'énergie des excitons.

Une des limitations induite par l'épaisseur importante de la cavité est due, comme pour l'échantillon Z739 à l'impossibilité d'observer expérimentalement la UPB. Il est cependant possible de déterminer Ω toujours en utilisant le formalisme des matrices de transfert. En négligeant l'absorption bande à bande dans la simulation, nous pouvons connaître la position de la branche haute.

Toutes ces observations préliminaires nous montrent la nécessité de déterminer avec précision l'épaisseur de la couche de ZnO au point étudié dans l'échantillon.

4.3 Profil d'épaisseur de la cavité

La figure 4.5 présente une cartographie des mesures de photoluminescence réalisées à 0° et sous faible excitation à 300 K. L'existence du gradient d'épaisseur y est mis en évidence. La correspondance entre les échelles inférieure de position sur l'échantillon et supérieure d'épaisseur de la couche de ZnO a été obtenue par la méthode détaillée ci-dessous.

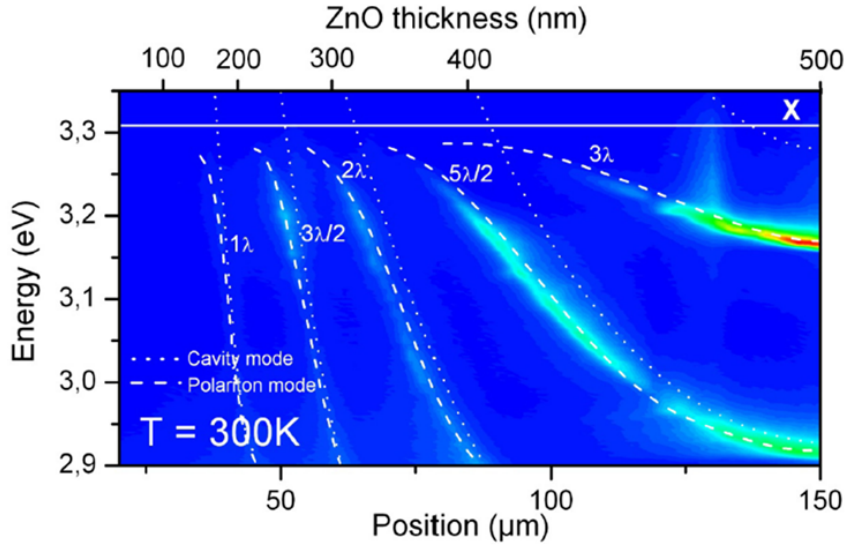


FIGURE 4.5 – Mesure de photo-luminescence à 0° sous faible excitation à 300K réalisée au LCC. Le gradient d'épaisseur est mis en évidence par l'imagerie en fausse couleur. (lignes pointillées) Calcul de la position des modes couplés pour un gradient d'épaisseur simulé avec le modèle des matrices de transfert.

L'énergie du mode optique de cavité est définie par la condition de résonance :

$$2nL_{cav} = m\lambda \quad (4.1)$$

Avec L_{cav} la longueur de la cavité, n son indice et m (l'ordre) un nombre entier.

Nous avons tracé en utilisant le modèle des matrices de transfert pour différentes épaisseurs les courbes de dispersion des modes existants dans la cavité. Cette méthode consiste à simuler la réponse optique de la cavité pour une épaisseur x et à noter la position de chaque mode couplé. En recommençant l'opération successivement pour une épaisseur $x + \Delta x$, nous obtenons une abaque présentée figure 4.6a). Il est possible avec le modèle des matrices de transfert de ne pas tenir compte de l'absorption bande à bande du ZnO, ce qui révèle la branche haute et nous permet de déterminer le dédoublement de Rabi en fonction de l'épaisseur (figure 4.6 b)). La formule utilisée sur le graphique pour déterminer la valeur du dédoublement de Rabi (courbe en bleue) ne peut pas approcher parfaitement les estimations faites avec le modèle des matrices de transfert du fait de l'utilisation d'une force d'oscillateur moyenne ($\approx 200000 \text{ meV}^2$) et de l'utilisation de L_{DBR} qu'il est difficile à estimer. A partir d'une épaisseur de 2λ cette formule permet cependant une approximation rapide et fiable.

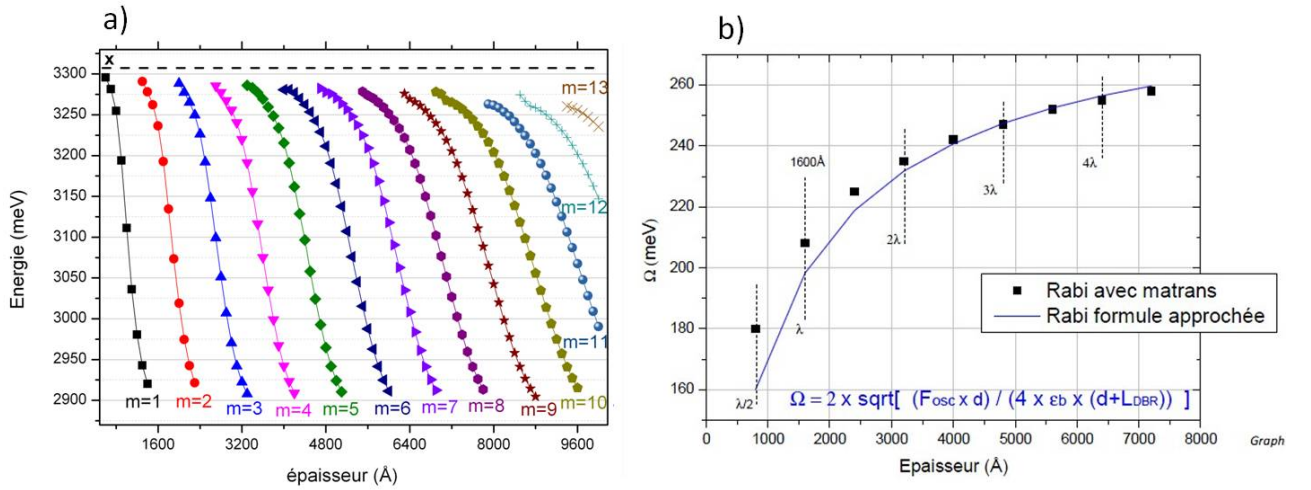


FIGURE 4.6 – (a) Position des modes couplés en fonction de l'épaisseur de cavité. (b) Estimation du dédoublement de Rabi en fonction de l'épaisseur de cavité. Les deux calculs sont réalisés à l'aide des matrices de transfert pour une température de 300 K.

La détermination précise des caractéristiques de la structure nous permet de créer un condensat sur une plage sans précédent de températures et de détunings et pour une importante plage de température ; de 5 à 300 K, et pour une fraction excitonique des polaritons de 17% à 96%. Grâce à la possibilité de déterminer l'épaisseur au point étudié nous avons pu interpréter les mesures de micro-photoluminescence réalisées à 5 K et présentées figure 4.7 a). Trois dispersions polaritoniques correspondant à 3 modes photoniques nus sont observés. L'épaisseur de 770 nm (soit 4λ) est déterminée grâce à l'abaque à 5 K figure 4.7 b). La fraction excitonique à $k = 0$ a été calculée (grâce au modèle Q.P). Nous voyons qu'il est possible d'accéder à une très grande plage de detuning et qu'il est possible d'étudier la formation et la relaxation des polaritons sur différents modes en même temps.

La connaissance précise de l'épaisseur nous a aussi permis d'étudier comment la différence d'épaisseur de 100 à 800 nm entraîne une réponse différente de la cavité en fonction

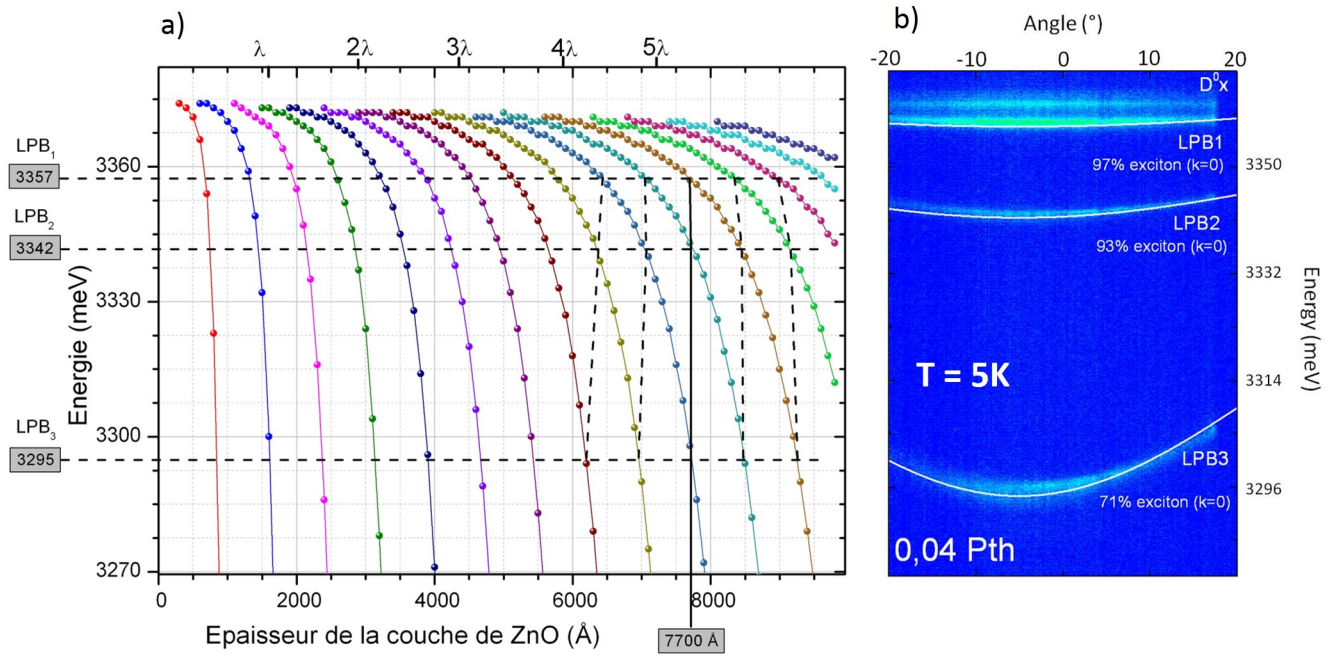


FIGURE 4.7 – Imagerie de Fourier à 5K sous faible puissance d'excitation. La zone étudiée est très épaisse (≈ 770 nm), ce qui permet d'observer 3 branches basses sur une plage de 70 meV. Le poids excitonique à $k = 0$ varie entre la LPB1 et la LPB3 de 26%

du pompage. En effet l'énergie apportée par l'excitation optique fait chauffer le matériau. Cet échauffement sera plus ou moins important en fonction de l'épaisseur de la cavité.

La figure 4.8 montre des mesures de photoluminescence faites à 75K. Nous avons comparé une zone très fine $< \frac{3\lambda}{2}$ (rouge) et une zone plus épaisse $\approx 2,5\lambda$ (bleu). La position de D_0X a été repérée en fonction de la puissance d'excitation. On observe un décalage de l'émission vers le rouge. Ce phénomène appelé "red shift" est le résultat de l'échauffement de la couche de ZnO. Le lien avec l'échelle en température a été déterminé grâce à des mesures de photoluminescence en température réalisée sur un échantillon massif de ZnO. La position en énergie des D_0X a été repérée pour des températures allant de 5 à 300 K. On remarque que ce décalage est d'autant plus fort que l'épaisseur est faible. Pour des épaisseurs fines, cet échauffement ne peut pas être négligé. Pour une puissance d'excitation proche du seuil moyen sur cette cavité (paragraphe suivant) l'échauffement est estimé à $+25$ K. Rapidement au dessus du miliwatt l'échauffement est très important et la température devient très importante.

4.4 Effet laser de 5 à 300 K

Nous avons effectué une étude de l'émission en fonction de la puissance d'excitation en différents points de l'échantillon et à différentes températures. A partir des mesures de microphotoluminescence nous avons déterminé l'énergie et l'intensité intégrée des pics d'émission ainsi que leur largeur à mi-hauteur.

Grâce aux simulations par le modèle des matrices de transfert et le modèle quasi-particule, l'épaisseur, le detuning, l'éclatement de Rabi le poids photonique et excitonique des modes

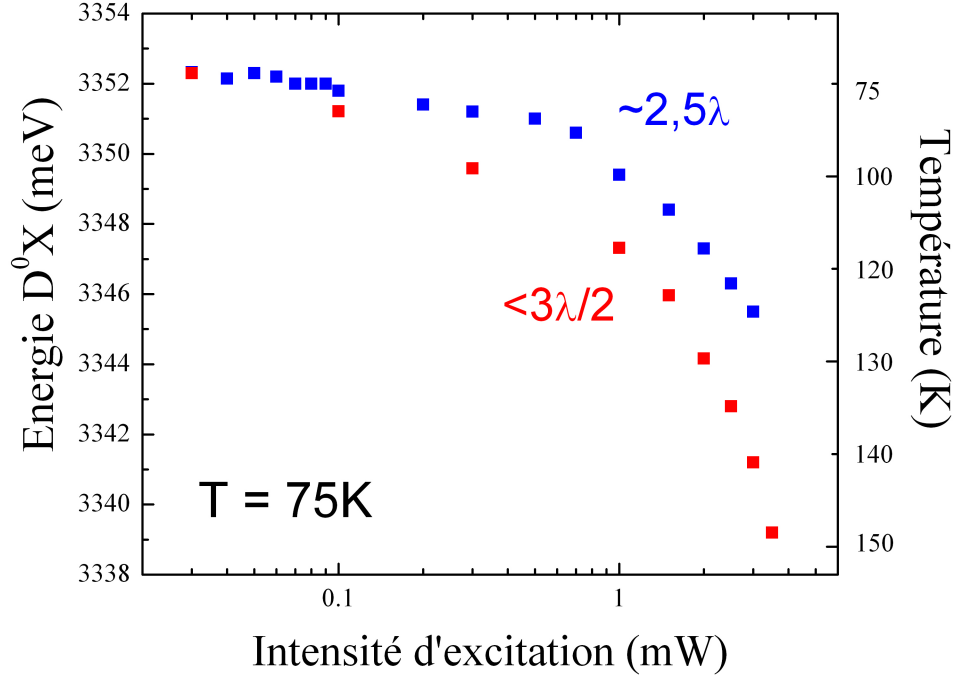


FIGURE 4.8 – Position en énergie des excitons libres en fonction de l'intensité d'excitation. (bleu) Zone épaisse ≈ 400 nm ($2,5\lambda$). (rouge) Zone fine ≈ 200 nm ($<2,5\lambda$)

ont été estimés. La figure 4.9 montre des mesures de micro-photo-luminescence en puissance à 70 K en un point où l'épaisseur est proche de 2λ .

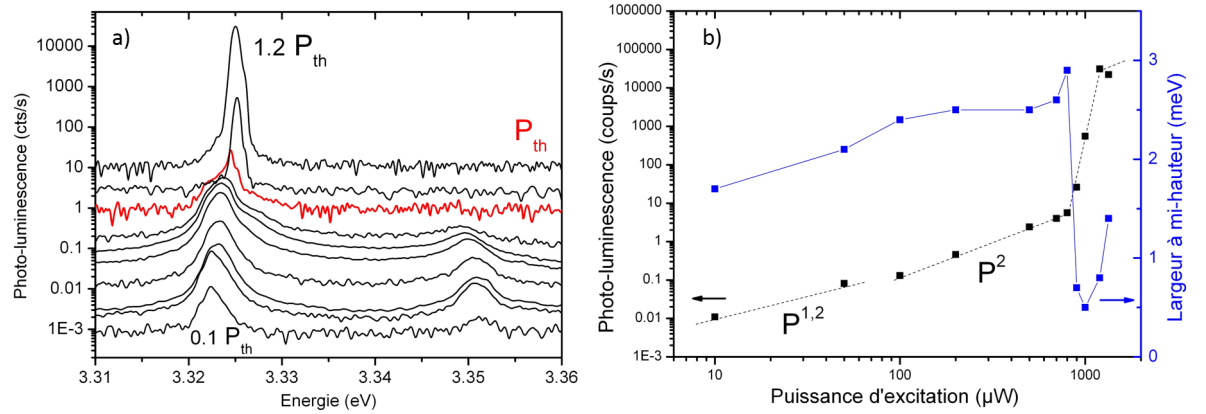


FIGURE 4.9 – a) Spectres de micro-photo-luminescence à 70 K sous incidence normale pour différentes puissances d'excitation ($E_X - E_{LPB} = 45$ meV). b) Intensité intégrée (noir) du pic d'émission et sa largeur à mi-hauteur (bleu) en fonction de l'intensité d'excitation.

Le profil de l'intensité d'émission en dessous du seuil est alors comparable aux observations de la partie 3.6.2 sur la cavité Z739.

Comme le montre l'évolution en P^2 de l'intensité d'émission, ce sont les interactions exciton-exciton qui aident à la relaxation des polaritons. La différence d'énergie entre les excitons et le bas de la LPB est de 45 meV. Le piège n'est pas assez profond dans cette configuration et les phonons L.O ne pourront pas aider à la relaxation des polaritons. L'évolution en $P^{1,2}$ observée sous faible excitation reflète une population faible d'excitons créés. Le detuning positif ($\delta \approx 120 \text{ meV}$) donnent une fraction excitonique des particules forte et favorise ces interactions, le seuil laser est alors abaissé comparé aux mesures précédentes. On a ici une illustration parfaite du rôle joué par le dédoublement de Rabi dans l'obtention d'un seuil de plus en plus bas.

L'effet laser a aussi été obtenu à 5 K, 70 K et 300 K comme le montre la figure 4.10. Ces points ont été choisis car ils présentent des situations expérimentales très différentes en terme de detuning (+450 à -120 meV), de température (5 à 300 K), et de fraction excitonique (92% à 30%).

Dans le cas le plus excitonique, on voit la LPB totalement écrasée contre les excitons ($\delta = +450 \text{ meV}$). Sous faible excitation, le cas très excitonique montre une dispersion très fine en énergie, en effet les polaritons de la LPB sont à 96% exciton et ne sont donc quasiment pas affectés par l'élargissement photonique, à l'inverse du deuxième cas où les polaritons sont 70% photon. Au dessus du seuil le cas très excitonique montre une dispersion plate et très étendue en angle qui est due aux interactions avec le réservoir d'excitons. A l'inverse, le cas très photonique est moins affecté par le réservoir d'excitons et la dispersion est beaucoup moins étendue en angle.

La gamme de détuning accessible pour chaque température est récapitulée dans le tableau 4.12

On voit qu'il est possible de modifier par un facteur 6 la part exciton et donc d'étudier le condensat en fonction de la constante d'interaction. Il est aussi possible d'ajuster la part photonique par un facteur 20 pour étudier cette fois le condensat en fonction de la masse et du temps de vie des particules. On peut donc à souhait, soit étudier un condensat avec une forte constante d'interaction avec des particules ayant un grand temps de vie (plus de 10 ps), soit aller vers des detunings plus faibles avec des interactions moins fortes et un temps de vie plus réduit simplement en changeant la température (et le détuning).

Cette cavité nous donne la possibilité de faire varier les différents paramètres dans une large gamme et nous permet de présenter le diagramme de phase de la figure 4.13 a). Jusqu'à présent, cette étude via un diagramme de phase n'avait été réalisée que sur une structure à multi-puits quantiques à base de GaN [12] [54]. La panneau (b) montre les courbes théoriques associées, obtenues avec les équations semi-classiques de Boltzmann [55]. Ces courbes sont le fruit de la collaboration avec l'équipe de G.Malpuech de l'Institut Pascal.

Cette étude présente l'évolution de la densité de particules au seuil (n_c proportionnel à l'intensité d'excitation) en fonction du detuning. Cette densité dite critique, représente le nombre de particules créées au delà duquel chaque particule supplémentaire relaxera jusqu'au niveau de plus basse énergie et participera à l'émission cohérente des polaritons.

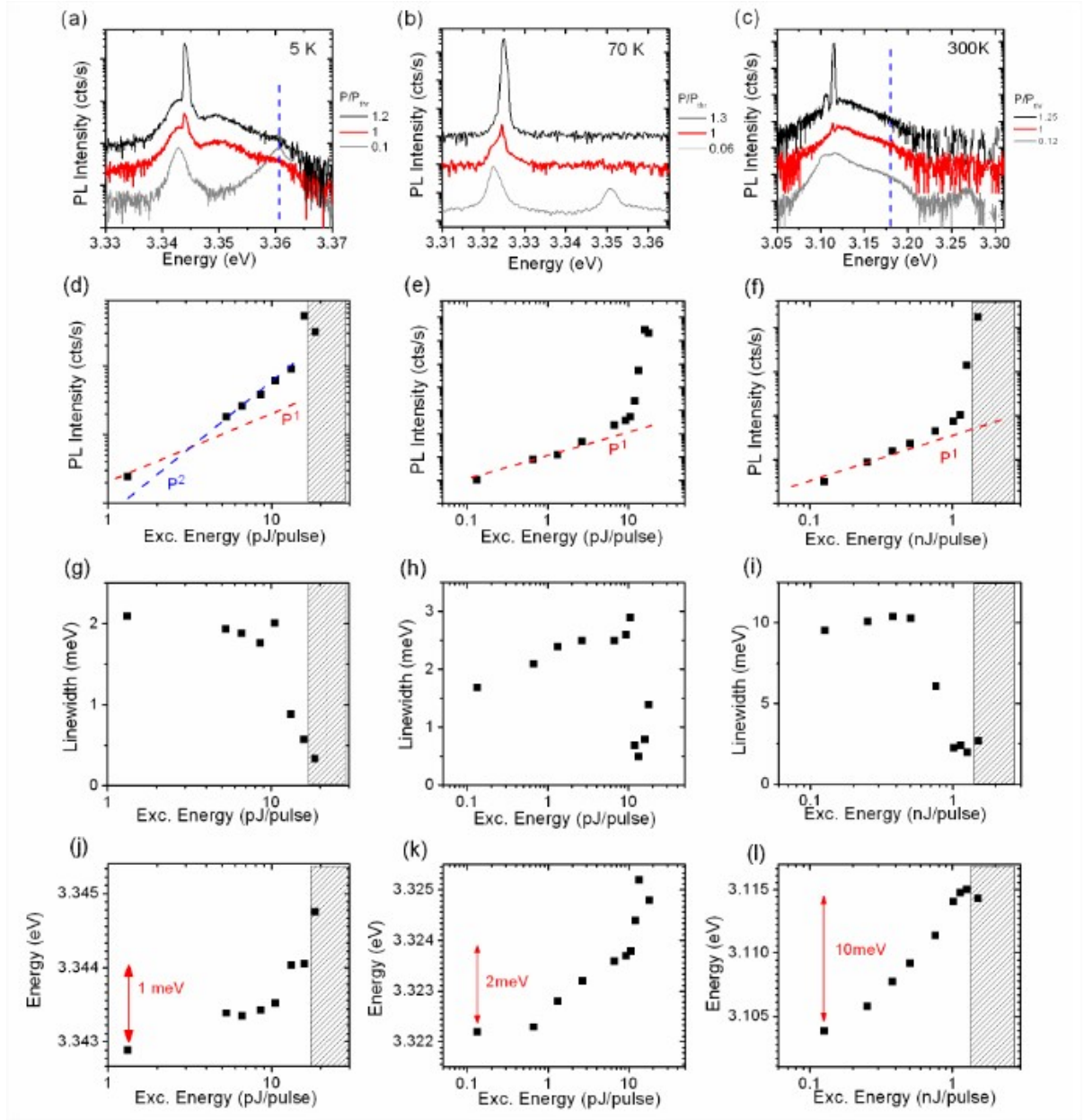


FIGURE 4.10 – Observation de la condensation de polaritons en fonction de la puissance incidente. (a,b,c) spectres sous (gris), au (rouge) et au dessus du seuil (noir). (d,e,f) intensité d'émission intégrée. (g,h,i) largeur de l'émission à mi-hauteur. (j,k,l) Energie du maximum d'émission. (a,d,g,j) 5 K et $\delta = +390$ meV (fraction excitonique 92%). (b,e,h,k) 70 K et $\delta = +230$ meV (fraction excitonique 84%). (c,f,i,l) 300 K et $\delta = -124$ meV (fraction excitonique $< 30\%$). (ligne pointillée) (a) position en énergie des excitons liés (D^0X), (c) position du mode optique non couplé de la cavité calculée avec les modèles des matrices de transfert. Les zones hachurées indiquent une émission multi-longueurs d'onde. Ces mesures expérimentales ont été obtenues au laboratoire L2C de Montpellier

Afin de bien comprendre ce diagramme de phase nous pouvons tout d'abord simplifier le raisonnement en nous plaçant de le cas idéal où nous considérons le temps de vie des polaritons comme infini ($\tau_{pol} = \infty$).

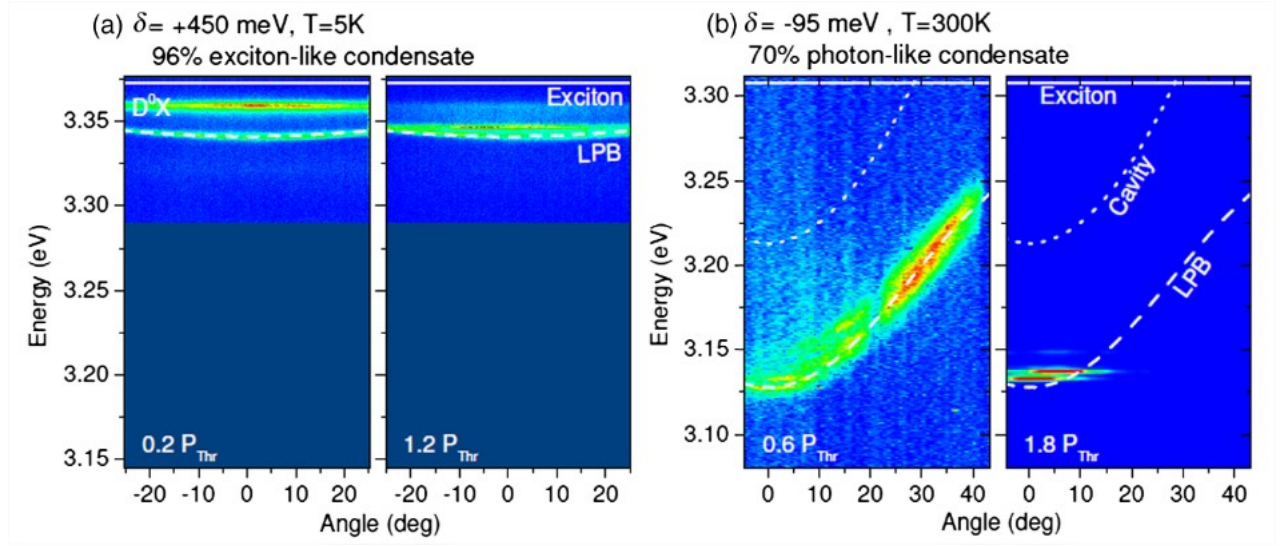


FIGURE 4.11 – Micro-photo-luminescence en imagerie de Fourier pour deux cas extrêmes. (a) $\delta = +450$ meV, 96% exciton. (b) $\delta = -95$ meV, 70% photon.

Temperature (K)	Detuning (meV)	Exciton fraction	Photon fraction
300	+91 to -152	68% to 24%	32% to 76%
250	+118 to -214	72% to 17%	28% to 83%
150	+273 to -132	87% to 26%	13% to 74%
5	+450 to +105	96% to 63%	4% to 37%

FIGURE 4.12 – Gamme de detunings où la condensation est observée pour une large plage de température

La densité critique n'est alors fonction que de la masse effective des polaritons. Cette masse effective est faible quand la composante photonique est grande. Ainsi plus le detuning est négatif, plus la densité critique sera faible.

La température est aussi un paramètre important et pour un detuning fixe, la densité critique n'est fonction que de cette température ; plus elle est importante, plus la densité critique augmente.

Ce cas idéal ne reflète que partiellement la réalité. En effet les temps de vie des polaritons n'est pas infini. Ce temps de vie varie en fonction de la composition des polaritons. Plus la fraction photonique est grande, plus le temps de vie des polaritons sera influencé par le temps de vie des photons de cavité. C'est le facteur de qualité qui limite alors le temps de vie des polaritons.

Afin de comprendre de façon précise le phénomène de relaxation dans le cas réel, nous devons tenir compte du temps de relaxation (τ_{relax}) nécessaire aux polaritons pour atteindre

le niveau de plus basse énergie.

La comparaison entre τ_{pol} et τ_{relax} détermine deux zones de "fonctionnement" dans lesquelles la relaxation est définie soit par le régime thermodynamique ($\tau_{pol} \gg \tau_{relax}$), soit par le régime cinétique ($\tau_{pol} \ll \tau_{relax}$). Ces zones que nous appelons I et II sont indiquées sur la figure 4.13.

- Zone 1 : le detuning est négatif et la fraction photonique est alors forte. Le facteur de qualité limite le temps de vie des polaritons et τ_{pol} est alors inférieur à τ_{relax} . Comme la densité de particules nécessaires pour atteindre le seuil est d'autant plus grande que le temps de vie de ces particules est court, la densité critique augmente quand δ diminue.
- Zone 2 : le detuning est positif et la fraction photonique est faible. Le facteur de qualité ne limite plus le temps de vie des polaritons et τ_{pol} est supérieur à τ_{relax} . La densité de particules nécessaire pour atteindre le seuil n'est alors limité que par la masse effective des polaritons qui est proportionnelle à la fraction excitonique. Ainsi, plus δ augmente, plus la densité critique augmente.

Entre ces deux régimes de fonctionnement, la densité critique minimum (δ_{opt}) est définie quand le bon équilibre entre le temps de vie et la masse des particules est trouvé.

Dans le ZnO et à haute température, la relaxation assistée par les phonons LO fait apparaître un second minimum ($\approx 70 \text{ meV}$ sous l'énergie des excitons). A basse température la densité de phonons diminue et ce minimum persiste mais est de faite beaucoup moins important [84].

La dépendance du seuil en fonction de la température est similaire à certaines mesures obtenues sur d'autres systèmes [46],[54],[100].

Si on compare pour les mêmes températures ces résultats avec ceux obtenus sur une cavité GaN, le détuning optimal de notre structure ZnO est plus positif (aux alentours de $\delta = 0$ comme la théorie le prévoit [43]). Cette tendance est due à la grande valeur du dédoublement de Rabi qui induit un minimum profond en énergie de la LPB même à désaccord nul. Pour les structures à base de GaN, le detuning optimal est aux alentours de -40 meV. En effet le dédoublement de Rabi moins important dans ces structures implique de se placer à désaccord plus négatif pour obtenir un piège de profondeur équivalente.

4.5 Compétition entre modes

Un régime de fonctionnement intéressant est mis en évidence dans les zones épaisses de l'échantillon. Comme le montre bien la figure 4.6, plus l'épaisseur est importante, plus les modes sont proches en énergie. C'est pourquoi on peut voir plusieurs LPB sur les panneaux de la figure 4.14.

En allant vers des detunings plus négatifs, de gauche à droite sur la figure 4.14, l'effet

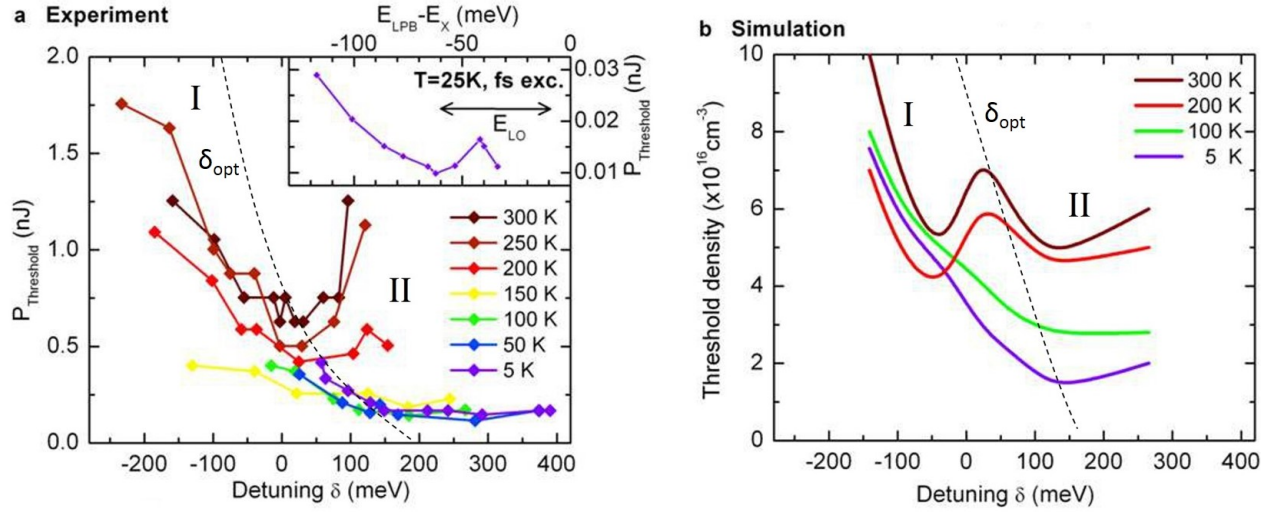


FIGURE 4.13 – (a) Seuil de condensation des polariton sous excitation quasi-continue pour $T=5$ K à 300 K en fonction du detuning (mesures réalisées au LCC). L'épaisseur de la cavité est de $2,5\lambda$. (Encart) Double minimum du seuil mis en évidence sous excitation fs. (b) Densité de seuil calculée par l'équipe de G. Malpuech en utilisant les équations de Boltzmann semi-classiques pour la même gamme de paramètres que (a). Les zones I et II correspondent respectivement aux régimes cinétique et thermodynamique.

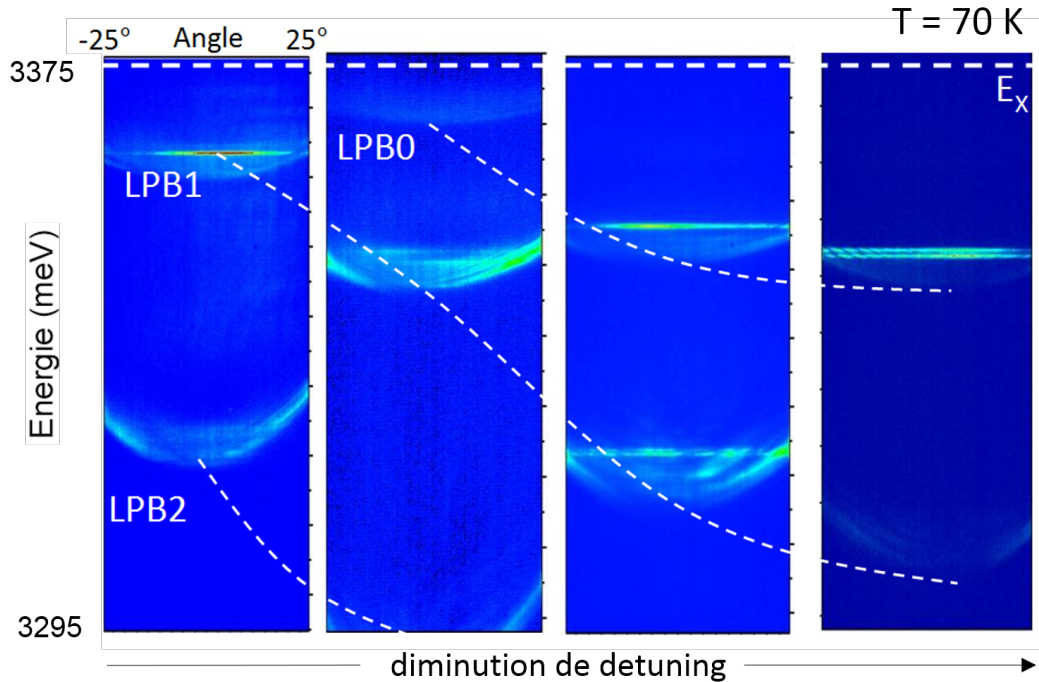


FIGURE 4.14 – Imagerie de Fourier prises pour un detuning décroissant sous excitation constante (au seuil) à 70 K.

laser est toujours observé sur le même mode (repérée LPB 1). Quand le detuning devient faible et que ce mode devient trop photonique (pour une épaisseur de 913 nm) on voit le

système commuter et l'effet laser provient alors de la LPB 0 qui a un détuning plus grand et donc un poids excitonique plus fort et où les effets cinétiques sont favorisés.

Ce "choix" est déterminé par la compétition que l'on a décrit précédemment entre le régime thermodynamique (detuning positif) et le régime cinétique (détuning négatif). Ceci est illustré par la figure 4.15 où le détuning de trois LPB est reporté en fonction de l'épaisseur. Les modes où l'on observe la condensation sont reliés par une ligne.

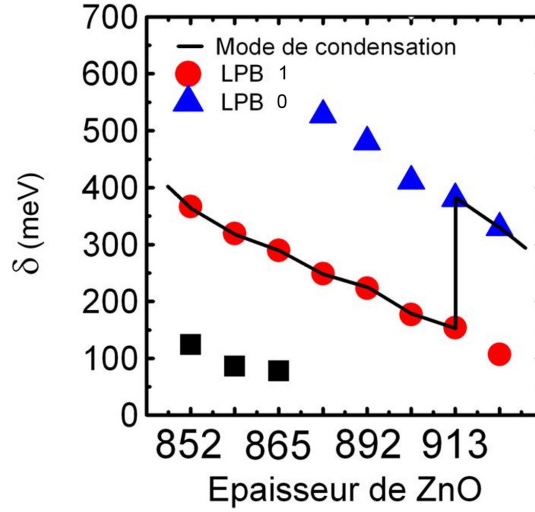


FIGURE 4.15 – Valeur du detuning δ en fonction de l'épaisseur de la couche de ZnO. Les symboles repèrent la position des modes polaritoniques pour différentes épaisseurs de cavité. La ligne noire relie les modes sur lesquels on observe la condensation.

Pour une épaisseur de 913 nm, qui correspond au changement de mode, on observe un effet qui vient appuyer les explications précédentes concernant le phénomène de relaxation. En effet, à cette épaisseur, on peut contrôler le changement de mode (mode switching) en jouant uniquement avec la puissance d'excitation. Ce phénomène est montré dans la figure 4.16. Sous le seuil ($0,1P_{th}$) on observe 3 branches polaritoniques qui présentent chacune un poids excitonique différent. Au seuil (P_{th}) l'émission provient du bas de la LPB 1 (7% photon). Le detuning de cette branche est très positif et les polaritons ont un grand temps de vie car leur fraction excitonique est importante. $\tau_{pol} > \tau_{relax}$, c'est pourquoi les polaritons peuvent thermaliser facilement en bas de la LPB 1. Les particules ne peuvent pas atteindre le bas de la LPB 0 qui elle est à un detuning plus faible induisant un piège trop profond.

Si on augmente la puissance de pompage ($15P_{th}$), la densité d'excitons créée est plus importante et on favorise la diffusion exciton-exciton. Ces interactions permettent aux polaritons de relaxer jusqu'à une énergie plus basse et d'atteindre le niveau de plus basse énergie de la LPB 0. Cette branche a un detuning plus faible que la LPB 1, c'est pourquoi les polaritons du condensat ont cette fois une fraction photonique plus forte (27% photon).

La part photonique du condensat est changée d'un facteur 4 en passant de la LPB 1 à la LPB 0. Cela modifie le comportement du condensat face à une perturbation et ouvre la voie à la manipulation fine de cet état qui pourrait être utilisé dans des composants optiques. Ce comportement peut permettre de créer un laser accordable en longueur d'onde mais aussi peut être à la base d'un commutateur spectral contrôlé en intensité.

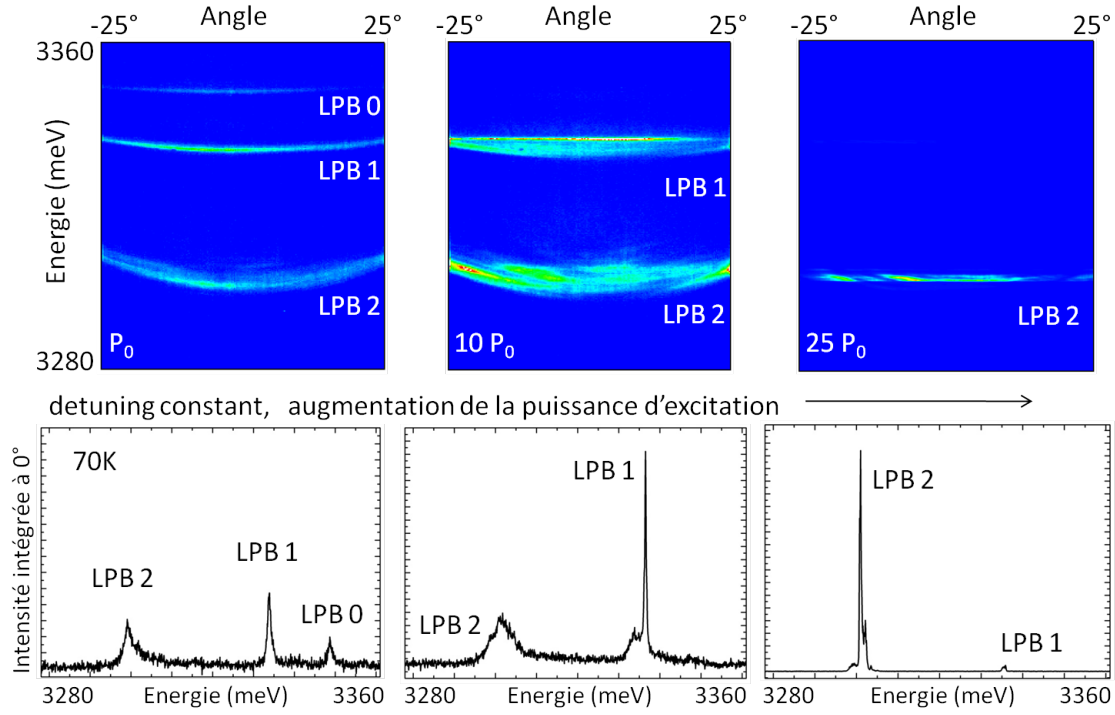


FIGURE 4.16 – Observation du mode switching par imagerie dans l'espace de Fourier pour trois puissances d'excitation différentes pour une épaisseur voisine de 913 nm. Les spectres représentent l'intensité d'émission à 0°.

La figure 4.17 montre le profil de potentiel vu par les polaritons dans les cas b) et c) de la figure 4.16. Il est composé d'un potentiel Gaussien induit par le réservoir d'excitons qui n'agit que sur la part exciton des particules et d'un profil en escalier dû au gradient d'épaisseur qui n'agit cette fois que sur la part photonique. La hauteur des marches correspond à une variation d'une monocouche de la cavité.

La figure 4.18 montre une simulation du mode switching contrôlé par l'intensité incidente obtenue par résolution de l'équation de Gross-Pitaevskii [99]. On a tenu compte du gradient de potentiel de la figure 4.17 et on voit que les observations expérimentales de la figure 4.16 sont très bien reproduites. Les interactions entre les polaritons très excitoniques et le réservoir explique pourquoi la simulation 7% photon montre une émission avec un pic élargi en énergie (figure 4.18 a)) [103].

On peut facilement imaginer créer un composant optique à partir de ce phénomène de "switch" en faisant l'analogie avec un transistor électronique classique.

4.5.1 Modélisation du condensat de polaritons

La description théorique de la condensation et de la propagation des particules a été réalisée par l'équipe de Guillaume Malpuech. On utilise pour cela l'équation modifiée de Gross-Pitaevskii qui est l'équation de Schrödinger dans laquelle on ajoute l'interaction entre

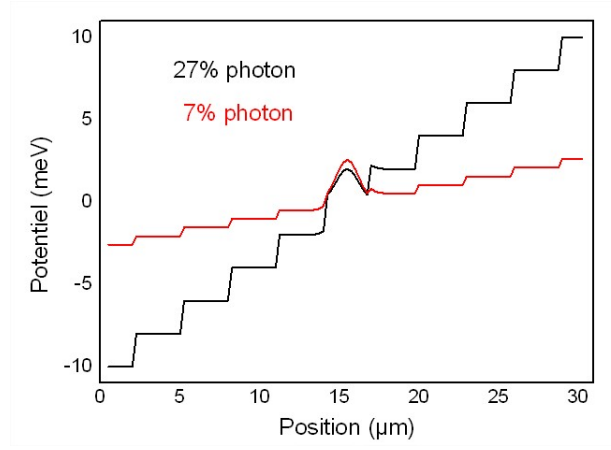


FIGURE 4.17 – Profil de potentiel vu par le condensat de polaritons en fonction de la composante photonique. Plus la fraction photonique est forte, plus les marches de potentiel vu par les polaritons sont importantes.

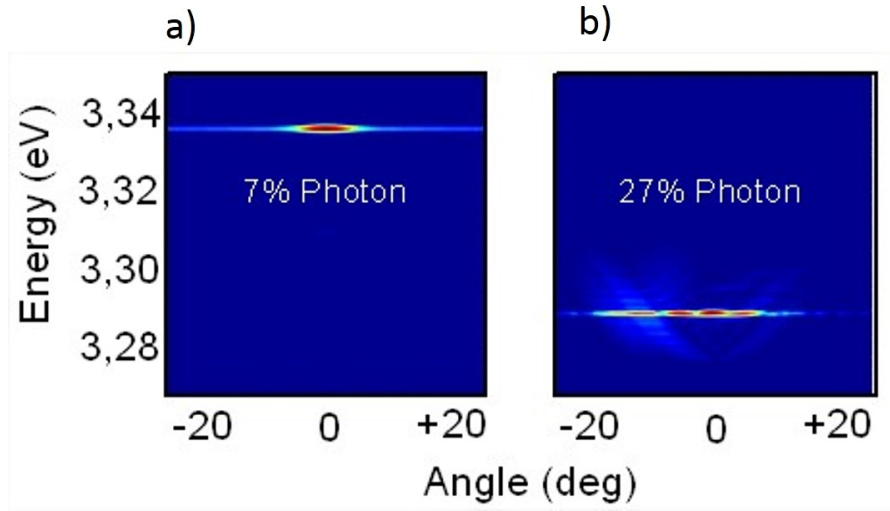


FIGURE 4.18 – Simulation de l'émission du condensat de polaritons à l'aide de l'équation de Gross-Pitaevskii dans les cas similaires à la figure 4.16 b) et c).

particules par l'intermédiaire d'un terme de couplage.

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} &= -\frac{\hbar^2}{2m_{pol}} \Delta \Psi + i\gamma n_R \Psi - \frac{i\hbar}{2\tau_{pol}} \Psi + \alpha(|\Psi|^2 + n_R) \Psi + U_{pol} \Psi + i\Lambda_0 \frac{n_R}{\max(n_R)} \frac{\hbar^2}{2m_{pol}} \Delta \Psi \\
 \frac{\partial n_R}{\partial t} &= D \Delta n_R - \frac{n_R}{\tau_R} - \gamma n_R |\Psi|^2
 \end{aligned}
 \tag{4.2}$$

L'équation de Gross-Pitaevskii d'une fonction d'onde (polariton) à deux dimensions est couplée à l'équation d'un réservoir de densité n_R lui aussi de dimension 2 (On peut remonter à une densité 3D en multipliant par la longueur de la cavité L_{cav}). Cela permet de tenir compte des interactions polariton-polariton, de simuler la diffusion depuis le réservoir jusqu'au condensat et la relaxation en énergie.

m_{pol} est la masse effective des polaritons, γ le taux de diffusion simulée, $\alpha \approx 10xE_b a_B^3/L$ est

la constante d'interaction polariton-polariton [36] modérée par l'interaction entre les excitons du matériau massif (x la fraction excitonique). U_{pol} est le potentiel en marche d'escalier décrit dans la partie 4.4 avec des marches de $2,5\mu m$ de large. τ_{pol} le temps de vie des polaritons, $\Lambda_0 = 0.01$ est le paramètre de relaxation vers le minimum d'énergie. D est le coefficient de diffusion des excitons et τ_R le temps de vie dans le réservoir.

4.6 Propagation du condensat

L'étude de l'hydrodynamique est un domaine important de la physique qui utilise des résultats bien connus et établis depuis longtemps. Il persiste cependant un champ de recherche dans ce domaine qui est toujours très étudié : les instabilités hydrodynamiques.

C'est un axe d'étude qui a été ouvert au début du XX^{eme} siècle [9].

Les microcavités peuvent servir de support d'études dans ce domaine grâce à la possibilité d'obtenir un condensat de Bose-Einstein aux propriétés superfluides [102] [101]. Le terme de superfluidité caractérise tout fluide qui présente une viscosité nulle. Cet état existe dans d'autres fluides comme l'hélium liquide [30], mais l'utilisation expérimentale de ce matériau est coûteuse et très lourde à mettre en place.

Le but de ces recherches est d'aboutir à la compréhension du comportement du fluide face à un obstacle et de contrôler son comportement pour la réalisation de composants. Si le plus souvent le fluide rencontre un obstacle naturel, il est plus intéressant de regarder les perturbations engendrées par un obstacle dont le profil a été créé volontairement. Pour les superfluides la présence d'un obstacle se traduit par l'augmentation locale de sa vitesse au voisinage des extrémités de l'obstacle. On note alors l'apparition d'un mouvement de phase circulaire appelé vortex [50] [28].

Ce champ de recherche très dynamique constitue un des piliers qui supporte l'étude des microcavités. Plusieurs publications rapportent déjà l'observation de vortex dans l'hélium liquide et dans les condensats d'atomes [94] [35].

Dans notre cas, avant de parler de superfluidité et de comportement face à un obstacle, on s'intéresse d'abord au cas simple du déplacement du condensat. Les expériences d'imagerie dans l'espace réel nous permettent de visualiser le comportement du condensat en fonction de l'intensité du pompage et du profil d'épaisseur de la cavité. De nombreuses mesures mettent en évidence le comportement migratoire du condensat. Celui-ci ne reste pas localisé sous le spot d'excitation mais se déplace. Cet effet est notamment possible grâce au facteur de qualité élevé qui permet aux polaritons d'avoir une durée de vie suffisamment longue pour leur permettre de se propager. Des phénomènes de propagations ont déjà été observés sur des structures GaAs à fort facteur de qualité (≈ 30000) [98] et dans des nanofils de ZnO [ArXiV Trichet 2013].

On étudie la propagation dans une zone très épaisse de la cavité ($\approx 800 nm$) dont on présente la cartographie de surface sur $30 \mu m^2$ (figure 4.19). Ce profil est tracé en pointant l'énergie du mode polaritonique pour différentes positions. Le profil en épaisseur est inversement proportionnel à ce profil en énergie et on peut facilement remonter à l'épaisseur en chaque

point en utilisant les calculs de la figure 4.6 (a). On rappelle que l'énergie du mode augmente quand l'épaisseur diminue et inversement.

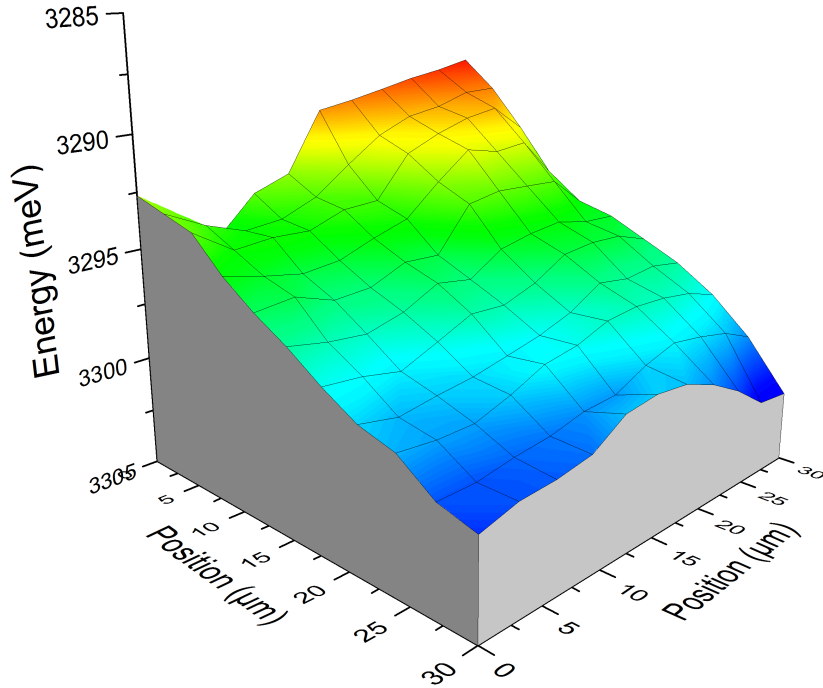


FIGURE 4.19 – Profil en énergie de la zone de $30 \mu m^2$ utilisé pour l'étude de la propagation du condensat présenté figure 4.20. Le profil en épaisseur est inversement proportionnel au profil en énergie.

La surface est relativement homogène et présente un fort gradient d'épaisseur (15 meV sur $30 \mu m$ soit une variation d'épaisseur totale de $\approx 100 \text{ \AA}$). L'étude en puissance dans l'espace réel montrée figure 4.20 nous permet d'étudier et de quantifier le déplacement du condensat en fonction de l'intensité d'excitation.

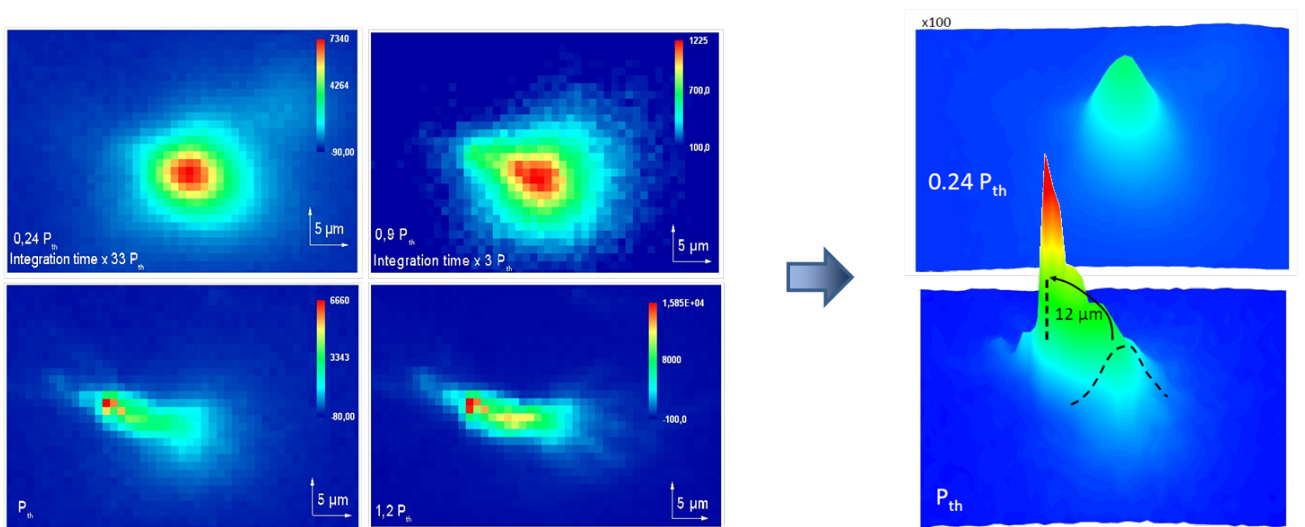


FIGURE 4.20 – Diagrammes de l'émission dans l'espace réel en fonction de la puissance d'excitation.

A faible puissance, l'émission reste localisée sous le spot d'excitation. En revanche, pour des puissances plus importantes, on observe un déplacement spatial de l'émission. Juste en dessous du seuil, on remarque déjà que la tache d'émission n'est plus circulaire, les polaritons semblent vouloir suivre une direction particulière et on observe une "fuite" dans la partie supérieure gauche. Au seuil le condensat migre de plus de $10\ \mu m$ dans le sens de la fuite observée avant le seuil. Enfin au dessus du seuil les polaritons ne semblent pas pouvoir migrer plus loin. Les particules sont sans doute bloquées par un défaut de l'échantillon (marque de potentiel importante) et n'ont pas assez d'énergie pour continuer. Après une propagation sur $12\ \mu m$, on arrive au bord de la cartographie montré figure 4.19. Au delà, l'échantillon présente probablement une surface beaucoup moins homogène.

Une autre raison peut expliquer un arrêt de la propagation des polaritons. En effet la cartographie a été réalisée à l'aide d'un spot de $2\ \mu m$ de diamètre, c'est pourquoi un défaut (exemple : une dislocation sur une couche) plus petit que $2\ \mu m$ ne peut être détecté. Il peut cependant piéger les polaritons et stopper leur propagation.

L'image en 3D de la figure 4.20 apporte une information supplémentaire. Sur l'image au dessus du seuil, on remarque que l'augmentation de l'intensité de la zone d'excitation vers le maximum d'intensité suit une forme en marches d'escalier. Ces marches sont de l'ordre de $2\ \mu m$, ce qui est l'estimation qui avait été supposée lors des simulations précédentes de la figure 4.17. Cela montre que les polaritons se propagent dans le sens du gradient de potentiel vers les plus grandes épaisseurs.

Il semblerait alors que les particules sont repoussées de la zone d'excitation et sont en suite accélérées par le gradient de potentiel. Pour vérifier cette hypothèse on change le detuning et on cherche à travailler avec des polaritons dont la partie photon est plus faible. Le condensat devrait être alors moins sensible au gradient de potentiel (c.f figure 4.17) et la propagation devrait être plus faible. Malheureusement l'homogénéité de l'échantillon ne permet pas de faire varier indépendamment, le detuning et le gradient. Il est alors difficile de conclure sur l'importance des deux mécanismes (éjection à partir du spot d'excitation ; accélération par le gradient) sur la propagation du condensat.

On se propose alors d'étudier ce phénomène à l'aide d'un nouvel échantillon (figure 4.21) qui lui ne possède aucun gradient d'épaisseur. Ce degré de liberté étant supprimé, nous allons pouvoir vérifier l'influence du gradient d'épaisseur sur le comportement du condensat.

L'épaisseur de la couche de ZnO étant plus fine, la valeur du dédoublement de Rabi de cette cavité est inférieur à celle de la cavité précédente ($\Omega_{ZFeng} \approx 230\ meV$, $\Omega_{Z1232} \approx 160\ meV$), c'est pourquoi nous utiliserons cet échantillon uniquement pour l'étude de la propagation du condensat. Cette valeur plus faible que celle de la cavité ZFeng nous amène à observer une densité au seuil deux à cinq fois plus importante. Ces différences doivent être prises en compte et aucune comparaison quantitative directe avec les résultats précédents ne sera possible.

Le substrat est une couche de silicium sur laquelle des motifs (losanges, carrés, hexagones) de différentes tailles ont été gravés ; ils vont servir de précurseurs à la croissance. Le DBR inférieur est constitué de 30 paires $AlN/AlGaN$ qui ne présentent aucune fissure (pour les motifs inférieur à $100\ \mu m$). La couche de ZnO est fine ($7\lambda/4 \approx 280\ nm$) et nous permet

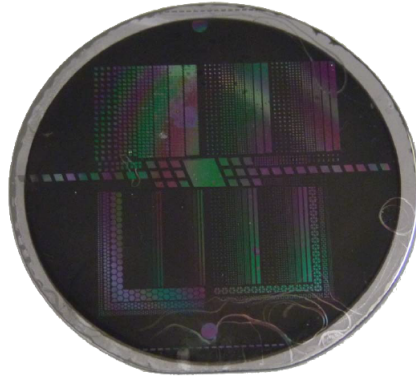


FIGURE 4.21 – Photographie de l'échantillon Z1232. On observe les motifs gravés post-croissance sur le substrat en silicium

de nous affranchir des effets de mode switching. Enfin le DBR supérieur est constitué de 11 paires HfO_2/SiO_2 .

Cette conception particulière a pour but d'étudier l'influence de la forme et de la taille des mésas (îlots de croissance) sur la qualité de l'épitaxie des différentes couches relatives à l'échantillon. Cependant elle s'avère dans notre cas idéale pour l'étude de la propagation du condensat.

La figure 4.22 montre une étude de l'émission du condensat dans l'espace réel en fonction de la puissance .

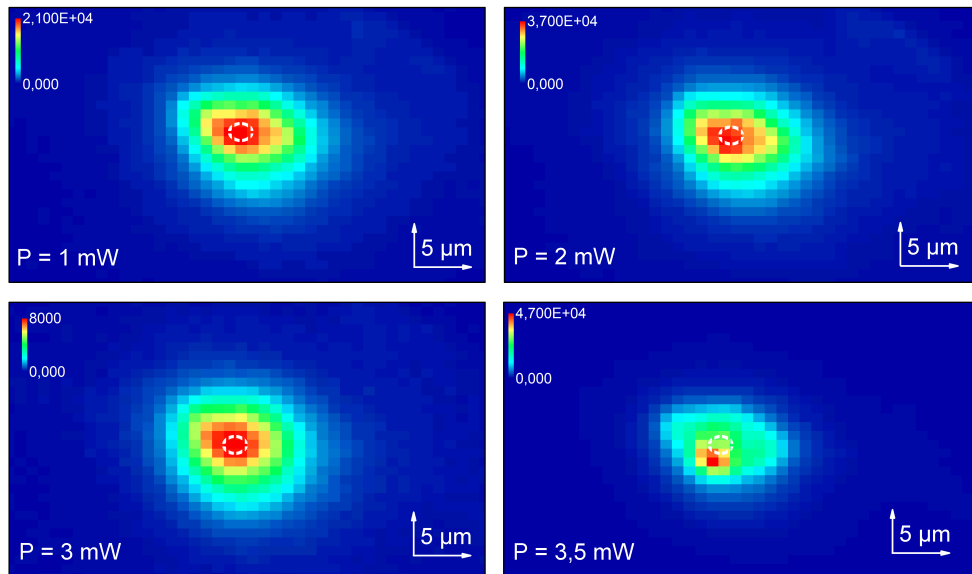


FIGURE 4.22 – Imagerie dans l'espace réel du condensat pour une puissance d'excitation croissante.

Comme précédemment, sous faible intensité, l'émission est localisée sous le spot d'excitation (cercle pointillé blanc). Le seuil est atteint entre 3 et 3,5 mW en entrée d'objectif, soit une excitation trois fois et demi plus forte que pour la mesure de la figure 4.20. Le faible déplacement mesuré au seuil n'est pas significatif. En effet un déplacement de 1 à 2 μm entre dans le domaine d'incertitude expérimentale (instabilité de l'excitation laser, vibrations du

cryostat).

La couche de ZnO est quatre fois moins épaisse que dans la mesure de la figure 4.20, le dédoublement de Rabi est donc plus faible et la densité de particules plus importante. On pourrait alors s'attendre à observer un déplacement plus important, cependant le condensat reste localisé sous la zone d'excitation.

4.6.1 Synthèse

La propagation du condensat dans une microcavité planaire semble être fortement dépendante du profil d'épaisseur de la couche active. Les particules sont créées sous le spot d'excitation et, en présence d'un gradient d'épaisseur, peuvent migrer suivant ce gradient. La distance parcourue dépendra de l'homogénéité de la cavité et aura pour limite le temps de vie des polaritons, déterminé par le facteur de qualité.

Conclusion

Ce travail de thèse constitue une contribution à dominante expérimentale à l'étude des microcavités à base de ZnO. Les mesures de spectroscopie associées aux modélisations ont permis d'explorer plusieurs mécanismes impliqués dans la création, la relaxation et l'émission des polaritons de cavité jusqu'à l'obtention du laser à polaritons.

Les cavités ont évolué au fur et à mesure des expériences et des analyses, le but étant toujours d'augmenter le facteur de qualité tout en optimisant la qualité cristalline de la couche de ZnO. Dans ce manuscrit, nous avons présenté l'évolution de la conception des microcavités planaires à travers trois structures. Les mesures de micro-photoluminescence ont montré que le facteur de qualité a été multiplié par 10 et une nouvelle approche dans la fabrication des cavités a considérablement amélioré la qualité cristalline de ZnO.

Dans un premier temps l'étude de la cavité semi-hybride a permis de montrer les inconvénients de l'utilisation de paires AlN/AlGaIn dans le DBR supérieur. Elle permettent d'obtenir une bonne qualité de croissance du ZnO mais l'excitation UV est en partie absorbée par ces couches. Cette absorption est trop importante et empêche l'observation du laser à polaritons. L'excitation incidente étant trop faible, la densité de particules créée ne permet pas une bonne relaxation jusqu'au niveau de plus basse énergie de la branche basse et nous avons alors montré l'effet bottleneck.

L'évolution vers les microcavités semi-hybrides utilisant un DBR diélectrique comme miroir supérieur permet une excitation plus efficace. Les études de micro-photoluminescence ont alors montré une relaxation des particules jusqu'en $\vec{k} = 0$ de la branche basse polaritonique et le laser à polaritons a été observé à basse température dans ZnO pour la première fois. L'étude de la relaxation des polaritons a alors été réalisée pour deux valeurs de detuning différentes et l'influence des phonons LO pour l'obtention d'un seuil bas a été mise en exergue.

Dans le dernier chapitre nous avons présenté une cavité entièrement hybride réalisée à partir d'une couche massive de ZnO. La qualité cristalline ainsi que la structure ont permis une étude complète du seuil laser sur une gamme sans précédent dans ZnO de température et de detuning. Nous avons défini deux régimes de fonctionnement qui caractérisent le diagramme de phase obtenu. Dans le premier, δ est positif et la composante excitonique des polaritons est forte. Le régime thermodynamique régit la relaxation et la densité critique au seuil est liée à la masse effective des particules. Dans le deuxième, δ est négatif et la composante excitonique est faible. Le régime cinétique caractérise la relaxation et la densité

au seuil est cette fois liée au temps de vie des polaritons. Entre ces deux régimes, les expériences confrontées aux calculs théoriques montrent un seuil laser minimal proche de $\delta = 0$ à température ambiante.

Dans un deuxième temps, l'utilisation d'une couche de ZnO massif d'épaisseur importante a permis de montrer un comportement intéressant que nous avons nommé "mode switching". Les mesures de micro-photoluminescence ont révélé que deux modes couplés proches en énergie peuvent servir à la relaxation des polaritons. La relaxation suivant l'une ou l'autre des courbes de dispersion est simplement contrôlée par la densité de particules créées lors de l'excitation. Nous avons montré que l'énergie de l'émission du laser peut alors être contrôlée en changeant l'intensité d'excitation. Enfin, l'étude de la propagation du condensat est une voie nouvelle à explorer dans ce type de cavité et les premiers résultats montrent l'importance du profil d'épaisseur de l'échantillon. Une propagation sur $12\ \mu\text{m}$ a été mesurée dans une zone où le gradient d'épaisseur est estimé à 10 nm. L'évolution vers de nouvelles cavités permettant de contrôler la propagation du condensat impliqueront naturellement des études expérimentales de la super-fluidité.

La condensation des polaritons associée à l'influence du detuning sur le seuil laser est un résultat important présenté dans ce manuscrit. Ce travail de recherche permet une confrontation intéressante entre ZnO et GaN qui sont les deux semi-conducteurs inorganiques (hors CuCl [3]) à grand gap permettant d'observer le laser à polaritons jusqu'à température ambiante. L'injection électrique est sans doute la prochaine étape importante qu'il faudra franchir afin de voir dans le futur la naissance de composants optoélectroniques utilisant les microcavités ZnO.

Table des figures

1.1	"Aiguilles" hexagonales de ZnO [38]	7
1.2	Réflexivité de ZnO à basse température [89]	7
1.3	Spectres d'absorption de ZnO à basse température, (gauche) $E \perp c$, (droite) $E \parallel c$ [57].	8
1.4	Représentation cristallographique de ZnO pour une maille de type würtzite (a) et blende de zinc (b). La distance entre un atome de zinc et un atome d'oxygène est de 1,96 Å suivant l'axe c et 1,98 Å suivant les trois autres axes	9
1.5	Structure de bandes directe et indirecte.	11
1.6	Remplissage des orbitales du zinc et de l'oxygène et création des ions Zn^{2+} et O^{2-} (dans l'approximation d'un cristal de ZnO purement ionique).	12
1.7	Structure de bande au voisinage de $k = 0$. La levée de dégénérescence de la bande de valence est due au champ cristallin (CF) et à l'interaction spin-orbite (SO). Les transitions excitoniques sont liées à cet éclatement de la bande de valence.	13
1.8	Évolution de l'énergie des excitons A et B en fonction de la température pour un échantillon massif de ZnO. L'évolution déduite d'expériences de réflectivité et de photoluminescence est modélisée par la loi de Varshni.	14
1.9	Apparition d'un électron quasi-libre lors d'une rupture d'une liaison covalente.	15
1.10	Représentation simple de la création d'un exciton. Le vecteur d'onde ici est le vecteur d'onde de l'électron.	16
1.11	Diagramme des longueurs d'onde absorbées pour quelques semiconducteurs	17
1.12	Relation de dispersion de l'exciton.	19
1.13	(a) Représentation schématique des excitons de Frenkel, où la distance électron-trou est comparable au paramètre de maille du réseau cristallin. (b) Exciton de Wannier. La distance électron-trou est plus grande que le paramètre de maille du réseau cristallin.	19
1.14	Calcul de la partie réelle (n) et imaginaire (K) de l'indice de ZnO à 300K. Les traits pleins montrent l'indice en tenant compte des excitons. Les traits pointillés montrent l'évolution de l'indice hors excitons. Les transitions excitoniques modifient de façon importante les parties réelle et imaginaire de l'indice.	22
1.15	Représentation simple d'une cavité Fabry-Perot	23

1.16	Calcul de la transmission d'une cavité Fabry-Perot pour $R_1 = R_2 = R$ sous incidence normale. Pour L_{cav} et n_{cav} fixés, on regarde l'influence du coefficient de réflexion sur la transmission de la cavité.	24
1.17	Schéma du fonctionnement d'un miroir de Bragg.	26
1.18	Simulation à l'aide du modèle des matrices de transfert (Chapitre 2.4) de l'évolution de la bande d'arrêt (stop band) en fonction de la différence d'indice entre les couches et de leur nombre.	27
1.19	La longueur de pénétration dans un miroir de Bragg est définie comme la distance à laquelle il faut placer un miroir à phase fixe pour obtenir le même déphasage que le DBR.	27
1.20	Réfectivité calculée pour une cavité de ZnO (épaisseur 2λ). Pour simplifier cette représentation, nous n'avons utilisé que la partie réelle de l'indice optique (cavité non absorbante).	28
1.21	(Noir) Exemple d'un profil d'indice d'une cavité 2λ . La forte différence d'indice entre chaque couche du DBR explique la finesse du pic de transmission de la figure 1.20. (Bleu) Allure du module au carré du champ électrique à l'intérieur de la cavité. Pour simplifier cette représentation, nous n'avons utilisé que la partie réelle de l'indice optique (cavité non absorbante).	29
1.22	Représentation de la décomposition du vecteur d'onde d'une onde incidente.	30
1.23	Allure de la dispersion du photon E_{ph} et de l'exciton E_{exc} en fonction de l'angle (externe) d'incidence sur la cavité	31
1.24	Couplage faible. Dispersion angulaire du mode photonique de cavité (bleu), et des excitons (rouge).	32
1.25	Couplage fort. Dispersion angulaire des modes polaritoniques haut et bas.	32
1.26	(lignes pointillées) Position des modes non couplés (photonique et exciton). (lignes bleu) modes couplés, UPB et LPB . (ligne noire) β_{LPB}^2 : fraction photonique. (ligne rouge) α_{LPB}^2 : fraction excitonique	34
1.27	Création et relaxation des polaritons le long de la branche basse.	35
1.28	(a) (ligne rouge) Densité de particules au seuil en fonction du Rabi (Ω) pour un temps de vie photon $\approx 0,1$ ps. (ligne bleu) Limite en dessous de laquelle on passe en régime de couplage faible. (ligne pointillé) Seuil calculé sans prendre en compte le temps de vie des polaritons. (b) Densité de particules au seuil en fonction du facteur de qualité calculé pour un Rabi de 80 meV.	39
2.1	Gamme de longueurs d'ondes accessibles (excitation continue et femto-seconde)	42
2.2	Schéma du laser femto-seconde Mira-900. Le trajet du faisceau ainsi que les éléments principaux sont indiqués	44
2.3	Mesure de réfectivité sur un échantillon de ZnO épitaxié sur une couche de saphir	45
2.4	Schéma du montage de micro-réfectivité	45
2.5	Schéma du montage de spectroscopie résolue en angles	46
2.6	Schéma d'un cryostat à bain d'hélium. L'enceinte d'isolement et le réservoir d'azote permettent de garder l'échantillon à très basse température	47

2.7	Polarisation TE. Orientation des vecteurs $\vec{E}$, $\vec{B}$ et $\vec{k}$. <i>Rmq : Cette représentation n'est valable que dans le cas où le milieu 2 est transparent</i>	49
2.8	Polarisation TM. Orientation des vecteurs $\vec{E}$, $\vec{B}$ et $\vec{k}$	50
2.9	Représentation du formalisme d'Azzam et Bashara dans une structure multicouches.	52
2.10	représentation du champ électrique à une interface	52
2.11	Représentation du formalisme d'Azzam et Bashara dans une structures multicouches	54
2.12	Représentation du processus de photoluminescence. ① Photo-excitation, ② Thermalisation, ③ Recombinaison	55
2.13	Spectre de photoluminescence de ZnO [59]	56
2.14	Montage expérimental de micro-photoluminescence	57
2.15	Montage optique permettant une spectroscopie par imagerie de Fourier	57
2.16	Exemple de mesure en micro-photoluminescence dans l'espace réciproque à 300 K pour une excitation faible (microcavité ZnO).	58
2.17	Tracé optique de l'imagerie 2D	58
2.18	Exemple de mesure en micro-photoluminescence 2D dans l'espace réel (microcavité ZnO).	59
3.1	Etapes de réalisation de la cavité Z617 : (1) ZnO ($\lambda/2$) sur nitrure, 3 paires $AlN/AlGaN$. (2) dépôt du miroir inférieur, 3,5 paires $SiO_2/SiN + Al$. (3) Retrait du substrat silicium. (4) On ferme la cavité par le miroir supérieur, 10 paires SiO_2/SiN	63
3.2	Etude de la couche d' AlN après retrait du silicium. (A gauche) imagerie par microscope optique. (A droite) image SEM (microscopie électronique). Le silicium n'est pas retiré complètement et on remarque la présence de fissures dans les nitrures. Des traces de silicium restent visibles à l'intérieur des craquelures.	64
3.3	Echantillon Z617	64
3.4	Images de microscopie optique pour différentes zones sur l'échantillon Z617. Grossissement $\times 10$. (a) zone 1. (b) zone 2. (c) zone 3. (d) zone 4.	65
3.5	Position en énergie du mode optique en fonction de la position sur l'échantillon. Mesures de macro-photoluminescences réalisée avec un spot d'excitation de $300 \mu m$. Mise en évidence du gradient d'épaisseur.	66
3.6	Mesure de micro-photoluminescence dans la zone 3 de l'échantillon Z617. $\tau_{photon} = 0,13 ps$	67
3.7	Mesure de micro-réflexivité dans la zone 3 de l'échantillon (spot de $2 \mu m$ de diamètre)	67
3.8	Cartographie du facteur de qualité pour deux zones voisines de la zone 3. Mesures réalisées au LCC.	67

3.9	Mesures de macro-réfléctivité résolues en angle. a),b) montrent les mesures pour les polarisations TE et TM. On repère la UPB en bleu, la LPB en rouge et les modes de Bragg en vert et violet. c) On utilise le modèle quasi particule pour retrouver les mesures du panneau b). d) Composition de la branche basse en fonction de l'angle d'incidence. Pour des angles inférieurs à 30° la LPB est loin des excitons et le poids photonique est fort. Entre 30° et 50° la LPB est très excitonique. Après 50° le premier mode de Bragg repousse le mode couplé et la LPB suit la dispersion du mode de Bragg	68
3.10	Répartition du champ électrique dans la cavité Z617. (Noir) profil d'indice de la cavité Z617. (Bleu) allure du module au carré du champ électrique à l'intérieur de la cavité.	69
3.11	Mesures de photoluminescence à 70 K résolues en angle (spot de $300\ \mu m$). Pour trois puissances d'excitation, l'intensité de l'émission est tracée en fonction de l'angle.	70
3.12	Mesures de spectroscopie résolue en angle. Plus l'excitation est importante, plus les fuites dans le mode de Bragg augmentent. Mesures effectuées au laboratoire L2C à Montpellier.	71
3.13	Imagerie de Fourier à 70 K montrant la relaxation des particules sans bottleneck sous très faible et forte excitation.	72
3.14	Etapes de réalisation de la cavité Z739. (1) On dépose 13 paires d'AlN/AlGaIn sur un substrat Si orienté (111). (2) ZnO $5\lambda/4$ sur nitrures. (3) la cavité est complétée par un DBR diélectrique 10 paires HfO_2/SiO_2	73
3.15	Photographie du wafer après épitaxie. Le morceau entouré en rouge est utilisé pour les mesures expérimentales	74
3.16	Simulations de la structure Z739 utilisant le modèle des matrices de transfert. Variation d'épaisseur de la couche active sous incidence normale et variation de l'angle d'incidence pour une épaisseur nominale de 200 nm.	74
3.17	La cavité est inhomogène et nous oblige à travailler avec un spot d'excitation de l'ordre de $2\ \mu m$ de diamètre pour avoir un facteur de qualité élevé.	75
3.18	Mesures de macro-réfléctivité résolues en angle. a),b) montrent les mesures pour les polarisations TM et TE. On repère la UPB en bleu, la LPB en rouge et les modes de Bragg en vert. c) On utilise le modèle QP pour simuler les mesures de la figure a). d) Décomposition de la LPB sur la base des modes non couplés (photon, exciton, et mode de Bragg) en fonction de l'angle d'incidence.	76
3.19	Emission dans l'espace de Fourier à 90K pour quatre puissances d'excitation croissantes. $\delta = -15\ meV$. Les lignes pointillées représentent la dispersion angulaire du mode de cavité nu (C) et l'énergie des excitons (X). La ligne continue représente la dispersion du mode couplé calculé en utilisant le modèle Q.P	77

3.20	Spectres de micro-photo-luminescence sous incidence normale pour différentes intensités d'excitation ($P_{th} = 1, 7 \text{ mW}$ à l'entrée de l'objectif). Ces mesures sont extraites de l'expérience présentée figure 3.15. $\delta = -15 \text{ meV}$. L'encart montre le blue shift de l'émission provenant de la LPB en fonction de la puissance d'excitation.	78
3.21	(noir) Intensité intégrée en fonction de la puissance d'excitation. (bleu) Largeur à mi-hauteur du pic principal d'émission en fonction de la puissance d'excitation.	79
3.22	(a) Spectres de micro-photo-luminescence à 120 K sous incidence normale pour différentes puissances d'excitation ($\delta = -52 \text{ meV}$). L'encart montre le blue-shift de la LPB en fonction de la puissance incidente. (b) Intensité intégrée (noir) du pic principal d'émission et sa largeur à mi-hauteur (bleu) en fonction de l'intensité d'excitation.	80
3.23	Simulation de l'occupation du bas de la LPB obtenue par les équations semi-classiques de Boltzmann en fonction de l'intensité d'excitation. (noir) $\delta = -15 \text{ meV}$ (rouge) $\delta = -52 \text{ meV}$. Les lignes pointillées indiquent les pentes linéaires et quadratiques.	81
3.24	Evolution des excitons liés aux donneurs en fonction de la puissance de pompage dans un échantillon de ZnO massif.	82
3.25	Etude du blue-shift à différents points et différentes températures en fonction de la puissance seuil pour les études menées sur la cavité Z739.	83
4.1	(1) croissance du DBR inférieur, (2) dépôt d'une couche d'aluminium et du substrat S_iO_2 (3) retournement de la structure et amincissement de la couche de ZnO.(4) croissance du DBR supérieur.	86
4.2	Rugosité de surface de la cavité observée par AFM. Mesure réalisée au CRHEA	87
4.3	Facteur de qualité mesuré sur un spectre de micro-photoluminescence collecté pour $\theta = 0^\circ$ à $T=300 \text{ K}$ sous très faible excitation. L'insert montre l'imagerie de Fourier de l'émission pour la même mesure.	87
4.4	Facteurs de qualité mesurés sur un spectre de micro-photoluminescence collecté pour $\theta = 0^\circ$ à 70 K . Le facteur de qualité est différent selon l'épaisseur de la cavité. L'effet laser est observé à 3309 meV . L'insert montre l'imagerie de Fourier de l'émission pour la même mesure.	88
4.5	Mesure de photo-luminescence à 0° sous faible excitation à 300 K réalisée au LCC. Le gradient d'épaisseur est mis en évidence par l'imagerie en fausse couleur. (lignes pointillées) Calcul de la position des modes couplés pour un gradient d'épaisseur simulé avec le modèle des matrices de transfert.	89
4.6	(a) Position des modes couplés en fonction de l'épaisseur de cavité. (b) Estimation du dédoublement de Rabi en fonction de l'épaisseur de cavité. Les deux calculs sont réalisés à l'aide des matrices de transfert pour une température de 300 K	90

4.7	Imagerie de Fourier à 5K sous faible puissance d'excitation. La zone étudiée est très épaisse ($\approx 770 \text{ nm}$), ce qui permet d'observer 3 branches basses sur une plage de 70 meV. Le poids excitonique à $k = 0$ varie entre la LPB1 et la LPB3 de 26%	91
4.8	Position en énergie des excitons libres en fonction de l'intensité d'excitation. (bleu) Zone épaisse $\approx 400 \text{ nm}$ ($2,5\lambda$). (rouge) Zone fine $\approx 200 \text{ nm}$ ($<2,5 \lambda$)	92
4.9	a) Spectres de micro-photo-luminescence à 70 K sous incidence normale pour différentes puissances d'excitation ($E_X - E_{LPB} = 45 \text{ meV}$). b) Intensité intégrée (noir) du pic d'émission et sa largeur à mi-hauteur (bleu) en fonction de l'intensité d'excitation.	92
4.10	Observation de la condensation de polaritons en fonction de la puissance incidente. (a,b,c) spectres sous (gris), au (rouge) et au dessus du seuil (noir). (d,e,f) intensité d'émission intégrée. (g,h,i) largeur de l'émission à mi-hauteur. (j,k,l) Energie du maximum d'émission. (a,d,g,j) 5 K et $\delta = +390 \text{ meV}$ (fraction excitonique 92%). (b,e,h,k) 70 K et $\delta = +230 \text{ meV}$ (fraction excitonique 84%). (c,f,i,l) 300 K et $\delta = -124 \text{ meV}$ (fraction excitonique $< 30\%$). (ligne pointillée) (a) position en énergie des excitons liés (D^0X), (c) position du mode optique non couplé de la cavité calculée avec les modèles des matrices de transfert. Les zones hachurées indiquent une émission multi-longueurs d'onde. Ces mesures expérimentales ont été obtenues au laboratoire L2C de Montpellier	94
4.11	Micro-photo-luminescence en imagerie de Fourier pour deux cas extrêmes. (a) $\delta = +450 \text{ meV}$, 96% exciton. (b) $\delta = -95 \text{ meV}$, 70% photon.	95
4.12	Gamme de detunings où la condensation est observée pour une large plage de température	95
4.13	(a) Seuil de condensation des polariton sous excitation quasi-continue pour T=5 K à 300 K en fonction du detuning (mesures réalisées au LCC). L'épaisseur de la cavité est de $2,5\lambda$. (Encart) Double minimum du seuil mis en évidence sous excitation fs. (b) Densité de seuil calculée par l'équipe de G. Malpuech en utilisant les équations de Boltzmann semi-classiques pour la même gamme de paramètres que (a). Les zones I et II correspondent respectivement aux régimes cinétique et thermodynamique.	97
4.14	Imagerie de Fourier prises pour un détuning décroissant sous excitation constante (au seuil) à 70 K.	97
4.15	Valeur du detuning δ en fonction de l'épaisseur de la couche de ZnO. Les symboles repèrent la position des modes polaritoniques pour différentes épaisseurs de cavité. La ligne noire relie les modes sur lesquels on observe la condensation.	98
4.16	Observation du mode switching par imagerie dans l'espace de Fourier pour trois puissances d'excitation différentes pour une épaisseur voisine de 913 nm. Les spectres représentent l'intensité d'émission à 0° .	99
4.17	Profil de potentiel vu par le condensat de polaritons en fonction de la composante photonique. Plus la fraction photonique est forte, plus les marches de potentiel vu par les polaritons sont importantes.	100

4.18	Simulation de l'émission du condensat de polaritons à l'aide de l'équation de Gross-Pitaevskii dans les cas similaires à la figure 4.16 b) et c).	100
4.19	Profil en énergie de la zone de $30 \mu m^2$ utilisé pour l'étude de la propagation du condensat présenté figure 4.20. Le profil en épaisseur est inversement proportionnel au profil en énergie.	102
4.20	Diagrammes de l'émission dans l'espace réel en fonction de la puissance d'excitation.	102
4.21	Photographie de l'échantillon Z1232. On observe les motifs gravés post-croissance sur le substrat en silicium	104
4.22	Imagerie dans l'espace réel du condensat pour une puissance d'excitation croissante.	104

Bibliographie

- [1] H Amano, M Kito, K Hiramatsu, and I Akasaki. p-type conduction in mg-doped gan treated with low-energy electron beam irradiation (leebi). *Japanese Journal of Applied Physics*, 28 :L2112, 1989.
- [2] M H Anderson, J R Ensher, M R Matthews, C E Wieman, and E A Cornell. Observation of bose einstei condensation in a dilute atomic vapor. *Science*, 269 :198–201, 1995.
- [3] G Oohata ans T Nishioka, D Kim, H Ishihara, and M Nakayama. Giant rabi splitting in a bulk cucl microcavity. *Physical Review B*, 78 :233304, 2008.
- [4] N Antoine-Vincent, F Natali, D Byrne, A Vasson, P Disseix, J Leymarie, M Leroux, F Semond, and J Massies. Observation of rabi splitting in a bulk gan microcavity grown on silicon. *Physical Review B*, 68 :153313, 2003.
- [5] R M A Azzam and N M Bashara. *Ellipsometry and polarized light*. North-Holland publishing company, Amsterdam, 1977.
- [6] D I Babic and S W Corzine. Analytic expressions for the reflection delay, penetration depth, and absorptance of quarter-wave dielectric mirrors. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28 :514, 1992.
- [7] D Bajoni. Polariton lasers. hybrid light-matter lasers without inversion. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 45 :313001, 2012.
- [8] J.M Blatt, W Brandt, and K.W Boer. Bose-einstein condensation of excitons. *Physical Review*, 126, 1962.
- [9] H B ernard. The cellular whirlpools in a liquid sheet transporting heat by convection in a permanent regime. *Annales de Chimie et de Physique*, 23 :62–101, 1901.
- [10] C W Bunn. The lattice-dimensions of zinc oxide. *Proceedings of the Physical Society*, 47 :835, 1935.
- [11] R Butt  , G Christmann, E Feltin, J F Carlin, M Mosca, M Ilegems, and N Grandjean. Room-temperature polariton luminescence from a bulk gan microcavity. *Physical Review B*, 73 :033315, 2006.
- [12] R Butt  , J Levrat, G Christlann, E Feltin, J.F Carlin, and N Grandjean. Phase diagram of a polariton laser from cryogenic to room temperature. *Physical Review B*, 80 :233301, 2009.
- [13] N Chand, A.V Syrbu, and P.A Houston. Lpe growth effects of inp, in 0.53 ga 0.47 as, and in 0.75 ga 0.25 p 0.45 on structured inp substrates. *Journal of Crystal Growth*, 61 :53, 1983.

- [14] K.Y Cheng and A.Y Cho. Silicon doping and impurity profiles in $\text{Ga}_{0.47}\text{In}_{0.53}\text{As}$ and $\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$ grows by molecular beam epitaxy. *J Appl Phys*, 53 :4411, 1982.
- [15] G Christmann, D Simeonov, R Butté, E Feltin, J.F Carlin, and N Grandjean. Impact of disorder on high quality factor iii-v nitride microcavities. *Applied Physics Letters*, 89 :2611, 2006.
- [16] S Christopoulos, G Baldassarri Hoyer von Hogersthall, A J D Grundy, P G Lagoudakis, A V Kavokin, J J Baumberg, G Christmann, R Butte, E Feltin, J F Carlin, and N Grandjean. Room-temperature polariton lasing in semiconductor microcavities. *Physical Review Letters*, 98 :126405, 2007.
- [17] C Ciuti, P Schwendimann, B Deveaud, and A Quattropani. Theory of the angle-resonant polariton amplifier. *Physical Review B*, 62(8) :R4825, 2000.
- [18] C Cohen-Tannoudji, B Diu, and F Laloe. *Quantum Mechanics*. Wiley-Interscience, 2006.
- [19] Le Si Dang, D Heger, R André, F Boeuf, and R Romestain. Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity. *Physical Review Letter*, 81 :3920, 1998.
- [20] K B Davis, M-O Mewes, M R Andrews, N J Van Druten, D S Durfee, D M Kurn, and W Ketterle. Bose einstein condensation in a gas of sodium atoms. *Physical Review Letters*, 75 :3969–3973, 1995.
- [21] H Deng, H Haug, and Y Yamamoto. Exciton-polariton bose-einstein condensation. *Reviews of Modern Physics*, 82 :1489, 2010.
- [22] Hui Deng, Gregor Weihs, Charles Santori, Jacqueline Bloch, and Yoshihisa Yamamoto. Condensation of semiconductor microcavity exciton polaritons. *Science*, 298(5591) :199–202, 2002.
- [23] B Deveaud. Physics of semiconductor microcavities. *Wiley*, 2007.
- [24] B Enright and D Fitzmaurice. Spectroscopic determination of electron and hole effective masses in a nanocrystalline semiconductor film. *The Journal of Physical Chemistry*, 100(3) :1027–1035, 1996.
- [25] S Faure. *Interaction lumière-matière dans les microcavités massives à base de ZnO : du couplage fort à température ambiante vers le laser à polariton*. Thèse de doctorat, Université de Montpellier, 2009.
- [26] S Faure, T Guillet, P Lefebvre, T Bretagnon, and B Gil. Comparison of strong coupling regimes in bulk GaAs, GaN, and ZnO semiconductor microcavities. *Physical Review B*, 78 :235323, 2008.
- [27] H Franke, C Sturm, R Schmidt-Grund, G Wagner, and M Grundmann. Ballistic propagation of exciton-polariton condensates in a ZnO-based microcavity. *New Journal of Physics*, 14 :013037, 2012.
- [28] M.D Fraser, G Roumpos, and Y Yamamoto. Vortex-antivortex pair dynamics in an exciton-polariton condensate. *New Journal of Physics*, 11 :113048, 2009.
- [29] J Frenkel. On the transformation of light into heat in solids. i. *Physical Review*, 37 :17, 1931.

- [30] T Frisch, Y Pomeau, and S Rica. Transition to dissipation in a model of superflow. *Physical Review Letters*, 69 :1644–1647, 1992.
- [31] B Gil and A Alemu. Optical anisotropy of excitons in stained gan epilayers grown along the [1010] direction. *Physical Review B*, 56 :124, 1997.
- [32] B Gil, S Clur, and O Briot. The exciton-polariton effect on the photoluminescence of gan on sapphire. *Solid State Communications*, 104 :267–2, 1997.
- [33] T Guillet, M Mexis, J Levrat, G Rossbach, C Brimont, T Bretagnon, B Gil, R Butté, N Grandjean, L Orosz, F Réveret, J Leymarie, J Zuniga-Pérez, M Leroux, F Semond, and S Bouchoule. Polariton lasing in a bulk zno microcavity. *Applied Physics Letters*, 99 :161104, 2011.
- [34] J Gutowski, N Presser, and I Broser. *Physical Review B*, 38 :9746, 1988.
- [35] P.C Haljan, I Coddington, P Engels, and E.A Cornell. Driving bose-einstein-condensate vorticity with a rotating normal cloud. *Phys Rev Lett*, 87 :210403, 2001.
- [36] H Haug and S Koch. On the theory of laser action in dense exeiton systems. *physica status solidi (b)*, 82(2) :531–543, 1977.
- [37] R Hauschild, H Priller, M Decker, J Bruckner, H Kalt, and C Klingshirn. Temperature dependent band gap and homogeneous line broadening of the exciton emission in zno. *Physical Status Solidi c*, 3 :976, 2006.
- [38] R Helbig. Über die züchtung von grösseren reinen und dotierten zno-kristallen aus der gasphase. *Journal of Crystal Growth*, 15 :25, 1972.
- [39] K.L Hess, D.L Kasemet, and P.D Dapkus. The effects of v/iii ratio and growth temperature on the electrical and optical properties of inp grown by low-pressure metaloragnic chemical vapor deposition. *J. of electronic Mat.*, 13, 1984.
- [40] J J Hopfield. Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals. *Physical Review*, 112 :1555, 1958.
- [41] J J Hopfield. Fine structure in the optical absorption edge of anisotropic crystals. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 15 :97, 1960.
- [42] A Imamoglu, R J Ram, S Pau, and Y Yamamoto. Nonequilibrium condensates and lasers without inversion : exciton-polariton lasers. *Physical Review A*, 53 :4250, 1996.
- [43] R Johne, D D Solnyshkov, and G Malpuech. Theory of exciton-polariton lasing at room temperature in zno microcavities. *Applied Physics Letters*, 93 :211105, 2008.
- [44] J Kasprzak, R André, IA Shelykh, AV Kavokin, Yuri G Rubo, KV Kavokin, G Malpuech, et al. Build up and pinning of linear polarization in the bose condensates of exciton polaritons. *Physical Review B*, 75(4) :045326, 2007.
- [45] J Kasprzak, M Richard, S Kundermann, A Baas, P Jeambrun, J M J Keeling, F M Marchetti, M H Szymanska, R Andre, J L Staehli, V Savona, P B Littlewood, B Deveaud, and Le Si Dang. Bose-einstein condensation of exciton polaritons. *Nature*, 443 :05131, 2006.
- [46] J Kasprzak, D.D Solnyshkov, R André, Le Si Dang, and G Malpuech. Formation of an exciton polariton condensate : Thermodynamic versus kinetic regimes. *Physical Review Letters*, 101 :146404, 2008.

- [47] A Kavokin, J Baumberg, G Malpuech, and F Laussy. *Microcavities. Oxford Science Publications*, 2006.
- [48] A Kavokin and B Gil. Gan microcavities : Giant rabi splitting optical anisotropy. *Applied physics letters*, 72 :2880–2881, 1998.
- [49] A Kavokin and G Malpuech. Cavity Polaritons, year = 2003, publisher= Elsevier,.
- [50] A Kavokin, G Malpuech, and F.P Laussy. Polariton laser and polariton superfluidity in microcavities. *physics Letters A*, 306 :187, 2003.
- [51] A V Kavokin, J J Baumberg, G Malpuech, and F Laussy. *Microcavities. Oxford University Press*, 2007.
- [52] C F Klingshirn, B K Meyer, A Waag, A Hoffmann, and J Geurt. *Zinc Oxide*. Springer, 2010.
- [53] P Lawaetz. Valence-band parameters in cubic semiconductors. *Physical Review B*, 4 :3460–34, 1971.
- [54] J Levrat, R Butte, E Feltin, J F Carlin, N Grandjean, D D Solnyshkov, and G Malpuech. Condensation phase diagram of cavity polaritons in gan-based microcavities : Experiment and theory. *Physical Review B*, 81 :125305, 2010.
- [55] Feng Li, L. Orosz, O. Kamoun, S. Bouchoule, C. Brimont, P. Disseix, T. Guillet, X. Lafosse, M. Leroux, J. Leymarie, M. Mexis, M. Mihailovic, G. Patriarche, F. Réveret, D. Solnyshkov, J. Zuniga-Perez, and G. Malpuech. From excitonic to photonic polariton condensate in a zno-based microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :196406, May 2013.
- [56] Feng Li, Laurent Orosz, Olfa Kamoun, Sophie Bouchoule, Christelle Brimont, Pierre Disseix, Thierry Guillet, Xavier Lafosse, Mathieu Leroux, Joel Leymarie, et al. From excitonic to photonic polariton condensate in a zno-based microcavity. *Physical review letters*, 110(19) :196406, 2013.
- [57] W Y Liang and A D Yoffe. Transmission spectra of zno single crystal. *Physical Review Letters*, 20 :59, 1968.
- [58] P Loose, M Rosenzweig, and M Wöhlecke. *Physica Status solidi (b)*, 75 :137, 1976.
- [59] E Mallet, P Disseix, D Lagarde, M Mihailovic, F Reveret, T V Shubina, and J Leymarie. Accurate determination of homogeneous and inhomogeneous excitonic broadening in zno by linear and nonlinear spectroscopies. *Physical Review B (R)*, 87 :161202, 2013.
- [60] G Malpuech, A Di Carlo, A Kavokin, J.J Baumberg, M Zamfirescu, and P Lugli. Room-temperature polariton lasers based on gan microcavities. *Applied Physics Letters*, 81 :421, 2002.
- [61] Y Mamou. Une pénurie de produits de base mine l’industrie. *Le Monde*, édition du 3 Août 2010.
- [62] F Medard, J Zuniga-Perez, P Disseix, M Mihailovic, J Leymarie, A Vasson, F Semond, E Frayssinet, J C Moreno, M Leroux, S Faure, and T Guillet. Experimental observation of strong light-matter coupling in zno microcavities : Influence of large excitonic absorption. *Physical Review B*, 79 :125302, 2009.

- [63] B K Meyer, H Alves, D M Hofmann, W Kriegseis, D Forster, F Bertram, J Christen, A Hoffmann, M Strassburg, M Dworzak, U Haboeck, and A V Rodina. Bound exciton and donor-acceptor pair recombinations in zno. *Physica Status Solidi b*, 241 :231, 2004.
- [64] H Morkoc and U Ozgur. *Zinc Oxide*. Wiley-VCH, 2009.
- [65] S.A Moskalenko. Reversible optico-hydrodynamic phenomena in a nonideal exciton gas. *Soviet Physics-Solid State*, 4 :199–204, 1962.
- [66] N Nakajima, S Yamazaki, and K Akita. Liquid phase epitaxial growth of high purity in 1-xga xas and inp on (100) and (111) b faces. *Journal of Crystal Growth*, 56 :547, 1982.
- [67] S Nakamura, T Mukai, and M Senoh. Candela-class high-brightness ingan/algan double-heterostructure blue-light-emitting diodes. *Applied Physics Letters*, 64 :1687, 1994.
- [68] M Oishi and K Kursiwa. Metalorganic vpe of ingaas on inp. *J. App. Phys.*, 21 :203, 1982.
- [69] L Orosz, F Réveret, F Médard, P Disseix, J Leymarie, M Mihailovic, D Solnyshkov, G Malpuech, J Zuniga-Pérez, F Semond, M Leroux, S Bouchoule, X Lafosse, M Mexis, C Brimont, and T Guillet. Lo-phonon-assisted polariton lasing in a zno-based microcavity. *Physical Review B*, 85 :R121201, 2012.
- [70] M.B Panish. Molecular beam epitaxy of gaas and inp with gas sources for as and ip. *J. Effect. Soc.*, 127.
- [71] G Panzarini, L C Andreani, A Armitage, D Baxter, M S Skolnick, V N Astratov, J S Roberts, A V Kavokin, M R Vladimirova, and M A Kaliteevski. Cavity-polariton dispersion and polarization splitting in single and coupled semiconductor microcavities. *Physics of the Solid State*, 41 :1223, 1999.
- [72] Yeh Pochi. *Optical waves in layered media*. Wiley, New York, 1988.
- [73] D C Reynolds, C W Litton, and T C Collins. Zeeman effects in the edge emission and absorption of zno. *Physical Review*, 140 :A1726, 1965.
- [74] D.C Reynolds and T.C Collins. Excited terminal states of a bound exciton-donor complex in zno. *Physical Review*, 185 :1099–1103, 1969.
- [75] Maxime Richard, Jacek Kasprzak, Robert Romestain, Régis André, et al. Spontaneous coherent phase transition of polaritons in cdte microcavities. *Physical review letters*, 94(18) :187401, 2005.
- [76] E Rosencher and B Vinter. *Optoélectronique (2éme édition)*. DUNOD, 2002.
- [77] U Rossler, editor. *Landolt-Börnstein New Series*, volume Group III, 41B. Springer, 1999.
- [78] M Saba, S Kundermann, C Ciuti, T Guillet, JL Staehli, and B Deveaud. Polariton amplification in semiconductor microcavities. *physica status solidi (b)*, 238(3) :432–438, 2003.
- [79] V Savona, L.C Andreani, P Schwendimann, and A Quattropani. Quantum well excitons in semiconductor microcavity : Unified treatment of weak and strong coupling regimes. *Solid State Communications*, 93 :733, 1995.

- [80] R Schmidt-Grund, B Rheinländer, C Czekalla, G Benndorf, H Hochmut, A Rahm, M Lorenz, and M Grundmann. Zno based planar and micropillar resonators. *Superlattices and Microstructures*, 41(5) :360–363, 2007.
- [81] D.D Sell, E Stokowski, R Dingle, and J.V DiLorenzo. Polariton reflectance and photoluminescence in high-purity gaas. *Physical Review B*, 7 :4568–45, 1973.
- [82] F Semond, I R Sellers, F Natali, D Byrne, M Leroux, J Massies, N Ollier, J Leymarie, P Disseix, and A Vasson. Strong light-matter coupling at room temperature in simple geometry gan microcavities grown on silicon. *Applied Physics Letters*, 87 :021102, 2005.
- [83] J Serrano, A H Romero, F J Manjon, R Lauck, M Cardona, and A Rubio. Pressure dependence of lattice dynamics of zno : An *ab initio* approach. *Physical Review B*, 69 :094306, 2004.
- [84] W Shan, W Walukiewicz, J.W Ager, and K.M Yu. Nature of room-temperature photoluminescence in zno. *Applied Physics Letters*, 86 :191911, 2005.
- [85] R Shimada, J Xie, V Avrutin, U Ozgur, and H Morkoc. Cavity polaritons in zno-based hybrid microcavities. *Applied Physics Letters*, 92 :011127, 2008.
- [86] N.N Syrbu, I.M Tiginyanu, V.V Zalamai, V.V Ursaki, and E.V Rusu. Excito polariton spectra and carrier effective masses in zno single crystals. *Physica B : Condensed Matter*, 353 :111–1, 2004.
- [87] 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 :7554–7563, 1997.
- [88] F Tassone and Y Yamamoto. Exciton-exciton scattering dynamics in a semiconductor microcavity and stimulated scattering into polariton. *Physical Review B*, 59 :10830, 1999.
- [89] D G Thomas. The exciton spectrum of zinc oxide. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 15 :86, 1960.
- [90] E Tomzig, H Helbig, and J Lumin. volume 14. 1976.
- [91] A Trichet, L Sun, G pavlovic, N.A Gippius, W Xie, Z Chen, M Richard, and Le Si Dang. One-dimensional zno exciton polaritons with negligible thermal broadening at room temperature. *Physical Review B*, 83, 2011.
- [92] A Tsukazaki, A Ohtomo, T Onuma, M Ohtani, T Makino, M Sumiya, K Ohtani, S.F Chichibu, S Fuke, Y Segawa, H Ohno, H Koinuma, and M Kawasaki. Repeated temperature modulation epitaxy for p-type doping and light-emitting diode based on zno. *Nature materials*, 4 :42, 2005.
- [93] Y P Varshni. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *Physica*, 34 :149, 1967.
- [94] W.F Vinen and J.J Niemela. Quantum turbulence. *Journal of Low Temperature Physics*, 128 :167, 2002.
- [95] N Vodjani. Thèse de docteur 3ème cycle, université pierre et marie curie, paris vi. *Thèse*, 1982.

- [96] M R Wagner, J H Schulze, R Kirste, M Cobet, A Hoffmann, C Rauch, A V Rodina, B K Meyer, U Roder, and K Thonke. γ_7 valence band symmetry related hole fine splitting of bound excitons in zno observed in magneto-optical studies. *Physical Review B*, 80 :205203, 2009.
- [97] C Weisbuch, M Nishioka, A Ishikawa, and Y Arakawa. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity. *Physical Review Letters*, 69 :3314, 1992.
- [98] E Werts, L Ferrier, D.D Solnyshkov, R Johne, D Sanvitto, A Lemaître, I Sagnes, R grousseau, A.V Kavokin, P Senellart, G Malpuech, and J Bloch. Spontaneous formation and optical manipulation of extended polariton condensates. *Nature Physics*, 6 :860, 2010.
- [99] E Wertz, A Amo, DD Solnyshkov, L Ferrier, TCH 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.
- [100] 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 :051108, 2009.
- [101] T Winiecki, B Jackson, J.F McCann, and C.S Adams. Vortex shedding and drag in dilute bose-einstein condensates. *Journal of Physics B*, 33 :4069–4078, 2000.
- [102] T Winiecki, J.F McCann, and C.S Adams. Pressure drag in linear and nonlinear quantum fluids. *Physical Review Letters*, 82 :5186–5189, 1999.
- [103] M Wouters, I Carusotto, and C Ciuti. Spatial and spectral shape of inhomogeneous nonequilibrium exciton-polariton condensates. *Physical Review B*, 77 :115340, 2008.
- [104] T Yokogawa, M Ogura, and T Kajiwara. Znse-zns strained layer superlattice grown by low pressure metalorganic vapor phase epitaxy using methylalkyls. *Appl. Phys. Lett.*, 49 :1702, 1986.
- [105] P Y Yu and M Cardona. *Fundamental of semiconductors*. Springer, 2010.
- [106] M Zamfirescu, A V Kavokin, B Gil, G Malpuech, and M Kaliteevski. Zno as a material mostly adapted for the realization of room-temperature polariton lasers. *Physical Review B*, 65 :161205(R), 2002.

RÉSUMÉ

Ce manuscrit présente une étude expérimentale par spectroscopie optique de l'interaction lumière-matière dans des microcavités à base d'oxyde de zinc. Nous avons étudié plusieurs types de cavités planaires qui se démarquent des structures déjà existantes autant par leurs structures que par leurs procédés d'épitaxie. Les avantages théoriques qui ont motivé la réalisation, sont discutés puis vérifiés par des mesures expérimentales de réflectivité et de photoluminescence en fonction de la température et de l'intensité d'excitation. Grâce aux caractéristiques optiques de ces nouvelles microcavités nous avons pu étudier l'émission cohérente de lumière basée sur la condensation des polaritons à haute température jusqu'à 300K. Des facteurs de qualité importants ainsi que des énergies de Rabi élevées permettent de mener une étude approfondie sur le lien qui existe entre la fraction photonique des polaritons et la valeur du seuil d'injection optique correspondant à l'effet laser à polaritons. Ce travail de recherche met en exergue les deux processus physiques identifiés conduisant à l'effet laser à polaritons : le régime thermodynamique et le régime cinétique. De plus, l'influence des interactions exciton-phonon est particulièrement soulignée comme un processus permettant de diminuer le seuil de condensation.

Mots clés : microcavité, oxyde de zinc, couplage fort, laser à polaritons, condensation de Bose-Einstein, spectroscopie, réflectivité, photoluminescence, simulation de la réponse optique, ...

ABSTRACT

This thesis reports a spectroscopic study of the light-matter interaction in ZnO based microcavities. We have examined several planar microcavities which differ from the previous ones through their structures and their epitaxial processes. The theoretical advantages that have driven these realizations are discussed and verified through experimental measurements of reflectivity and photoluminescence as a function of temperature and excitation intensity. Thanks to the optical characteristics of these new cavities, we have studied the coherent light emission based on the condensation of polaritons at high temperature, up to 300K. High optical quality factor and high Rabi splitting allow to deeply analyze the relationship which exists between the photonic fraction of polaritons and the threshold excitation value corresponding to the occurrence of the polariton laser effect. This work highlights two identified physical processes which contribute to the laser effect : the thermodynamic and kinetic regimes. Moreover, it appears that the exciton-phonon interaction constitutes a specific phenomenon which allows to reduce the polariton laser threshold.

Keywords : microcavity, zinc oxide, strong coupling, polariton laser, Bose-Einstein condensation, spectroscopy, reflectivity, photoluminescence, calculation of the optical response, ...