



HAL
open science

Etude de la préservation du couplage fort dans des guides ZnO sous forte injection optique en vue de la réalisation d'un laser à polaritons à température ambiante

Geoffrey Kreyder

► **To cite this version:**

Geoffrey Kreyder. Etude de la préservation du couplage fort dans des guides ZnO sous forte injection optique en vue de la réalisation d'un laser à polaritons à température ambiante. Matière Condensée [cond-mat]. Université Clermont Auvergne, 2021. Français. NNT : 2021UCFAC051 . tel-03621253

HAL Id: tel-03621253

<https://theses.hal.science/tel-03621253v1>

Submitted on 28 Mar 2022

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

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

Université Clermont Auvergne

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES

THESE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

Spécialité : Physique de la matière condensée

PAR

Geoffrey KREYDER

**Master Recherche
Spécialité Physique**

**ETUDE DE LA PRESERVATION DU COUPLAGE FORT DANS DES GUIDES ZNO SOUS
FORTE INJECTION OPTIQUE EN VUE DE LA REALISATION D'UN LASER A POLARITONS
A TEMPERATURE AMBIANTE**

Soutenue publiquement le 19 juillet 2021, devant la commission d'examen

J. ZUNIGA-PEREZ	Président du Jury
E. DELEPORTE	rapporteur
T. TALIERCIO	rapporteur
C. BRIMONT	examineur
J. LEYMARIE	directeur de thèse
P. DISSEIX	directeur de thèse

REMERCIEMENTS

Merci Pierre et Joël pour ces années passées ensemble. Mes chers directeurs de thèse, quelle aventure j'ai vécu ! Vous m'avez bien taillé, tordu, malaxé, retravaillé et puis poussé en avant. Votre soutien fut inestimable. L'expérience fut intense en apprentissages scientifiques et riche en méthodologie. Votre acuité scientifique fut essentielle à l'avancement de la thèse et votre humanité et bienveillance m'ont touché. Vous occuperez toujours une place particulière dans mon cœur. J'oserai jusqu'à dire que vous avez fait de moi un homme, du moins un homme meilleur. Quelles que soient les épreuves que me réserve la vie, je me souviendrai de vos enseignements. Je retiendrais surtout ces deux-là : pas de par cœur car le principe physique compte et ne précipitons les expériences mais analysons celles déjà réalisées. Votre organisation au départ déroutante pour le jeune ingénieur fraîchement diplômé que j'étais, m'a appris à me préparer à n'importe quelle éventualité et à être plus attentif. Aussi, je veux vous réaffirmer toute la gratitude que j'ai pour vous.

Je tiens également à remercier François Réveret qui a encadré le début de ma thèse et m'a lancé dans les premiers montages expérimentaux. Merci aussi aux autres membres de l'équipe qui m'ont épaulé lorsque j'en avais besoin : Martine Mihailovic pour ta gentillesse et pour avoir examiné consciencieusement mes pics de μPL et de μR et François Médard pour ta disponibilité et pour m'avoir poussé à l'occasion dans mes derniers retranchements.

Je voudrais ensuite remercier Jesus Zuñiga-Pérez, Thierry Taliercio, Emmanuelle Deleporte et Christelle Brimont pour leur participation à mon jury de thèse. Ce fut un honneur et un plaisir d'avoir un jury si compétent et je vous suis très reconnaissant pour l'attention que vous avez portée à mon travail. Je tiens particulièrement à remercier Emmanuelle Deleporte et Thierry Taliercio pour avoir accepté de rapporter mon travail de thèse malgré le peu de temps imparti.

Tous les résultats obtenus au cours de ma thèse sont issus de la collaboration étroite avec deux laboratoires : le CRHEA et le C2N. Dans ce cadre, je remercie Sophie Bouchoule, Jesus Zuñiga-Pérez et Thierry Guillet, grâce auxquels j'ai pu travailler avec des guides à l'état de l'art. Nos discussions ont été porteuses et votre compagnie fort agréable.

Merci à mes collègues thésards et postdoc Léo, Gabin, Léa, Jihen, Geoffrey, Mohammed, Hadi pour toutes ces pauses café qui ont égayées de nombreuses journées.

Durant ma thèse j'ai eu la chance d'enseigner deux années à l'IUT Mesure Physique, je tiens à remercier Rémy Pollès et Damien Vacher qui ont su faciliter mon apprentissage

Je remercie mes parents et ma famille pour leur soutien et leurs encouragements permanents toutes ces années durant, malgré la distance qui nous sépare.

Table des matières

REMERCIEMENTS	3
Introduction	9
I) Notions fondamentales	13
1) Propriétés physiques des matériaux semi-conducteurs à grand gap ZnO et GaN	13
1.1) Structure cristalline	13
1.2) Tenseurs d'élasticité et contraintes	15
1.3) Propriétés vibratoires	16
1.4) Structure de bandes	17
1.4)a) Structure de bandes de GaN et ZnO	17
1.4)b) Approximation de la masse effective	19
1.5) Semi-conducteur extrinsèque	21
2) Excitons dans GaN et ZnO	22
2.1) Définition et généralités	22
2.2) Modèle hydrogénoïde	24
2.3) Règles de sélection	26
2.4) Influence de la contrainte	29
2.5) Fonction diélectrique	31
2.6) Variation du gap avec la température	33
2.7) Elargissement homogène et élargissement inhomogène	34
3) Couplage fort lumière-matière – Notions de polaritons	36
3.1) Polariton dans un matériau massif	36
3.2) Polaritons dans un guide de lumière	41
3.2)a) Structure et principe de fonctionnement d'un guide d'onde	41
3.2)b) Détermination des modes guidés	44
3.2)c) Couplage fort dans un guide	45
4) Condensation de Bose-Einstein des polaritons	51
4.1) Condensation de Bose-Einstein comme introduite initialement par Einstein	51
4.2) Laser à polaritons dans une microcavité	53
4.2)a) Mécanismes conduisant à la condensation des polaritons	53
4.2)b) Régime thermodynamique et régime cinétique en fonction du déphasage	56
4.2)c) Interaction polariton-polariton, polariton-phonon, polariton-impuretés dans les microcavités	58

4.3) Cas du guide polaritonique	59
4.3)a) Mécanisme du laser polaritonique	59
4.3)b) Interaction polariton-polariton, polariton-phonon, polariton-impuretés dans du massif ou un guide	60
5) Limites du couplage fort	62
5.1) Définition de la transition de Mott	62
5.2) Différentes approches pour la détermination de la transition de Mott	63
6) Etat de l'art sur le laser à polariton	67
Conclusion	68
II) Techniques expérimentales	69
1) Présentation des techniques de spectroscopie optique	69
1.1). Principe général	69
1.2). Technique de microphotoluminescence	70
1.2)a). Principe de microphotoluminescence pour une transition bande à bande	70
1.2)b). Autres types de recombinaisons radiatives observées en microphotoluminescence	71
1.3). Technique de microréflectivité	71
2) Banc de spectroscopie	73
2.1) Description générale	73
2.2) Sources d'excitation	76
2.3) Imagerie de l'espace réel	77
2.4) Imagerie de l'espace de Fourier et filtrage spatial	78
2.5) Excitation confocale et latérale	80
2.5)a) Excitation confocale	80
2.5)b) Excitation latérale (Q-Switched)	82
2.5)c) Détermination de la puissance surfacique	83
2.5)d) Détermination de la surface du spot	85
3) Détermination de la densité de porteurs	88
Conclusion	90
III) Spectroscopie optique des guides polaritoniques à base de ZnO. Etude de l'écrantage du potentiel Coulombien des excitons sous forte injection optique. Vers une évaluation de la densité de Mott dans ZnO.	91
1) Guide ZMH1714-caractéristiques physiques et technologiques	92
1.1) Structure et technologie de surface	92
1.2) Caractéristiques excitoniques	97

2) Simulation numérique des courbes de dispersion incluant écrantage de la force d'oscillateur des excitons en fonction de la densité d'excitation	99
2.1) Construction de l'indice sans exciton.....	99
2.2) Construction des excitons à l'indice et prise en compte de l'écrantage.....	102
3) Guide ZMH1714-Résultats expérimentaux et analyse	105
3.1) Evaluation des courbes de dispersion en fonction de l'intensité d'excitation à basse température.....	105
3.2) Evaluation des courbes de dispersion en fonction de l'intensité d'excitation à température ambiante	108
4) Estimation de la densité de Mott et du facteur de qualité – application à l'échantillon ZMH1714-A	111
4.1) Estimation de la fourchette de densité de porteurs	111
4.2) Estimation du temps de vie – mesure de TRPL à 5K.....	113
4.3) Evaluation des densités de porteurs	116
4.4) Estimation du facteur de qualité de cavités naturelles (non-gravées)	117
5) Autres guides étudiés en imagerie de Fourier	120
5.1) Etude du Rabi en fonction de l'épaisseur des guides ZnO	120
5.2) Etude du guide ZMH1716	121
5.2.a) Spectres de μ PL et de μ R et étude de l'inhomogénéité des énergies excitoniques...	121
5.2.b) Etude de l'écrantage en fonction de la puissance d'injection	122
5.2.c) Evaluation de la densité de porteurs	123
5.3) Etude du guide ZMH1715	125
5.3.a) Spectre de μ PL et de μ R	125
5.3.b) Etude de l'écrantage en fonction de la puissance d'injection	125
5.3.c) Evaluation des densités de porteurs	126
5.4) Etude du guide ZMH1817-B.....	127
5.4.a) Spectre de μ PL et de μ R	127
5.4.b) Etude de l'écrantage en fonction de la puissance d'injection	127
5.4.c) Evaluation de la densité de porteurs et de l'inhomogénéité de l'échantillon	130
5.5) Récapitulatif des seuils lasers détectés en montage de Fourier.....	132
6) Présentation de l'ensemble des guides et comparaison de leur seuil laser.....	133
7) Analyse de la luminescence de la couche ZnO	138
8) Détermination de la longueur de propagation à travers l'atténuation de l'intensité	140
8.1) Analyses des distances de propagation mesurées sur ZMH1714-A.....	140

8.2) Analyses des distances de propagation mesurées sur ZMH1837	142
9) Gravure intentionnelle de cavités par gravure ionique (FIB)	144
9.1) Structure gravée	144
9.2) Mise en évidence du phénomène laser et étude des modes de cavité	145
Conclusion	148
Conclusion et perspectives	149
Sources	153
Annexes	161
A) Laser par émission stimulée	161
B) Mode polaritonique TE à 300K dans ZnO massif	165
C) Mode polaritonique TE à 300K dans un guide ZnO	166
D) Calcul de l'équation complexe du mode TE	167
E) Paramètre "force d'oscillateur excitonique restant"	170
F) Autres guides étudiés en Fourier	172
F.1) Etude du guide ZMH1716 : Spectres de μ PL et de μ R et étude de l'inhomogénéité des énergies excitoniques	172
F.2) Etude du guide ZMH1715 : Spectre de μ PL et de μ R	175
F.3) Etude du guide ZMH1817-B : Spectre de μ PL et de μ R	176
G) Analyses des distances de propagation mesurées sur ZMH1714-A	177
H) Analyses des distances de propagation mesurées sur ZMH1837	180
Résumé	183
Abstract	183

Introduction

En refroidissant un gaz de bosons, lorsque la longueur d'onde thermique associée aux atomes devient de l'ordre de la distance interatomique, une transition de phase apparaît [1] [2]. Durant cette transition, une fraction macroscopique des atomes s'accumule dans l'état fondamental du système : il s'agit de la condensation de Bose-Einstein.

Pendant longtemps, les physiciens ont cherché à atteindre la condensation de Bose-Einstein dans un gaz dilué, où les interactions s'avèrent suffisamment faibles pour pouvoir être décrites par une théorie de champ moyen, comme par exemple l'hélium superfluide et les supraconducteurs.

La condensation de Bose-Einstein d'un gaz à une température T survient lorsque la longueur d'onde thermique de de Broglie d'un atome $\lambda_T = \frac{h}{\sqrt{2\pi m k_B T}}$ est de l'ordre de grandeur de la distance moyenne entre deux atomes. Les températures de transitions étant inversement proportionnelles à la masse des bosons, la condensation d'atomes nécessite des températures extrêmes de l'ordre de 100nK. En 1962, Blatt [3] propose d'étudier cette transition de phase dans les semi-conducteurs à l'aide d'un gaz d'excitons.

Les excitons sont des bosons composites, constitués de deux fermions, un électron et un trou en interaction coulombienne, caractérisée en énergie de liaison. Par analogie avec la mécanique classique, on peut imaginer l'électron et le trou reliés entre eux par un ressort, d'où la terminologie de force d'oscillateur pour décrire l'évolution de l'écrantage. En augmentant la densité d'excitation, le nombre de porteurs injectés dans la bande de valence augmente. Dans le cas d'un semiconducteur massif, il est communément admis que l'énergie de la transition excitonique reste constante jusqu'à la densité de Mott, la renormalisation de l'énergie de bande interdite étant compensée par la réduction de l'énergie de liaison de l'exciton. Cette densité de Mott constitue un seuil critique au-delà duquel le couplage fort est perdu.

Depuis la mise au point par Amano et al. de la première diode électroluminescente (DEL) à base de nitrure de Gallium - un semi-conducteur à grand gap émettant dans le domaine des faibles longueurs d'onde (bleu et violet) -, puis sa réalisation par Nakamura et al. en 1994, les dispositifs électroniques à base de GaN (GaN, InGaN, AlGaN) constituent un marché qui se chiffre en milliard. L'objectif des industriels est de diversifier ce marché en trouvant des matériaux alternatifs.

Une tendance récurrente en photonique est la recherche du meilleur confinement photonique, qui ouvre des perspectives vers la réalisation de composants optoélectroniques non-conventionnels. Les lasers conventionnels et des composants luminescents comme les DEL opèrent en régime de couplage faible entre la lumière et la matière. Au contraire, en régime de couplage fort, de l'énergie cohérente est échangée entre des photons de cavité et les excitons d'un matériau semi-conducteur. Pour des composants à très basse échelle (inférieure au μm), il devient envisageable de convertir un signal électrique en un signal optique afin d'accélérer les transmissions de signal et d'énergie, permettant un traitement tout optique de l'information.

Dans les années 1990, des microcavités de grande qualité ont été réalisées grâce au développement des diodes laser à cavité verticale émettant par la surface (VCSEL) conduisant à la formation d'exciton-polaritons de microcavité.

Les polaritons sont des bosons composites et peuvent être utilisés dans des lasers afin d'abaisser le seuil laser. En effet, le phénomène laser n'est pas atteint de façon classique par une inversion de la population

mais par émission stimulée par l'état final [4]. Il est possible d'atteindre le seuil laser à des densités de porteurs estimées inférieures à ceux des lasers classiques. Les photons issus de ce condensat ont une cohérence spatiale et temporelle ; c'est pourquoi, par analogie avec les lasers basés sur l'amplification de lumière par émission stimulée, le phénomène est appelé "effet laser à polaritons". La faible masse des polaritons, venant de leur composante photonique, permet d'obtenir la condensation à température ambiante tant que la nature bosonique du condensat n'est pas affectée par la densité des porteurs.

En régime de couplage fort, la dispersion est caractérisée par une branche basse polaritonique (LPB) et une branche haute polaritonique (UPB). L'anticroisement observé entre ces deux branches est une des caractéristiques du couplage fort. A ce niveau, l'écart d'énergie minimal entre les deux branches est égal au dédoublement de Rabi.

Les effets non linéaires associés aux polaritons de cavité peuvent servir dans des composants tout-optique ou mixte opto-électroniques : amplificateurs, transistors, commutateurs et circuits logiques. Pour une application à grande échelle du laser à polaritons, la stabilité à température ambiante des excitons doit être garantie. Un semi-conducteur adapté pour les couches actives des microcavités doit avoir une énergie de liaison supérieure à 26 meV, correspondant à l'agitation thermique à température ambiante. Les 60 meV d'énergie de liaison de ZnO, couplé à sa proximité avec GaN en terme de paramètre de maille favorable à son intégration dans des dispositifs fonctionnant avec GaN, le désigne comme un candidat prometteur. GaN [5] et ZnO [6] sont donc des candidats idéaux pour la réalisation de lasers à polaritons opérant à température ambiante. ZnO permet d'atteindre des éclatements de Rabi plus élevés que GaN mais GaN dispose d'une avance technologique et peut être dopé n ou p contrairement à ZnO dont le dopage p est problématique. Toutefois avec le développement de la polaritonique, l'optoélectronique pourrait connaître une évolution dans laquelle ZnO jouerait un rôle central.

Ce travail de thèse, dédié à l'étude des propriétés polaritoniques des couches de ZnO dans des guides d'onde, s'inscrit dans ce contexte. La structure guide d'onde permet de confiner le champ électrique dans la couche active par réflexion totale et est simple à réaliser par rapport à une microcavité. La particularité de ces guides d'onde est une couche active de ZnO dont l'épaisseur est variable, encadré par deux claddings de ZnMgO dont l'épaisseur est également variable, épitaxié sur un substrat ZnO-plan m. Ces variations d'épaisseurs permettent d'atteindre des valeurs de Rabi différentes. Une épaisseur de couche active de ZnO élevée, se rapprochant d'une couche massive, permet d'améliorer le confinement du champ électrique et d'atteindre des Rabi plus élevés.

Le premier chapitre de ce manuscrit est consacré à l'étude des propriétés polaritoniques de ZnO et GaN et s'articule autour d'une mise en perspective des différences entre le laser à polaritons dans une microcavité et dans un guide et nous conduit logiquement à une comparaison entre ces deux mécanismes. Afin de contextualiser notre étude, nous dressons un état de l'art. Après une présentation des principales propriétés physiques de ces deux matériaux à grands gaps, les notions d'excitons et de polaritons dans les guides d'onde seront introduits. Le couplage fort étudié dans une couche massive de GaN et ZnO est comparé à celui obtenu dans un guide d'onde. Les limites du couplage fort sont abordées dans la dernière section en proposant plusieurs méthodes d'évaluation de la densité de Mott.

Le deuxième chapitre consacré aux techniques expérimentales de spectroscopie, explique leur principe et détaille les montages expérimentaux mise en œuvre au laboratoire. Les éléments de notre dispositif de spectroscopie et d'imagerie sont présentés et le trajet optique de deux configurations d'excitation -

confocale et par le côté - est schématisé ainsi que la branche de détection pour réaliser une imagerie dans l'espace réel ou dans l'espace de Fourier. La troisième section porte sur la méthode d'évaluation de la densité de porteurs à partir de l'intensité d'excitation.

Le troisième chapitre est dédié à l'étude spectroscopique de guides polaritoniques à base de ZnO dont les épaisseurs de couche active et de claddings sont variables. Après une présentation rapide des échantillons étudiés, les spectres de microphotoluminescence et microréflexivité de ces échantillons sont étudiés afin de repérer l'énergie des excitons, puis est étudiée l'écrantage de la force d'oscillateur excitonique en fonction de la puissance ce qui aboutit à une estimation de la densité de porteurs au seuil. La réalisation de ces échantillons est le fruit d'une collaboration avec le CHREA de Valbonne, le L2C de Montpellier et le C2N de Paris-Saclay.

L'écrantage de l'interaction Coulombienne au sein des excitons est étudié sous forte injection optique. En partant d'une dispersion servant de référence (pas d'écrantage) réalisée à très basse puissance, l'écrantage progressif du potentiel coulombien des excitons est suivi en modélisant le décalage angulaire et énergétique des dispersions ou de l'émission laser polaritonique en ajustant le pourcentage de force d'oscillateur restant et en réduisant le gap d'une énergie égale à la réduction de l'énergie de liaison des excitons. Lorsque le processus d'écrantage est total et que la force d'oscillateur restante tombe à 0%, les excitons laissent la place à un plasma de trous et d'électrons. Le couplage fort est perdu et le gain du laser ne peut plus être polaritonique. Cette transition se produit lorsqu'une densité critique de porteurs est atteinte et est appelée transition de Mott. Notre méthode de suivi de l'écrantage progressif permet donc d'aller vers une évaluation de la densité de Mott dans ZnO. Les résultats de cette étude pourront être comparés aux valeurs de la densité de Mott obtenus dans la littérature.

La compréhension des évolutions de l'écrantage de la force excitonique propre à chaque guide est compliquée par l'inhomogénéité de la contrainte qui fait varier l'énergie des excitons d'une dizaine de meV entre une position proche d'une fissure et une position centrée entre deux fissures. De plus, des fissures souterraines ne remontant pas à la surface, pourraient expliquer des variations plus localisées de la contrainte. Cette inhomogénéité affecte très certainement le temps de vie du réservoir et rend la détermination de la densité de Mott à travers nos différents guides très délicats. Il apparaît clairement que l'écrantage de la force d'oscillateur excitonique est variable localement (à l'échelle du μm).

I) Notions fondamentales

Les lasers à polaritons sont des candidats prometteurs pour des applications en optoélectronique en raison de fortes non-linéarités obtenues avec des seuils d'injections faibles et pourraient à terme remplacer certaines fonctionnalités électriques par des dispositifs tout optique, compacts et fonctionnant avec peu d'énergie, notamment pour des communications intrachip.

Dans ce chapitre, nous démontrerons le potentiel de ZnO et de GaN massif en vue de la réalisation d'un laser polaritonique au sein d'un guide d'onde. Tout d'abord, nous présenterons les principales propriétés physiques du ZnO et GaN qui expliquent la présence d'excitons avec des forces d'oscillateurs suffisamment élevées pour aboutir à un régime de couplage fort polaritonique. Le mécanisme de condensation polaritonique sera détaillé dans les microcavités et comparé au principe d'émission du mode polaritonique au sein d'un guide d'onde. Enfin, nous aborderons la notion de transition de Mott au-dessus de laquelle le couplage fort n'est plus possible.

1) Propriétés physiques des matériaux semi-conducteurs à grand gap ZnO et GaN

1.1) Structure cristalline

GaN et ZnO peuvent cristalliser dans la structure wurtzite (réseau hexagonal) ou dans la structure blende de zinc (réseau cubique). L'appellation blende de zinc désigne historiquement la structure cubique ou hexagonale de ZnS. Mais le terme est couramment utilisé dans la littérature pour des semi-conducteurs à symétries cubiques. Le terme précis pour désigner la phase cubique de GaN ou ZnO est structure sphalérite.

Dans des conditions thermodynamiques normales, ces deux matériaux cristallisent dans une structure wurtzite. L'oxyde de zinc et le nitrure de gallium adoptent une structure blende de Zinc métastable, obtenue si la croissance par épitaxie est réalisée sur un substrat de maille cubique.

Dans les deux configurations, chaque atome de gallium (ou de zinc) est au centre d'un tétraèdre formé par les atomes d'azote (ou d'oxygène). A température et pression ambiante, la phase stable est la structure wurtzite. Elle correspond à deux mailles hexagonales interpénétrées et décalées de $5/8$ du paramètre de maille suivant l'axe orthogonal au plan de l'hexagone, c'est-à-dire à l'axe c (0001).

Cette structure appartient au groupe d'espace C_{6v}^4 en notation de Schoenflies. La coordination tétraédrique est caractéristique d'une hybridation sp^3 et confère aux liaisons un fort caractère covalent. Cependant, le caractère ionique des liaisons ne peut pas être négligé, particulièrement dans le cas du ZnO, à cause de la forte électronégativité de l'oxygène et de l'azote dans une moindre mesure. Ces deux matériaux sont donc des semi-conducteurs covalents et ioniques.

La maille de la structure wurtzite est représentée sur la figure I-1. Les paramètres de maille a et c représentent respectivement la distance entre deux atomes de même nature dans le plan de base et la distance entre deux plans de base équivalents. La valeur des paramètres de maille mesurée par diffraction de rayons X est reportée dans le tableau I-1

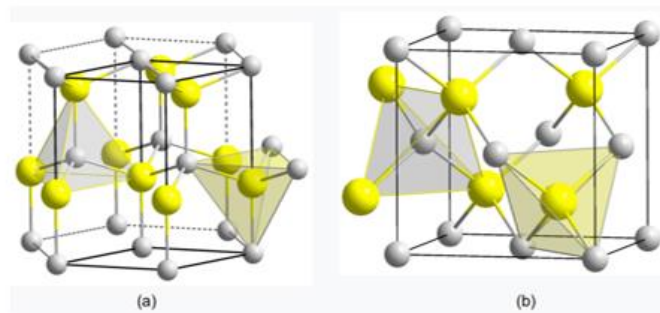


Figure I -1. (a) maille de type wurtzite, (b) maille de type blende de zinc.

	a(Å)	c(Å)
GaN		
Wurtzite	3,1892	5,185
Blende de Zinc	4,511	
ZnO		
Wurtzite	3,2496	5,2042
Blende de Zinc	4,37	

Tableau I - 1. Paramètres de maille de GaN wurtzite [7], Blende de Zinc [8] et ZnO wurtzite [9], blende de Zinc [10] mesurés expérimentalement à 5K.

La croissance des échantillons peut se faire suivant plusieurs plans cristallins, répertoriés dans la figure I-2.

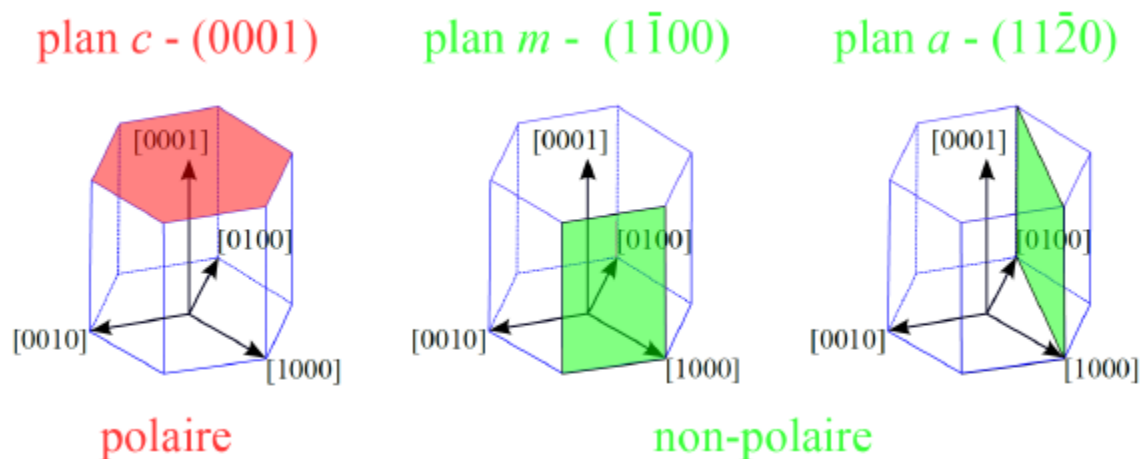


Figure I - 2. Plans les plus utilisés en symétrie wurtzite. Le plan c (0001) est un plan polaire. Les plans a et m , orthogonaux au plan C , sont des plans apolaires.

La plupart des échantillons sont épitaxiés suivant le plan c (0001), perpendiculaire à l'axe c . Ce plan ne présente pas de symétrie d'inversion et donne naissance à une polarisation spontanée ; il est dit polaire. Les échantillons peuvent alors être de polarité Ga (ou Zn) ou de polarité N (ou O).

1.2) Tenseurs d'élasticité et contraintes

La croissance des échantillons de GaN ou ZnO peut se faire sur un substrat de même nature (homoépitaxie) ou sur un substrat de nature différente (hétéroépitaxie). Dans ce dernier cas, le désaccord entre le paramètre de maille avec le substrat ou bien le désaccord entre les coefficients de dilatation thermique induisent une contrainte résiduelle dans la couche épitaxiée. Cette déformation a pour conséquence la modification des paramètres de maille du matériau déposé ainsi que la modification de la structure de bande de ce dernier, ce qui entraîne une modification de la structure de bandes du matériau et de la valeur de la bande interdite. Dans le cas d'une déformation élastique la loi de Hooke permet de relier le tenseur des déformations $[\varepsilon]$ à celui des contraintes $[\sigma]$ via les coefficients d'élasticité C_{ij} . Pour une structure wurtzite, 5 coefficients sont nécessaires :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{xy} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} \end{pmatrix}$$

$$\text{Avec } C_{66} = \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12}).$$

Si la croissance est suivant l'axe c , les déformations dans le plan sont isotropes. En effet, le désaccord de maille entre le substrat et la couche épitaxiée induit une contrainte biaxiale dans le plan perpendiculaire à l'axe de croissance. Les éléments du tenseur sont donnés par :

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon_{\perp} = \frac{a_s - a}{a}$$

Selon l'axe de croissance c , l'élément du tenseur des déformations est donné par :

$$\varepsilon_{zz} = \varepsilon_{//} = \frac{c_{\perp} - c}{c}$$

Avec a et c les paramètres de maille du matériau non-déformé de la couche épitaxiée et a_s et c_{\perp} correspondant respectivement au paramètre de maille du substrat pour une symétrie hexagonale et au paramètre de maille déformé de la couche épitaxiée. Comme la surface est libre de contrainte, $\sigma_{zz}=0$ (couche supposée infinie), on peut écrire à partir du tenseur des contraintes :

$$\varepsilon_{zz} = -\frac{2C_{13}}{C_{33}}\varepsilon_{\perp}$$

Pour une croissance réalisée sur le plan m ($\bar{1}\bar{1}00$), les déformations dans le plan deviennent anisotropes ($\varepsilon_{xx} \neq \varepsilon_{yy}$). Les désaccords de maille suivant les directions ($1\bar{2}00$) et (0001) sont différents [11], [12]. La symétrie uni-axiale du cristal est alors brisée et passe de C_{6V} à C_{2V} . La surface est libre de contrainte suivant l'axe de croissance y :

$$\sigma_{yy} = 0 = C_{12}\varepsilon_{xx} + C_{11}\varepsilon_{yy} + C_{13}\varepsilon_{zz}$$

En isolant l'élément diagonal du tenseur des déformations suivant y , on obtient :

$$\varepsilon_{yy} = -\frac{C_{12}\varepsilon_{xx} + C_{13}\varepsilon_{zz}}{C_{11}}$$

Dans le tableau ci-dessous sont reportés les coefficients d'élasticité de GaN et de ZnO. Le matériau ZnO est plus sensible à la déformation que GaN à cause des coefficients d'élasticité plus faibles. GaN est plus solide que ZnO car les liaisons sont plus covalentes. Dans le tableau I-2 sont répertoriés les coefficients d'élasticité de GaN et ZnO.

Tableau I - 2. Coefficients d'élasticité de GaN [13] et de ZnO [14].

	C_{11}	C_{12}	C_{13}	C_{33}	C_{44}	C_{66}
ZnO (GPa)	190	110	90	196	39	40
GaN(GPa)	390	145	106	398	105	123

1.3) Propriétés vibratoires

Les propriétés vibratoires d'un matériau sont décrites par les phonons qui sont des quasi-particules représentant les quanta de vibration du réseau cristallin. Les phonons interviennent dans de nombreux processus d'interactions et permettent d'expliquer certaines des propriétés électriques et optiques du matériau.

Pour des structures du type wurtzite avec une coordinence de 4, on dénombre douze modes phononiques [15] :

- Un mode longitudinal acoustique (LA)
- Deux modes transverses acoustiques (TA)
- Trois modes longitudinaux optiques (LO)
- Six modes transverses optiques (TO)

Le monde transversal (T) correspond au cas où la propagation de l'onde se fait de manière transverse avec $\omega = \omega_0 = \omega_T$. L'autre cas est une propagation longitudinale de l'onde à laquelle est associée une pulsation ω_L . Nous verrons dans le sous chapitre suivant que $\omega_T \neq \omega_L$ en présence de polariton.

Les phonons peuvent être soit de type acoustique ou de type optique.

La fréquence de vibration de ces modes est déterminée expérimentalement par spectroscopie Raman ou Infrarouge (IR). Dans le tableau I-3 sont répertoriées les énergies et les fréquences des phonons au centre de la première zone de Brillouin pour une structure wurtzite dans le cas de ZnO et GaN :

	$A_1(TO)$	$E_2(TO)$	E_2^{high}	E_2^{low}	$A_1(LO)$	$E_1(LO)$
ZnO(meV)	65,9	68,9	70,4	17,9	91	91,9
GaN(meV)	46,9	50,84	54,3	12,2	71,2	73,1

Tableau I - 3. Energies des phonons au centre de la zone de Brillouin dans le cas d'une structure de type wurtzite ZnO [16] et GaN [17]. Les résultats sont issus de mesures de spectroscopie Raman à température ambiante.

1.4) Structure de bandes

L'énergie de bande interdite ('gap' en anglais) qui désigne le minimum d'énergie séparant la bande de conduction de la bande de valence dépend de la température. A 5K, le gap est de 3,435 eV pour le ZnO [18] et de 3,503 eV pour le GaN [19] non-contraints en symétrie wurtzite [20].

1.4)a) Structure de bandes de GaN et ZnO

Le ZnO et le GaN sont des matériaux à gap direct : en considérant les relations de dispersions des bandes de conduction et de valence, le minimum de la bande de conduction et le maximum de la bande de valence sont localisés au point Γ , centre de la première zone de Brillouin, comme indiqué sur la figure I-3. L'intervalle d'énergie minimum en ce point correspond au gap, représenté figure I-4.

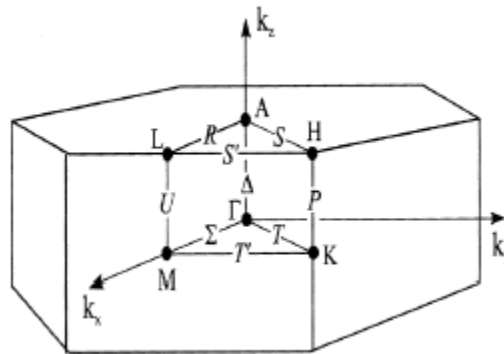


Figure I - 3. Première zone de Brillouin d'une structure wurtzite. Les points de haute symétrie sont indiqués par des lettres grecques.

La relation de dispersion de la bande de conduction est donnée par :

$$E_c(k) = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c}$$

Où m_c est la masse effective de la bande de conduction. Les relations de dispersions des bandes A, B et C sont :

$$E_{v_{A,B,C}}(k) = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{h_{A,B,C}}}$$

Où m_{h_A} , m_{h_B} et m_{h_C} sont respectivement les masses effectives des trous de la bande A, B et C (h pour 'hole' signifiant 'trou' en anglais).

Sur la figure I.4 est représenté le diagramme de bande de ZnO présentant la bande de conduction et les trois bandes de valence A, B et C. Le gap est situé au centre de la zone et a une énergie E_g vu que la référence en énergie est prise au maximum des bandes de valence.

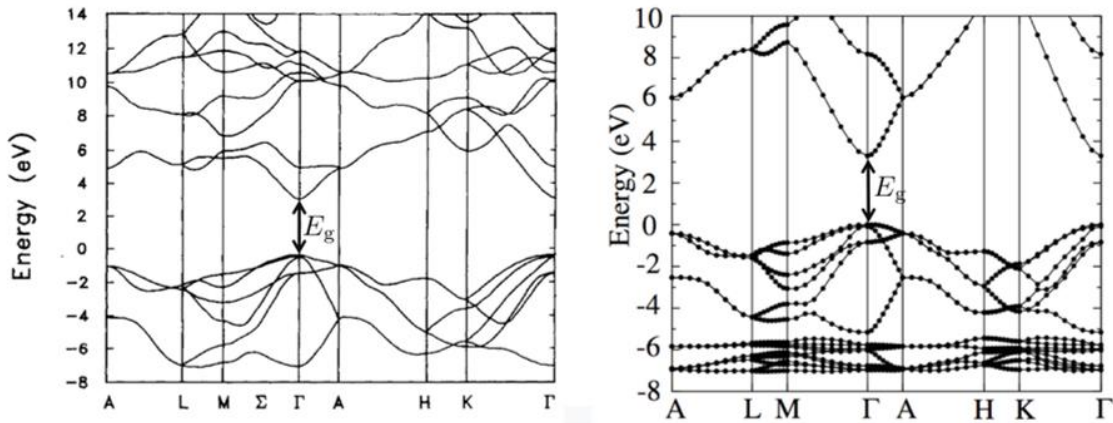


Figure I – 4. Structure de bandes électronique calculée pour GaN [21] (à gauche) et pour ZnO [22] (à droite). Les symboles Γ et X qualifient certains points particuliers de la zone de Brillouin ayant un lien avec la description de la théorie des groupes des propriétés de symétrie de la maille cristalline. La moitié droite (AHK Γ) correspond à la direction [111] et la moitié gauche (A Γ ML) à la direction [100].

Le remplissage des orbitales (ici type s ou type p) explique l'occupation des états par les électrons.

La structure électronique des derniers niveaux d'énergie de l'atome de zinc est $(3d)^{10}(4s)^2$. La perte des deux électrons $(4s)^2$ permet la formation d'ions Zn^{2+} , et de deux liaisons iono-covalentes donnant ZnO .

La bande de conduction est constituée par la couche des orbitales 4s des cations Ga^+ et Zn^{2+} dont le moment orbital est $L=0$. La couche de valence est formée par les orbitales 2p des anions (N^- ou O^{2-}), orbitales triplement dégénérées avec $L=1$.

La structure wurtzite fait partie du groupe de symétrie C_{6v} lequel compte six représentations irréductibles (de Γ_1 à Γ_6) [23] ainsi que trois groupe double (de Γ_7 à Γ_9) en tenant compte du spin des électrons.

Au centre de la zone de Brillouin pour une structure wurtzite de GaN, la structure de bandes est composée de Γ_4 et de Γ_1 (reportée figure I-5) si aucune interaction n'est considérée. Sous l'action du champ cristallin, Γ_4 se dédouble en Γ_1 et Γ_5 . Par ailleurs, l'énergie de Γ_1 est légèrement augmentée. En ajoutant l'effet du couplage spin-orbite, Γ_5 est éclaté en Γ_7 et Γ_9 tandis que les deux Γ_1 deviennent des Γ_7 . Le gap correspond à l'écart d'énergie entre ce dernier Γ_7 et Γ_9 . L'effet de l'interaction spin-orbite et du champ cristallin sont schématisés sur la figure I.5 :

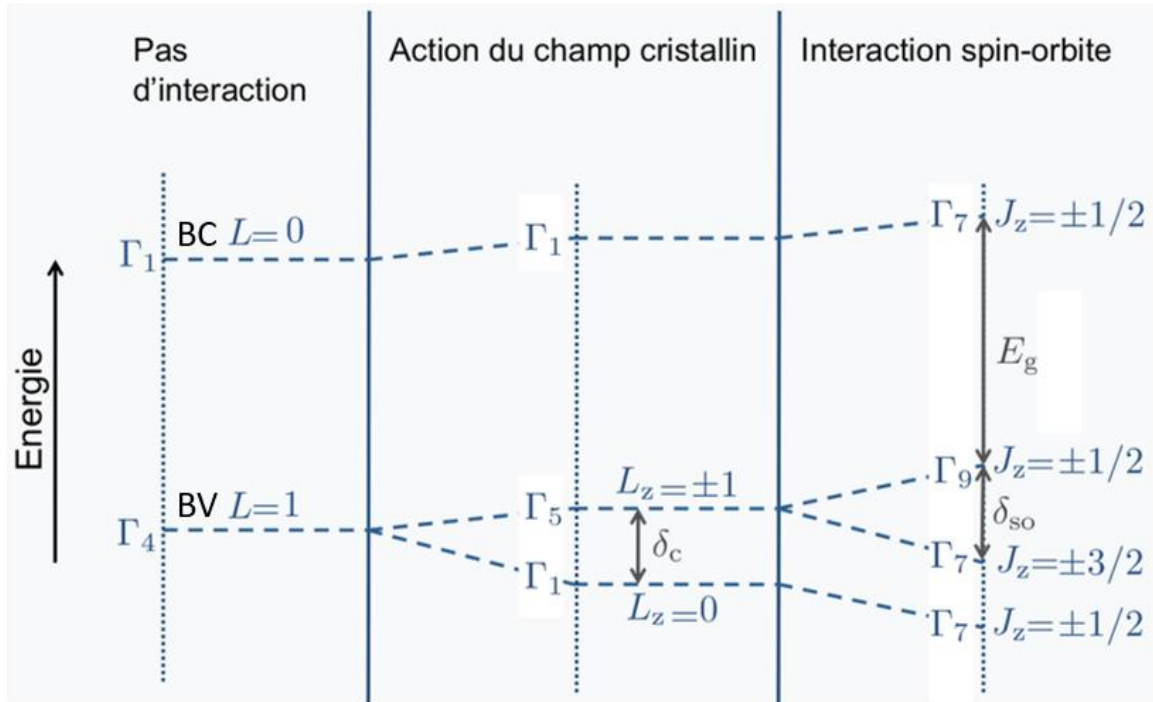


Figure 1 – 5. Structure de bandes de GaN au point Γ pour une structure wurtzite. A gauche, la situation initiale sans interaction, au centre en considérant l'action du champ cristallin. A droite, en considérant l'interaction spin-orbite avec le champ cristallin.

En résumé, l'interaction du champ cristallin et du couplage spin-orbite lève la dégénérescence de la bande de valence du ZnO et induit trois bandes distinctes A, B et C, correspondant respectivement à la bande des trous lourds (Γ_9), des trous légers (Γ_7) et du split-off du champ cristallin (Γ_7)

L'écart d'énergie des bandes A et B, noté δ_{so} pour écart spin-orbite est de signe positif pour GaN. A l'inverse, δ_{so} change a priori de signe pour le ZnO donnant l'ordonnancement (Γ_7 , Γ_9 et Γ_7) dans le sens des énergies croissantes [24], [25]. L'origine de cette inversion, encore débattue, serait due à la contribution des orbitales 3d de l'atome de Zn [26].

1.4)b) Approximation de la masse effective

Dans une approche en paquet d'onde, l'énergie E est donnée par : $E = \hbar\omega$

La vitesse de groupe \vec{v} du paquet d'onde correspondant est donné par : $\vec{v} = \frac{d\omega}{d\vec{k}} = \frac{1}{\hbar} \frac{dE}{d\vec{k}}$

Un électron de la bande de conduction d'un cristal auquel est appliquée une différence de potentiel est soumis à deux forces : la force interne \vec{F}_i résultant de son champ cristallin et la force externe \vec{F}_e résultant du champ électrique appliqué au cristal. L'équation de la dynamique pour cet électron s'écrit :

$$m_0 \frac{d\vec{v}}{dt} = \vec{F}_i + \vec{F}_e$$

En terme corpusculaire un électron dans un potentiel cristallin, plutôt que d'être considéré comme une particule quasi-libre de masse m_0 , est représenté par une quasi-particule libre de masse effective m_e^* , traduisant l'inertie additionnelle que donne à l'électron le potentiel cristallin. L'électron se comporte alors comme une particule de masse m_e^* dans le vide soumis à la seule force $\vec{F}_e = m_e^* \frac{d\vec{v}}{dt}$

Cette relation de mécanique classique est obtenue en partant de la force appliquée à un électron de masse m_e^* représenté par un paquet d'onde centré sur une pulsation ω .

La variation d'énergie cinétique de l'électron de vitesse \vec{v} est liée à la force \vec{F}_e par :

$$dE = \vec{F}_e \cdot \vec{v} dt$$

D'où l'on tire l'expression de l'accélération $\vec{\gamma}$ de cet électron :

$$\vec{\gamma} = \frac{d\vec{v}}{dt} = \frac{1}{\hbar} \frac{d}{d\vec{k}} \left(\frac{dE}{dt} \right) = \frac{1}{\hbar} \frac{d}{d\vec{k}} (\vec{F}_e \cdot \vec{v}) = \frac{1}{\hbar} \frac{d}{d\vec{k}} \left(\vec{F}_e \cdot \frac{1}{\hbar} \frac{dE}{d\vec{k}} \right) = \frac{1}{\hbar^2} \frac{d}{d\vec{k}} \left(\frac{d^2 E}{d\vec{k}^2} \right) \vec{F}_e = \frac{\vec{F}_e}{m_e^*}$$

A une dimension, le tenseur $\frac{1}{\hbar^2} \left[\frac{d^2 E}{d\vec{k}^2} \right]$ est identifié à l'inverse de la masse effective m_e^* .

Au centre de la zone de Brillouin (voisinage du minimum de la bande de conduction où sont localisés les électrons de conduction), la relation de dispersion s'exprime par :

$$E(k) = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} k^2$$

Notons qu'au voisinage du minimum de la bande de conduction la dispersion est parabolique (E n'est proportionnel qu'à k^2) et qu'ainsi la masse effective est constante. Dans ce cas particulier, l'énergie $E(k)$ varie quadratiquement avec k ce qui est appelé approximation des bandes paraboliques. Les masses effectives au centre de la zone de Brillouin dans le cas d'une structure wurtzite sont données dans les références [27], [28]. Dès lors que l'énergie cinétique des électrons devient très importante, la masse effective varie et l'approximation parabolique n'est plus valable. Par ailleurs, la variation de courbure des bandes est d'autant plus faible que le matériau est à grand gap. Pour ZnO ou GaN, l'approximation des bandes paraboliques est d'autant plus justifiée.

Plus la dispersion est courbée, plus la masse effective est faible. Par exemple, la bande de valence B est plus courbée que la bande de valence A. Par conséquent, la masse effective des trous sur cette dernière est plus élevée. D'où l'appellation de bande des trous lourds pour A et bande de trous légers pour B. La masse effective d'un électron occupant un état d'une bande d'énergie est alors définie par l'inverse de la dérivée seconde de la courbe de dispersion

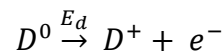
$$m_e^* = \frac{\hbar^2}{d^2 E / d^2 k}$$

1.5) Semi-conducteur extrinsèque

En général, pour des applications optoélectroniques, la concentration des électrons ou des trous est contrôlée par l'ajout d'impuretés. Ces semiconducteurs sont appelés extrinsèques. Les atomes qui ont un électron de valence en excès sont appelés donneurs et peuvent libérer un électron au cristal ; ajoutés à un semi-conducteur sous forme d'impureté, ceux-ci donnent un dopage de type n. Initialement, l'électron est lié à un atome donneur se trouvant à une énergie E_d sous le minimum de la bande de conduction.

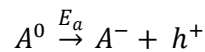
La quantité d'énergie E_d nécessaire pour rompre la liaison entre l'électron et l'atome donneur et ainsi faire passer l'électron à la bande de conduction est appelée énergie d'ionisation. L'ordre de grandeur de E_d est de l'ordre de quelques pourcents au maximum par rapport à E_g .

Ce processus est résumé dans l'équation suivante :



Où D^0 est une impureté donneur neutre, E_d l'énergie d'ionisation de l'électron e^- et D^+ le donneur ionisé chargé positivement.

A l'inverse, un atome avec un électron de valence en défaut est un accepteur et peut piéger un électron valence et ainsi libérer un trou. Dans ce processus, l'impureté est un accepteur. Initialement un électron de la bande de valence est excité à un niveau d'énergie se trouvant à une énergie E_a au-dessus du maximum de la bande de valence, libérant un trou sur la bande de valence. L'équation du processus est donnée par :



Où h^+ est le trou, E_a l'énergie d'ionisation de l'accepteur neutre A^0 et A^- l'accepteur ionisé.

2) Excitons dans GaN et ZnO

Dans un semiconducteur intrinsèque à 0K, la bande de valence est pleine alors que la bande de conduction est vide. Le processus d'absorption d'un photon par un semiconducteur libère des porteurs libres, c'est-à-dire un électron et un trou.

2.1) Définition et généralités

Un exciton est un trou et un électron en interaction coulombienne. On distingue deux catégories d'exciton suivant la valeur du rayon de Bohr par rapport au paramètre de maille cristallin et par conséquent suivant la valeur de l'énergie de liaison présentant des propriétés différentes. Lorsque le rayon de Bohr est inférieur au paramètre de maille cristallin, et donc lorsque l'électron et le trou sont fortement liés, l'exciton est dit de Frenkel [29]. Un exciton de Frenkel reste localisé sur un atome même si l'excitation peut se propager à un autre atome. Les excitons d'halogénure d'alcalins ou les cristaux moléculaires sont de cette catégorie.

Pour ZnO et GaN, comme pour la plupart des semi-conducteurs inorganiques, l'exciton est dit de Wannier-Mott [30], [31]. L'énergie de liaison entre l'électron et le trou est faible et la distance qui les sépare devient supérieure au paramètre de maille du réseau cristallin. La fonction d'onde de l'exciton de Wannier est délocalisée dans l'espace réel et l'exciton est libre de se déplacer dans le cristal sans participer à la conduction

Pour qu'un photon soit absorbé, donc pour qu'il y ait transition d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction, son énergie doit être supérieure au bandgap. Le processus d'absorption se produisant dans un semi-conducteur à gap direct est représenté schématiquement figure I-6 ci-dessous.

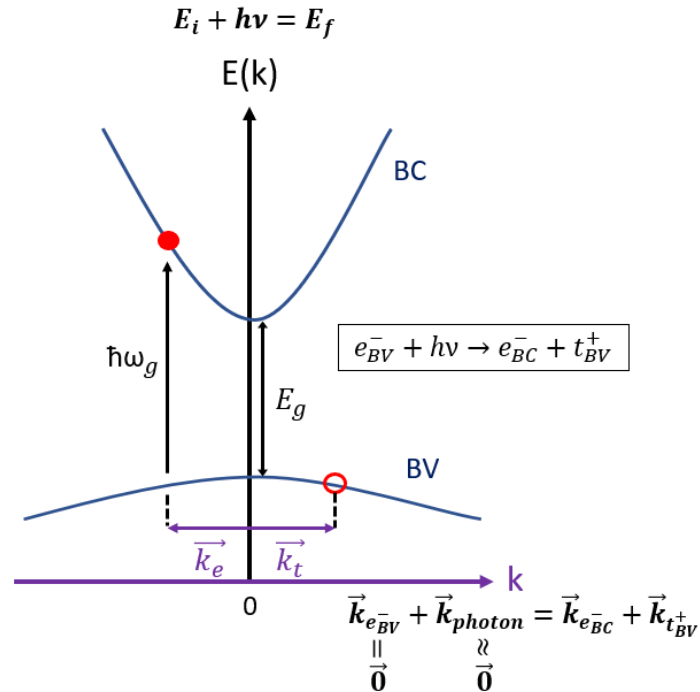


Figure 1 – 6. Absorption intrinsèque d'un photon d'énergie $\hbar\omega_g$ par un semi-conducteur avec un bandgap direct égal à E_g localisé au centre de la zone. L'électron d'énergie $E(k)$ est représenté en fonction du moment cristallin k .

Un électron (boule rouge pleine) dans la bande de conduction et un trou (boule rouge vide) dans la bande de valence sont produits par l'absorption d'un photon. L'électron de vecteur d'onde k_e laisse derrière lui dans la bande de valence un trou de vecteur d'onde $k_t = -k_e$. ($\vec{k}_{photon} \approx \vec{0}$ car $\frac{2\pi}{\lambda} \ll \frac{2\pi}{a}$).

Le photon perd une quantité d'énergie égale à celle du gap lors de l'absorption. Le supplément d'énergie restant ($\hbar\omega_g - E_g$) sert à exciter un électron à une énergie supérieure au minimum de la bande de conduction. Le déficit de charge positive laissé sur la bande de valence créé une pseudo-particule, appelée trou, de vecteur d'onde opposé à celui de l'électron et dont les autres propriétés telles que la mobilité ou la masse effective sont différentes.

En négligeant la contribution du vecteur d'onde du photon lors de l'interaction lumière-matière, la transition est verticale dans l'espace des \vec{k} ; la transition de la bande de valence à la bande de conduction se fait donc verticalement sur le diagramme des bandes. L'absorption d'un photon crée ainsi une paire électron-trou dans un semiconducteur. Puis les électrons et les trous thermalisent respectivement vers les extrema de la bande de conduction et de la bande de valence.

Le trou est attiré par interaction coulombienne à l'électron, formant la quasi-particule appelée exciton. En se déplaçant dans le matériau, l'interaction avec les phonons et l'absorption du matériau sont responsables d'une dissipation de l'énergie de l'exciton jusqu'à sa disparition par recombinaison radiative, c'est-à-dire par émission d'un photon dont l'énergie est légèrement inférieure au gap. Les semi-conducteurs GaN et ZnO possèdent chacun trois excitons formés à partir de l'interaction d'un électron de la bande de conduction et d'un trou issu d'une des trois bandes de valence A, B et C.

2.2) Modèle hydrogénoïde

La description de l'exciton comme l'interaction coulombienne d'une charge positive et négative rappelle la configuration de l'atome d'hydrogène où le trou occuperait le rôle du proton. Dans le cadre du formalisme de la fonction enveloppe, un modèle hydrogénoïde permet de modéliser l'exciton de Wanier. Historiquement, ce type d'exciton a été décrit par Wanier (1937) et par Mott (1938).

La fonction enveloppe de l'exciton $\Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$ est solution de l'équation de Schrödinger :

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

L'énergie cinétique de l'électron et du trou sont données dans l'ordre par les deux premiers termes. L'énergie potentielle d'interaction coulombienne entre le trou et l'électron avec e la charge élémentaire est donnée par le troisième terme. \vec{r}_e et \vec{r}_h sont les coordonnées dans l'espace réel du trou et de l'électron respectivement. $\epsilon = \epsilon_0 \epsilon_R$ est la constante diélectrique statique, produit de la permittivité du vide ϵ_0 et de la permittivité relative ϵ_R du matériau.

Dans cette approximation, l'exciton se comporte comme une particule de masse $m_X = m_e + m_h$; d'une masse réduite μ , telle que $\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}$ permet de simplifier les calculs.

L'exciton est envisagé comme un système analogue à un atome d'hydrogène où l'on remplace le mouvement des deux particules (électron et trou) par un mouvement du centre de masse de l'exciton de coordonnées $\vec{R} = \frac{m_e \vec{r}_e + m_h \vec{r}_h}{m_X}$ et un mouvement relatif de vecteur $\vec{r} = \vec{r}_e - \vec{r}_h$ en considérant une constante diélectrique isotrope.

On remplace alors $\Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$ par $\Psi(\vec{r}, \vec{R})$ et on sépare les variables en écrivant $\Psi(\vec{r}, \vec{R}) = \phi(\vec{r}) \cdot g(\vec{R})$.

L'hamiltonien de l'exciton devient alors :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \vec{\nabla}_{\vec{r}}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_X} \vec{\nabla}_{\vec{R}}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon|\vec{r}|}$$

H ne dépendant pas de \vec{R} , on peut écrire $g(\vec{R})$ sous la forme $e^{i\vec{K} \cdot \vec{R}}$.

L'équation $H\Psi(\vec{r}, \vec{R}) = (E - E_g) \Psi(\vec{r}, \vec{R})$ devient alors :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \vec{\nabla}_{\vec{r}}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon|\vec{r}|} \right) \phi(\vec{r}) \cdot g(\vec{R}) = (E - E_g - \frac{\hbar^2 K^2}{2m_X}) \phi(\vec{r}) \cdot g(\vec{R})$$

En posant $\epsilon = (E - E_g - \frac{\hbar^2 K^2}{2m_X})$, on obtient :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \vec{\nabla}_{\vec{r}}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon|\vec{r}|} \right) \phi(\vec{r}) = \epsilon \cdot \phi(\vec{r})$$

Il s'agit de l'équation du modèle hydrogénoïde dont les énergies sont données par la formule bien connue :

$$E_n = -\frac{1}{n^2} \frac{\mu e^4}{8\hbar^2 \epsilon_r^2} = -\frac{13.6}{n^2} \frac{\frac{\mu}{m_0}}{\epsilon_r^2} = -\frac{R_y}{n^2}$$

Où $R_y = 13,6 \frac{\mu/m_0}{\epsilon_r^2}$ exprimé en eV (électron-Volt) est le Rydberg de l'exciton qui correspond à l'énergie de liaison de l'exciton dans son état fondamental (n=1).

La fonction d'onde $\phi(\vec{r})$ est de type hydrogénoïde :

$$\phi_{n=1}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{\pi a_{B_X}^3}} e^{-\frac{r}{a_{B_X}}}$$

$a_{B_X} = 0,529 \text{ \AA}$ le rayon de Bohr de l'exciton qui vaut :

$$a_{B_X} = a_H \frac{\epsilon_R}{\mu/m_0}$$

Où $a_H = 0,529 \text{ \AA}$ est le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène.

L'énergie de l'exciton E_X s'écrit donc :

$$E_X = E_g + \frac{\hbar^2 K^2}{2m_X} - \frac{R_y}{n^2}$$

La fonction d'onde totale de l'exciton ϕ_X s'écrira :

$$\phi_X = e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \cdot \vec{u}_c(\vec{0}, \vec{r}_e) \cdot \vec{u}_v(\vec{0}, \vec{r}_h) \cdot \phi_{n=1}(\vec{r}_e - \vec{r}_h)$$

Où $\vec{u}_c(\vec{0}, \vec{r}_e)$ est la partie périodique dans l'espace réel de la fonction de Bloch prise en $\vec{k}_0 = \vec{0}$, idem pour $\vec{u}_v(\vec{0}, \vec{r}_h)$.

Suivant la bande de valence à laquelle est associée l'exciton, nous parlerons d'exciton A, B ou C.

Pour ZnO, l'énergie de liaison de l'exciton est plus élevée. La valeur du Rydberg est unique pour les trois excitons [32] : $R_{y_{A,B,C}} = 60 \text{ meV}$ et leur rayon de Bohr [32] est : $a_{B_{X_{A,B,C}}} = 18 \text{ \AA}$

La valeur du Rydberg des excitons A, B et C du GaN sont respectivement [33] : $R_{y_A} = 24,8 \text{ meV}$, $R_{y_B} = 24,7 \text{ meV}$ et $R_{y_C} = 26,8 \text{ meV}$ et leur rayon de Bohr, calculés à partir de la relation $a_{B_X} = a_H \frac{\epsilon_R}{\mu/m_0}$ en prenant $\epsilon_R = 9.9$ issu de la référence [34] sont égaux respectivement à : $a_{B_{X_A}} = 29,3 \text{ \AA}$, $a_{B_{X_B}} = 29,4 \text{ \AA}$ et $a_{B_{X_C}} = 27,1 \text{ \AA}$.

2.3) Règles de sélection

Expérimentalement, les transitions excitoniques impliquant les trois bandes de valence ne seront pas toutes observées avec la même intensité et simultanément. A température ambiante, la photoluminescence d'un échantillon massif de ZnO ou de GaN est essentiellement dominée par les excitons A et B (le rapport des intensités est donné par le facteur d'occupation de Boltzmann) et leurs répliques phonons. Cependant, au-delà de l'effet de la température, il faut s'intéresser à la structure des bandes électroniques du matériau qui permet d'expliquer si une transition optique d'un niveau d'énergie à un autre est autorisée. [35] Concernant les différentes transitions excitoniques, celles-ci sont régies par des règles de sélection, qui résultent des symétries des bandes de valence A, B et C, illustrées dans la figure I-7. La différence entre ZnO et GaN est que la symétrie des bandes de valence A et B sont inversées.

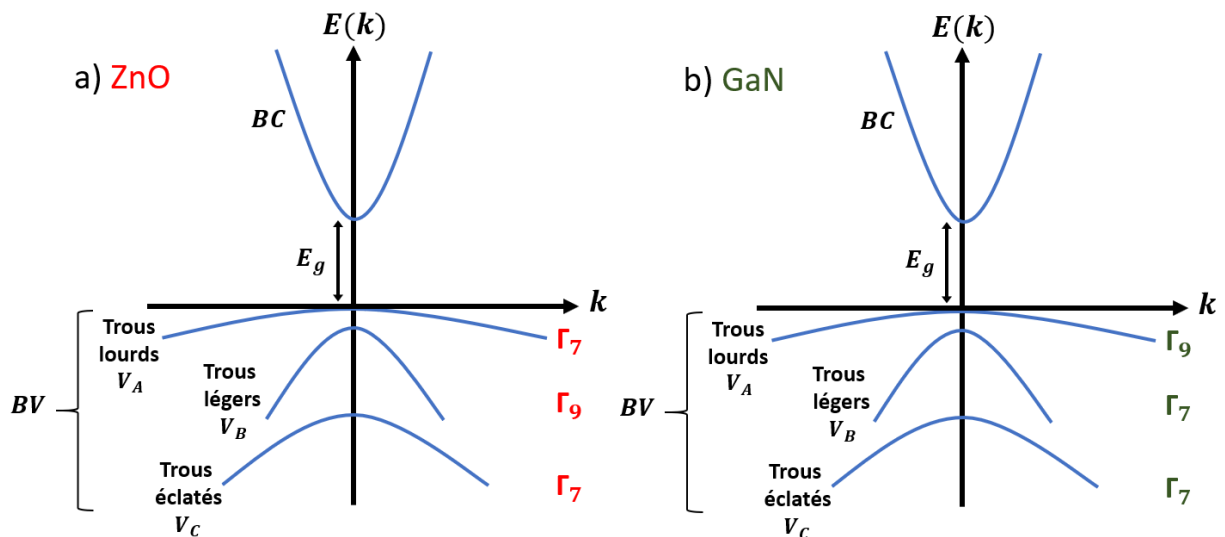


Figure I - 7. a) Diagramme énergétique du ZnO avec ses trois bandes de valence A, B et C de symétrie respective Γ_7 , Γ_9 et Γ_7 . b) Diagramme énergétique du GaN avec ses trois bandes de valence A, B et C de symétrie respective Γ_9 , Γ_7 et Γ_7 . La masse effective des trous est inversement proportionnel à la courbure des bandes de valence. Les trous peuplant la bande A sont appelés trous lourds, ceux occupant la bande de valence B trous légers et ceux occupant la bande C trous éclatés.

Telle que définie dans le cadre de la théorie des groupes, la représentation des transitions excitoniques autorisées ou interdites de ZnO [36] et GaN [37] est obtenue en combinant les symétries de la bande de conduction, de valence et de la fonction enveloppe de l'exciton tel que schématisé figure I-8. La notion de représentation décrit l'ensemble des opérations linéaires s'appliquant sur les symétries des éléments à l'origine des excitons, ce qui conduit à de nouvelles symétries propres à l'exciton. Plus précisément, la représentation d'un exciton est le produit de la représentation du trou de la bande de valence, de l'électron de la bande de conduction et de la fonction enveloppe de l'exciton, laquelle pour un exciton pris dans son état fondamental est Γ_1 .

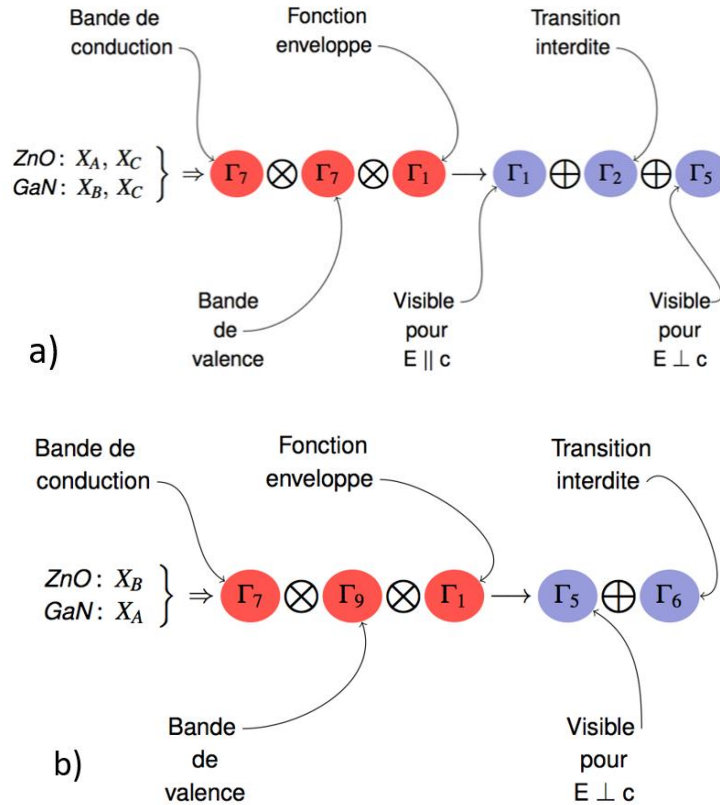


Figure 1 – 8. Représentation des transitions des excitons ZnO et GaN déterminées à partir des représentations de la bande de conduction de symétrie Γ_7 , de la fonction enveloppe de symétrie Γ_1 et de la bande de valence Γ_7 dans le cas a) ou Γ_9 dans le cas b)

Les règles de sélection du ZnO et du GaN sont regroupées dans les tableaux I-5 (ZnO) et I-6 (GaN) ci-dessous. Elles sont valables quel que soit le plan de croissance. La probabilité de transition associée à chaque représentation d'exciton est spécifiée à une polarisation donnée. La polarisation désigne l'orientation du champ \vec{E} par rapport à \vec{c} . L'onde électromagnétique possède deux états principaux de polarisation.

Souvent on désigne la polarisation TE comme la polarisation correspondant au champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence. La polarisation TM désigne la configuration où le champ magnétique est parallèle au plan d'incidence. Pour ce qui est des règles de sélection, ce qui est important est l'orientation du champ électrique \vec{E} par rapport à l'axe \vec{c} .

Tableau I – 5. Règles de sélection de ZnO pour une contrainte nulle [26]

Exciton	Transition autorisée	Polarisation	Probabilité de transition
A ($\Gamma 1$)	Oui	$\vec{E} \parallel \vec{c}$	Faible
A ($\Gamma 2$)	Non	-	-
A ($\Gamma 5$)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Importante
B ($\Gamma 5$)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Importante
B ($\Gamma 6$)	Non	-	-
C ($\Gamma 1$)	Oui	$\vec{E} \parallel \vec{c}$	Importante
C ($\Gamma 2$)	Non	-	-
C ($\Gamma 5$)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Faible

Tableau I – 6. Règles de sélection de GaN pour une contrainte nulle [38]

Exciton	Transition autorisée	Polarisation	Probabilité de transition
A ($\Gamma 5$)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Importante
A ($\Gamma 6$)	Non	-	-
B ($\Gamma 1$)	Oui	$\vec{E} \parallel \vec{c}$	Faible
B ($\Gamma 2$)	Non	-	-
B ($\Gamma 5$)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Importante
C ($\Gamma 1$)	Oui	$\vec{E} \parallel \vec{c}$	Importante
C ($\Gamma 2$)	Non	-	-
C ($\Gamma 5$)	Oui	$\vec{E} \perp \vec{c}$	Modérée

En comparant leurs règles de sélection, il apparaît que ZnO et GaN présentent de fortes similitudes. Premièrement, les deux présentent des probabilités de transition importantes, associées aux excitons $A(\Gamma 5)$ et $B(\Gamma 5)$ dans la configuration où $\vec{E} \perp \vec{c}$ et à l'exciton $C(\Gamma 1)$ dans la configuration où $\vec{E} \parallel \vec{c}$. Deuxièmement, les deux présentent des probabilités de transition faibles, associées aux autres représentations de A et B lorsque $\vec{E} \parallel \vec{c}$. Enfin, les deux diffèrent au niveau de leur probabilité de transition associée à l'exciton $C(\Gamma 5)$ lorsque $\vec{E} \perp \vec{c}$; celle-ci est faible pour ZnO et modérée pour GaN.

En résumé, la règle générale pour les règles de sélection de GaN et ZnO est que leurs excitons A et B sont détectés lorsque $\vec{E} \perp \vec{c}$ alors que leur exciton C est détecté lorsque $\vec{E} \parallel \vec{c}$. L'exciton C du GaN est un cas particulier car il est également modérément détectable lorsque $\vec{E} \perp \vec{c}$.

. Deux règles de sélection doivent être respectées. On part de l'hamiltonien excitonique

$$|H_{ex}|^2 = |\langle X|H|0 \rangle|^2 = NB|\Psi_0|^2 |\langle \Psi_c|H|\Psi_v \rangle|^2$$

Où $H_{ex} = \langle \Psi_{ex}|H|0 \rangle$ est l'élément de matrice dipolaire avec $|X \rangle$ et $|0 \rangle$ correspondant à l'état excitonique (état initial de la transition optique) et l'état fondamental recombiné (état final la transition optique), H est l'hamiltonien d'interaction dipolaire entre l'exciton et le trou. $|\Psi_{c/v} \rangle$ correspond à la fonction d'onde de l'électron dans la bande de conduction/valence. N est le nombre total de maille du cristal avec B le volume occupé par une maille cristalline.

Ψ_0 est la valeur de la fonction enveloppe de l'exciton à l'origine ($\vec{r} = 0$ en coordonnées radiale, comme pour un atome d'hydrogène avec les nombres quantiques n , l et m).

Pour que la transition du dipole soit autorisée $\Psi_0 \neq 0$. Seul des excitons de type s ($l=0$) vérifie cette condition et peuvent donc se recombinaison via une interaction dipolaire pour émettre un photon.

De plus, il existe une seconde règle de sélection lié au spin de l'exciton. L'électron possédant un spin de $\pm \frac{1}{2}$ et le trou un spin de $\pm \frac{1}{2}$ ou de $\pm \frac{3}{2}$, le spin total de l'exciton peut prendre plusieurs valeurs $J = \pm 2, \pm 1, 0$. Or le spin du photon vaut ± 1 et ainsi l'exciton de spin $J = \pm 2$ ne pourra pas se coupler directement à la lumière contrairement à l'exciton de spin $J = \pm 1$.

Ces deux règles s'appliquent pour tous les cristaux isotropes comme pour nos échantillons de GaN.

Dans ZnO, l'anisotropie et les multiples bandes de valence viennent compliquer les règles de sélection. Parmi les douze excitons du ZnO, on dénombre sept excitons pour lesquels la recombinaison radiative est interdite, appelés 'dark excitons' et cinq excitons où la transition est autorisée, appelés 'bright excitons'. Pour ces derniers, la levée de la dégénérescence conduit à réellement trois transitions optiques.

2.4) Influence de la contrainte

Une contrainte exercée sur la maille cristalline a des répercussions sur la valeur de l'énergie de bande interdite. En compression, la distance entre atomes voisins se réduit entraînant l'amélioration du recouvrement entre les orbitales liants et anti-liants et amenant à une augmentation du gap. A l'inverse une contrainte en tension entraîne une diminution du gap.

Typiquement, en croissance par épitaxie, un substrat de paramètre de maille supérieur à celui de la couche épitaxiée exerce sur cette couche supérieure une contrainte en tension en raison de l'inadéquation des paramètres de maille entre les deux matériaux. Un autre exemple est une relaxation s'effectuant sur les bords des fissures. Les contraintes peuvent abaisser la symétrie du cristal et donc les règles de sélection des transitions optiques. Les règles de sélection font intervenir les éléments de matrice optique qui permettent de calculer les forces d'oscillateurs via l'approximation $\vec{k} \cdot \vec{p}$

Le tableau I-7 récapitule les symétries et les forces d'oscillateurs des transitions optiques au point Γ de GaN non-contraint. L'excitation optique de la bande de valence A n'est pas autorisée lorsque $\vec{E} \parallel \vec{c}$. Par contraste, les transitions impliquant les bande B et C sont autorisées dans les deux directions de polarisations. La force d'oscillateur est principalement répartie équitablement sur l'exciton A et B lorsque $\vec{E} \perp \vec{c}$ et quasiment exclusivement sur l'exciton C lorsque $\vec{E} \parallel \vec{c}$. La somme des forces d'oscillateurs doit vérifier :

$$\sum_{i=A,B,C} f_{osc,i}^{\vec{E} \perp \vec{c}} = \sum_{i=A,B,C} f_{osc,i}^{\vec{E} \parallel \vec{c}} = 1$$

Tableau I – 7. Force d'oscillateurs relatives associées aux maximums des bandes de valence A, B et C avec les symétries correspondantes dans une couche massive de GaN non-contrainte

	Symmetry	$f_{osc}^{E \perp C}$	$f_{osc}^{E \parallel C}$
A	Γ_9	0,5	0
B	Γ_{7+}	0,44	0,12
C	Γ_{7-}	0,06	0,88

Ces modifications sont illustrées pour GaN [39] (plan m) sur la figure I-9 :

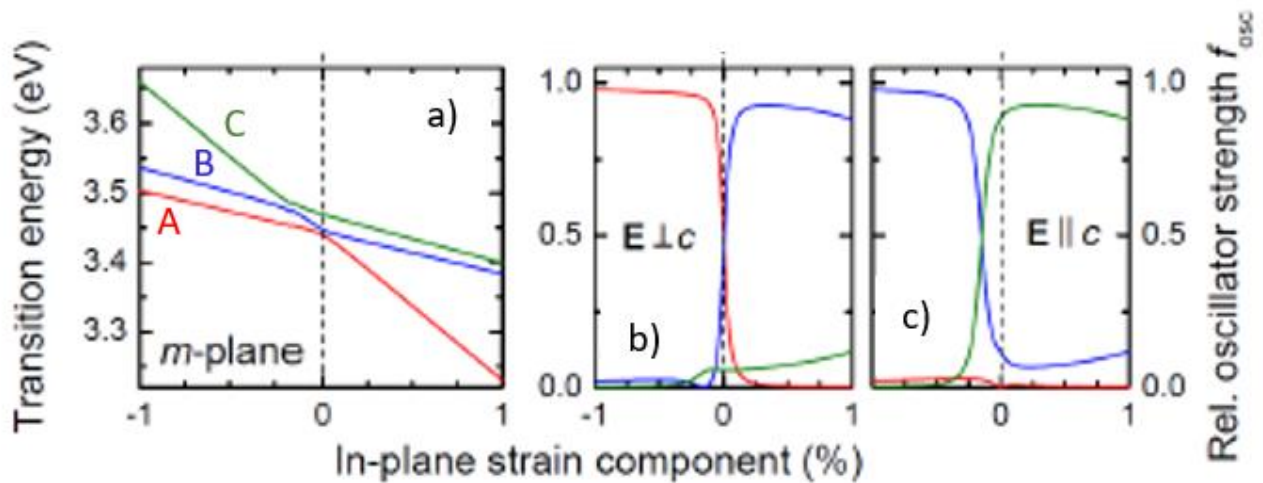


Figure I – 9.a) Evolution des énergies excitoniques A, B et C au point Γ pour une orientation plan-m ($\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{zz}$). B), c) Répartition de la force d'oscillateur entre les excitons pour une orientation plan m. La ligne en pointillé indique la situation de GaN non-contraint [39].

Les règles de sélection peuvent être exprimées en fonction de la force d'oscillateur F_{osc} . La répartition relative de la force d'oscillateur pour GaN entre les excitons A, B et C en fonction de la contrainte dans le plan.

Comme indiqué sur la figure 1.9.a), une compression (contrainte planaire négative) entraîne une augmentation de l'énergie des excitons, de façon équivalente pour A et B et plus prononcée pour C. A l'inverse, une tension (contrainte planaire positive) entraîne une diminution des énergies excitoniques, plus importante pour A que pour B et C.

Il n'existe pas à notre connaissance de développements théoriques analogues pour ZnO.

2.5) Fonction diélectrique

La réponse d'un semiconducteur soumis à une excitation lumineuse (avec l'hypothèse d'un milieu neutre, linéaire, homogène, isotrope et non-magnétique) est la création d'une polarisation \vec{P} puis d'un vecteur déplacement \vec{D} tel que :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon(\omega, \vec{k}) \vec{E}(\omega, \vec{k})$$

En mettant en évidence la polarisation induite \vec{P} , l'équation précédente devient : $\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$

Les excitons peuvent être considérés comme des oscillateurs harmoniques de densité N où chaque oscillateur est constitué d'un trou et d'un électron reliés entre eux par la force d'interaction coulombienne qui est semblable à la force de rappel d'un ressort. Le terme force d'oscillateur est couramment employé à la place du terme énergie de liaison excitonique. Pour une densité N d'oscillateur, le moment dipolaire total est : $\vec{P} = N\vec{p}$

Où N est le nombre d'exciton ou d'éléments polarisables par unité de volume et \vec{p} le moment dipolaire égal au produit de la charge et du vecteur déplacement \vec{u} . Celui-ci est solution de l'équation différentielle du mouvement d'un oscillateur soumis à un champ électrique $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-i(\omega t - k \cdot \vec{u})}$ exprimée par :

$$m \frac{d^2 \vec{u}}{dt^2} = -m\omega_0^2 \vec{u} - m\Gamma \frac{d\vec{u}}{dt} - e\vec{E}$$

Où m est la masse de chaque oscillateur et ω_0 leur pulsation à la résonance. Γ est le terme d'amortissement (force de frottement visqueux) traduisant l'élargissement de la raie excitonique. Ici, nous nous plaçons dans le modèle classique de Drüde-Lorentz en négligeant l'interaction entre électrons.

La solution est de la forme $\vec{u} = \vec{u}_0 e^{-i\omega t}$:

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

D'où l'expression du moment dipolaire des N oscillateurs

$$\vec{P} = N\vec{p} = -Ne\vec{u} = N \frac{e^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega)} \vec{E}$$

Ainsi le vecteur déplacement est donné par :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \varepsilon_0 \varepsilon(\omega) \vec{E} = \varepsilon_0 \left[1 + \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega)} \right] \vec{E}$$

D'où l'on tire l'expression de la fonction diélectrique :

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega)}$$

En considérant l'ensemble des transitions excitoniques, la fonction diélectrique est décrite comme la somme de la fonction diélectrique hors-résonance ε_b et de la contribution des excitons ε_r .

La partie imaginaire de ε_{ex} est proche d'une lorentzienne de largeur à mi-hauteur Γ au voisinage de $\hbar\omega_0$:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_b + \varepsilon_{ex} = \varepsilon_b + \sum_j \frac{f_j}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\Gamma_j\omega)}$$

Le terme $f = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0}$, appelé force d'oscillateur, exprime le couplage entre le champ électrique et un oscillateur. Lorsque la force d'oscillateur est exprimée en énergie, elle est notée A et $A = \hbar^2 f$, d'où :

$$\varepsilon = \varepsilon_b + \frac{A}{E_0^2 - E^2 + i\Gamma E}$$

Il est possible à partir de cette dernière équation de mettre en évidence que même hors résonance, les oscillateurs dus aux transitions optiques à hautes énergies modifient l'indice à basse énergie.

En partant de l'expression de ε sous forme lorentzienne :

$$\varepsilon = \varepsilon_b + \frac{A}{E_0^2 - E^2 + i\Gamma E}$$

Puis en séparant la partie réelle et partie imaginaire :

$$\varepsilon = \varepsilon_1 - i\varepsilon_2 = \varepsilon_b + \frac{A(E_0^2 - E^2)}{(E_0^2 - E^2)^2 + (\Gamma E)^2} - i \frac{A\Gamma E}{(E_0^2 - E^2)^2 + (\Gamma E)^2}$$

ε_2 peut s'exprimer sous la forme d'une Lorentzienne $L_\gamma(E)$ de largeur à mi-hauteur γ au voisinage de l'énergie de résonance E_0 :

$$\varepsilon_2 = \frac{A\Gamma E}{(E_0^2 - E^2)^2 + (\Gamma E)^2} = \frac{A\gamma}{4E_0} \frac{1}{(E_0 - E)^2 + (\frac{\Gamma}{2})^2} = \frac{A\gamma}{4E_0} L_\Gamma(E)$$

Il ressort alors que même pour une énergie très inférieure à E_0 , la contribution des excitons à l'indice n'est pas nulle et vaut dans le cas d'une représentation où seules les probabilités de transitions des excitons A et B sont importantes :

$$n_{(E=0)} = \sqrt{\frac{A_{X_A}}{E_{X_A}^2} + \frac{A_{X_B}}{E_{X_B}^2}}$$

Où A_{X_A} avec $E_{X_A}^2$ et A_{X_B} avec $E_{X_B}^2$ sont respectivement les forces d'oscillateur avec l'énergie excitonique de A et de B.

2.6) Variation du gap avec la température

L'énergie de bande interdite diminue avec la température suivant une statistique de Bose-Einstein caractérisant l'interaction exciton-phonon et modélisé par la loi de Vina [40], [41] :

$$E_g = E_g(0) - \frac{2a_b}{\exp\left(\frac{\theta}{T}\right) - 1}$$

Avec θ la température moyenne de vibration de phonons et a_b la force d'interaction électron-phonon. Un modèle phénoménologique proposé par Varshni [42] en 1967 permet de rendre compte de l'évolution de l'énergie du gap avec la température.

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

Où $E_g(0)$ est l'énergie du bandgap à 0K, α et β sont des paramètres ajustables caractéristiques du matériau en fonction de la température T , dont les valeurs sont reportées dans le tableau I-8.

L'équation de Varshni est un obtenu par un développement limité au second ordre de la loi de Vina en posant $\alpha = \frac{a_b}{\theta}$ et $\beta = \frac{\theta}{2}$.

L'évolution du gap en température est attribuée à un décalage en énergie de la bande de valence et de conduction d'une part à une dilatation de la maille cristalline (cet effet est proportionnel à la température pour des températures élevées et au carré de la température pour des températures plus faibles [42]). D'autre part, la contribution principale est due à l'interaction électron-phonon dépendante aussi de la température. A 300K la valeur du gap pour ZnO et GaN est respectivement de 3.367 eV et de 3.436 eV.

Tableau I – 8. Valeurs des paramètres d'ajustement dans la loi de Varshni selon Wang et al. [43], Aoudé [44], Li et al. [45]

		$\alpha(\text{meV/K})$	$\beta(\text{K})$
ZnO	Mallet et al.	$0,79 \pm 0,03$	830 ± 30
	Wang et al.	$0,82 \pm 0,03$	700 ± 30
GaN	Aoudé ($X_A^{n=1}$)	1,15	1230
	Li et al. ($X_A^{n=1}$)	1,28	1190

2.7) Elargissement homogène et élargissement inhomogène

Dans le modèle de Lorentz, les inhomogénéités de composition ou de contraintes ne sont pas considérées. Γ rend compte de l'interaction avec les phonons.

Lorsque le matériau est inhomogène, il faut utiliser un modèle plus réaliste faisant intervenir deux types d'élargissement : homogène et inhomogène. Couramment, ce modèle est appelé inhomogène.

L'élargissement homogène est produit exclusivement par les interactions des excitons avec d'autres particules, comme les phonons ou les impuretés. Il augmente avec la température en même temps que la densité de phonons augmente. La loi de Ségall [46] donne l'évolution de l'élargissement homogène en fonction de la température :

$$\gamma(T) = \Gamma_0 + \Gamma_{ac} T + \frac{\Gamma_{op}}{\exp\left(\frac{E_{LO}}{k_b T}\right) - 1}$$

Où Γ_0 est l'élargissement à 0K, Γ_{ac} et Γ_{op} sont respectivement les interactions exciton-phonon acoustiques et exciton phonon-optique. E_{LO} est l'énergie du phonon LO (longitudinal optique). A basse température, les interaction exciton-impuretés sont prédominantes [47].

L'interaction avec les phonons optiques est appelée interaction de Fröhlich [48]. Les paramètres de la loi de Ségall de GaN et ZnO à 5K sont répertoriés dans le tableau I-9. Ces élargissements correspondent à des moyennes pour les deux excitons A et B.

Les inhomogénéités du matériau (variation de contrainte ou présence de dislocations) sont prises en compte à travers l'élargissement inhomogène σ en considérant une distribution gaussienne d'oscillateurs harmoniques dont l'énergie est centrée autour de $\bar{h}\omega_0$, d'écart type σ et de largeur à mi-hauteur $2\sigma\sqrt{\ln(4)}$.

Dans le modèle inhomogène, la constante diélectrique se met sous la forme de l'intégrale normalisée d'une convolution d'une fonction Lorentzienne (incluant l'élargissement homogène) et d'une fonction Gaussienne (incluant l'élargissement inhomogène), appelée fonction de Voigt.

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_b + \sum_j \int \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_j} \frac{1}{(x^2 - E^2 - i\Gamma_j E)} \exp\left(-\frac{(x - E_{0j})^2}{2\sigma_j^2}\right) dx$$

Où x représente l'énergie de résonance des excitons. Ce modèle dit inhomogène fait intervenir un élargissement inhomogène qui dépend uniquement de la qualité du cristal et ne dépend pas de la température. Généralement, il domine sur l'élargissement homogène à basse température.

Avec ce modèle inhomogène, on pourra donc séparer les deux types d'élargissement.

Une différence entre GaN et ZnO concerne la nature des élargissements à basse température. En général, les échantillons de GaN présentent de fortes contraintes résiduelles et donc présentent un élargissement inhomogène plus important.

Pour le ZnO, l'élargissement homogène domine et on constate une dissymétrie entre les polaritons A et B, où B présente un élargissement homogène plus élevé. Cette dissymétrie est moins marquée pour le GaN. L'écart type σ correspondant à des moyennes pour les deux excitons A et B est reporté dans le tableau I-9.

Tableau I – 9. Ecart type σ d'une distribution gaussienne d'oscillateurs harmoniques et paramètres de la loi de Segall de GaN [44] et ZnO [47] à 5K pour calculer l'élargissement homogène et l'élargissement inhomogène

	$\Gamma_0(\text{meV})$	$\Gamma_0(\mu\text{eV}/\text{K})$	$\Gamma_{0p}(\text{meV})$	$E_{LO}(\text{meV})$	$\sigma(\text{meV})$
GaN	0,1	10	420	91,8	0,8
ZnO	0,8	22	620	72	0,22

Le coefficient d'absorption optique α est défini par la relation :

$$\alpha \equiv \frac{\omega}{c} K$$

Où K est la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe. Au-dessus du seuil d'énergie $\hbar\omega_g$, le coefficient d'absorption augmente rapidement avec l'énergie du photon. L'allure de la courbe d'absorption en fonction de l'énergie dépend de la structure de bandes du semiconducteur et des transitions optiques autorisées. (T. S Moss, 1973)

Typiquement, α^{-1} correspond à la profondeur de pénétration de la lumière dans le milieu absorbant. Son ordre de grandeur est de quelques dizaines de micromètres dans les structures que nous étudions dans cette thèse.

Le phénomène d'absorption d'un photon peut être explicité visuellement par la courbe de dispersion de l'énergie du mode photonique en fonction du vecteur d'onde k . Les relations de Kramers-Kronig permettent de passer de l'un à l'autre.

3) Couplage fort lumière-matière – Notions de polaritons

3.1) Polariton dans un matériau massif

Avant d'introduire le guidage des polaritons dans un guide d'onde, ce sous-chapitre s'intéresse aux matériaux massifs en première approche en introduisant des notions essentielles : dispersion polaritonique, branche polaritonique haute, branche polaritonique basse, éclatement de Rabi, poids photonique et poids excitonique. Les définitions mathématiques (dans le contexte de mon travail expérimental portant sur les guides d'onde) seront présentées au sous-chapitre suivant.

Les *polaritons* résultent de l'interaction lumière-matière entre une onde lumineuse excitatrice considérée comme un flux de *photons* et l'excitation élémentaire de certains semi-conducteurs à grand gap tel que ZnO ou GaN, l'*exciton* (expliqué précédemment comme le trou et un électron en interaction coulombienne) dans des conditions particulières de température (plutôt à basse température à faible agitation thermique), de densité de porteur (en-dessous d'une densité critique de porteur appelée densité de Mott) et de confinement de l'onde lumineuse (au sein de microcavités à miroir de Bragg, de cavités optiques gravés ou de guides d'onde par exemple).

Afin de déterminer l'expression du vecteur d'onde dans une couche massive, il faut partir des équations de Maxwell et utiliser l'équation de propagation afin d'aboutir à la relation de dispersion d'où l'on envisagera différentes situations pour $\varepsilon_r(\omega)$.

$$k^2 = \frac{\omega^2 \varepsilon_r(\omega)}{c^2}$$

$$\omega = \frac{kc}{n} = \frac{kc}{\sqrt{\varepsilon_r(\omega)}}$$

Différentes situations sont envisageables pour $\varepsilon_r(\omega)$ où ε_b peut être dispersif ou non dispersif et ε_{ex} peut être inclus ou non inclus dans le calcul.

En régime de couplage faible, la dispersion excitonique et la dispersion photonique n'interagissent pas l'une sur l'autre. En régime de couplage fort, deux nouvelles branches de dispersion remplacent les dispersions originales. La branche polaritonique basse se rapproche de l'allure du mode excitonique aux basses valeurs de vecteur d'onde et de l'allure du mode excitonique aux hautes longueurs d'onde.

Les polaritons sont a priori des bosons vu qu'ils résultent de la combinaison d'un exciton et d'un photon. Mais le caractère bosonique n'est valable qu'à basse densité de porteurs lorsque le nombre d'électron dans la bande de conduction et de trou dans la bande de valence sont faibles. Pour des densités plus élevées, le caractère fermionique des excitons et des trous modifie la force d'oscillateur des polaritons par écrantage.

Le couplage fort entre un photon confiné et un exciton d'énergie de liaison suffisante (notamment supérieur à l'agitation thermique) modifie les états propres du système. Alors qu'en couplage faible, la dispersion du mode photonique $E_c(k_{\parallel})$ croise la dispersion du mode excitonique $E_x(k_{\parallel})$, en couplage

fort, on obtient une branche polaritonique basse (LPB) et une branche polaritonique haute (UPB) qui s'anti-croisent. L'écart d'énergie minimal entre UPB et LPB, appelé éclatement de Rabin noté Ω .

La relation de dispersion est donnée par la relation implicite :

$$\varepsilon(\vec{k}, \omega) = \frac{c^2 k(\omega)^2}{\omega^2}$$

En considérant l'expression de ε_{ex} déterminée précédemment, la dispersion de la UPB est :

$$\frac{c^2 k(\omega)^2}{\omega^2} = \varepsilon_b + \sum_j \frac{f_j}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\Gamma_j \omega)}$$

La force d'oscillateur quantifie le couplage d'une transition excitonique avec le champ électromagnétique. Le terme $\frac{Ne^2}{m\varepsilon_0}$ issu d'une approche classique est donné dans une approche quantique par le carré de l'élément de matrice optique. Pour une transition autorisée entre l'état excitonique $|\Psi_{ex}\rangle$ et l'état final $|0\rangle$, ce terme devient :

$$|H_{ex}|^2 = |\langle \Psi_{ex} | H | 0 \rangle|^2$$

Dans cette approche : $f = \frac{2N|H_{ex}|^2 \omega_0}{\hbar \varepsilon_0}$

L'indice j fait référence à l'exciton A, B ou C dans leur état fondamental ou dans leur état excité. Dans le cadre du modèle hydrogénoïde, la force d'oscillateur du niveau n est égale à : $f_j^n = f_j^{n=1}/n^3$.

Plus précisément, les polaritons sont issus d'une superposition linéaire d'un exciton et d'un photon en remarquant que le caractère d'une contribution peut dominer sur l'autre. Les poids de la contribution photonique et excitonique du polariton - essentiels pour déterminer leurs propriétés intrinsèques, telles que l'élargissement homogène, la section efficace des processus de diffusion, la masse effective et le temps de vie - sont définis mathématiquement dans le modèle quantique, présentée au chapitre 3.2.d.(i). L'expression des poids excitoniques et photonique est valable aussi bien pour le massif que pour les microcavités.

Graphiquement, l'évolution de la contribution du poids excitonique et photonique en fonction de $k_{||}$ est évidente. Comme l'illustre la figure I-10, en observant l'allure de la LPB au voisinage de $k_{||} = 0$, on constate qu'elle tend vers la dispersion du mode photonique alors que lorsque $k_{||}$ augmente, la LPB s'aplatit et se rapproche du mode excitonique. A l'inverse, la UPB se rapproche de la dispersion du mode de cavité à grand $k_{||}$ et s'aplatit comme le mode excitonique proche de $k_{||} = 0$.

L'effet est plus prononcé aux deux extrêmes est plus prononcé pour des désaccords négatifs. En effet, lorsque δ diminue, le mode photonique décroît en énergie, croise le mode excitonique en $\delta = 0$ et passe sous le mode excitonique proche de $k_{||} = 0$, repoussant la LPB à des énergies plus faibles. En raison de la condition sur les coefficients de Hopfield, la UPB est également abaissée en énergie, renforçant son poids photonique. Pour une cavité, il est donc possible de contrôler le comportement des polaritons à travers leur composante photonique ou excitonique en jouant sur le désaccord.

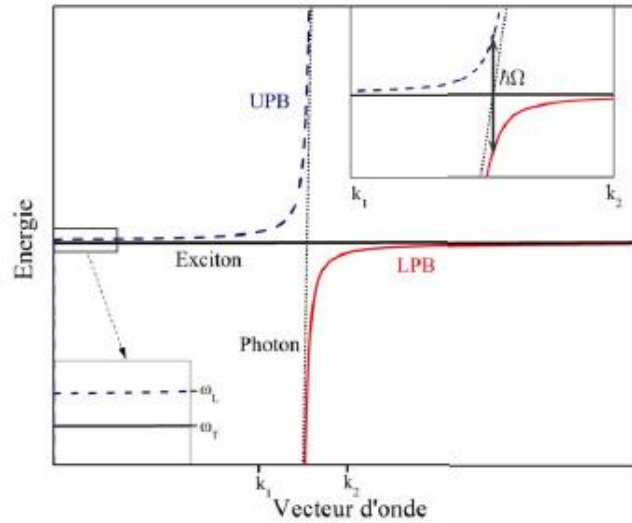


Figure I – 10. Dispersion dans le cas d'un régime de couplage fort pour un milieu non absorbant. La LPB est représentée en rouge et la UPB en bleu. L'antcroisement minimum entre ces deux courbes correspond au Rabi $\hbar\Omega$. En noir sont tracées les dispersions excitonique (trait épais) et photonique (trait fin).

A part l'anti-croisement de la LPB et UPB, une seconde caractéristique du couplage fort est l'éclatement LT (longitudinal-transversal). L'énergie correspondant à l'éclatement est notée $\hbar\omega_{LT}$. Sa valeur dépend de la force d'oscillateur A , qui est reliée à l'éclatement longitudinal-transverse ($\omega_{LT} = \omega_L - \omega_T$) par :

$$A = 2\varepsilon_b \hbar\omega_{LT} \hbar\omega_T = 2\varepsilon_b E_{LT} E_0$$

Pour le GaN, la relation suivante s'applique :

$$\hbar\omega_{LT} = \frac{f}{2\omega_T \varepsilon_b}$$

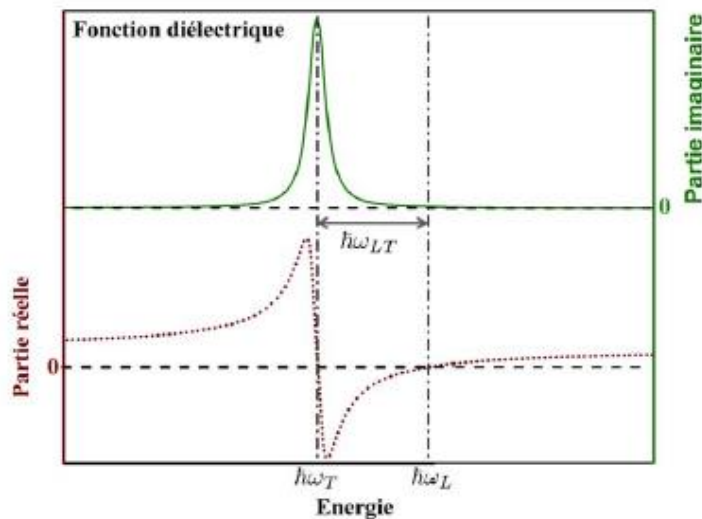


Figure I – 11. Fonction diélectrique d'un matériau à une seule résonance excitonique.

En revanche, la relation n'est plus valable pour ZnO car les résonances excitoniques A et B sont très proches et leur force d'oscillateur sont très élevées. L'éclatement est alors directement déduit de la fonction diélectrique.

Considérons le cas d'une résonance excitonique illustré sur la figure I-11. L'énergie du mode transverse est repérée au maximum de la partie imaginaire de la fonction diélectrique. L'énergie qui annule la partie réelle et la partie imaginaire de la fonction diélectrique repère l'énergie du mode longitudinal.

En partant du modèle classique précédent, on peut aussi prendre en compte les effets dispersifs en reliant les oscillateurs harmoniques entre eux. La fonction diélectrique dépend alors du vecteur d'onde k .

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_b + \sum_j \frac{f_j}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2 + B_j k^2 - i\Gamma_j \omega)}$$

$$\text{Ou } B_j = \frac{\hbar \omega_{0j}}{m_{exj}}$$

Si on néglige la dispersion de l'exciton ($B_j = 0$), la courbe de dispersion $E = f(k)$ du polariton peut être obtenue dans le cas d'une couche massive. L'expression du vecteur d'onde est donnée par :

$$k = \frac{E[J]}{\hbar c} \sqrt{\varepsilon_r(E[J])} = \frac{E[meV] * 10^{-3} * 1,6 * 10^{-19}}{1,05410^{-34} * 3 * 10^{-8}} \sqrt{\varepsilon_r(E[meV])}$$

L'expression de k en μm^{-1} :

$$k[\mu\text{m}^{-1}] = E[meV] * 0,00507 * \sqrt{\varepsilon_r(E[meV])}$$

Dans les deux figures ci-dessous, I-12 et I-13 est étudié le cas de la dispersion dans une couche massive de ZnO. Les élargissement homogène γ et inhomogène σ sont pris en compte. Cependant plutôt que de prendre l'élargissement total associé à une fonction de Voigt (coûteux en temps de calcul car comportant une intégrale), l'élargissement Γ qui est associée à la fonction de Voigt est injecté dans l'élargissement γ de la fonction lorentzienne

L'élargissement Γ de la fonction de Voigt est défini à partir des élargissements homogène γ et inhomogène σ :

$$\Gamma = 0,5346\gamma + \sqrt{0,2166\gamma^2 + \sigma^2}$$

Le calcul complet avec la fonction de Voigt a été réalisé à 5K pour un indice dispersif pour s'assurer que l'approximation d'injecter un élargissement de Voigt dans une lorentzienne ne conduisait pas à des écarts relatifs conséquent sur le Rabi. Effectivement, la différence est de moins de 0,5meV. Par gain de temps, tous nos calculs ont donc été réalisés en prenant une lorentzienne avec l'élargissement Γ .

Ci-dessous, le cas à basse température est modélisé avec un indice constant dans le cas le plus simple (indice hors résonance non dispersif) ou bien avec un indice dispersif dans le cas le plus réaliste (dont la partie réelle passe par un maximum au voisinage de l'énergie de bande interdite). Les dispersions à température ambiante sont données en annexe B

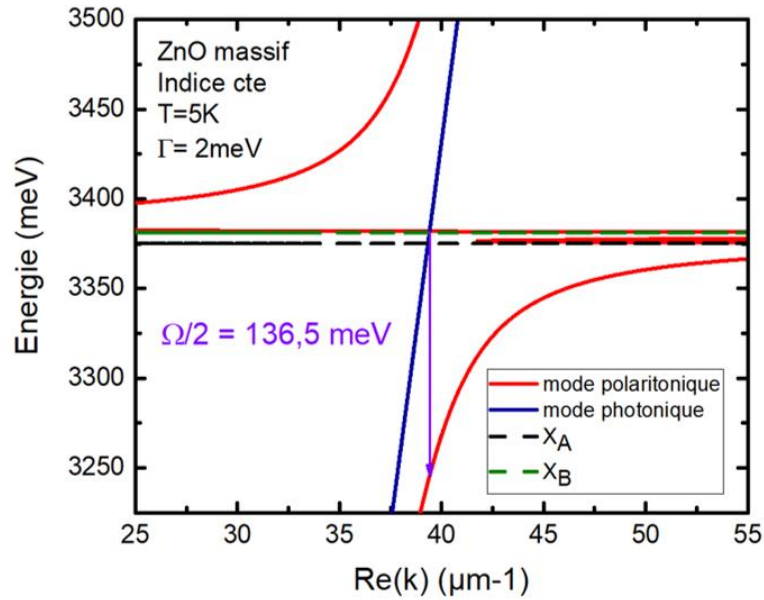


Figure I – 12. Dispersion du mode polaritonique dans ZnO massif à 5K en prenant un indice constant égal à 2.3.

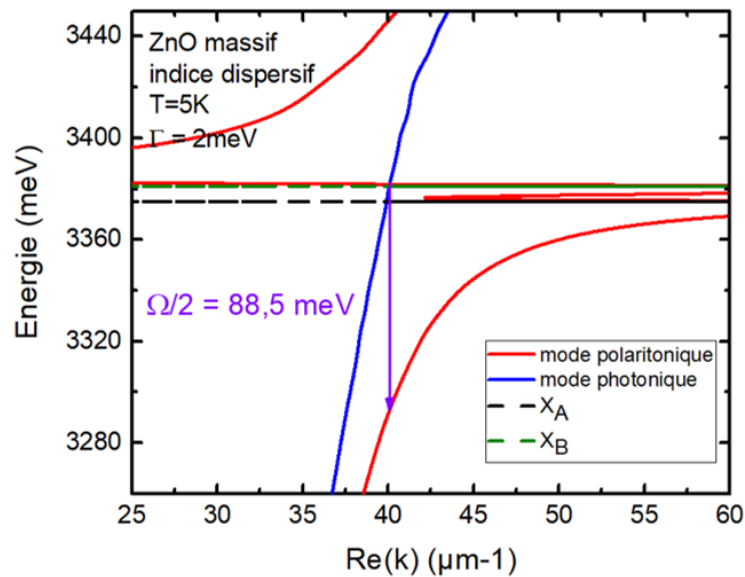


Figure I – 13. Dispersion du mode polaritonique dans ZnO massif à 5K en prenant un indice dispersif.

L'éclatement de Rabi Ω , c'est-à-dire la différence d'énergie minimale entre LPB et la UPB, est ici déterminé à partir du demi-Rabi $\frac{\Omega}{2}$ en considérant la différence d'énergie entre la LPB et le croisement du mode polaritonique avec le mode photonique. Les éclatements de Rabi du ZnO sont regroupés dans le tableau I-10 aux côtés de ceux de GaN pour des paramètres similaires.

Matériau	type d'indice	T=5K	T=300K
GaN	Constant (=2,4)	$\Omega = 122 \text{ meV}$	$\Omega = 120 \text{ meV}$
	dispersif	$\Omega = 45 \text{ meV}$	$\Omega = 40 \text{ meV}$
ZnO	Constant (=2,3)	$\Omega = 273 \text{ meV}$	$\Omega = 268 \text{ meV}$
	dispersif	$\Omega = 177 \text{ meV}$	$\Omega = 171 \text{ meV}$

Tableau I – 10. Eclatements de Rabi exprimés en meV dans une couche massive ZnO ou GaN donnés soit pour un indice constant soit pour un indice dispersif à une température T de 5K et de 300K.

Pour les deux matériaux, la première observation est que l'utilisation d'un indice constant conduit à une surestimation du Rabi vu que les Rabi calculés à partir d'un indice dispersif sont plus faibles. La seconde observation concerne l'effet de l'élargissement sur le Rabi. La baisse du Rabi avec la température est plus marquée dans le cas dispersif car le Rabi est plus faible. Enfin, le GaN possédant des forces d'oscillateur moins élevées que ZnO, nous observons comme prévu que les Rabi de GaN sont inférieurs à ceux de ZnO dans les mêmes conditions.

3.2) Polaritons dans un guide de lumière

Les guides d'onde sont une plateforme alternative aux microcavités offrant l'avantage d'une réalisation avec moins d'étapes technologique et une implémentation de l'injection électrique simplifiée.

3.2a) Structure et principe de fonctionnement d'un guide d'onde

Le couplage fort peut aussi être atteint dans un guide d'onde. Dans cette structure, des modes guidés se propagent au sein d'une couche active si la condition de confinement du champ EM par réflexion totale interne (RTI) est satisfaite, à savoir lorsque l'indice de la couche active (ZnO) est supérieur à l'indice des revêtements ($\text{Zn}_{0.78}\text{Mg}_{0.22}\text{O}$). Les modes guidés sont des modes non-radiatifs se propageant avec une constante de propagation β dans le plan du guide. Leur nombre dépend de l'épaisseur de la couche guidante.

La structure étudiée est représentée dans le schéma ci-dessous :

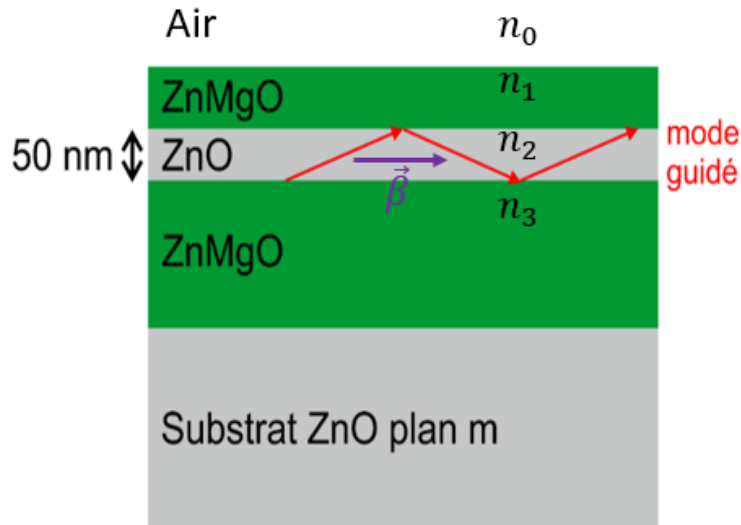


Figure I – 14. Schéma d'un guide d'onde planaire composé d'une couche guidante de ZnO, de cladding de ZnMgO et d'un substrat de ZnO plan m. Les rayons lumineux d'angle supérieurs à l'angle critique sont guidés dans la couche de ZnO. Les modes guidés se propagent dans la direction de la constante de propagation $\vec{\beta}$.

En considérant la propagation d'une onde lumineuse d'un milieu plus réfringent n_2 vers un milieu moins réfringent n_1 , un angle de réfraction limite θ_c est défini à partir duquel il n'existe plus de rayons réfractés transmis mais uniquement des rayons réfléchis. Cet angle est donné par :

$$\theta_c = \arcsin\left(\frac{n_1}{n_2}\right)$$

Les modes guidés sont des canaux de propagation pour les polaritons par couplage fort du mode photonique avec les excitons de la couche active. En représentant la dispersion en énergie en fonction du vecteur de propagation dans la couche active, appelé β en μm^{-1} , on définit une zone admissible pour les modes guidés entre les cônes de lumière de ZnO et de ZnMgO [49].

A droite de cette zone, il n'y a pas de solution et à gauche de la zone, on perd la réflexion totale à l'interface ZnO/ZnMgO. Les modes photoniques sont guidés pour la structure présentée figure I-14 puisque l'indice de ZnO (2,3) est supérieur à celui de ZnMgO (1,9). La relation de dispersion des modes guidés est présentée ci-dessous figure I-15.

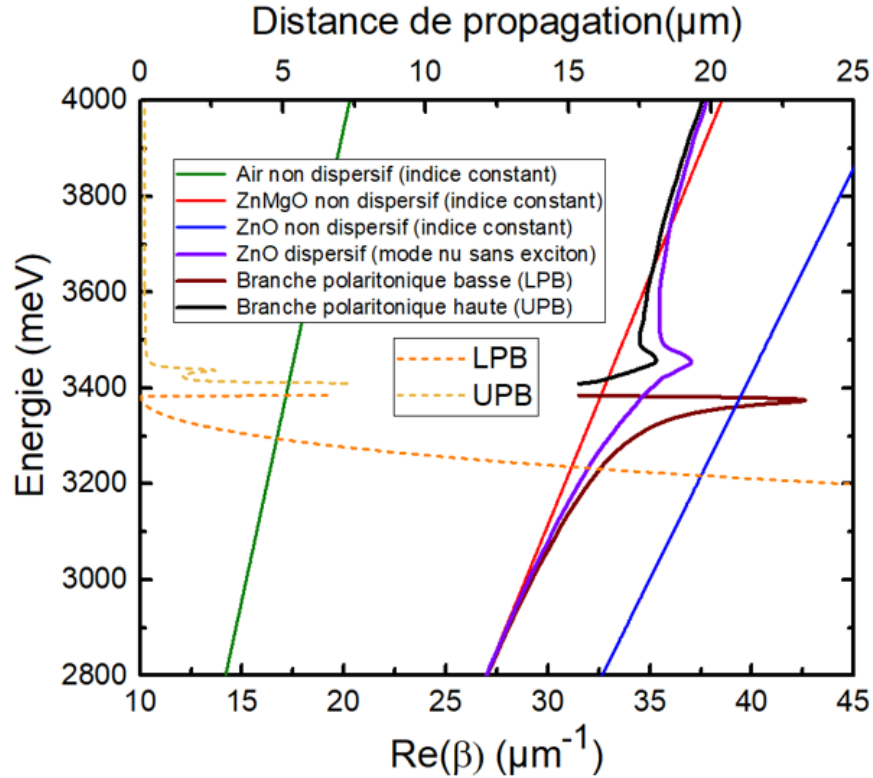


Figure I – 15. Dispersion des modes guidés de la structure présentée figure I-14. Sur l'axe horizontal du bas Les droites verte, rouge et bleue correspondent respectivement aux cônes de lumière de l'Air, du ZnO et du ZnMgO. En violet, la dispersion du mode photonique ZnO (sans exciton) à indice dispersif. En brun et noir, les nouveaux états propres en couplage fort : LPB et UPB. Le guidage est possible tant que la dispersion du ZnO est comprise entre les cônes de l'Air et de ZnMgO. Entre le cône de l'Air et de ZnO, l'indice du ZnO devient inférieur à celui du ZnMgO et le guidage a lieu dans le ZnMgO. La distance de propagation correspondante à la LPB et la UPB est indiquée sur l'axe horizontale du haut.

Pour tracer la LPB, une première boucle avec les énergies croissantes est tracée jusqu'à l'énergie des excitons. Pour la UPB, la boucle est tracée dans le sens des énergies décroissantes jusqu'à l'énergie des excitons. Ceci permet d'éviter des problèmes de convergence dû aux fortes variations de l'indice à cause de la contribution des excitons.

La distance de propagation d des polaritons est donnée par : $d = \frac{1}{2\text{Im}(\beta)}$. A basse énergie, la distance de propagation des polaritons est élevée, de l'ordre de $25 \mu\text{m}$ à 3200 meV , puis tend vers 0 à la résonance excitonique. L'absorption élevée dans la zone de la UPB explique que la distance de propagation tend vers 0 à hautes énergies.

Dans un premier cas, pour des énergies juste au-dessous de la résonance, l'indice de la couche active est augmenté par rapport à sa valeur initiale sans contribution excitonique. Dans un second cas, pour des énergies justes en-dessous de la résonance, l'indice de la couche active peut devenir inférieur au revêtement. La condition de réflexion totale interne n'est plus respectée et les modes ne sont plus guidés dans la couche de ZnO. Il s'agit de la zone de couplage faible.

Les deux cônes de lumière délimitent trois zones de couplage lumière-matière. A droite du cône de ZnO se situe la zone de non-existence des photons. Pour les valeurs de β correspondantes, la recombinaison

radiative des excitons est interdite, d'où la désignation de *dark excitons*. Dans la deuxième zone délimitée par les cônes de ZnO et ZnMgO, les photons sont confinés par réflexion totale interne et sont fortement couplés avec les excitons A et B. Le couplage est fort. Les nouveaux modes propres du système sont la LPB et la UPB. Dans la troisième zone située à gauche du cône de ZnMgO, pour des faibles valeurs de β la condition de RTI n'est plus satisfaite. Les photons sont faiblement couplés aux excitons et peuvent être détectés par spectroscopie classique ne nécessitant pas de réseau d'extraction.

La condition de RTI est toujours respectée tant que les indices ne sont pas dispersifs. Or la contribution des excitons sur la permittivité fait varier l'indice en fonction de la longueur d'onde. Le cône de lumière du ZnO n'est plus une droite mais se déforme avec une déformation maximale autour de la résonance excitonique.

La répartition du champ dans chacune des couches est déterminé à partir du formalisme des matrices de transfert S [50]

3.2)b) Détermination des modes guidés

Dans la description classique de l'interaction lumière-matière, les équations de Maxwell sont liées à la réponse excitonique à travers l'expression de la fonction diélectrique. Les équations de propagation sont présentées ici dans le cas isotrope.

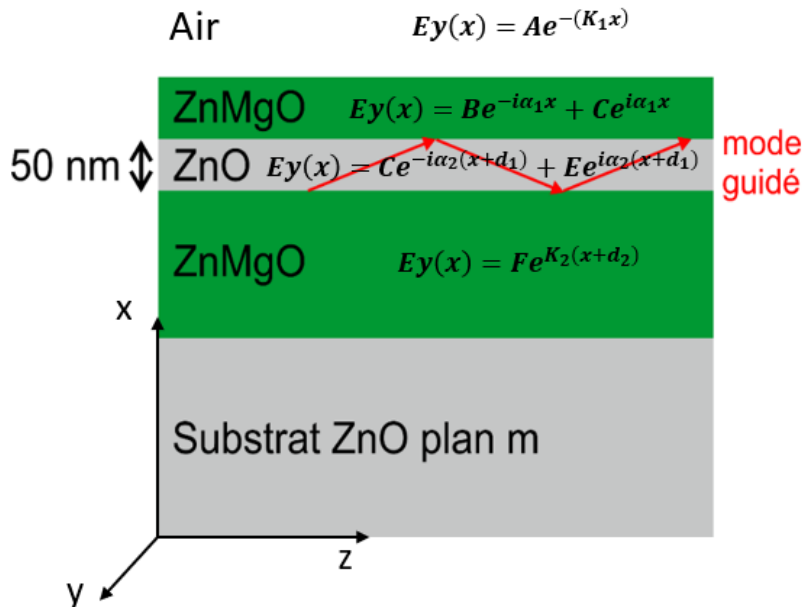


Figure I – 16. Guide ZnO présentant les équations de champ dans les différentes couches et repérant les axes (X, Y et Z). L'expression du champ électrique des ondes est évanescence dans l'air et dans le cladding inférieur de ZnMgO.

On part de l'équation de propagation : $\vec{\Delta}\vec{E} - \mu_0\varepsilon_0 \frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = 0$

En considérant une invariance suivant Y et dans le cas particulier d'une configuration où $\vec{E} \perp \vec{z}$, on a :

$$E(x) = E_y(x)e^{i(\omega t - \beta z)}$$

On aboutit à une équation dont il faut trouver les zéros dans le plan complexe :

$$a(\beta, \omega) + ib(\beta, \omega) = 0$$

La démonstration et l'expression complète de l'équation complexe sont données en annexe D).

3.2)c) Couplage fort dans un guide

3.2)c) (i) Modèle classique

L'interaction lumière-matière est décrite à travers les équations de Maxwell et la réponse excitonique via la fonction diélectrique. Dans les dispersions du mode polaritonique présentées ci-dessous, l'élargissement d'une fonction de Voigt est injecté dans une lorentzienne comme pour les calculs dans une couche massive.

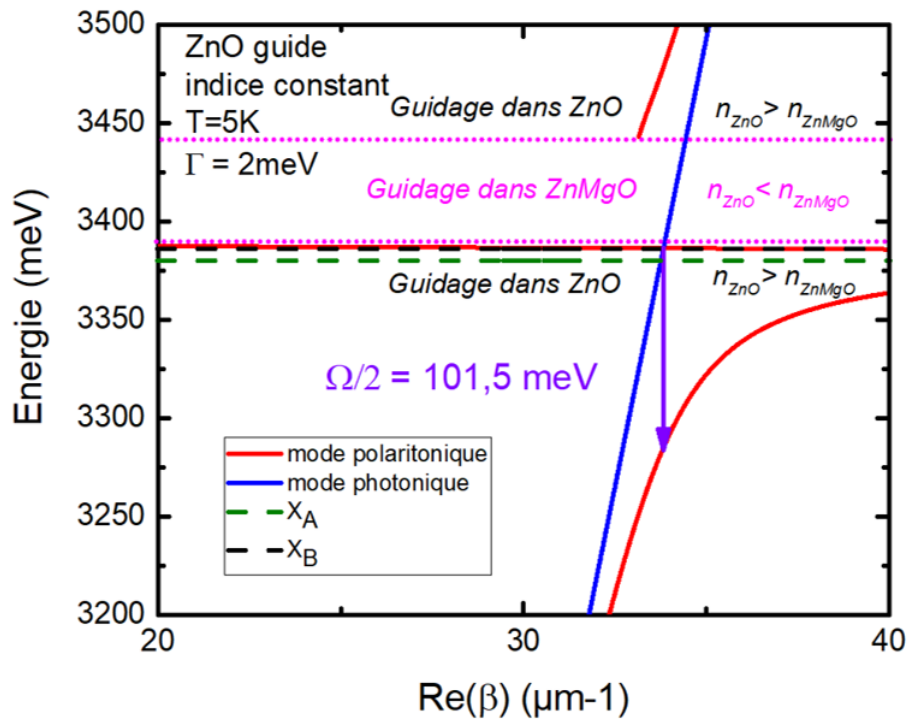


Figure I – 17. Dispersion du mode polaritonique TE dans un guide ZnO à 5K avec un indice constant égal à 2.3. Le mode polaritonique n'est pas calculé dans la zone de guidage de ZnMgO.

Sur la Figure I-17, on repère la zone entre traits hachurés magenta où le guidage dans ZnO est perdu. Au-dessus de la résonance excitonique, la contribution des lorentziennes modélisant les excitons est négative et l'indice du ZnO devient inférieur à celui du ZnMgO. Comme les équations du champ dans les couches du sous-chapitre précédent sont écrites pour une configuration avec un guidage dans ZnO, notre calcul cesse de converger. Vers 3450meV, l'indice de ZnO redevient supérieur à celui du ZnMgO et on peut calculer la UPB à plus haute énergie.

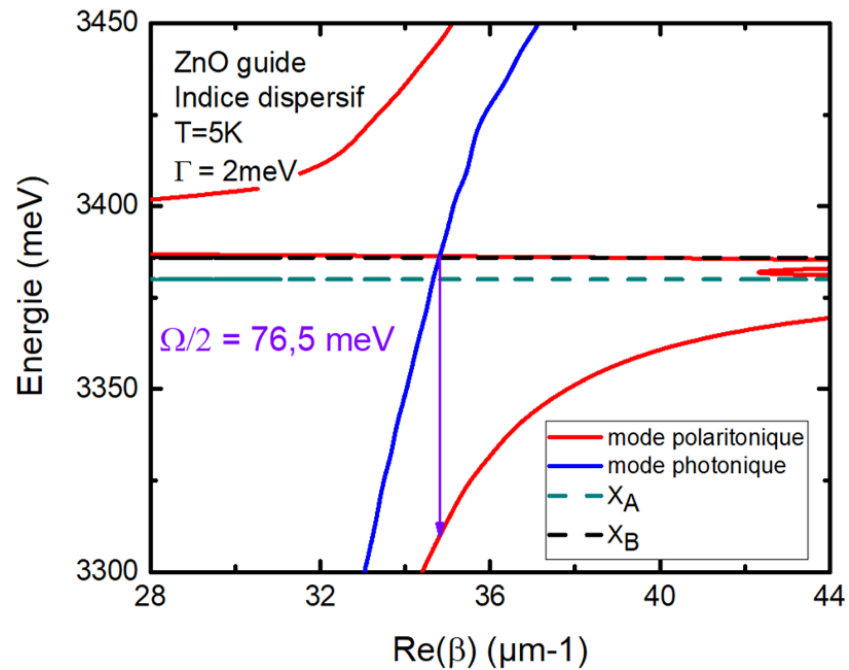


Figure I – 18. Dispersion du mode polaritonique TE dans un guide ZnO à 5K avec un indice dispersif

Matériau	type d'indice	T=5K	T=300K
GaN	Constant (=2,4)	$\Omega = 87 \text{ meV}$	$\Omega = 85 \text{ meV}$
	dispersif	$\Omega = 44 \text{ meV}$	$\Omega = 38 \text{ meV}$
ZnO	Constant (=2,3)	$\Omega = 203 \text{ meV}$	$\Omega = 187 \text{ meV}$
	dispersif	$\Omega = 153 \text{ meV}$	$\Omega = 139 \text{ meV}$

Tableau I – 11. Eclatements de Rabi exprimés en meV dans un guide ZnO ou GaN donnés soit pour un indice constant soit pour un indice dispersif à une température T de 5K et de 300K.

Les observations constatées pour le massif restent valables : Rabi plus faible avec un indice dispersif, diminution du Rabi plus importante dans le cas dispersif et Rabi plus élevé pour ZnO. En comparant aux Rabi obtenus dans une structure massive présentée dans la partie 3.1), les Rabi pour une structure guidée sont plus faibles, notamment à cause du débordement du champ électromagnétique dans les claddings.

3.2)c) (ii) Modèle quantique ou quasi-particule

En première approche, nous allons considérer un cas idéal où les temps de vie excitonique et photonique sont infinis.

Dans un modèle quantique, l'hamiltonien polaritonique $\hat{H}_{k_{\parallel}}^{pol}$ est la somme de sa composante photonique $\hat{H}_{k_{\parallel}}^c$, excitonique $\hat{H}_{k_{\parallel}}^X$ et de l'interaction les liant $\hat{H}_{k_{\parallel}}^{int}$.

Le couplage lumière-matière est traité comme une perturbation et le système peut être décrit par la règle d'or de Fermi et l'effet Purcell. [51]

Qualitativement, le couplage fort consiste en l'annihilation des états photoniques et excitoniques conduisant à la création d'un état polaritonique. Il est naturel de définir des opérateurs de création et d'annihilation ($\hat{a}_{k_{\parallel}}^+$, $\hat{a}_{k_{\parallel}}$) et respectivement ($\hat{b}_{k_{\parallel}}^+$, $\hat{b}_{k_{\parallel}}$) pour les excitons et les photons. A noter toutefois que les opérateurs excitoniques ne satisfont à la règle de commutation bosonique qu'à faible densité.

Ainsi dans le modèle de la seconde quantification et pour un vecteur d'onde k_{\parallel} :

$$\hat{H}_{k_{\parallel}}^{pol} = \hat{H}_{k_{\parallel}}^c + \hat{H}_{k_{\parallel}}^X + \hat{H}_{k_{\parallel}}^{int} = E_{GM}(k_{\parallel})\hat{a}_{k_{\parallel}}^+\hat{a}_{k_{\parallel}} + E_X(k_{\parallel})\hat{b}_{k_{\parallel}}^+\hat{b}_{k_{\parallel}} + V(\hat{a}_{k_{\parallel}}\hat{b}_{k_{\parallel}}^+ + \hat{a}_{k_{\parallel}}^+\hat{b}_{k_{\parallel}})$$

$E_{GM}(k_{\parallel})$ est la dispersion du mode photonique guidé se propageant dans la couche active et $E_X(k_{\parallel})$ est la dispersion du mode excitonique. La constante d'interaction V ne dépend pas du vecteur d'onde mais de la force d'oscillateur f_{osc} .

Cependant V_{GM} dans un guide d'onde n'est pas aussi facilement déterminé que V_c dans le cas d'une microcavité. En effet, pour une microcavité d'épaisseur L_c et de longueur effective L_{eff} (qui décrit le confinement du champ électromagnétique), la constante d'interaction s'exprime par :

$$V_c = \sqrt{\frac{f_{osc}L_c}{4n_{cav}^2L_{eff}}} \neq V_{GM}$$

Après diagonalisation, l'hamiltonien polaritonique est réécrit en fonction des nouveaux états propres du système à savoir les opérateurs bosoniques de création ($\hat{p}_{k_{\parallel}}^+$, $\hat{p}_{k_{\parallel}}$) et d'annihilation ($\hat{u}_{k_{\parallel}}^+$, $\hat{u}_{k_{\parallel}}$) :

$$\hat{H}_{k_{\parallel}}^{pol} = E_{LPB}(k_{\parallel})\hat{p}_{k_{\parallel}}^+\hat{p}_{k_{\parallel}} + E_{UPB}(k_{\parallel})\hat{u}_{k_{\parallel}}^+\hat{u}_{k_{\parallel}}$$

Ces états propres sont issus de la transformation de Hopfield des opérateurs initiaux :

$$\hat{p}_{k_{\parallel}}^+ = X_{k_{\parallel}}\hat{b}_{k_{\parallel}}^+ + C_{k_{\parallel}}\hat{a}_{k_{\parallel}}^+$$

$$\hat{a}_{k_{\parallel}}^+ = -C_{k_{\parallel}}\hat{b}_{k_{\parallel}}^+ + X_{k_{\parallel}}\hat{a}_{k_{\parallel}}^+$$

Où $X_{k_{\parallel}}$ et $C_{k_{\parallel}}$ sont les coefficients d'Hopfield satisfaisant la condition $|X_{k_{\parallel}}|^2 + |C_{k_{\parallel}}|^2 = 1$ [52]

Leur énergie respective E_{LPB} et E_{UPB} se définissent comme la moyenne des dispersions $E_{GM}(k_{\parallel})$ et $E_X(k_{\parallel})$ moins un terme de couplage dépendant du désaccord $\delta_{k_{\parallel}} = E_{GM}(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})$ et de la constante d'interaction V .

$$E_{LPB}(k_{\parallel}) = \frac{E_{GM}(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{\delta_{k_{\parallel}}^2 + 4V^2}$$

$$E_{UPB}(k_{\parallel}) = \frac{E_{GM}(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{\delta_{k_{\parallel}}^2 + 4V^2}$$

L'écart d'énergie minimal Ω entre UPB et LPB, appelé éclatement de Rabi (Rabi splitting en anglais), est obtenu lorsque $\delta_{k_{\parallel}} = 0$. Cette séparation d'énergie amène à un anti-croisement des branches polaritoniques et est une preuve visuelle que le système est en régime en couplage fort.

Cependant, en raison d'une absorption élevée à haute énergie (continuum bande à bande), la UPB ne sera pas toujours visible. Nous verrons dans la partie expérimentale que ce problème est résolu en considérant un demi-Rabi en $\delta = 0$ lorsque le mode photonique croise le mode excitonique.

$$\text{Ainsi : } \Omega = E_{UPB}(\delta = 0) - E_{LPB}(\delta = 0) = 2V$$

Les poids excitonique et photonique des polaritons pour une valeur de k_{\parallel} sont donnés par le module au carré des coefficients d'Hopfield. Ceux-ci dépendent du dédoublement de Rabi Ω et du désaccord $\delta_{k_{\parallel}}$:

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

$$P_{k_{\parallel}}(\delta) = -\frac{2(E_{LPB}(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel}))}{\sqrt{\Omega^2 + 4(E_{LPB}(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel}))^2}}$$

Le calcul des poids excitoniques et photonique est donné dans la figure I-19 pour un guide ZnO de 50nm d'épaisseur à une température de 5K.

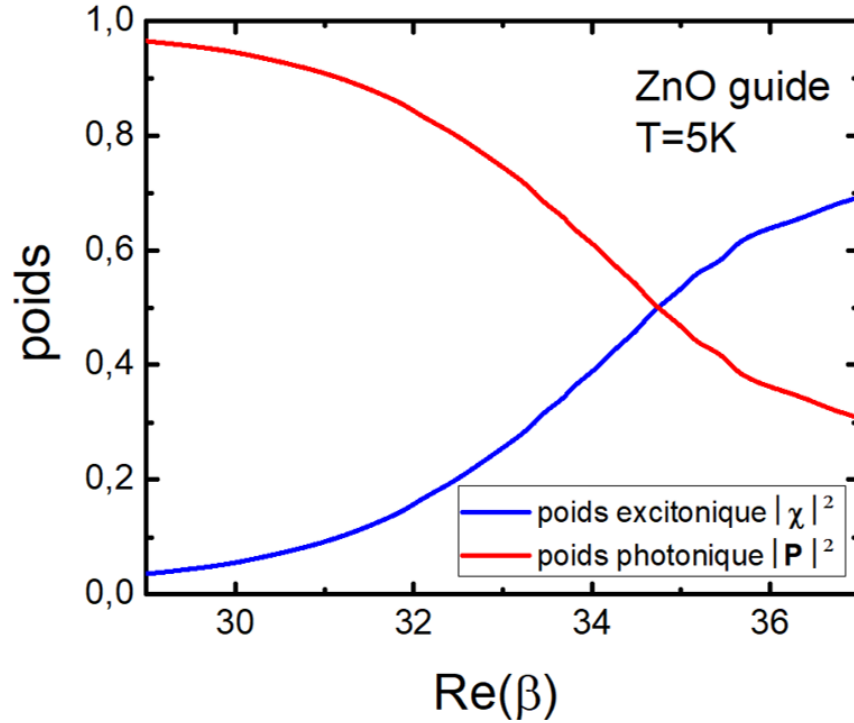


Figure I - 19. Poids excitonique et photonique déterminés à partir des coefficients d'Hopfield d'un guide ZnO de 50 nm d'épaisseur en fonction de la partie réelle de la constante de propagation β , pour des énergies inférieures aux énergies excitoniques. Le Rabi intervenant dans le calcul de la LPB égal à 154meV est tiré de la figure I-18.

Les coefficients de Hopfield permettent de déterminer la masse polaritonique à partir de la masse excitonique m_X et photonique m_{ph} pour une valeur de k_{\parallel} donnée :

$$\frac{1}{m_i} = \frac{X_i}{m_X} + \frac{P_i}{m_{ph}}$$

Où l'indice i désigne soit la LPB soit la LPB.

De façon similaire, les temps de vie polaritoniques de la branche basse τ_{LPB} et de la branche haute τ_{UPB} se déduisent du poids excitoniques et photoniques et des coefficients d'Hopfield pour une valeur de k_{\parallel} donnée :

$$\frac{1}{\tau_i} = \frac{X_i}{\tau_X} + \frac{P_i}{\tau_{ph}}$$

Où l'indice i désigne soit la LPB soit la LPB. La compréhension des processus de relaxation passe par la détermination des temps de vie. Le temps de vie moyen est obtenu en considérant l'ensemble des temps de vie d'un nombre N de polaritons :

$$\frac{1}{\tau_i} = \frac{\sum_{k_{\parallel}} \left[\frac{X_i(k_{\parallel})}{\tau_X} + \frac{P_i(k_{\parallel})}{\tau_{ph}} \right]}{N_i}$$

En considérant à présent le cas réel avec des temps de vie fini, il faut ajouter des élargissements sur la partie imaginaire des énergies E_c et E_X .

$$\hat{H}_{k_{\parallel}}^{pol} = \begin{pmatrix} E_{GM}(k_{\parallel}) - i\gamma_{GM} & V \\ V & E_X(k_{\parallel}) - i\gamma_X \end{pmatrix}$$

Précisons qu'il s'agit d'élargissement homogènes augmentant avec la température. Ils constituent le frein principal à l'établissement du couplage fort. Le modèle des oscillateurs couplés ne prend pas en compte l'élargissement inhomogène. Ce dernier peut être pris en compte en l'intégrant directement dans le terme γ_X .

Les énergies propres deviennent :

$$E_{LPB}(k_{\parallel}) = \frac{E_{GM}(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} - i\left(\frac{\gamma_X + \gamma_{GM}}{2}\right) - \frac{1}{2}\sqrt{(\delta_{k_{\parallel}} - i(\gamma_X - \gamma_{GM}))^2 + 4V^2}$$

$$E_{UPB}(k_{\parallel}) = \frac{E_{GM}(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} - i\left(\frac{\gamma_X + \gamma_{GM}}{2}\right) + \frac{1}{2}\sqrt{(\delta_{k_{\parallel}} - i(\gamma_X - \gamma_{GM}))^2 + 4V^2}$$

Concernant les élargissements, il convient de préciser que leur valeur est modifiée par rapport à leur valeur initiale même en régime de couplage faible étant donné que les modes sont toujours corrélés à travers la constante d'interaction V .

En prenant $\delta_{k_{\parallel}} = 0$, on met en évidence les deux régimes de couplage.

Si $V \leq \frac{|\gamma_X - \gamma_{GM}|}{2}$, alors le terme sous la racine est négatif. Les énergies de la partie réelle de la UPB et la LPB sont confondues ($\Omega = 0$).

Si $V > \frac{|\gamma_X - \gamma_{GM}|}{2}$, le terme sous la racine est positif entraînant l'anti-croisement des branches polaritoniques et le Rabi s'écrit :

$$\Omega = 2\sqrt{V^2 - \left(\frac{\gamma_X - \gamma_{GM}}{2}\right)^2}$$

Discutons de quelques cas remarquables. Lorsque les élargissements sont égaux, nous retrouvons le Rabi idéal $\Omega = 2V$. Si la différence des élargissements est égale à $2V$, $\Omega = 0$, le couplage fort est perdu. Les énergies des modes propres sont dégénérées et égales aux énergies des modes nus E_{GM} et E_X .

Au sein des microcavités, la condensation des polaritons a lieu au minimum de la branche polaritonique basse correspondant à l'état fondamental.

4) Condensation de Bose-Einstein des polaritons

Les polaritons sont des bosons composites de spin entier, composés d'un photon (boson de spin entier $J=1$) et d'un exciton (boson composite (électron et trou) de spin entier). Le spin de polarisation restant entier permet donc d'envisager la possibilité d'une condensation de Bose-Einstein polaritonique depuis une quarantaine d'années.

Dans la suite de ce sous-paragraphe, nous nous plaçons dans un cas idéal où l'interaction entre bosons est négligée, le système étant en contact avec un thermostat à la température T . Nous supposons aussi que la densité bosonique est suffisamment faible de telle sorte que les composants fermioniques ne conduisent pas à une transition vers un plasma d'électron-trou (EHP en anglais).

Un condensat de Bose-Einstein est caractérisé par sa grande cohérence et par l'occupation macroscopique de l'état fondamental. En se condensant, l'extension spatiale des bosons, représentée par la longueur d'onde de de Broglie λ_T devient comparable à la distance inter-bosons. λ_T dépend de la température et de la masse des bosons en 3 dimensions :

$$\lambda_T = \frac{h}{\sqrt{2\pi m k_B T}}$$

La condensation apparaît à des températures inférieures à une température critique T_c qui dépend de la densité de particules n et de leur masse m . Dans un système de dimension 3, l'expression de T_c est :

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

D'après l'expression de λ_T , une faible masse bosonique favorise également la condensation tout en augmentant la température critique T_c permettant d'atteindre des condensations à des températures plus accessibles expérimentalement. La BEC polaritonique où $m_{pol} = 10^{-5}m_0$ pourra être obtenue à température ambiante.

4.1) Condensation de Bose-Einstein comme introduite initialement par Einstein

Einstein se place dans un cadre de N bosons sans interaction à la température T , confinés dans un volume L^d (où d représente la dimension du système $d=1, 2$ ou 3). Pour déterminer la densité de particules n , il faut choisir la fonction de partition appropriée.

Suivant la symétrie de leur fonction d'onde, les particules sont classées en deux groupes : les fermions (spin demi-entier, fonction d'onde anti-symétrique) et les bosons (spin entier, fonction d'onde symétrique). Dans les deux cas, les particules distribuées sont indiscernables.

Les fermions suivent la statistique de Fermi-Dirac. Cette statistique respecte le principe d'exclusion de Pauli entraînant $f_{FD} < 1$ et s'applique aux électrons et aux trous qui composent les excitons.

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

Les bosons, tels que les photons ou excitons suivent la statistique de Bose-Einstein :

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

Où $E(\vec{k})$ est la relation de dispersion des bosons et μ le potentiel chimique qui correspond à l'énergie qu'il faudrait apporter au système pour ajouter une particule. Comme la fonction $f_{BE} > 0$, le potentiel chimique respecte la condition $\mu < E(0)$ où $E(0)$ est l'énergie du niveau fondamental. Si l'on a $E(0) = 0$ pour que la fonction de partition reste positive, le potentiel chimique devra être strictement négatif.

Nous remarquons que cette statistique présente une singularité lorsque $E = \mu$. Ainsi une population macroscopique peut s'établir sur un état quantique unique. A haute température, l'expression de f_{BE} tend vers la statistique de Boltzmann (équivalente à une distribution de particules classiques discernables) :

$$f_B(\vec{k}, T, \mu) = \exp\left(\frac{-(E(\vec{k}) - \mu)}{k_B T}\right)$$

Le nombre total de particules N est la somme de la distribution sur l'ensemble de la dispersion :

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

La densité n est alors obtenue en intégrant la distribution dans l'espace des \vec{k} en se plaçant dans la limite thermodynamique ($N \rightarrow \infty, L^d \rightarrow \infty, \text{et } n = \frac{N}{L^d}$) :

$$n(T, \mu) = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{N(T, \mu)}{L^d} = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{L^d} \frac{1}{\exp\left(\frac{E(0) - \mu}{k_B T}\right) - 1} + \frac{1}{(2\pi)^d} \int_{E > E(0)}^{+\infty} f_{BE}(\vec{k}, T, \mu) d^d \vec{k}$$

Le premier terme correspond à la densité de l'état fondamental $n_0(T, \mu)$. Dans le cas particulier où $E(0) = 0$, ce terme est différent de zéro uniquement si μ tend vers 0 par valeur négative. Si $E(0) \neq \mu$, ce terme est nul et l'état fondamental est inoccupé. Le deuxième terme donne la densité des états excités qui est une fonction croissante de μ . Ajouter de nouvelles particules au système requiert donc une énergie croissante.

Au-delà d'une densité critique n_c , les états excités sont saturés et ne peuvent plus recevoir de particules. Le potentiel chimique tend alors vers 0. Les particules supplémentaires vont alors occuper l'état de plus basse énergie. Cette transition de phase vers une peuplement macroscopique de l'état fondamental a été

prédite par Einstein [53] en 1925. Dans le cas de système de dimension supérieur à 2, la densité maximale que peut atteindre ce deuxième terme est donnée par :

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

La densité de l'état fondamental en fonction de la température lorsque $d = 3$ est exprimée par :

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

Avec T_c la température critique introduite précédemment vérifiant $n_0(T_c) = 0$. Lorsque la température augmente et s'éloigne de la densité critique,

Néanmoins, il est possible de faire converger l'intégrale X pour un système 2D de particule interagissant faiblement en excluant de l'intégrale la zone proche de l'état final. Une transition de phase locale vers un état superfluide, dite de Kosterlitz-Thouless [54], est possible. Un quasi-condensat se forme dont les propriétés sont très proches d'un condensat de Bose-Einstein. La condensation ne peut être atteinte qu'en 3D.

Notons que dans le cas de polaritons dans une microcavité dont l'axe de croissance confère au système un confinement 2D, le terme de la densité des états excités diverge, le potentiel chimique ne devient jamais nul et la condensation de Bose-Einstein n'est pas possible.

4.2) Laser à polaritons dans une microcavité

4.2)a) Mécanismes conduisant à la condensation des polaritons

Historiquement, le couplage fort polaritonique a d'abord été réalisé au sein de microcavité que nous allons présenter dans ce sous-chapitre. Une microcavité est composée d'une couche active encadrée par deux miroirs de Bragg, composés d'une succession de deux couches d'indice différents n_1 et n_2 .

Plus le contraste d'indice est élevé, meilleur est le confinement du champ. D'une couche à l'autre, les réflexions engendrées vont interférer de façon constructive si d'une part le déphasage entre deux réflexions successives est un multiple de 2π et si d'autre part les épaisseurs l_1 du miroir d'indice n_1 et l_2 du miroir d'indice n_2 vérifient :

$$l_1 = \frac{\lambda_0}{4n_1} \text{ et } l_2 = \frac{\lambda_0}{4n_2}$$

Où λ_0 est la longueur d'onde dans le vide à laquelle est centré le miroir.

Les modes photoniques stationnaires respectant la condition $L_C = m \frac{\lambda_C}{2n_C}$ en incidence normale sont appelés modes de cavité. Pour une couche active d'indice n_C , la longueur d'onde de cavité λ_C est alors pour une incidence quelconque d'angle θ_C :

$$\lambda_C = \frac{2n_C L_C \cos \theta_C}{m}$$

Contrairement à un résonateur de Pérot-Fabry, où le confinement est réalisé par des miroirs métalliques, le champ électromagnétique pénètre dans les miroirs de Bragg, ajoutant une longueur de pénétration L_{DBR} à la longueur de la couche active L_C . La longueur effective de la cavité est alors :

$$L_{eff} = L_C + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^2 L_{DBR_i}$$

Sur un spectre de réflectivité, le mode de cavité se présente comme un creux, situé au centre de la stop-bande. Cette dernière résulte de la périodicité de l'empilement des couches du miroir et correspond à la zone où les ondes électronégatives ne peuvent se propager. Concrètement L_{DBR} correspond au double de la distance à laquelle il faudrait placer un miroir pour induire un même retard de phase sur le coefficient de réflexion.

La longueur d'onde du mode photonique diffère légèrement de la longueur de cavité λ_c définie précédemment si la longueur d'onde des miroirs λ_{0_i} est différente de celle de la cavité :

$$\lambda_{ph} = \frac{\lambda_c L_C + \frac{1}{2} (\lambda_{0_1} L_{DBR_1} + \lambda_{0_2} L_{DBR_2})}{L_{eff}}$$

La largeur à mi-hauteur Γ_{ph} du mode photonique est reliée au temps de vie fini des photons τ_{ph} dans la cavité :

$$\tau_{ph} = \frac{Q}{\omega_{ph}} = \frac{E_{ph}}{\Gamma_{ph}} \frac{1}{\omega_{ph}}$$

Où Q est le facteur de qualité de la cavité. Plus il est élevé, plus la durée de vie des photons augmente.

Le laser à polaritons a été proposé pour la première fois en 1996 par A.Immamoğlu et al. Le principe repose sur l'utilisation d'un condensat de polaritons hors-équilibre pour produire une source de lumière cohérente. Quatre mécanismes conduisent à la formation du condensat de polaritons : le pompage, le remplissage du réservoir excitonique, la relaxation le long de la branche basse et la formation du condensat au-delà d'une densité critique. Nous allons à présent détailler ces mécanismes.

Dans le cas classique de la microcavité, un plasma d'électron-trou est créé par pompage optique non résonant à haute énergie. En quelques fs , les émissions de phonons entraînent la relaxation des paires électrons-trou vers un état de grand vecteur d'onde sur la branche basse de dispersion polaritonique. L'accumulation de polaritons dans cette zone constitue un réservoir de polaritons à fort caractère excitonique, appelé plus justement 'réservoir excitonique'.

Ces polaritons se thermalisent ensuite le long de la branche basse vers l'état d'énergie minimum en $k=0$

en émettant des phonons optiques [55] [56]. Comme d'une part la fraction photonique des polaritons augmente et comme d'autre part le temps de vie des photons est au moins deux ordres de grandeur plus faibles que le temps de vie des excitons, le temps de vie des polaritons et leur probabilité d'interagir avec d'autres particules diminuent.

Le temps de vie faible des polaritons (quelques ps) par rapport au temps de dissipation (quelques dizaines de ps) rend la relaxation des polaritons jusqu'au minimum de la bande problématique [57].

Les polaritons s'accumulent au niveau du Bottleneck [58] (goulot d'étranglement en anglais) lorsque la courbure de la branche basse change de signe. Les polaritons doivent alors céder une énergie croissante et peu de vecteur d'onde.

Au-delà d'une densité critique de polariton accumulée, l'effet du 'bottleneck' est surmonté. La puissance d'activation du phénomène laser correspondant à cette densité est appelée seuil laser, intrinsèquement lié à la relaxation des polaritons du réservoir excitonique jusqu'au bas de la LPB (en $\vec{k} = \vec{0}$).

L'augmentation de la population entraîne la formation d'un condensat de polariton au niveau du minimum d'énergie en favorisant le processus de diffusion polariton-polariton. D'après les principes de conservation du vecteur d'onde et de l'énergie, un polariton atteint l'état fondamental et un autre est envoyé à une énergie et un vecteur d'onde plus élevés.

Concrètement, les cavités sont conçues pour modifier le dédoublement de Rabi, en jouant sur les épaisseurs des miroirs de Bragg et de la couche active, et le désaccord pour modifier la fraction excitonique qui favorisant les interactions entre particules en favorisant les phénomènes de relaxation.

Sur la figure I-20 sont résumées les différentes étapes qui mènent à la condensation des polaritons dans l'état de plus basse énergie.

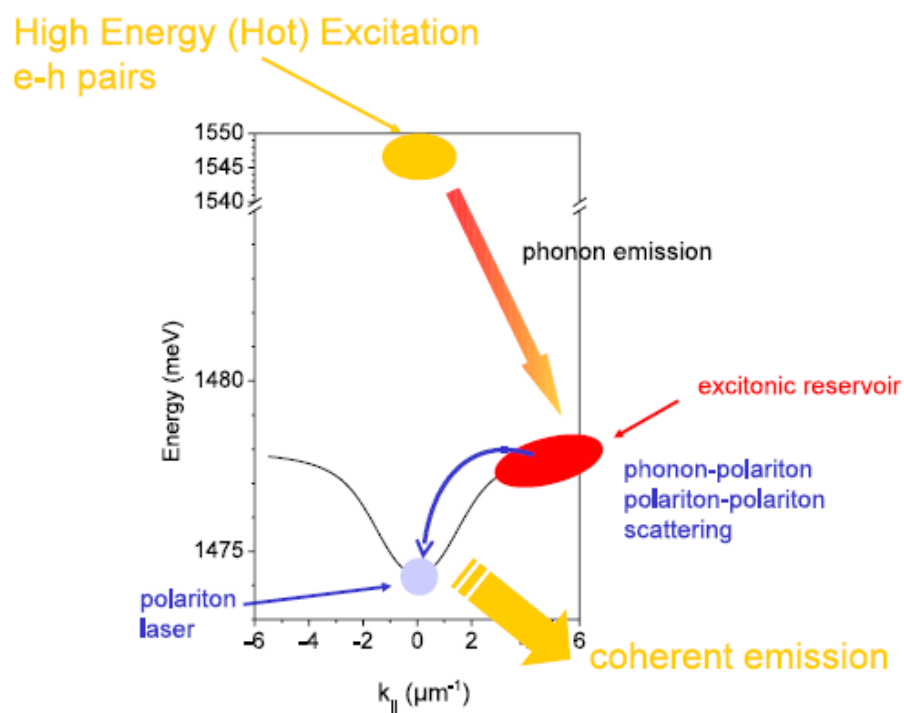


Figure I-20. Représentation schématique des processus de relaxation conduisant au laser à polaritons dans une microcavité planaire à base de GaAs sous excitation non résonante. La courbe noire correspond à la dispersion de la LPB. La figure est extraite de la référence [4].

En 2006, Kasprzak et al. observent pour la première fois la condensation de Bose-Einstein dans une microcavité de CdTe [59]. Le condensat émet par luminescence une émission de photons cohérents et monochromatiques, d'où la dénomination de laser à polaritons. Cependant à la différence fondamentale d'un laser classique, l'inversion de la population n'est pas une condition nécessaire. En effet, la condensation passe par la dynamique de relaxation via l'occupation de l'état final propre aux bosons.

En effet, la probabilité qu'un polariton relaxe d'un état k quelconque vers l'état fondamental est donné par :

$$W_{k \rightarrow 0} = W_{k \rightarrow 0}^0 (1 + \langle N_0 \rangle)$$

Où $W_{k \rightarrow 0}^0$ est la probabilité qu'un polariton relaxe d'un état de vecteur d'onde k vers l'état fondamental lorsque ce dernier est vide. N_0 est la population moyenne du minimum d'énergie.

La cinétique des processus de relaxation des polaritons du réservoir vers les bas états d'énergie de la LPBB est décrite par une équation semi-classique de Boltzmann résolue numériquement et présentant l'avantage l'ensemble des processus d'interactions [60].

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

Où $W_{k \rightarrow k'}$ correspond au taux de diffusion des polaritons d'un vecteur d'onde k vers un vecteur d'onde k' quel que soit le type de processus de diffusion, calculés à partir de la règle d'or de Fermi. n_k est la fonction de distribution des polaritons, P_k correspond au terme de pompage, Γ_k correspond au taux de déclin des polaritons.

Le pompage des polaritons P_k dans le réservoir excitonique lorsque $E_k > E_X$ est donné par :

$$P_k = P_0 \exp\left(-\frac{(E_k - E_X)}{k_B T}\right)$$

Le temps de déclin Γ_k est l'inverse du temps de vie non-radiatif τ_{nr} , considéré comme un temps de relaxation.

4.2)b) Régime thermodynamique et régime cinétique en fonction du déphasage

Deux régimes de relaxation des polaritons vers le piège polaritonique de la LPB peuvent être distingués en analysant l'évolution du temps de vie des porteurs en fonction du désaccord.

La figure I-21 présente l'évolution du temps de relaxation polaritonique τ_r et du temps de vie polaritonique τ_{pol} en fonction du désaccord $\delta_{k_{\parallel}} = E_C(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel})$, avec E_C l'énergie du photon et E_X l'énergie de l'exciton.

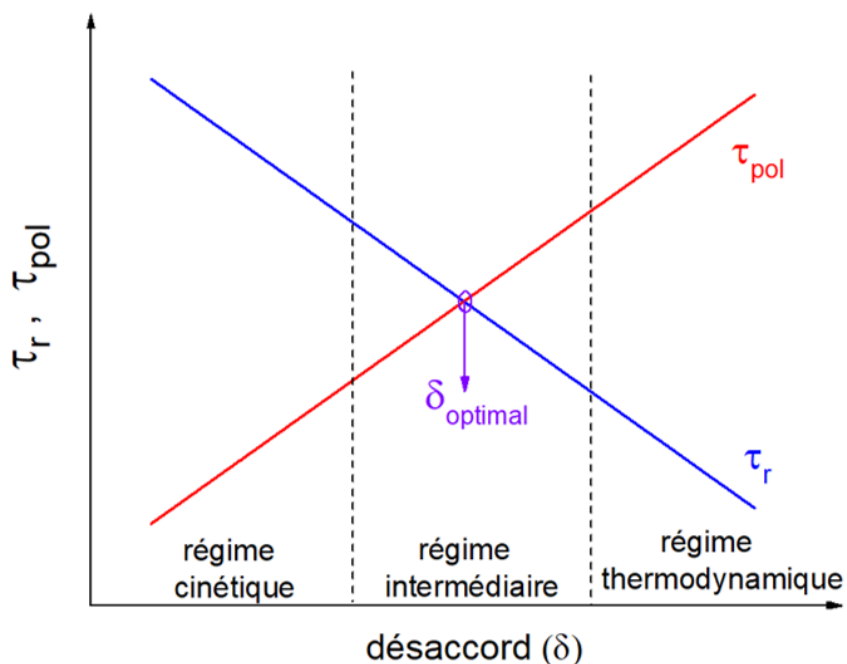


Figure I – 21. Description schématique de l'évolution du temps de vie moyen polaritonique τ_p et du temps de relaxation polaritonique sous excitation non-résonante à une température quelconque en fonction du désaccord montrant les régions où τ_r est favorisé une condensation thermodynamique, une condensation cinétique ou une condensation mixte.

Le temps de vie des polaritons τ_{pol} dépend de la fraction photonique et augmente donc en passant de désaccords négatifs à des désaccords moins négatifs (τ_{pol} varie entre le temps de vie photonique et le temps de vie excitonique).

A l'inverse le temps de relaxation τ_r diminue en raison d'une faible profondeur du piège polaritonique, du caractère excitonique plus marqué des polaritons de la branche polaritonique basse et d'interactions polaritons-polaritons et polaritons-phonons plus élevées.

Dans le régime thermodynamique, lorsque $\tau_{pol} \gg \tau_r$, la relaxation rapide permet la thermalisation du gaz de polaritons, la distribution polaritonique est en équilibre à une température supérieure ou égale à celle du réseau. Dans ce régime, le seuil laser augmente avec l'augmentation du désaccord.

Dans le régime cinétique, au contraire $\tau_{pol} \ll \tau_r$, la distribution polaritonique est alors hors équilibre, le piège polaritonique est profond et les interactions des polaritons avec d'autres particules sont défavorisées. La relaxation trop lente ne permet pas la thermalisation du gaz de polariton et la condensation est alors gouvernée par la relaxation cinétique des particules.

4.2)c) Interaction polariton-polariton, polariton-phonon, polariton-impuretés dans les microcavités

Nous allons énumérer les différents processus permettant la relaxation des polaritons vers des états de basse énergie de la LPB. Dans le cas des microcavités, les principaux processus de diffusion [57] sont les interactions polariton-polariton, polariton-phonon et polariton-porteur-libre.

L'équation semi-classique de Boltzmann présentée dans 4.2)a) permet de calculer la densité de population nécessaire pour former un condensat à un désaccord donné et une température donnée.

Tant que la densité de polariton est faible, l'interaction polariton-polariton est négligeable et l'élargissement associé est négligeable. La densité d'exciton (ou de polariton photocréés) est supposée égale à la densité de photons en considérant que chaque photon crée un polariton.

Premièrement, l'interaction polariton-polariton est un processus de diffusion élastique de l'ordre de quelques ps. Chaque interaction met en jeu une énergie de l'ordre de quelques meV. L'effet principale de cette interaction est de permettre aux polaritons de franchir le bottleneck, favorisant leur relaxation vers le minimum de la LPB. Cependant, le processus ne dissipe pas d'énergie et ne réduit pas la température du gaz polaritonique. Tandis qu'un des deux polaritons descend le long de la LPB vers les basses énergies où il se recombine radiativement en quelques ps, l'autre est propulsé vers les états de hautes énergies et se recombine de façon non-radiative (en dehors du cône de lumière) en quelques centaines de ps.

Deuxièmement, le pompage optique génère des porteurs libres qui peuvent interagir avec les polaritons. L'interaction polariton-phonon ne joue pas un rôle aussi prépondérant que l'interaction polariton-polariton puisque le temps de formation d'exciton ou de paires d'électron et de trous fortement corrélés est bien plus court que le temps de vie polaritonique.

Troisièmement, polariton-phonon acoustique. L'interaction entre les phonons acoustiques et les excitons est moins efficace que l'interaction entre ces derniers et les phonons optiques. Chaque processus de relaxation prend environ 10 ps et moins de 1meV d'énergie est échangée.

Au départ, les polaritons partent du haut de la LPB de la zone hors du cône de lumière où le temps de relaxation est plus court que le temps de vie des particules. Puis, pendant 100 à 200 ps, le polariton dissipe 10 à 20 meV d'énergie cinétique afin d'atteindre la frontière avec la zone active du cône de lumière. Ensuite, 5 à 10 meV d'énergie doivent encore être dissipée par les polaritons avant d'atteindre le fond du piège polaritonique. Cette dernière étape est assistée par des photons acoustiques dure environ 50 ps, ce qui est environ dix fois plus élevé que le temps de vie des polaritons dans cette zone. C'est pourquoi les polaritons ne peuplent pas fortement les états du piège polaritonique. La distribution polaritonique est concentrée dans la zone hors du cône de lumière et à la frontière avec la zone active, expliquant l'effet de bottleneck. Le système n'atteint pas l'équilibre thermique en raison des cinétiques de relaxation trop faibles.

4.3) Cas du guide polaritonique

4.3)a) Mécanisme du laser polaritonique

Dans le cas des guides d'onde, la branche polaritonique basse ne possède pas d'état fondamental. Il n'existe donc pas d'état privilégié à une énergie fixe contrairement à la condensation dans une microcavité qui a lieu en $k_{\parallel} = 0$ sur le bas de la LPB. La cinétique des processus de relaxation favorise la condensation d'une population macroscopique dans un état favorable qui dépend des conditions d'excitation.

En effet, les fissures qui traversent les guides d'onde sur toute leur épaisseur forment à la surface des cavités horizontales encadrant le spot d'excitation. Cette configuration est souvent désignée 'laser à polariton horizontal' par opposition au 'laser à polaritons vertical' se rapportant aux microcavités. Une majorité de polaritons reste confinée dans une cavité horizontale efficace par réflexion sur les fissures.

La vitesse de groupe est donnée par la relation de dispersion du mode guidé ; le temps de passage t_p des excitons sous le spot dépend de v_g et du diamètre du spot d non nulle du mode guidé. La vitesse de groupe est donnée par : $v_g = \frac{d\omega}{dk} = \frac{d}{t_p}$. Cette vitesse de groupe augmente lorsque l'on s'éloigne de la résonance excitonique

Pour un état d'énergie donné, la population de polariton N augmente à condition que :

$$W_{in} - W_{out} > \Gamma$$

Où W_{in} et W_{out} sont respectivement les taux de diffusion entrant et sortant propres à chaque état polaritonique. Pour rappel, le taux de décroissance Γ est donné par : $\Gamma = \frac{1}{t_p}$.

Augmenter la densité d'excitation ou augmenter le temps de passage t_p des excitons sous le spot (en augmentant par exemple la taille du spot) favorisent la formation d'une population macroscopique cohérente. Pour déclencher le processus de relaxation stimulée, cette population doit dépasser un seuil critique.

Bien que le temps de passage diminue avec la température, le temps de relaxation des polaritons avec les phonons LO diminue aussi et la condition peut malgré tout être vérifiée.

La figure ci-dessous permet de visualiser la zone d'énergie favorable à l'amplification. Elle correspond à la zone où le taux de diffusion net est supérieur est supérieur au taux de déclin. La population d'un état peut alors dépasser un seuil critique déclenchant ainsi l'amplification stimulée. Comme nous le verrons dans la partie expérimentale au chapitre 3, cette gamme d'énergie est identifiée à travers les modes de Fabry-Pérot une fois le seuil laser dépassé.

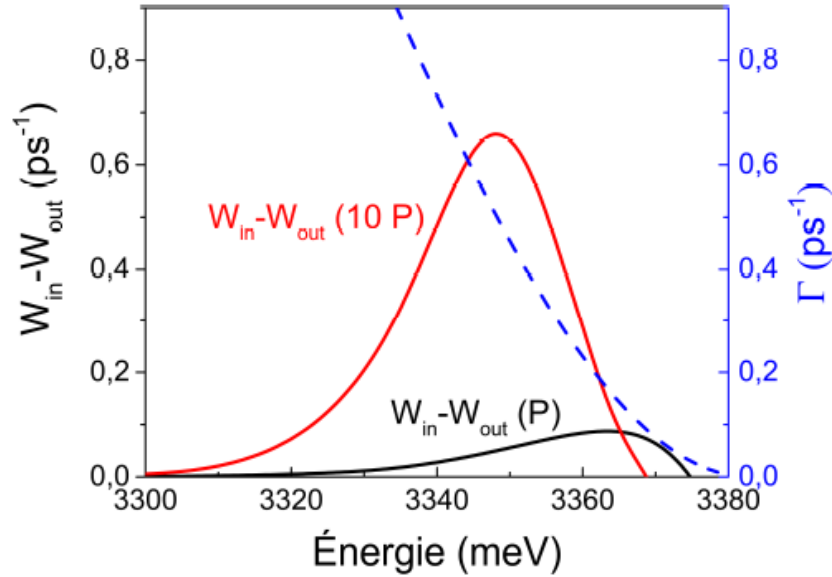


Figure 1 – 22. Variation du taux de diffusion net $W_{in} - W_{out}$ et du taux de déclin Γ en fonction de l'énergie pour une puissance d'excitation P (noir) et $10P$ (rouge) tels que calculés dans la référence [61] pour un spot d'excitation de $7\mu\text{m}$ de diamètre. Multiplier la puissance d'excitation par 10 permet d'augmenter le taux de diffusion net via les interactions polaritons-polaritons et donc de vérifier la condition $W_{in} - W_{out} > \Gamma$ nécessaire à l'amplification du laser polaritonique. Dans cet exemple, la zone favorable à l'amplification est située entre 3344 meV et 3363 meV .

4.3)b) Interaction polariton-polariton, polariton-phonon, polariton-impuretés dans du massif ou un guide

L'interaction des polaritons avec les phonons entraîne une modification de la structure de bandes, de façon analogue à l'application d'une contrainte. En effet, les ondes sonores modifient le potentiel périodique vu par les électrons et les trous [62] en déplaçant les atomes par rapport à leur position d'équilibre. Pour des matériaux non-centrosymétrique, l'interaction avec les phonons acoustiques produit un effet piézoélectrique. Le champ électrique résultant de la modification de la contrainte par l'onde sonore interagit avec les électrons et les trous.

La contribution de l'interaction polariton-phonon sur l'élargissement, estimée à partir de la règle d'or de Fermi et due aux déformations de potentiel le long de la branche haute à 0K, est donnée par [63] :

$$\Gamma_{ac}^{UPB} = \frac{k^3}{\pi\hbar\rho v_s v_g} (D_C - D_V)^2$$

Où k est le vecteur d'onde, ρ la masse volumique, v_s la vitesse du son dans le matériau et v_g la vitesse de groupe défini par $v_g = \frac{1}{\hbar} \frac{dE}{dk}$, D_C et D_V respectivement les potentiels de déformation de la bande de conduction et de la bande de valence. La vitesse de groupe est déterminée pour chaque valeur de k de la branche de dispersion en fixant les $\Gamma_j = 0$ dans la relation de dispersion polaritonique X. Plus la courbure est élevée, plus la vitesse de de groupe est élevée. La vitesse de groupe augmente donc avec l'énergie.

Les interactions polaritons phonons plus importantes dans ZnO que dans GaN sont responsables d'un plus grand élargissement homogène à température ambiante que pour GaN.

En comparant les différents types d'interaction avec les polaritons, il ressort que les interactions polaritons-phonons sont du même ordre que les interactions polariton-phonons. Cependant ces interactions ne suffisent pas à elles seules pour expliquer la valeur de l'élargissement homogène à 5K. L'élargissement homogène est surtout régi par l'efficacité des interactions polaritons-impuretés qui augmente avec la vitesse de groupe [64].

Pour ZnO, les forces d'oscillateurs élevées conduisent à une courbe de dispersion plus pentue, et donc à des vitesses de groupe polaritoniques plus élevées, notamment pour le polariton B, ce qui entraîne des valeurs d'élargissement homogène importants. Pour GaN, les forces d'oscillateurs plus faibles conduisent à une dispersion polaritonique plus aplatie, donc à des vitesses de groupe plus faibles et à des élargissements homogènes plus réduits.

L'augmentation de l'élargissement homogène avec la température est imputable à l'interaction polariton-phonon et est modélisé par la loi de Ségall présentée dans le sous chapitre 2.6).

A 300K, l'interaction polariton-phonon conduit à des largeurs de raies bien supérieures pour ZnO (≈ 45 meV) que pour GaN (≈ 15 meV).

5) Limites du couplage fort

5.1) Définition de la transition de Mott

Pour des faibles densités de porteurs, la distance moyenne entre deux excitons est très supérieure au rayon de Bohr de l'exciton. Lorsque la densité d'excitons augmente, la diminution de la distance qui les sépare diminue et va renforcer les interactions coulombiennes entre leurs composants fermioniques. D'un gaz d'exciton à faible densité, il se produit une transition de phase vers un plasma d'électron et de trous décorrélés une fois la densité de Mott [65] franchie. La réduction de la distance entre excitons avec l'augmentation de la densité est représentée sur la figure I-23 :

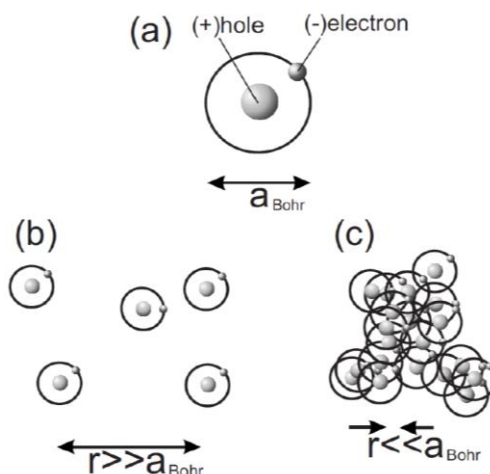


Figure I – 23. Schéma extrait de la référence [66]. a) Exciton de Wannier avec un trou et un électron en interaction coulombienne possédant un rayon de Bohr a_{Bohr} . b) Distance entre exciton de Wannier supérieure au rayon de Bohr pour une densité inférieure à la densité de Mott. c) Plasma d'électron-trou au-dessus de la transition de Mott.

La transition de Mott est atteinte lorsque l'interaction coulombienne est écrantée, conduisant à la destruction de la résonance excitonique. Pour des densités élevées, le spectre optique est influencé par l'écrantage, la renormalisation du gap et le remplissage des bandes. Progressivement avec l'augmentation de la densité, l'écrantage détruit graduellement la force d'oscillateur de la transition excitonique.

Sous la densité de Mott, une fraction des porteurs forme des excitons. L'exciton possède 4 états de spin en considérant une bande de valence. La conséquence est que la densité d'état des excitons est le double de celle du trou et de l'électron. Or l'écrantage dus aux excitons est plus faible que l'écrantage dus à des porteurs libres. A température ambiante dans ZnO, cette fraction excitonique atteint au maximum 0,14 pour une densité $n=1,9 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ [67] Ainsi, quelque que soit la densité, la grande majorité des porteurs ne sont libres. En négligeant la contribution des excitons sur l'écrantage, l'erreur de calcul commise sur la force d'écrantage est de moins de 10%. Au-delà de la densité de Mott, un modèle de Drude permet de décrire le plasma d'électron-trou.

Pour expliquer la variation de la réflectivité suite à un changement de densité, il faut s'intéresser au comportement de l'indice de réfraction lorsque la densité de porteur augmente.

5.2) Différentes approches pour la détermination de la transition de Mott

Une première approche classique consiste à approximer la densité de Mott n_M à l'inverse du volume occupé par un exciton :

$$n_M^s = \left(\frac{4}{3}\pi a_B^3\right)^{-1}$$

Une seconde approche quantique consiste à considérer le volume quantique :

$$n_M^Q = \langle \Psi_c | H | \Psi_v \rangle = (10\pi a_B^3)^{-1}$$

Mais ces deux approches sont des simplifications excessives qui conduisent à surestimer la densité de Mott [68].

Dans la littérature, une première estimation est réalisée pour un plasma d'électron-trou dégénéré se fondant sur la longueur d'écrantage de Thomas-Fermi $\lambda_{s,i}$ [23] des trous ($i = h$) ou des électrons ($i = e$).

L'écrantage de l'interaction coulombienne est décrite par le potentiel de Yukawa [67] :

$$V_s(r - r') = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r|r - r'|} e^{-\frac{|r-r'|}{\lambda_{s,i}}}$$

Où $\lambda_{s,i}$ est la longueur d'écrantage. Cette relation est aussi vérifiée pour un plasma neutre

Dans un plasma d'électrons, les longueurs d'écrantage sont données par :

$$\lambda_{s,i} = \sqrt{\frac{\epsilon_0\epsilon_r}{e^2} \frac{\partial \mu_i}{\partial n}}$$

Où μ_i est le potentiel chimique des électrons ou des trous. Pour rappel, le remplissage des bandes est décrit par le potentiel chimique $\mu = \mu_h + \mu_e$ où μ_h est défini par rapport au sommet de la bande de valence et μ_e au bas de la bande de conduction. Lorsque $\mu > 0$, l'inversion de population est réalisée, donc tant que le régime du laser est de type excitonique, μ reste négatif.

Pour une distribution de Fermi-Dirac à 0K, une deuxième estimation de la densité est réalisée suivant l'approche de Thomas-Fermi n_M^{TF} :

$$n_M^{TF} = (1,19)^6 a_B^{-3} \frac{\pi}{192} \left(\frac{m_e m_h}{(m_e + m_h)^2}\right)^3$$

Une troisième estimation courante se base sur la longueur d'écrantage de Debye-Hückel pour un gaz d'électrons-trous en considérant une distribution de Boltzmann :

$$n_M^{DH} = (1,19)^2 \frac{k_B T}{2a_B^3 E_b}$$

Plusieurs problèmes sont à évoquer. La densité de Mott devrait augmenter avec la température ce qui n'est pas vérifié expérimentalement pour des guides planaires de GaN et ZnO. De plus, la densité de Mott tend vers l'infini pour des très hautes températures et tend vers 0 à des très basses températures.

Enfin, une dernière approche statistique a été développée par Versteegh [67]. La première étape consiste à calculer les potentiels chimiques μ_h des trous et μ_e des électrons. En écrivant que $n_e = n_h$ pour une excitation optique :

$$n_i = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_i}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \int_0^{\infty} \frac{1}{1 + e^{\beta(E-\mu_i)}} \sqrt{E} dE$$

La fonction $n_e = f(\mu_e)$ est calculée numériquement pour différentes valeurs de μ_e en utilisant la statistique de Fermi-Dirac, présentée dans le sous-chapitre 4)1). On calcule de même la fonction $n_h = f(\mu_h)$. Ceci permet ensuite de calculer la longueur d'écrantage λ_s du plasma électron-trou en utilisant la formule ci-dessous :

$$\left(\frac{1}{\lambda_s} \right)^2 = \frac{1}{\lambda_{s,e}^2} + \frac{1}{\lambda_{s,h}^2}$$

Lorsque la densité de porteur augmente, la longueur d'écrantage diminue. La densité de porteur conduisant à une longueur d'écrantage égale au rayon de Bohr (écrantage du potentiel Coulombien) correspond à la densité de Mott.

Dans un deuxième temps, il est possible de déterminer la fraction excitonique. La densité excitonique n_{ex} et le potentiel chimique excitonique sont reliés par :

$$n_{ex} = \frac{1}{\pi^2} \left(\frac{2(m_e + m_h)}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \int_{-E_s}^0 \frac{1}{e^{\beta(E-\mu)} - 1} \sqrt{E + E_s} dE$$

Où $E_s = E_0 \left(1 - \frac{a_0}{\lambda_s} \right)^2$ est l'énergie de liaison écrantée de l'exciton (si $\lambda_s > a_0$ sinon $E_s = 0$), avec E_0 l'énergie de liaison non-écrantée de l'exciton.

Dans la littérature, la valeur de la densité de Mott de GaN et ZnO varie fortement dans une fourchette entre 3.10^{17} et $3,7.10^{19} \text{ cm}^{-3}$ entre 5K et 300K.

Les densités de Mott de couches épitaxiées de GaN et de ZnO sont mesurées par microphotoluminescence. [69], [70], [71], [72] ou par réflectivité pompe-sonde femtoseconde [73], [67] par transmission pompe-sonde femtoseconde [74] ou calculés théoriquement [67], [75]. Les valeurs de densités de Mott suivant différentes méthodes sont récapitulées dans le tableau I-12.

Tableau I – 12. Densités de Mott calculées pour GaN et ZnO suivant plusieurs modèles analytiques : De gauche à droite : Sphère dure, Debye-Hückel, Thomas-Fermi, approche quantique et une méthode statistique de Versteegh.

	$n_M^S (\text{cm}^{-3})$	$n_M^{DH} (\text{cm}^{-3})$	$n_M^{TF} (\text{cm}^{-3})$	$n_M^Q (\text{cm}^{-3})$	$n_M^V (\text{cm}^{-3})$
GaN	10^{19}	$2,9.10^{19}$	$7,8.10^{15}$	$1,3.10^{18}$	$2,0.10^{16} - 7,6.10^{17}$
ZnO	4.10^{19}	$5,5.10^{19}$	9.10^{16}	$5,5.10^{18}$	$7,9.10^{16} - 1,5.10^{18}$

La renormalisation du gap s'explique par le fait que plus un plasma est dense moins il faut ajouter d'énergie pour ajouter une particule. En plus de l'interaction coulombienne attractive entre électrons et trous, il faut aussi tenir compte de la répulsion coulombienne entre des porteurs de même charge. L'effet d'écrantage qui en résulte intervient dans la renormalisation du gap [23], [76].

La renormalisation du gap provoque une diminution du couplage de Rabi, entraînant un décalage de la LPB vers les hautes énergies et la UPB vers les basses énergies. Cela est causé par la réduction des forces d'oscillateur et est mis en évidence expérimentalement par le blueshift de la LPB en-dessous du seuil laser à polaritons [77].

L'énergie de la résonance demeure constante pour une densité variable de porteurs [78], [79], [80]. L'explication est que l'écrantage de la force d'oscillateur de l'exciton est compensé par la renormalisation du gap. La densité de Mott est atteinte dès lors que la renormalisation du gap est égale à l'énergie de liaison de l'exciton.

Dans le cas du ZnO, le couplage spin-orbite et du champ cristallin conduit à trois bandes de valence. Aucun modèle ne permet de décrire le comportement de la renormalisation du bandgap pour une bande de conduction et plusieurs bandes de valence. Les modèles théoriques étudiant la renormalisation se limitent donc à un gap unique avec la bande de valence A.

Sur la figure ci-dessus ont été tracées les transitions de Mott de ZnO en fonction de la température suivant les quatre modèles analytiques exposés précédemment et le modèle statistique de Versteegh.

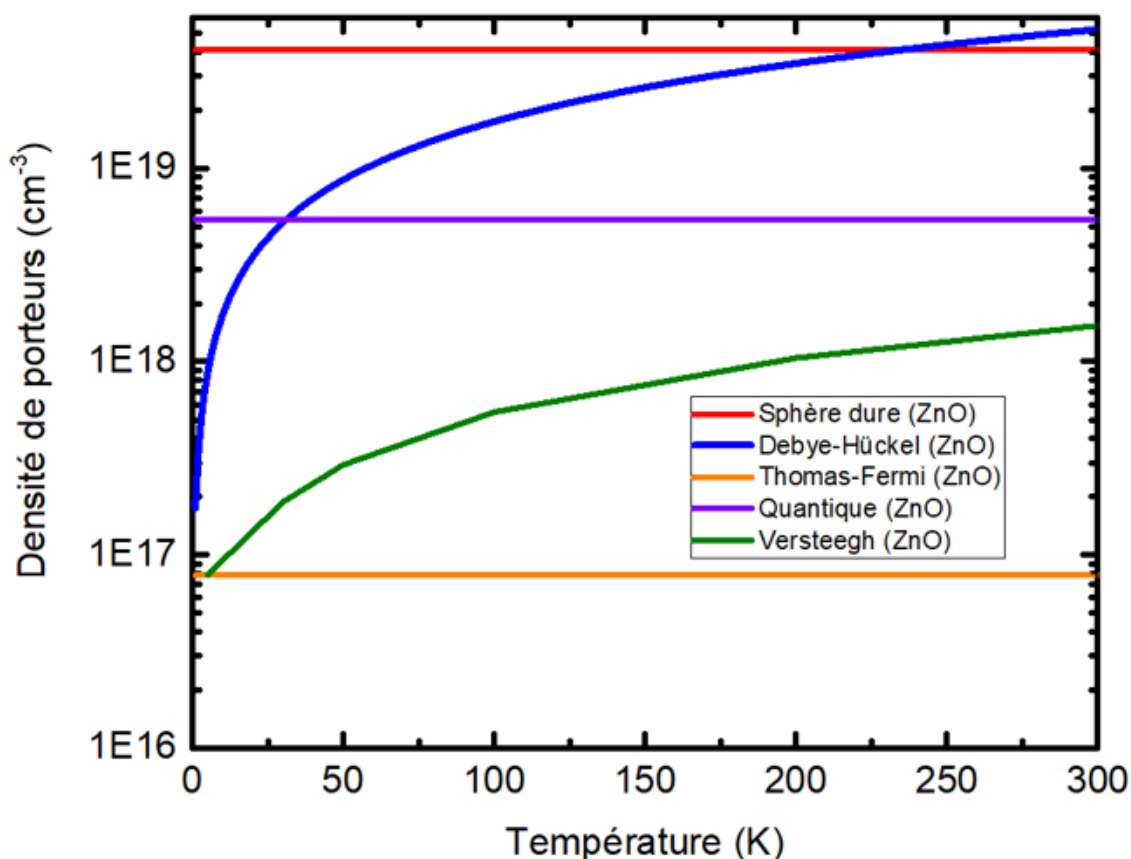


Figure 1 – 24. Transitions de Mott de ZnO représentées en densité de porteurs en fonction de la température suivant 4 modèles analytiques : sphère dure (rouge), Debye-Hückel (bleu), Thomas-Fermi (orange) et suivant la méthode quantique (violet) et un modèle statistique proposée par Versteegh [67] (vert)

Les paramètres utilisés pour les simulations sont détaillés ci-dessous. Pour le rayon de Bohr, les valeurs sont $a_{B_{XA}} = 29.3 \text{ \AA}$ pour le GaN [33] et $a_{B_{XA}} = 18 \text{ \AA}$ pour le ZnO [32] .

Pour les masses effectives de GaN, Vurgaten et al. [81] dressent une liste des différentes méthodes dans la littérature mais préconise d'utiliser pour l'électron la valeur de $m_e^* = 0,222m_0$ obtenue par mesure cyclotron par l'équipe de A. M. Witovski [82] et pour le trou $m_h^* = m_0$ communément utilisée dans des calculs de structure de bande tel que introduit par Suzuki et al. [20]

Pour les masses effectives de ZnO, Meyer et al. [83] recommandent dans le cadre d'une contrainte moyenne sur l'ensemble de la première zone de Brillouin :

$$m_e^* = (m_{e_{\perp}}^* \cdot m_{e_{\parallel}}^{*2})^{\frac{1}{3}} = (0,24m_0 \cdot 0,28m_0^2)^{\frac{1}{3}} = 0,266m_0$$

$$m_h^* = 0,59m_0$$

Ces valeurs sont confirmées par Y.Wang et al. [84] en 2015.

Les caractéristiques expérimentales des lasers employés en expérience de spectroscopie seront données dans le chapitre suivant.

6) Etat de l'art sur le laser à polariton

En 1996, Imamoglu décrit de façon théorique le laser à polaritons comme un condensat hors-équilibre et ne nécessitant pas une inversion de population pour atteindre le seuil laser [85]

La stimulation de l'émission de l'état fondamental a été pour la première observée dans une microcavité de CdTe à 5K en 1998 par Le.Si.Dang [86]. Dès 2002, le couplage fort à température ambiante est atteint dans une microcavité de ZnSe par A.Paulis et Al [87]. En 2003, le couplage fort est démontré dans une microcavité GaAs à 4K par Dang, dans une microcavité de GaN à 5K par A. Vincent et Al [88], et en 2005 à 300K par F.Semond et Al. [89]. Depuis le laser à polaritons a été étudié à de maintes reprises dans des microcavités de GaAs, de CdTe [59], [90], [91], [92], [93] et dans des microcavités de matériaux à plus grand bandgaps comme ZnO [94], [95], ZnSe [87], [96] et CuCl [97].

L'effet laser à polariton est observé à température ambiante pour la première fois en 2007 dans une microcavité massive de GaN [98], puis dans une microcavité contenant 67 puits quantiques GaN/AlGaIn en 2008 [99] Pour ZnO, la première démonstration du phénomène date de 2013 [100], suivie de l'étude du couplage fort dans des microfils à 300K [101] jusqu'à 450K [102].

Des microcavités à matériaux organiques ont été également étudiées pour leur exciton très localisés (de type Frenkel) présentant des énergies de liaisons élevées. L'autre avantage est qu'ils présentent des coûts de fabrication faibles. Kéna-Cohen et al ont examiné en 2010 le laser à polaritons à 300K dans des microcavités à base d'anthracène [103], puis d'autres observations du phénomène ont été menées dans des microcavités à base de polymère et de fluorène [104] ou encore à base de pérovskite [105].

Le couplage fort dans un guide d'onde organique à 300K est démontré en 2011 par Ellenborger et al [106], puis pour un guide inorganique de GaAs à 5K par Walker et al. [107] L'équipe de D.Solnyshkov et de G.Malpuech propose d'employer ZnO ou GaN comme matériau pour la couche active du guide d'onde en raison des forces d'oscillateurs excitoniques importantes pour ces deux matériaux [60] En 2017, Ciers et al parviennent à conserver le couplage fort polaritonique dans un guide d'onde de GaN à 100K [49].

Le guidage des polaritons constitue également un moyen d'étudier des solitons brillants et sombres. [108], [109]

La qualité de ZnO comme composant optoélectronique est discutée en 2009 par H. Morkoç et al. [55].

La première étude expérimentale de l'injection électrique à température ambiante d'une microcavité de GaN est initiée par Bhattacharya en 2014 [110] bien que critiquée en 2016 par Benoît Deveaud [111].

Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons donné les principales propriétés physiques de ZnO et GaN. Ensuite, nous avons expliqué le principe de l'interaction lumière matière dans les semiconducteurs. Cela nous a amené à introduire la notion d'exciton qui est l'excitation élémentaire dans un semi-conducteur provenant de l'interaction coulombienne d'un électron de la bande de conduction et d'un trou de la bande de valence. L'expression de la fonction diélectrique a ensuite été déterminée en se fondant sur le modèle de l'oscillateur harmonique.

Nous nous sommes ensuite intéressés au régime de couplage fort dans les semiconducteurs conduisant à de nouveaux états propres caractérisés par une branche polaritonique haute et une branche polaritonique basse. Le polariton suit la statistique de Bose-Einstein et la condensation dans un état quantique unique est possible dans les microcavités. La relaxation des polaritons est alors stimulée par de l'occupation de l'état fondamental. Les photons issus du condensat partagent les propriétés d'une émission laser classique (cohérence spatiale et temporelle, directivité).

Une structure alternative est un couplage des excitons d'un matériau d'une couche active avec un mode photonique guidé dans cette couche. Un guide d'onde est intéressant pour réaliser un composant optoélectronique car l'implémentation de l'injection électrique requiert moins d'étapes technologiques. Contrairement à la microcavité, il n'existe pas d'état fondamental pour le guide d'onde. L'émission laser est favorisée suivant la dynamique de relaxation le long de la branche polaritonique basse. Le couplage fort polaritonique peut être perdu lorsque la densité de porteur dépasse la densité critique de Mott qui dépend de la température.

II) Techniques expérimentales

Le chapitre précédent traitait des propriétés physiques de ZnO et de GaN et nous avons mis en évidence que les propriétés optiques au niveau du gap sont principalement gouvernées par des particules composites qui peuvent être des excitons ou des polaritons. Afin d'étudier les propriétés excitoniques ou polaritoniques de matériaux massifs ou de guide d'onde, différentes techniques spectroscopiques peuvent être utilisées. Dans ce second chapitre, nous présenterons les différentes techniques spectroscopiques utilisées au cours de ma thèse. Les différentes configurations d'excitation, confocale et latérale, et les différents types d'imagerie, espace réel ou espace de Fourier, seront présentés, accompagnées d'une description des éléments du banc de spectroscopie. En prenant en compte la transmission optique de ces éléments, nous détaillerons le calcul de la puissance surfacique, permettant d'aboutir à une estimation de la densité de porteur.

1) Présentation des techniques de spectroscopie optique

1.1). Principe général

Le principe général de la spectroscopie optique est d'étudier les signaux lumineux réfléchis, absorbés ou transmis par un matériau semi-conducteur soumis à une excitation lumineuse. Celle-ci entraîne l'excitation des électrons d'un état d'énergie initiale E_i à un état d'énergie supérieur E_f . Puis la désexcitation des électrons vers leur état d'énergie initial conduit à l'émission d'un photon d'énergie $E_f - E_i$.

Les faisceaux d'énergie réfléchis et transmis sont détectés respectivement par les techniques de réflectivité et de transmission tandis que la partie absorbée est transformée soit en chaleur lors de recombinaisons non radiatives aboutissant à la création de phonons et détectable par une technique d'absorption optique détectée thermiquement (AODT) soit en émission lumineuse émise à une longueur d'onde différente par photoluminescence. Une autre technique est l'ellipsométrie qui permet de déterminer l'indice et l'épaisseur des couches d'un échantillon en analysant la polarisation du signal réfléchi par l'échantillon.

La technique de réflectivité met principalement en évidence les transitions intrinsèques (les transitions excitoniques) d'échantillons massifs alors que la luminescence permet de situer les états extrinsèques du semi-conducteur. Dans notre cas, nous emploierons de la microphotoluminescence afin de s'affranchir des inhomogénéités de contraintes du matériau. L'imagerie dans l'espace réel permet de régler le grandissement du montage et l'imagerie de Fourier donne accès à la dispersion angulaire de l'énergie ou la réflectivité.

1.2). Technique de microphotoluminescence

1.2)a). Principe de microphotoluminescence pour une transition bande à bande

La photoluminescence reflète les états de basse énergie et ne reflète pas la densité d'état. L'échantillon est soumis à une excitation lumineuse et les photons réémis sont analysés. L'excitation lumineuse est une source laser dont l'énergie dépasse l'énergie de bande interdite ce qui conduit à la création de paires électron-trou à grand vecteur d'onde. Ces paires se relaxent par des processus non radiatifs, comme l'émission de phonon jusqu'aux extrema de la bande de conduction et de valence où ils émettent des photons par recombinaison radiative.

La luminescence a lieu à des énergies plus basses que celle de la lumière excitatrice. En effet, les propriétés du semi-conducteur, qu'elles soient intrinsèques comme pour les excitons ou extrinsèques en présence d'impuretés sont révélées par les spectres de μ PL et conduisent à des émissions de photon d'énergie inférieure à l'énergie de bande interdite.

Deux types de photoluminescence peuvent être mesurées, soit en fonction de l'énergie d'excitation avec une énergie de détection fixe, soit en fonction de l'énergie d'émission avec une énergie d'excitation fixe. C'est cette dernière méthode que nous utiliserons.

L'intensité de l'émission spontanée I_{sp} dépend de $f(\nu)$, la probabilité donnée par le produit des probabilités qu'un électron occupe un état d'énergie E_2 et qu'un trou occupe l'état d'énergie E_1 correspondant de même vecteur d'onde, de $|P_{cv}|^2$, module au carré de l'élément de matrice optique traduisant la probabilité de cette transition et de $\rho(\nu)$ la densité conjointe d'état.

$$I_{sp}(h\nu) = f(\nu)|P_{cv}|^2\rho(\nu)$$

Où la probabilité $f(\nu) = f(E_2)[1 - f(E_1)]$ avec $f(E) = \frac{1}{[1 + \exp(\frac{E - E_{Fermi}}{k_b T})]}$

En faisant l'hypothèse que $E_2 - E_{fermi} \approx E_{Fermi} - E_1 \approx \frac{E_g}{2} \gg k_b T$, la fonction de Fermi de l'équation précédente est remplacée par une fonction de Boltzmann $f(\nu) = \exp(\frac{-h\nu}{k_b T})$ où T est la température des porteurs et E_{Fermi} l'énergie du niveau de Fermi. L'élément de matrice optique P_{cv} est un terme qui ne dépend pas de l'énergie. La densité conjointe d'état $\rho(\nu)$ est proportionnelle à $(h\nu - E_g)^{\frac{1}{2}}$. La forme approchée de luminescence correspondant à la transition bande à bande d'un semi-conducteur à gap direct est proportionnelle à :

$$I_{sp}(h\nu) \propto (h\nu - E_g)^{\frac{1}{2}} \exp\left(\frac{-(h\nu - E_g)}{k_b T}\right)$$

1.2)b). Autres types de recombinaisons radiatives observées en microphotoluminescence

Les différentes transitions optiques possibles sont répertoriées dans la figure II-1 ci-dessous. Pour plus de détails sur les impuretés, se référer au chapitre I, partie 4.2c).

Pour réaliser l'expérience de photoluminescence, l'échantillon est excité par un rayonnement sensiblement monochromatique, correspondant à un domaine spectral où il est bien absorbant.

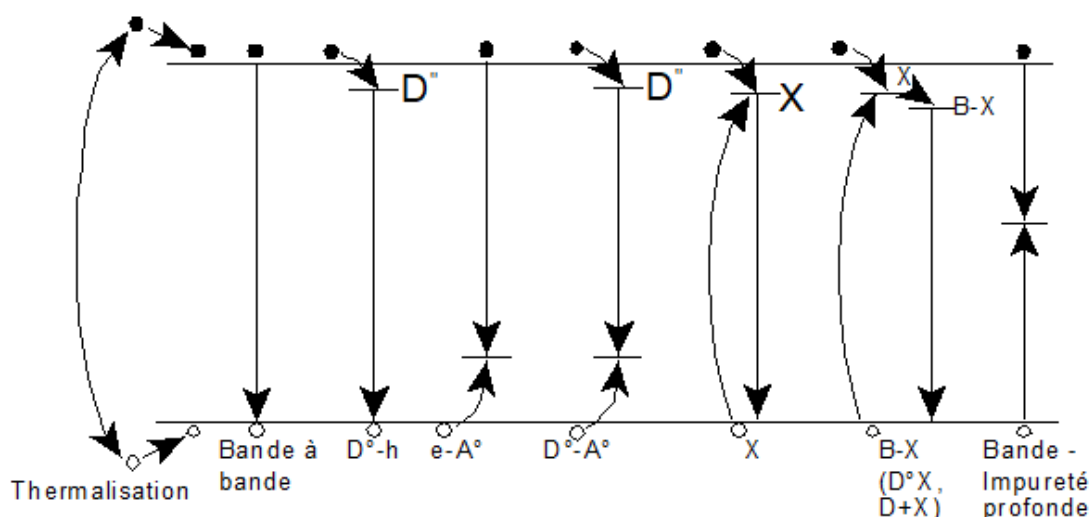


Figure II - 1. Types de recombinaisons radiatives

De gauche à droite, la recombinaison bande à bande est celle d'un électron du bas de la bande de conduction avec un trou du haut de la bande de valence. Les transitions trou libre-donneur neutre (D^0, h) et électron libre-accepteur neutre (e, A^0) correspondent à la recombinaison d'un porteur libre avec un porteur de charge opposée piégé sur une impureté.

Les recombinaisons donneur neutre-accepteur neutre (D^0, A^0) mettent en œuvre un électron lié à un donneur (D^+, e) et un trou lié à un accepteur (A^-, h). X représente un exciton libre, qui peut se localiser sur des impuretés neutres et former des complexes à deux voire trois particules ($D^0 - X, A^0 - X, D^+ - X$). Les centres profonds ne participent que minoritairement aux recombinaisons radiatives. Pour plus de détails sur le principe et les techniques de luminescence, se référer à la source [112].

1.3). Technique de microréflectivité

La réflectivité traduit l'évolution de l'intensité lumineuse réfléchiée par un échantillon en fonction de la longueur d'onde de la lumière incidente. Cette technique est sensible aux transitions intrinsèques et ne reflète pas les transitions extrinsèques. Les impuretés ne sont pas prises en compte.

La source d'excitation lumineuse couvre une grande plage de longueur d'onde. Globalement, le coefficient de réflectivité varie très lentement mais présente des variations importantes localisées lorsque l'énergie

du photon incident présente une énergie légèrement inférieure à l'énergie de bande interdite. Ces variations s'expliquent par l'absorption d'un photon aboutissant à la création d'un électron et d'un trou, qui par interaction coulombienne, crée un exciton.

En se rapprochant de la résonance excitonique, l'interaction entre l'exciton et le photon se renforce entraînant d'importantes variations de la constante diélectrique et de l'indice de réfraction et par suite des spectres de réflectivité. La variation d'indice est d'autant plus importante que la force d'oscillateur excitonique est élevée.

Comme le montre la figure II-2 ci-dessous, la variation d'indice est élevée pour les excitons A, B et C du niveau fondamental $X_A^{n=1}$, $X_B^{n=1}$ et $X_C^{n=1}$, et moins importantes pour les excitons du premier niveau excité $X_A^{n=2}$, $X_B^{n=2}$ et $X_C^{n=2}$. Les excitons des états excités supérieures ne sont en général pas détectés sur le spectre de réflectivité.

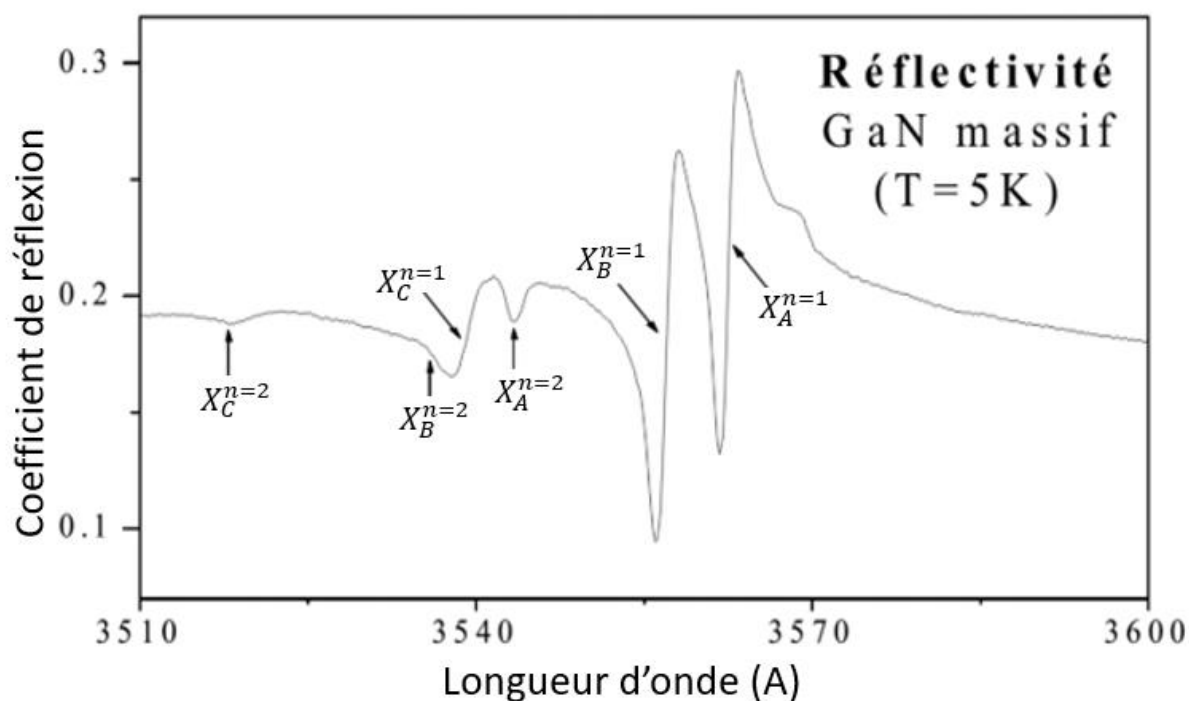


Figure II - 2. Spectre de réflectivité de GaN massif à 5K présentant les variations d'indice associés aux excitons A, B et C et au niveau fondamental ($n=1$) ou excité ($n=2$).

2) Banc de spectroscopie

2.1) Description générale

La figure II-3 est une photographie permettant de localiser spatialement chaque élément du banc optique. Puis ces éléments sont représentés de façon schématique sur la figure II-4 afin de suivre le trajet des rayons optiques, ici dans le cas particulier du montage de Fourier qui sera détaillé dans la partie II.2.4).

Concernant la branche d'excitation, les rayons émis par les sources laser (He-Cd ou Q-Switched) sont réfléchis par des miroirs sur l'entrée d'une lentille asphérique de focalisation qui permet de les focaliser sur l'échantillon, se trouvant dans un cryostat à circuit d'hélium fermé, permettant d'atteindre des températures très basses jusqu'à 5K ou de réaliser des expériences à température ambiante. Concernant la branche de détection, le signal passe par un objectif et deux lentilles convergentes permettant d'accéder à la dispersion angulaire de l'énergie.



Figure II - 3. Photographie du banc optique avec les éléments optiques nommés en rouge : Q-Switched, He-Cd, spectromètre, FES (fente d'entrée du spectromètre), lentille de collecte (L_c), lentille asphérique (L_a), porte échantillon (E), fentes d'entrées du spectromètre (FES) et séparatrices M_1 , M_2 et S .

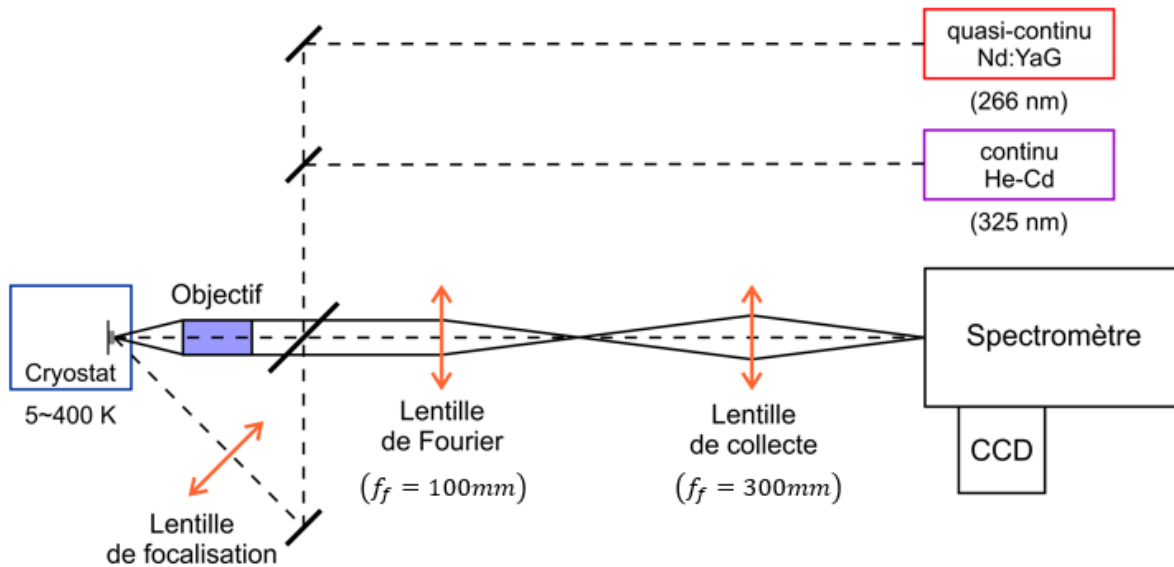


Figure II - 4. Présentation schématique des éléments optiques disponibles incluant les sources d'excitation, les séparatrices, les lentilles, un objectif, l'échantillon dans le cryostat et le spectromètre associée à une caméra CCD. Le dispositif expérimental incluant la lentille de Fourier amovible permet de réaliser l'imagerie de Fourier. En la retirant, l'espace réel est imagé.

Deux objectifs, Thorlabs ou Mitutoyo, sont employés, le premier pour une excitation directe et le second pour une excitation par le côté. Leur transmission est présentée ci-dessous. Les deux objectifs peuvent être utilisés en imagerie en lumière visible. Mais seul le Thorlabs a une transmission correcte dans le domaine d'excitation (266nm pour Q-switched et 325nm pour l'HeCd).

Dans la configuration où l'excitation est directe, le montage est qualifié de confocal ; le signal émis par microphotoluminescence ou réflectivité passe également par le Thorlabs. La transmission du Thorlabs est représentée ci-dessous.

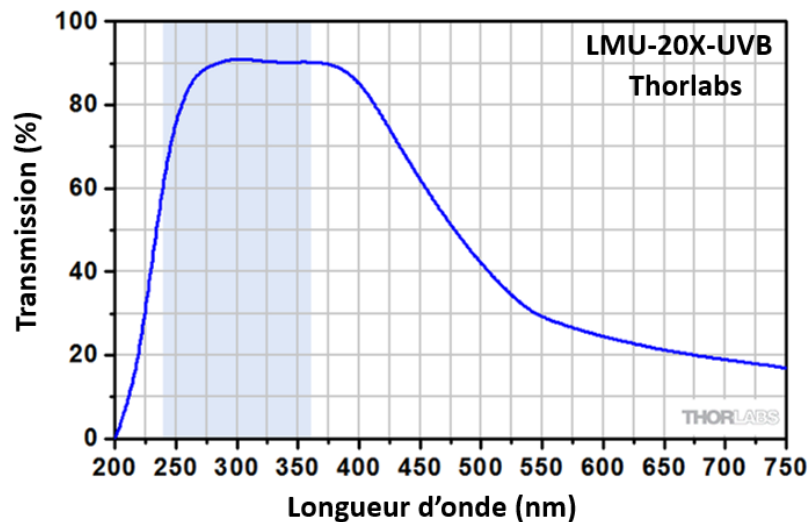


Figure II - 5. Transmission de l'objectif Thorlabs en fonction de la longueur d'onde. Le Q-Switched (266nm) est transmis à 86% et l'He-Cd (325nm) à 90%.

Le Mitutoyo, ne transmettant pas l'excitation laser à 266nm, intervient dans un montage où l'excitation est latérale à travers une lentille asphérique. Leur transmission sont données figure II-6 et figure II-7 respectivement.

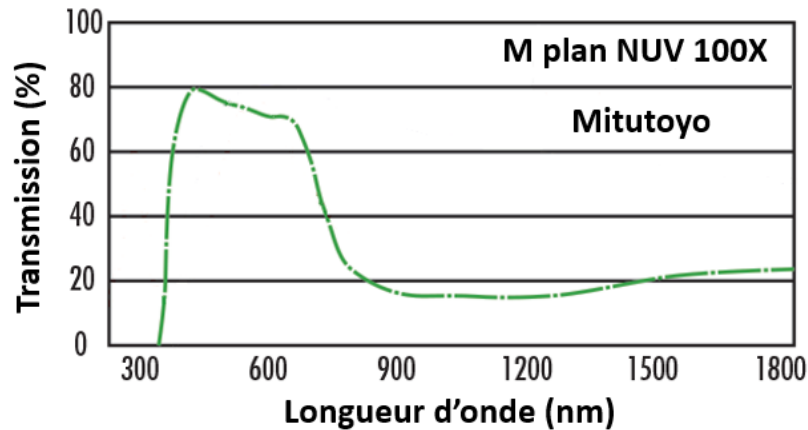


Figure II - 6. Transmission de l'objectif Mitutoyo en fonction de la longueur d'onde.

L'objectif ne transmet pas le Q-switched et l'HeCd mais intervient dans la détection de la dispersion angulaire en montage de Fourier. L'excitation est alors latérale et la focalisation est réalisée grâce à une lentille asphérique. A noter que l'objectif est utilisé en excitation lorsque la source est une lampe arc xénon émettant dans le visible.

Les caractéristiques des deux objectifs sont détaillées dans le tableau ci-dessous avec le grandissement du système sans la lentille de Fourier.

Objectif	$f_{obj}(mm)$	NA	Pouvoir de résolution (nm)	Grandissement (f_c/f_{obj})	Résolution spatiale (nm)
Thorlabs	10	0,4	549	30	867
Mitutoyo	2	0,5	439	150	173

Tableau II - 1. Caractéristiques des objectifs Thorlabs et Mitutoyo, dans l'ordre la distance focale de l'objectif, l'ouverture numérique et le pouvoir de résolution (les trois à 360nm), le grandissement du système en associant l'objectif et la lentille de collecte et la résolution spatiale théorique obtenue avec la CCD. (1pixel=26X26 μ m²)

Le pouvoir de résolution est obtenu en prenant l'expression d'une fonction d'Airy décrivant l'expression de l'intensité d'une figure classique de diffraction et en appliquant le critère de Rayleigh. Deux tâches de diffraction sont distinctes à condition que le maximum de l'une correspond au minima de l'autre. Cela conduit à un pouvoir de résolution $\Delta_x = 1.22 \frac{\lambda}{a} f_{obj}$

La résolution spatiale correspond à la taille d'un pixel (26 μ m) divisée par le grandissement du système. Dans le cas du Mitutoyo, la résolution spatiale de (173 nm) est certes meilleure que celle du Thorlabs (867nm) mais elle est limitée par son pouvoir de résolution (seulement 439nm contre 549nm pour le Thorlabs).

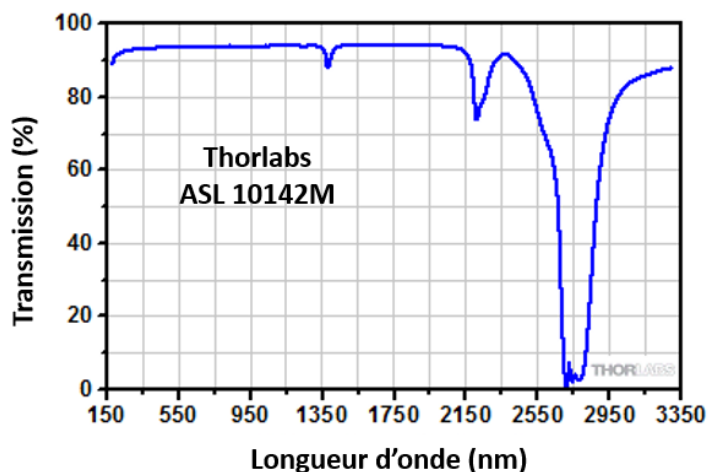


Figure II - 7. Transmission de la lentille asphérique en fonction de la longueur d'onde. Le Q-Switched (266nm) et l'He-Cd (325nm) sont transmis à 93%.

En ce qui concerne la collecte du signal de photoluminescence ou de réflectivité est focalisé sur la fente d'entrée d'un spectromètre Jobin-Yvon possédant une focale d'un mètre, équipé d'un réseau 1200 ou 2400 traits/mm (blasés à 330 nm), associé à une caméra CCD comptant 1024 X 256 pixels de 26 μ m de côté. Lorsque le réseau est perpendiculaire au signal collecté, il n'y a pas de dispersion, on observe l'image de la fente d'entrée.

Le spectroscopie à réseau présente une fente d'entrée et une fente de sortie. Le cœur de l'appareil est constitué par le réseau dispersif. Le système est composé d'une fente d'entrée, qui se trouve dans le plan focal image d'une lentille de collecte L_c , envoyant un faisceau de lumière sur la fente d'entrée du spectroscopie. Le réseau est placé sur le trajet du faisceau. Chaque longueur d'onde est dispersée avec un angle différent. Puis, les faisceaux sont refocalisés par une lentille L_c dans son plan focal image, où est placée la fente de sortie. A chaque longueur d'onde correspond donc une image de la fente d'entrée. Ainsi pour analyser la lumière provenant de la source, la fente de sortie est déplacée dans le plan focal image de L_c .

2.2) Sources d'excitation

Deux types de sources lumineuses peuvent être utilisées pour l'excitation. Pour de la photoluminescence, des sources lasers seront employées. Pour l'expérience de réflectivité, une lampe Xénon émettant de la lumière blanche est utilisée.

Deux sources lasers sont employées. Une source continue à l'He-Cd émettant à 325 nm et une source impulsionnelle Nd :YAG (Q-switched) polarisée TE. On fera l'hypothèse de réseaux gaussiens.

La source He-Cd à 325 nm est utilisée pour les caractérisations à basse puissance. Le laser Q-switched à 266nm a une période impulsionnelle de 400 ps, un taux de répétition de 20kHz et un rapport cyclique de 125 000. La puissance crête est calculée en multipliant ce dernier par la puissance moyenne. L'He-Cd intervient dans le réglage de la ligne de détection, assurant un alignement correct de l'objectif avec la

lentille de collecte et éventuellement la lentille de Fourier, et permet de régler la focale de l'objectif. Cette source continue permet de réaliser des mesures à très basses puissances.

Le Q-switched possède une énergie par pulse élevée et un taux de répétition faible permettant d'éviter les problèmes liés au chauffage. Le Q-Switched est la source laser utilisée pour des études en puissance.

2.3) Imagerie de l'espace réel

Dans l'ordre de montage, l'alignement de la ligne de détection est exécuté avant la ligne d'excitation grâce à un laser vert entrant par une fente latérale du spectromètre et émergeant de la fente d'entrée du spectromètre, à l'endroit où seront focalisés les signaux de luminescence et de réflectivité.

Quel que soit la configuration de la détection, une lentille de collecte de focale $f_c = 300 \text{ mm}$ focalise la photoluminescence ou la réflectivité sur les fentes d'entrée d'un réseau 1200 traits/mm (blasés à 330nm).

Grâce à un support motorisé, la lentille de collecte peut être déplacée horizontalement ce qui permet de changer sur les fentes du spectromètre la zone de l'échantillon analysées. Dans la configuration présentée figure II-8, un objectif Thorlabs de distance focale $f_{obj} = 100 \text{ mm}$ est utilisé, possédant une ouverture numérique $NA = 0,4$, qui correspond à un angle de détection par rapport à l'axe optique du système de $23,6^\circ$.

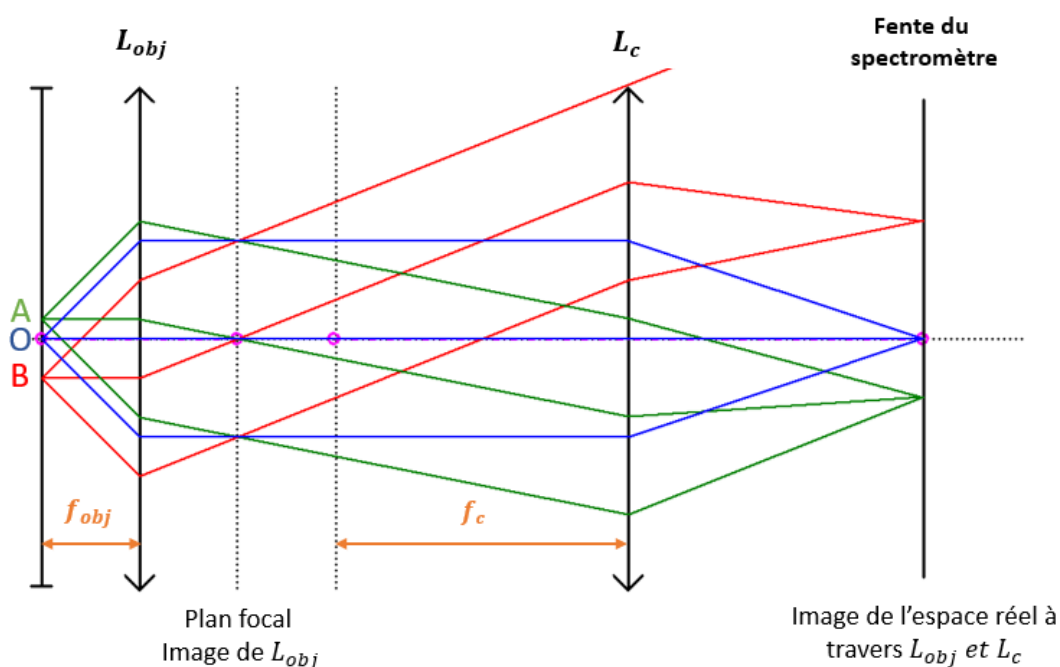


Figure II - 8. Principe de l'imagerie en espace réel avec un objectif de focale f_{obj} et une lentille de collecte de focale f_c . Les rayons issus d'un même point à la surface de l'échantillon sont focalisés sur la fente du spectromètre. Pour les points O et A, tous les rayons sont collectés par le spectromètre alors que pour le point B, une partie des rayons émis est perdue ce qui diminue l'intensité détectée par le spectromètre.

La luminescence de l'échantillon est collectée par le même objectif puis est focalisée par la lentille de collecte sur la fente d'entrée du spectromètre.

Le grandissement G du système est donné par :

$$G = \frac{f_c}{f_{obj}}$$

Dans un premier temps, l'imagerie de l'espace réel est réalisée pour avoir une vue d'ensemble de l'échantillon permettant le repérage des cavités ou d'éléments gravés en surface, tel que des cavités FIB ou des ridges, présentés au chapitre 4. L'imagerie réalisée avec l'objectif Mitutoyo aboutit à des grossissements beaucoup plus importants permettant d'évaluer la qualité de l'état de surface du matériau.

Objectif Thorlabs :

$$G_{thorlabs} = \frac{300}{100} = 3$$

Objectif Mitutoyo :

$$G_{Mitutoyo} = \frac{300}{2} = 150$$

2.4) Imagerie de l'espace de Fourier et filtrage spatial

L'imagerie de Fourier permet d'accéder à la dispersion angulaire des polaritons en fonction de la longueur d'onde et donc d'accéder à la relation de dispersion des polaritons riche en information sur le type de couplage, la condensation des polaritons et permet même de prédire la force d'oscillateur à une puissance donnée comme nous le verrons dans le chapitre 3. Dans ce montage, tous les rayons émis avec un angle θ sont focalisés au même point sur la fente d'entrée verticale du spectromètre.

Afin de localiser le plan de Fourier, on déplace une feuille de papier jusqu'à observer une tâche lumineuse la plus focalisée possible. A l'aide de la lentille de collecte est formée l'image du plan de Fourier sur la fente d'entrée du spectromètre. L'amplitude au niveau de la fente d'entrée est donnée par la transformée de Fourier de l'amplitude dans le plan de Fourier.

La configuration, présentée figure II-9 utilise en détection un objectif Mitutoyo de distance focale $f_{obj} = 20 \text{ mm}$ possédant une ouverture numérique $NA = 0,5$, qui détecte les angles compris entre $\pm 30^\circ$ par rapport à l'axe optique du système. Cet objectif sera préféré à l'objectif Thorlabs car il permet de récolter une plus grande plage d'angles.

Afin d'accéder à la répartition angulaire de l'émission, une seconde lentille, appelée lentille de Fourier, de focale $f_f = 100 \text{ mm}$ est placée entre la lentille de collecte de focale $f_c = 300 \text{ mm}$ et l'échantillon suivant une configuration respectant deux conditions illustrées sur la figure II-9. ci-dessous.

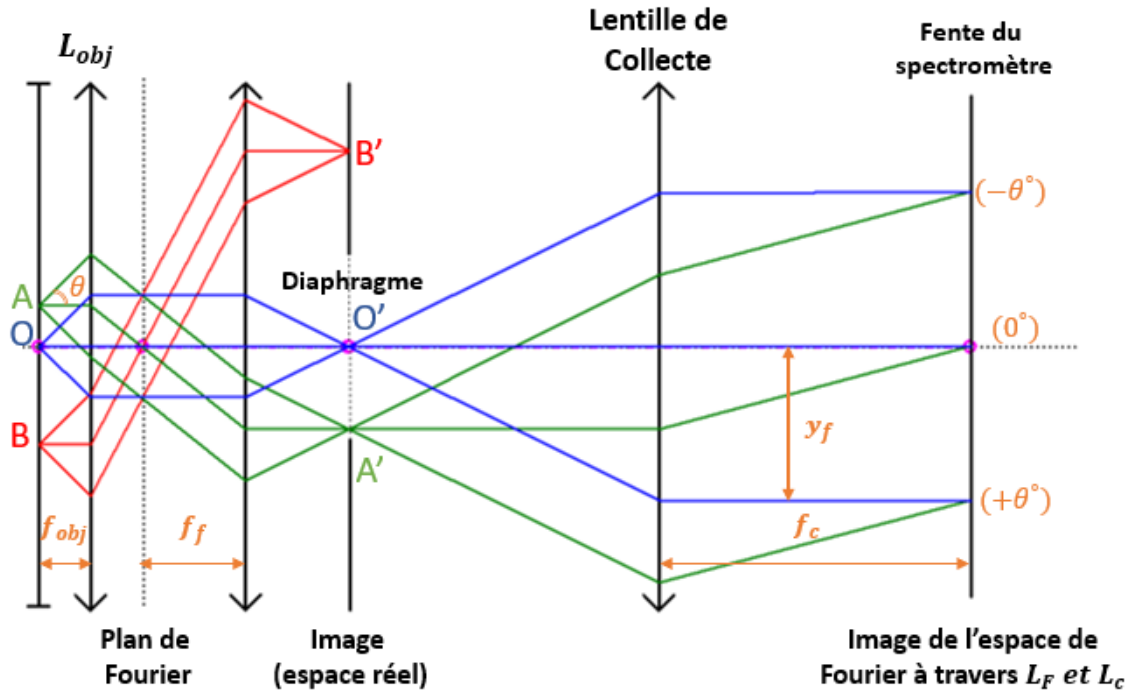


Figure II - 9. Principe de l'imagerie de Fourier avec filtrage spatial appliquée aux rayons issus de 3 points (O, A et B) situés à la surface de l'échantillon avec un objectif de focale f_{obj} , une lentille de Fourier de focale f_f et une lentille de collecte de focale f_c . Pour chaque point, un rayon est émis parallèle à l'axe optique et deux autres avec un angle de $\pm\theta$. Les rayons émis avec un angle θ quel que soit le point d'origine sont focalisés sur la fente du spectromètre à une hauteur y_f . Le filtrage spatial permet de sélectionner une zone spatiale (cercle de rayon OA) où le point O est situé sur l'axe optique et le point A correspond au cas limite où les rayons (en vert) passent le diaphragme. Les rayons issus de B (en rouge) plus éloignés de l'axe optique sont bloqués par le diaphragme.

Premièrement, le plan focal image de l'objectif et le plan focal objet de la lentille de Fourier sont confondus et forment un plan appelé plan de Fourier. La lentille de Fourier $f_{obj} + f_f$ de l'objectif. La lentille de collecte est placée à une distance elle $f_f + f_c$ de la lentille de Fourier.

Deuxièmement, un filtrage spatial est réalisé à l'aide d'un diaphragme placé dans le plan focal image de la lentille de Fourier.

On définit le grandissement G_F du plan de Fourier sur la fente d'entrée du spectromètre :

$$G_f = \frac{f_c}{f_f} = \frac{300}{100} = 3$$

Ce montage permet de focaliser tous les rayons émis par l'échantillon avec un angle θ au même point sur la fente d'entrée du spectromètre à une hauteur notée y_f .

y_f et θ sont liés par la relation :

$$y_f = g_i f_{obj} \tan(\theta^\circ)$$

Les distances focales sont choisies de telle sorte que le disque de Fourier se formant sur le plan image de Fourier occupe un maximum de pixel de la caméra CCD pour gagner en résolution sans pour autant perdre des angles si l'ordre de Fourier déborde. Le rayon du disque de Fourier r_f est donné par :

$$r_f = g_i f_{obj} \tan(30^\circ)$$

En plaçant un diaphragme au niveau du plan de Fourier, il est possible de sélectionner l'émission d'une zone précise de l'échantillon. Comme illustré sur la figure II-9, tous les rayons issus de B ne passent pas le diaphragme tandis que les rayons issus de point compris dans un cercle de rayon OA ne sont pas filtrés.

Dans le cas de la figure II-9, la focale de l'objectif $f_{obj} = 50mm$, la focale de la lentille de Fourier $f_f = 100mm$ et la focale de la lentille de collecte $f_c = 300mm$.

2.5) Excitation confocale et latérale

Suivant les configurations d'excitation, plusieurs tailles de spot sont disponibles. Exciter à travers l'objectif Thorlabs aboutit à un spot de faible diamètre alors qu'exciter à travers une lentille asphérique par le côté donne un spot elliptique de plus grandes dimensions.

Les images de spot présentées figures II-11 et II-13 ne sont pas en réalité une image réelle du spot mais le signal mesuré par luminescence. Ces images sont si possible réalisées à basse puissance afin de limiter la saturation des pixels lorsque la puissance est augmentée.

Les intensités les plus élevées au centre de la gaussienne augmentent moins rapidement que les intensités au bord de la gaussienne. En effet, la surlinéarité liée aux excitons est progressivement dissipée avec la diminution de la force d'oscillateur. Modéliser le signal par une gaussienne conduit alors à surestimer le diamètre du spot.

2.5a) Excitation confocale

La lumière d'excitation d'un laser Nd : YAG est envoyé sur un miroir M_1 qui réfléchit le rayon lumineux d'un angle de 90° sur une séparatrice qui renvoie le rayon au centre d'un objectif. Ce montage permet de passer d'une première direction de lumière à une autre direction parallèle. Une partie du rayon n'est pas déviée et traverse la séparatrice et arrive sur un puissance-mètre. En ayant préalablement mesuré la puissance renvoyée de part et d'autre de la séparatrice, la puissance arrivant sur l'échantillon pourra être connue. Le détail du calcul sont données au sous-chapitre 2.5)c).

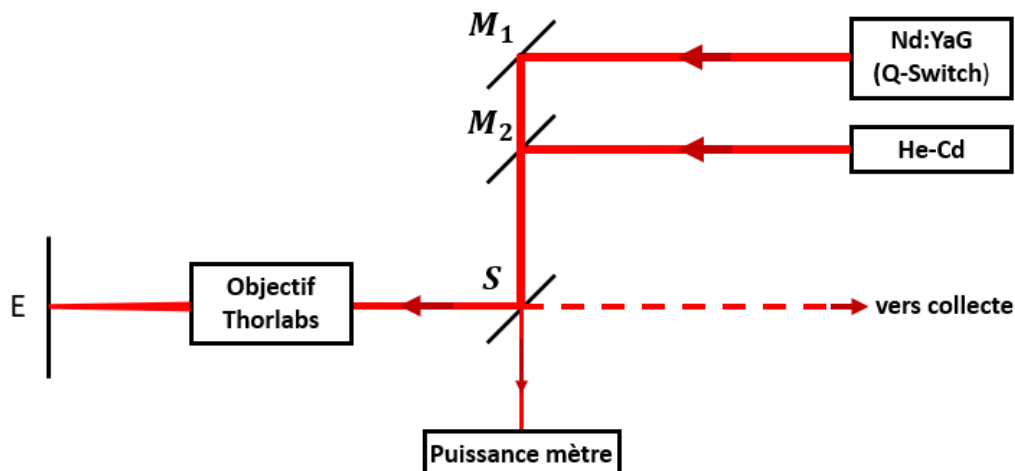


Figure II - 10. Schéma du dispositif expérimental de l'excitation confocale incluant les sources d'excitation, l'objectif Thorlabs, l'échantillon (E), le puissance-mètre, les miroirs (M_1 et M_2) et la séparatrice (S).

La seconde ligne d'excitation du laser He-Cd est parallèle à la première. Le rayon lumineux est réfléchi par un miroir M_2 puis est envoyé sur la même séparatrice que précédemment. Ces deux miroirs forment une droite perpendiculaire aux deux axes d'excitation laser.

Le faisceau de rayon parallèle arrivant sur l'objectif est ensuite focalisé sur la surface de l'échantillon à condition que l'objectif soit placé à une distance de l'échantillon correspondant à sa focale. La lumière renvoyée en faisceau parallèle par l'échantillon passe à nouveau par l'objectif sans être altérée

Dans cette configuration, un objectif Thorlabs de distance focale $f_{obj} = 10 \text{ cm}$ est utilisé possédant une ouverture numérique $NA = 0,4$, qui correspond à un angle de détection par rapport à l'axe optique du système de 23.6° .

La taille du spot d'excitation du laser Q-switch après focalisation par l'objectif Thorlabs est de l'ordre de $22 \mu\text{m}^2$. L'image du spot est présentée ci-dessous :

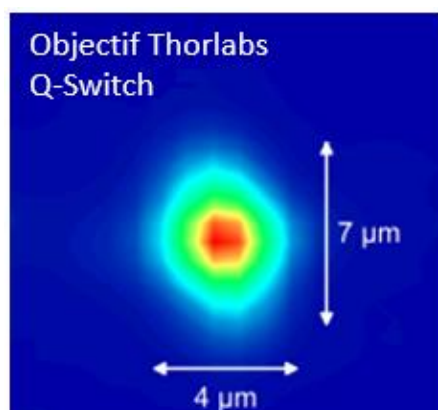


Figure II - 11. Image par luminescence du spot d'excitation (confocal) du laser Q-switched focalisé par l'objectif Thorlabs

2.5)b) Excitation latérale (Q-Switched)

Comme indiqué sur la figure II-6, l'objectif Mitutoyo possède une transmission très faible à 266 nm. Ainsi l'excitation se fera par le côté.

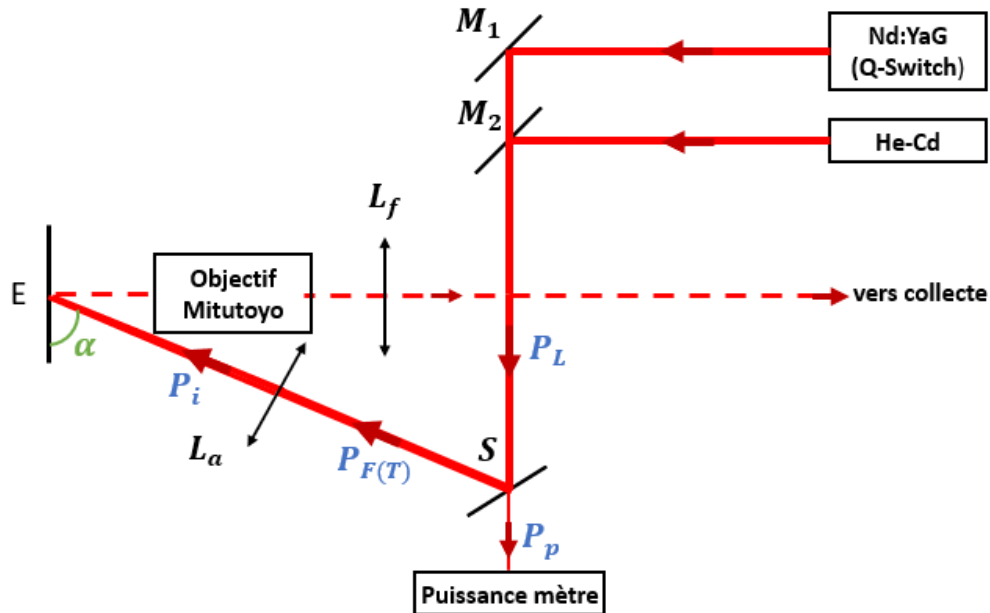


Figure II - 12. Schéma du dispositif expérimental de l'excitation latérale incluant les sources d'excitation, l'objectif Mitutoyo, l'échantillon (E), le puissance-mètre, les miroirs et la séparatrice. L'échantillon est excité latéralement avec un angle α (repéré en vert). Les puissances à chaque étape de la ligne d'excitation sont indiquées en bleu.

La séparatrice S du montage précédent en excitation confocale est déplacée. La lumière issue de l'He-Cd ou du Q-switched, réfléchi par un miroir, est focalisée par une lentille asphérique de focale 8 cm sur l'échantillon. Le spot d'excitation est de forme elliptique et de grande dimension de l'ordre de $650 \mu m^2$ lorsque focalisé au maximum, dont une partie de l'image est donnée ci-dessous. Les valeurs indiquées du diamètre vertical ($36.7 \mu m$) et horizontal ($42.4 \mu m$) sont calculées dans la partie 2)5)d).

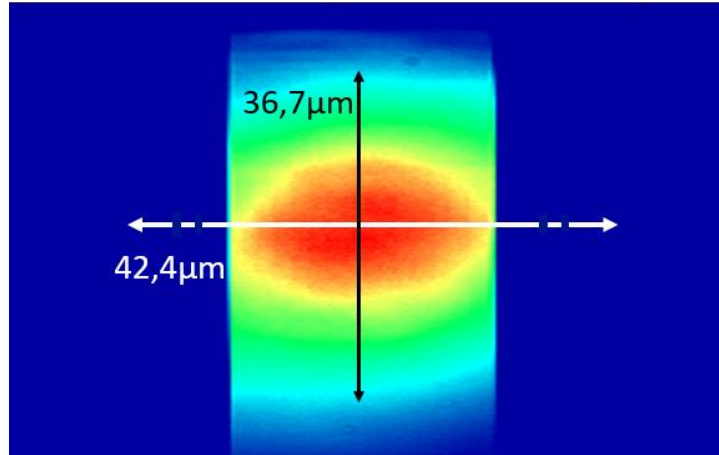


Figure II - 13. Image par luminescence du spot d'excitation latérale du laser Q-switched par la lentille asphérique associé à l'objectif Mitutoyo pour l'échantillon ZMH1714-A à 5K.

L'image complète du spot est reconstituée en collant bout à bout trois images successives en déplaçant la lentille de collecte à l'aide d'un support motorisé tel qu'expliqué dans la partie 2)5)d).

Cependant, il faut préciser qu'un spot focalisé n'est pas le seul critère d'une excitation optimale ; on cherche plutôt à maximiser la luminescence émise par l'échantillon. En effet, un spot focalisé n'équivaut pas à maximum d'intensité. Le signal est maximal lorsque le spot (légèrement défocalisé) recouvre toute une cavité ou plusieurs cavités (formés par les fissures parallèles à l'axe vertical). C'est pourquoi, d'un échantillon à un autre, le souci d'optimiser le signal de luminescence conduit à des spots d'excitation de tailles différentes, entre 650 et 1200 μm^2 .

2.5)c) Détermination de la puissance surfacique

En remarque préalable, il convient de rappeler la polarisation TE du Q-Switched (le champ électrique est perpendiculaire au plan d'incidence). Les séparatrices ne séparent donc pas le rayon incident en deux rayons de puissances égales. La détermination de la puissance surfacique n'est pas aussi évidente qu'on pourrait l'imaginer à première vue. Dans ce sous-chapitre, nous détaillons les différentes étapes pour passer de la puissance indiquée par le puissance-mètre à la puissance surfacique reçue par l'échantillon.

A partir de la puissance mesurée par le puissance-mètre est calculée la puissance d'excitation arrivant sur l'échantillon en tenant compte des pertes par transmission des éléments optiques (se référer à la figure II-12). La puissance P_L du faisceau laser incident est séparée par la séparatrice S en deux faisceaux de puissance P_p se dirigeant vers le puissance-mètre et $P_{F(T)}$ se dirigeant vers l'élément de focalisation (objectif Thorlabs en excitation confocale et lentille asphérique en excitation asphérique) de transmission T , puis aboutissant à une puissance P_E sur l'échantillon après avoir traversé les interfaces schématisées à la figure II – 14 avec un angle incident α . Cette perte de puissance propre à une excitation latérale d'angle α par rapport à la normale est représentée par le facteur d'atténuation A_α .

$$P_{ES} = \frac{1}{S} \cdot P_E = \frac{1}{S} \cdot P_i \cdot A_\alpha = \frac{1}{S} \cdot T \cdot P_{F(T)} \cdot A_\alpha = \frac{1}{S} \cdot T \cdot (P_L - P_p) \cdot A_\alpha$$

Les puissances sont divisées par les surfaces S du spot pour obtenir des puissances surfaciques P_{ES} envoyées sur l'échantillon exprimées en $[W.m^{-2}]$, comparables entre elles quelle que soient les configurations d'excitation.

Le facteur A_α est déterminé à partir des coefficients de transmission t de Fresnel du mode TE. Le rayon injecté d'intensité I_i traverse le verre du hublot puis le vide du cryostat avant d'atteindre l'échantillon, donc trois coefficients de transmissions sont à considérer : $T_{air/verre}$, $T_{verre/air}$ et $T_{vide/ZnO}$. A la longueur d'onde du Q-Switched (266nm), l'intensité I_E reçue par l'échantillon est de

$$I_E = A_\alpha \cdot I_i = T_{air/verre} \cdot T_{verre/air} \cdot T_{vide/ZnO} \cdot I_i$$

Avec :

$$T_{air/verre} = \frac{n_{verre} \cos(\theta_2)}{n_{air} \cos(\theta_1)} t_{air/verre}^2 = \frac{n_{verre} \cos(\theta_2)}{n_{air} \cos(\theta_1)} \left(\frac{2n_{air} \cos(\theta_1)}{n_{air} \cos(\theta_1) + n_{verre} \cos(\theta_2)} \right)^2$$

$$T_{verre/air} = \frac{n_{vide} \cos(\theta_3)}{n_{verre} \cos(\theta_2)} t_{verre/air}^2 = \frac{n_{vide} \cos(\theta_3)}{n_{verre} \cos(\theta_2)} \left(\frac{2n_{verre} \cos(\theta_2)}{n_{verre} \cos(\theta_2) + n_{vide} \cos(\theta_3)} \right)^2$$

$$T_{vide/ZnO} = \frac{n_{ZnO} \cos(\theta_4)}{n_{vide} \cos(\theta_3)} t_{vide/ZnO}^2 = \frac{n_{ZnO} \cos(\theta_4)}{n_{vide} \cos(\theta_3)} \left(\frac{2n_{vide} \cos(\theta_3)}{n_{vide} \cos(\theta_3) + n_{ZnO} \cos(\theta_4)} \right)^2$$

Les angles θ_1 , θ_2 , θ_3 et θ_4 sont reportés figure II-14. Les trois derniers sont déterminés par une loi de Snell-Descartes classique.

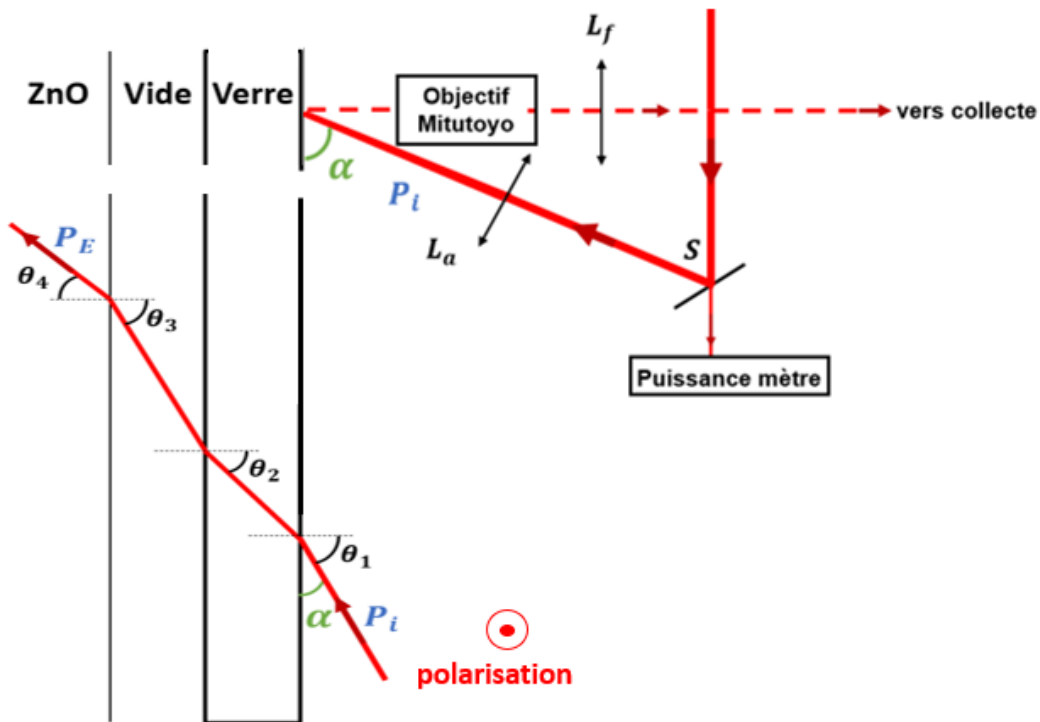


Figure II - 14. Parcours du rayon injecté à travers le hublot du cryostat avec les angles correspondants aux interfaces.

La dépendance angulaire du facteur de transmission A_α pour ZnO et GaN est donnée ci-dessous :

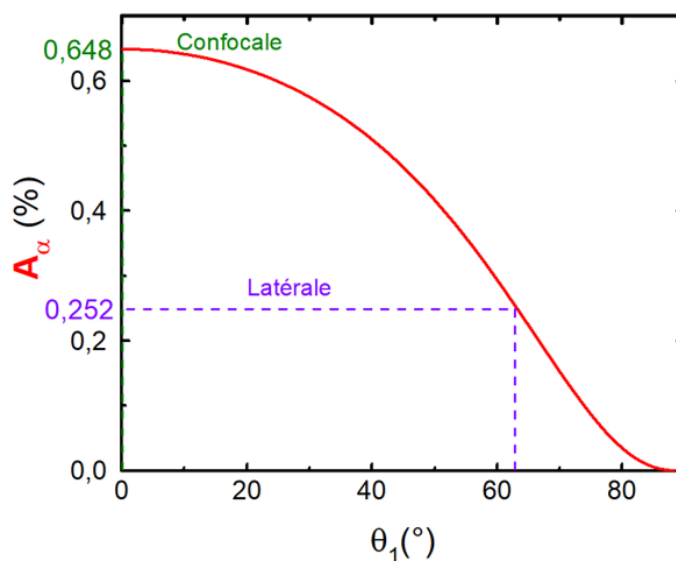


Figure II - 15. Coefficient de perte de puissance après passage des interfaces présentées figure II-14 en fonction de l'angle θ_1 .

Pour rappel pour le Q-Switched à 266 nm, $T_{thorlabs} = 86\%$, $T_{asphérique} = 86\%$. Sur la figure II – 15, en violet, la transmission à travers les interfaces pour un échantillon excité latéralement ($\alpha = 27^\circ$ et $\theta_1 = 63^\circ$) dans notre réglage, $A_{\alpha(ZnO)} = 0,252$ et $A_{\alpha(GaN)} = 0,344$. En vert, l'excitation confocale ($\alpha = 90^\circ$ et $\theta_1 = 0^\circ$), $A_{\alpha(ZnO)} = 0,648$ et $A_{\alpha(GaN)} = 0,752$. Pour obtenir ces résultats les indices sont pris égaux à $n_{GaN(\lambda=266nm)} = 2,5$ et $n_{ZnO(\lambda=266nm)} = 2,3$

En configuration d'excitation latérale, le spot elliptique déborde sur l'axe horizontal de la fenêtre d'acquisition. Pour aboutir à une image complète du spot, plusieurs images sont réalisées en déplaçant la lentille de collecte de 2.24 μ m (taille horizontale de la fenêtre d'acquisition) à l'aide d'un support motorisée. Verticalement, le spot reste contenu dans la fenêtre d'acquisition.

Expérimentalement, l'acquisition expérimentale donne l'intensité en fonction du nombre de pixel. La distance équivalente en μ m est obtenue en multipliant ce dernier par la résolution spatiale.

2.5)d) Détermination de la surface du spot

En configuration Thorlabs, l'image du spot est entièrement contenue dans la fenêtre d'acquisition. Ceci n'étant pas le cas en configuration Mitutoyo avec une excitation latérale.

Afin de déterminer la surface d'un spot formé par un faisceau gaussien d'étalement large, il faut définir un diamètre en fixant une intensité minimale repérant le bord du spot. Les deux extrémités du diamètre sont ceux pour lesquels la valeur d'intensité est égale à l'intensité maximale I_{max} au centre de la gaussienne [113] multipliée par $\frac{1}{e^2}$:

En effet, pour un faisceau gaussien se propageant dans une direction z, le profil d'intensité est donné par :

$$I(x, y) = I_{max} e^{-\frac{2x^2}{w_x^2}} e^{-\frac{2y^2}{w_y^2}}$$

Où w_x et w_y sont les demi-axes du spot elliptique défini à $\frac{1}{e^2}$. (Lorsque $I(x, y) = I_{max} \frac{1}{e^2}$, on obtient $x = w_x$ et $y = w_y$).

L'intensité surfacique est alors calculée (en tenant bien compte des paramètres de transmission expliqués précédemment) à partir de la puissance P_p du faisceau tel que détectée par le puissance-mètre divisée par la surface S du spot d'excitation donnée par :

$$P_p = I_{max} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{2x^2}{w_x^2}} dx \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{2y^2}{w_y^2}} dy = I_{max} \frac{\pi}{2} w_x w_y = I_{max} S = I_{max} \frac{S_e}{2}$$

Où S_e est la surface d'une ellipse. En pratique, cela signifie que la taille du spot est divisée par 2 lorsqu'elle intervient dans le calcul de la puissance.

Ci-dessous est donné l'exemple de la détermination de la taille du spot d'excitation à 5K pour l'échantillon ZMH1714-A, dont la structure est présentée au chapitre 3. Le diamètre vertical de l'ellipse est déterminé à $\frac{1}{e^2}$ de l'intensité maximale en modélisant le signal par une gaussienne centrée sur le pixel 128 (pixel central de la CCD).

Expérimentalement, la focalisation du signal d'excitation est plus ardue qu'elle ne l'est à travers l'objectif Thorlabs. Le spot, dans son axe horizontal, dépasse la fenêtre d'acquisition de la fente d'entrée du spectromètre. En principe, la focalisation est réalisée en cherchant à minimiser le diamètre vertical tout en maximisant l'intensité du signal. Cependant les fissures de l'échantillon, orientées selon l'axe horizontal, complique une appréciation visuelle de la taille du diamètre vertical et perturbent la forme gaussienne du signal. Seule la zone proche du pixel central sert donc à tracer la gaussienne.

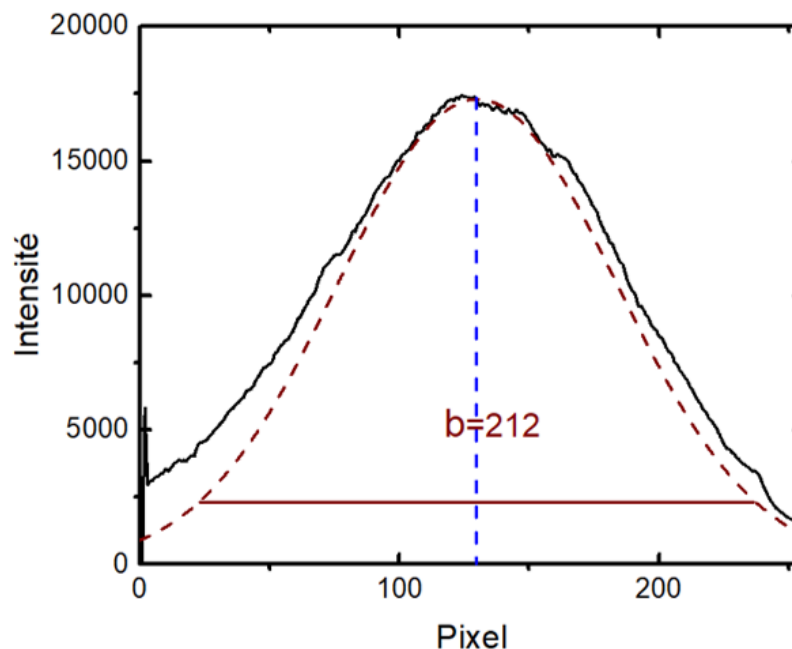


Figure II - 16. Intensité de luminescence en fonction du nombre de pixel suivant l'axe vertical pour l'échantillon ZMH1714-A à 5K. La gaussienne tracée en pointillés marron est centrée au pixel 128 donne le diamètre vertical à $\frac{1}{e^2}$ de l'intensité maximale.

La figure II-17 présente la méthode de détermination du diamètre horizontal en raccordant trois images successives, obtenues en déplaçant la lentille de collecte de 2.24 μm (taille de la fenêtre d'acquisition) à l'aide d'un support motorisé. On remarque que les 3 images ne sont pas raccordables, ce qui est attribué à la caméra CCD, dont les pixels à droite de la fenêtre d'acquisition sont légèrement moins sensibles au signal. Pour s'affranchir de cet effet, on trace deux demi-gaussiennes pour chaque côté du pixel central 508 la moitié de 1024, correspondant au nombre de pixel dans l'axe horizontal de la CCD). Les deux rayons horizontaux de l'ellipse sont déterminés à $\frac{1}{e^2}$ de l'intensité maximale.

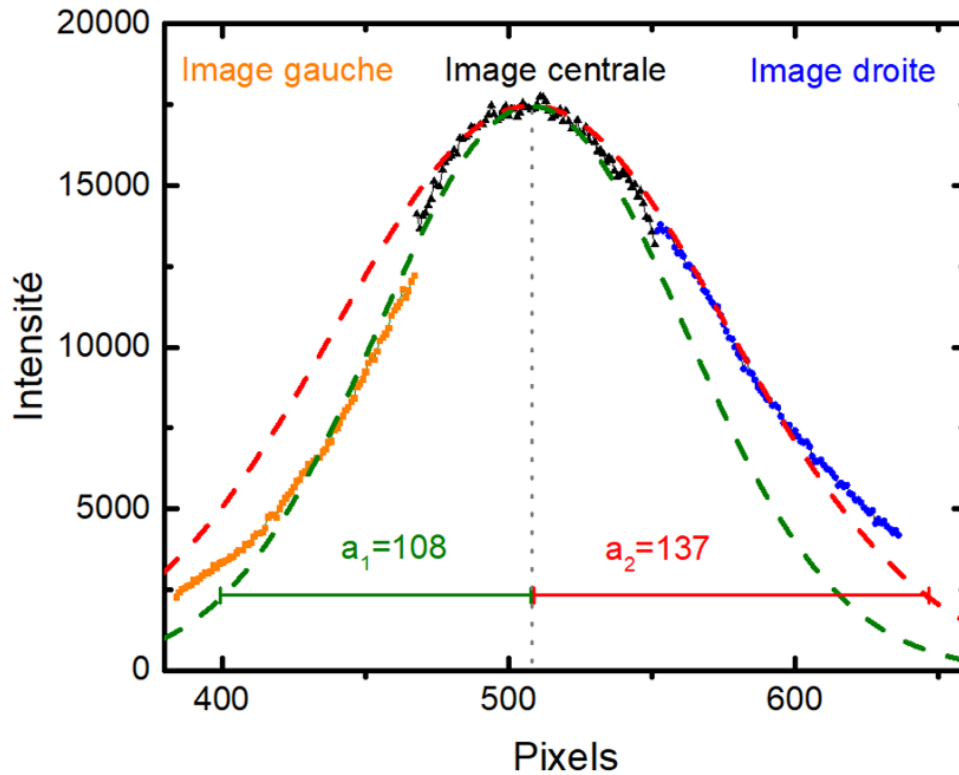


Figure II - 17. Raccordement de l'intensité de luminescence de trois images (gauche, centrale et droite) en fonction du nombre de pixel suivant l'axe horizontal pour l'échantillon ZMH1714-A à 5K. Deux gaussiennes sont tracées, centrées au pixel 508 (ligne verticale en pointillés gris). On définit les deux rayons de l'ellipse a_1 et a_2 comme le nombre de pixels séparant le pixel central (508) et la gaussienne (rouge à droite et vert à gauche), en se plaçant à $\frac{1}{e^2}$ de l'intensité maximale.

La longueur d'un diamètre d est obtenue en multipliant le nombre de pixel n_p par la taille d'un pixel (26 μm) divisée par le grandissement $G = \frac{f_c}{f_{obj}} = \frac{300}{2} = 150$ du système, soit $d = n_p \frac{26}{150}$ (en μm).

Dans cet exemple, la surface S_e de l'ellipse est donnée par :

$$S_e (ZMH1714-A[5K]) = \frac{\pi(a_1 + a_2)b}{4} = \frac{\pi(18.7 + 23.7)36.7}{4} = 1220\mu\text{m}^2$$

3) Détermination de la densité de porteurs

Un centre de luminescence est dans un état excité, thermodynamique et hors équilibre. Il perd son excitation électronique après un temps de relaxation en retournant à l'énergie de son état fondamental. Cette transition est soit radiative soit non-radiative. Dans le premier cas, l'énergie est émise sous la forme d'un photon, dans le second, l'énergie est transmise sous la forme de vibrations au réseau cristallin.

Le temps de déclin de luminescence associé à la transition est :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}}$$

Où τ_r et τ_{nr} sont respectivement les temps de vie radiatif et non-radiatif. Le rendement radiatif R à un instant t est donné par :

$$R = \frac{\tau}{\tau_r} = \frac{1/\tau_r}{1/\tau_r + 1/\tau_{nr}} = \frac{I(t)}{I(0)}$$

L'évolution du nombre de photoporteurs varie suivant la loi :

$$\frac{dn}{dt} = G - \frac{n}{\tau_r} - \frac{n}{\tau_{nr}}$$

Où G le terme de génération qui regroupe deux processus.

G est le nombre de photoporteurs par unité de temps et de volume :

$$G = \frac{\text{Intensité}}{\hbar\nu} * \frac{1}{d}$$

d est la longueur de pénétration du faisceau incident prise égale à l'inverse α .

En résolvant l'équation différentielle avec comme condition initiale $n(0) = 0$, X devient :

$$n(t) = G\tau(1 - e^{-\frac{t}{\tau}})$$

Deux types de régime sont à distinguer.

Pour une impulsion longue lorsque $\tau \ll t_{pulse}$, on a un régime stationnaire où la densité de porteur s'écrit :

$$n = G\tau$$

Pour une impulsion courte vérifiant $\tau \gg t_{pulse}$, la densité de porteur dépend de la durée de l'impulsion :

$$n = Gt_{pulse}$$

Expérimentalement, la densité de porteur n varie avec la puissance moyenne surfacique $P_{crête}$ du spot d'excitation (exprimée en $W.cm^{-2}$) :

$$n = \frac{P_{crête}\tau}{\hbar\omega d}$$

On passe de la puissance moyenne à la puissance crête en multipliant par le rapport cyclique :

$$P_{crête} = P_{moyenne} \frac{T}{t_{pulse}}$$

Où $\frac{T}{t_{pulse}}$ est le rapport cyclique avec la période T comme l'inverse de la fréquence impulsionnelle.

L'expression de la densité de porteur est donc donnée par :

$$n = \frac{P\tau}{\hbar\omega d} = P_{moyenne} \frac{T}{t_{pulse}} \frac{\tau}{\hbar\omega d}$$

Dans la figure ci-dessus est étudiée l'évolution de la densité de porteur suivant le temps de vie excitonique dans une microcavité de couche active de GaN d'épaisseur 130nm. La position de la densité de Mott est un paramètre crucial marquant la transition d'un régime de couplage fort polaritonique vers un régime de couplage faible. Pour une puissance d'injection donnée, la densité de porteur est déterminée à partir du temps de vie polaritonique puis comparée à la densité de Mott, calculée suivant 3 modèles : un modèle classique de sphère dure (estimation haute et peu précise), un modèle quantique faisant intervenir le volume quantique déterminé à partir de la fonction d'onde excitonique et un modèle expérimental statistique proposé par Versteegh. Pour un temps de vie excitonique de 10 ps, la densité de Mott suivant Versteegh à une température de 300K est estimée à $1.5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Dans ce cas particulier, tant que la puissance d'injection est inférieure à $10 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, le couplage fort est maintenu.

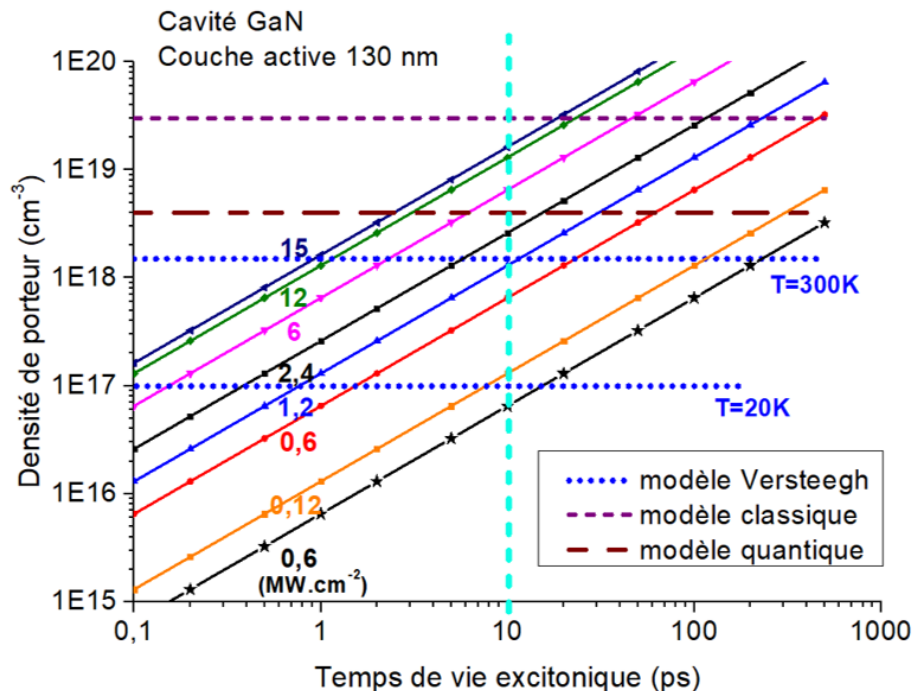


Figure II - 18. Densité de porteurs calculés dans une microcavité de couche active de GaN de 130 nm d'épaisseur en fonction du temps de vie pour différentes densités d'excitation (puissance crête en $\text{MW} \cdot \text{cm}^{-2}$). Le temps de vie excitonique estimé expérimentalement par des mesures de TRPL est de 10ps (pointillés verticaux bleus). Les pointillés horizontaux indiquent les valeurs calculées à 300K pour la densité de Mott suivant trois méthodes : un calcul classique en considérant le volume de l'exciton, un calcul en considérant le volume quantique de l'exciton et un calcul par la méthode statistique de Versteegh. Le calcul de la densité de Mott par Versteegh est également donné à 5K.

Conclusion

Les techniques de spectroscopie de microphotoluminescence et de microréflectivité permettent respectivement la mesure des énergies excitoniques et des complexes excitoniques extrinsèques. Les techniques expérimentales d'imagerie utilisées au cours de ma thèse permettent de repérer d'une part en imagerie réelle, des cavités de tailles souhaitées et dont les deux fissures sont bien parallèles, et d'autre part, en imagerie de Fourier, d'accéder à la dispersion angulaire du mode guidé.

L'excitation de l'échantillon est réalisée soit en configuration confocale soit en configuration latérale, suivant l'objectif employé : Thorlabs ou Mitutoyo. Pour déterminer la puissance surfacique du spot d'excitation, nous avons établi l'expression du facteur de transmission A_α , lié à la perte de puissance propre à une excitation latérale d'angle α par rapport à la normale de l'échantillon, à travers le hublot du cryostat, par un calcul des coefficients de Fresnel. Enfin, nous avons détaillé le calcul de la densité de porteurs du matériau, pour la comparer à la densité de Mott.

III) Spectroscopie optique des guides polaritoniques à base de ZnO. Etude de l'écrantage du potentiel Coulombien des excitons sous forte injection optique. Vers une évaluation de la densité de Mott dans ZnO.

Ce chapitre regroupe les études menées sur les différents guides d'onde au cours de ma thèse. Pour quatre d'entre eux, la dispersion du mode guidé TE0 a été étudiée en imagerie de Fourier en fonction de la puissance d'excitation et de la température. La spectroscopie de μ R couplée à la μ PLK nous a permis de déterminer les énergies des excitons. L'écrantage de la force d'oscillateur des excitons a été étudié en suivant l'évolution de la courbe de dispersion du mode guidé en fonction de la puissance d'excitation.

Les premiers sous-chapitres – 1 à 4 - s'intéresse au guide ZMH1714-A dont l'intensité suffisante du signal de luminescence, extrait via un réseau de couplage même pour des puissances d'excitation très basses, garantit des dispersions expérimentales présentant un très faible écrantage de la force d'oscillateur excitonique. En partant de cette hypothèse de travail, nous avons suivi l'évolution de la force d'oscillateur excitonique en simulant la dispersion expérimentale obtenue pour une puissance d'excitation croissante. En effet, la modélisation est exécutée en ajustant finement l'énergie excitonique, l'indice du ZnO et le pas du réseau.

Le sous-chapitre 5 reprend l'étude précédente pour trois autres guides ; ZMH1715 et ZMH1716 ont une structure identique au ZMH1714-A mise à part l'épaisseur de couche active, et ZMH1817-B le guide présentant le seuil le plus faible.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, des sous chapitres 6 à 9, nous présentons les autres guides étudiés, tout d'abord en détaillant leur structure, puis déterminerons leur seuil laser par des études de puissance et le cas échéant, étudierons la distance de propagation des polaritons en suivant la perte d'intensité lumineuse émise aux fissures.

Enfin, nous présenterons des structures alternatives, à l'instar des structures guidés gravées intentionnellement par faisceau d'ions (FIB=Focused Ion Beam), permettant d'étudier plus précisément la propagation des polaritons.

1) Guide ZMH1714-caractéristiques physiques et technologiques

1.1) Structure et technologie de surface

La croissance des échantillons est réalisée par MBE (molecular beam epitaxy) hétéroépitaxiale. Le guide ZMH1714-A a été le plus étudié au cours de ma thèse. Sa structure est schématisée sur la figure III-1.

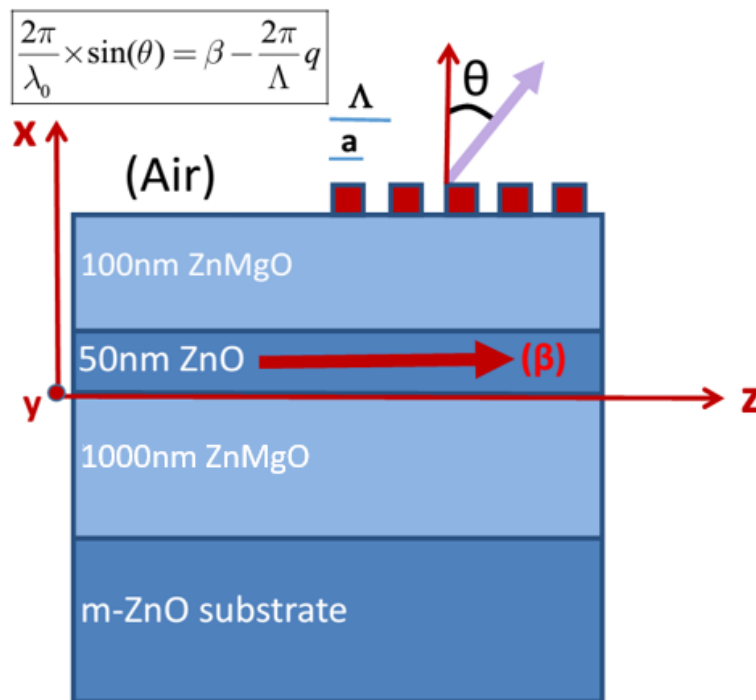


Figure III - 1. Schéma du guide ZMH1714-A. Le réseau, déposé à la surface du cladding supérieur de ZnMgO, est composé d'un motif parallélépipédique de largeur a , répété périodiquement à une distance Λ . L'angle d'émission θ et la constante de propagation dans le plan du guide β sont reliés entre eux par la relation de Bragg rappelée dans l'encadré.

Le guide ZMH1714-A est formé d'une couche active de ZnO de 50nm encadrée par deux couches de confinement (*cladding* en anglais) de $Zn_{0,72}Mg_{0,28}O$, de 100nm d'épaisseur pour le cladding supérieur et de 1000 nm d'épaisseur pour le cladding inférieur. L'ensemble est déposé sur un substrat de ZnO plan-m de plusieurs centaines de micromètres mais dont l'épaisseur n'est pas significative dans le travail de cette thèse.

Le confinement du carré du champ électrique suivant l'axe z dans les couches calculé en prenant un indice constant hors-résonance pour ZnO de 2,3 et pour les claddings de ZnMgO de 1,9 est représenté sur la figure III-2 pour une longueur d'onde égale à 370nm. L'indice du ZnO étant supérieur à l'indice du ZnMgO, la condition de réflexion totale interne est respectée ; le mode guidé TE_0 se propage dans ZnO. Le nombre de mode dépend principalement de l'épaisseur de la couche active ; le guide ZMH1714-A est monomode.

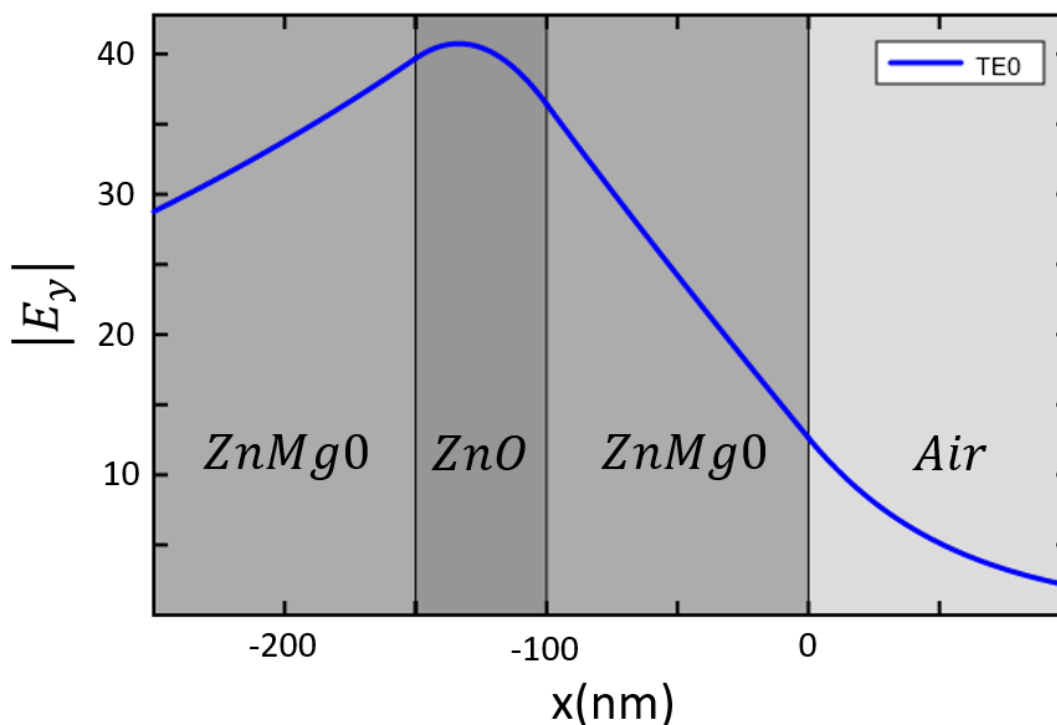


Figure III - 2. Répartition du champ électrique $|E_z|$ du mode guidé TE_0 en fonction de la position dans le guide pour $\lambda = 450\text{nm}$, pour le mode guidé TE_0 . L'épaisseur de la couche guidante de ZnO est de 50nm.

Le champ électrique déborde dans les claddings de ZnMgO, permettant aux réseaux déposés à la surface du cladding supérieur de ZnMgO (en $x = 0$) d'extraire le mode guidé TE_0 . Un faible pourcentage de l'émission de lumière est extrait par le réseau.

La vue des réseaux dans le plan (OYZ) de l'échantillon ZMH1714-A est représentée dans la figure III-3. Chaque échantillon possède des paramètres qui lui sont propres ; le nombre de réseaux, leur pas et leur période sont différents d'un échantillon à l'autre. La configuration spatiale des réseaux forme un damier. La position de chaque réseau est repérée par un numéro de colonne (ici 1,2,3,4 ou 5) correspondant à sa période Λ et par un numéro de ligne (ici D1, D2 ou D3) relié au rapport cyclique $\frac{a}{\Lambda}$. Ces deux symboles, gravés dans l'échantillon, permettent de repérer et d'identifier un réseau en lumière blanche visible à travers notre microscope dans le dispositif de μPL .

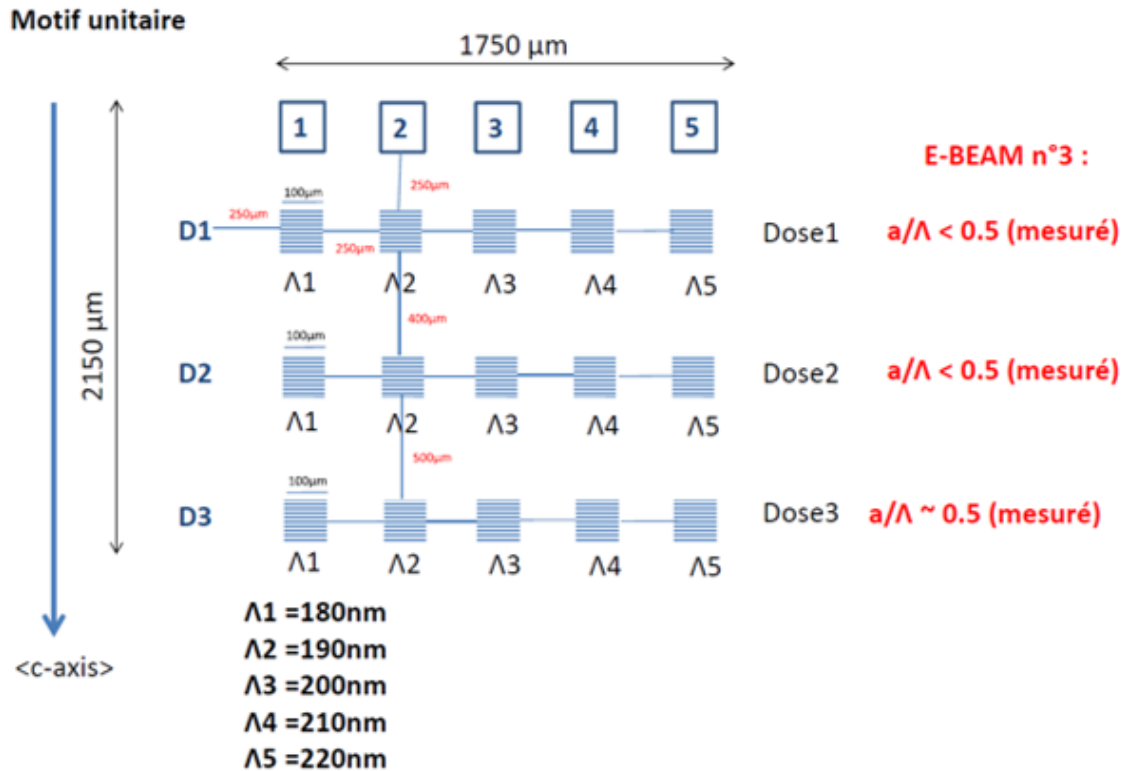


Figure III - 3. Cartographie des 15 réseaux du guide ZMH1714-A. Les réseaux d'une même colonne ont la même période Λ et ceux d'une même ligne ont la même dose D .

Les réseaux sont orientés perpendiculairement à l'axe de croissance \vec{c} et parallèlement aux fissures visibles sur l'image SEM de l'échantillon de la figure III-4. L'apparition régulière de fissures lors de la croissance hétéroépitaxiale est due au désaccord des paramètres de maille et des coefficients de dilatation thermique différents du substrat et du cladding inférieur.

La contrainte provoquée dans la couche épitaxiée est d'autant plus importante que son épaisseur est élevée. Au-delà d'une épaisseur critique, les contraintes de ZnMgO se relaxent par fissuration et mettent le ZnO en tension, ce qui réhausse l'énergie des excitons.

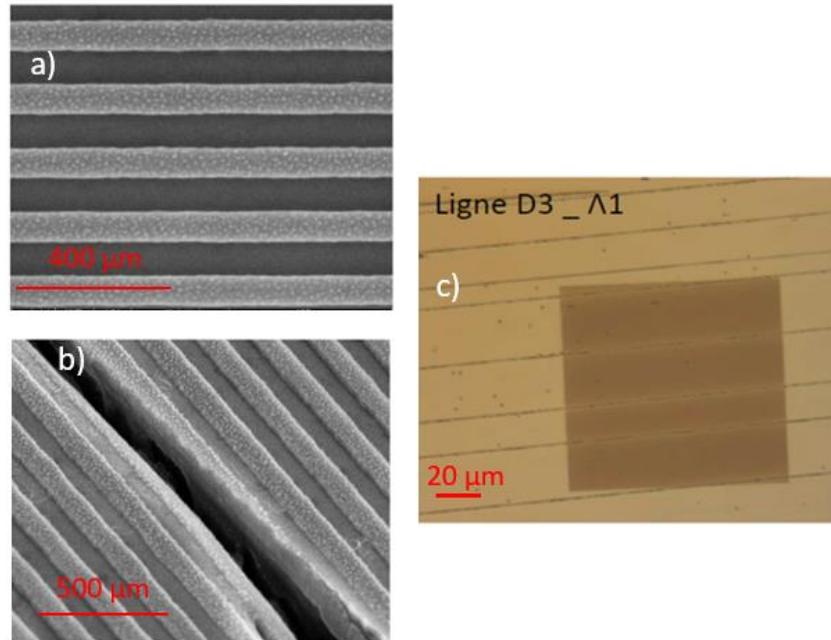


Figure III - 4. Images SEM (Scanning Electron Microscopy) du réseau D3_Λ₁ a) en incidence normale b) légèrement incliné ; aucun défaut de gravure n'apparaît. Les motifs du réseau sont de bonne qualité. On note que le bord des fissures est légèrement rugueux. Image au microscope optique c) en incidence normale ; en moyenne on compte 4 à 5 fissures par réseaux, soit 3 à 4 cavités horizontales dont la longueur est de l'ordre de 30 μm.

Les fissures, perpendiculaires à l'axe \vec{c} sont séparées typiquement d'une distance de 5 à 40 μm. En réfléchissant la lumière, elles conduisent à la formation de cavités résonantes horizontales de longueurs variables pour les modes guidés. Leur présence joue un rôle crucial pour l'observation du laser à polaritons.

Tel que représenté sur la figure III-1, un réseau d'extraction SiO₂ de dimensions 100x100 μm², d'épaisseur $e = 100nm$, de période $\Lambda \sim 190nm$ et de rapport cyclique variable $\sim 0,5nm$, est déposé par lithographie sur la surface de la structure. Il permet d'extraire à un angle d'émission θ le mode guidé se propageant dans la couche active de ZnO avec la constante de propagation β . Ces deux paramètres sont reliés entre eux par la relation de diffraction de Bragg appliquée au guide d'onde. Suivant la valeur de β par rapport à celle du vecteur du réseau réciproque G_n^* , deux configurations sont possibles.

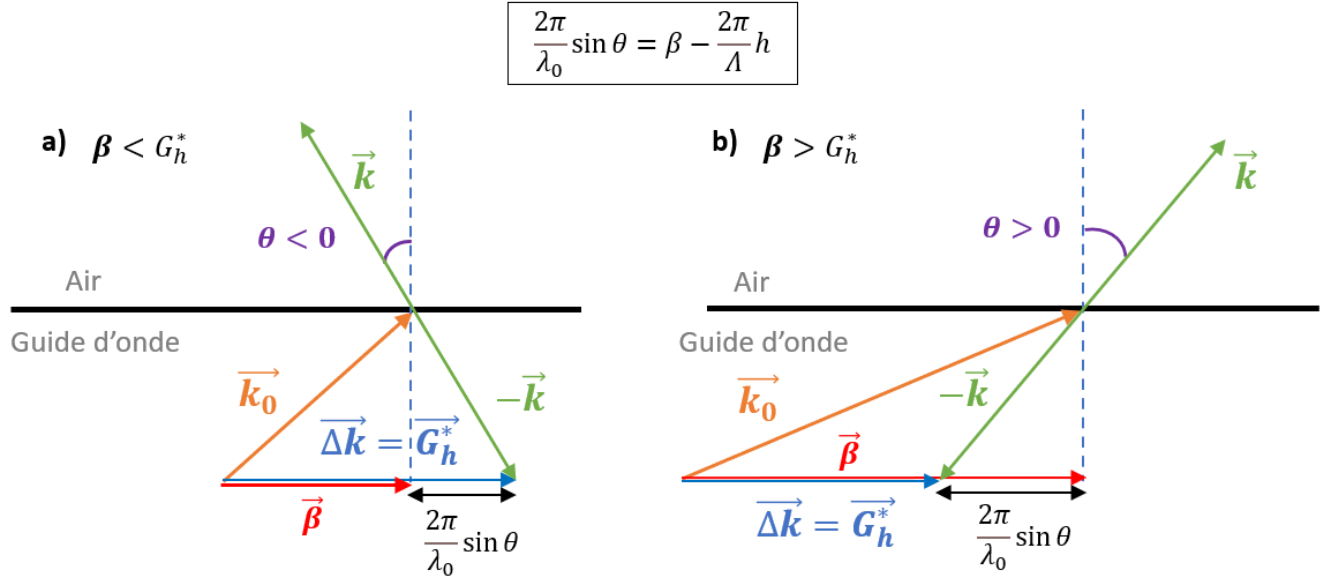


Figure III - 5. Relation de diffraction de Bragg reliant la constante de propagation β du mode guidé à l'angle d'émission θ appliquée à deux cas de figure. a) Lorsque $\beta < G_h^*$, l'émission lumineuse est émise à des angles négatifs. b) Lorsque $\beta > G_h^*$, l'émission lumineuse est émise à des angles positifs.

La figure III–5 met en évidence le changement de signe de l'angle de l'émission de lumière en raison de la dispersion du mode guidé suivant la valeur de la constante de propagation β par rapport à la valeur d'un vecteur du réseau réciproque $\vec{G}_h^* = h \frac{2\pi}{\Lambda}$.

Pour évaluer le coefficient de transmission à travers les réseaux, on modélise ces derniers par une couche mixte $\text{SiO}_2\text{-Air}$. Vu que le rapport cyclique s'élève à $\frac{a}{\Lambda} = 0,5$, on modélise la couche mixte ($\text{SiO}_2\text{-Air}$) par un indice pris égal à 1,2, qui correspond à la moyenne l'indice du SiO_2 (1.4) et de l'indice de l'air. L'indice de ZnMgO est pris égal à 2. En prenant un angle d'incidence $\theta_1 = 63^\circ$ tel qu'introduit au chapitre 2.5), on calcule le coefficient de transmission total des deux interfaces Air/ Air- SiO_2 et Air- $\text{SiO}_2/\text{ZnMgO}$ à partir des coefficients de Fresnel pour le mode TE.

$$T_{\text{Air}/(\text{Air}-\text{SiO}_2)} = \frac{n_{\text{verre}} \cos(\theta_2)}{n_{\text{air}} \cos(\theta_1)} t_{\text{Air}/(\text{Air}-\text{SiO}_2)}^2 = \frac{n_{\text{verre}} \cos(0,139^\circ)}{n_{\text{air}} \cos(63^\circ)} \left(\frac{2n_{\text{air}} \cos(63^\circ)}{n_{\text{air}} \cos(63^\circ) + n_{(\text{Air}-\text{SiO}_2)} \cos(0,139^\circ)} \right)^2$$

$$T_{(\text{Air}-\text{SiO}_2)/\text{ZnMgO}} = \frac{n_{\text{verre}} \cos(\theta_3)}{n_{\text{air}} \cos(\theta_2)} t_{(\text{Air}/\text{Air}-\text{SiO}_2)}^2 = \frac{n_{\text{verre}} \cos(0,084^\circ)}{n_{\text{air}} \cos(0,139^\circ)} \left(\frac{2n_{\text{air}} \cos(0,084^\circ)}{n_{\text{air}} \cos(0,139^\circ) + n_{(\text{Air}-\text{SiO}_2)} \cos(0,139^\circ)} \right)^2$$

$$T_{\text{réseau}} = T_{(\text{Air}/\text{Air}-\text{SiO}_2)} \cdot T_{(\text{Air}-\text{SiO}_2)/\text{ZnMgO}} = 0,928$$

En l'absence de réseau, la transmission est calculée pour une interface Air/ ZnMgO :

$$T_{\text{sans réseau}} = 0,886$$

Le gain de transmission G_T lorsque le spot d'excitation éclaire un réseau est le rapport :

$$G_T = \frac{T_{\text{réseau}}}{T_{\text{sans réseau}}} = 4,74\%$$

1.2) Caractéristiques excitoniques

Précisons au préalable que toutes les puissances des spectres de μPL indiquées dans ce chapitre sont des puissances crêtes et ont été réalisées avec le laser He-Cd, à l'exception du spectre long de μPL de la figure III—7 réalisé avec le laser Q-Switched.

Le spectre de réflectivité (μR) et de microphotoluminescence (μPL), présentés figure III—6 ont été réalisés à 5K, avec le laser He-Cd sous incidence normale et à faible puissance d'excitation ($2.6\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$) pour le spectre de μPL . Pour la μR , La lumière, provenant d'une lampe xénon, n'est pas focalisée afin de rester à des faibles puissances d'excitation et s'assurer qu'aucun signal de luminescence ne modifie l'allure de la réflectivité.

Pour rappel, l'exciton A pour des échantillons massifs de ZnO est typiquement de 3375,2 meV [47] en l'absence de contrainte. L'association des mesures de μPL et de μR nous permet de positionner les excitons A, B et C, respectivement à 3383meV, 3389meV et 3424meV (repérés sur la figure ci-dessous en pointillés rouges). Ces énergies montrent que ZnO est en tension et que l'effet de la contrainte sur le gap de ZnO est de quelques meV.

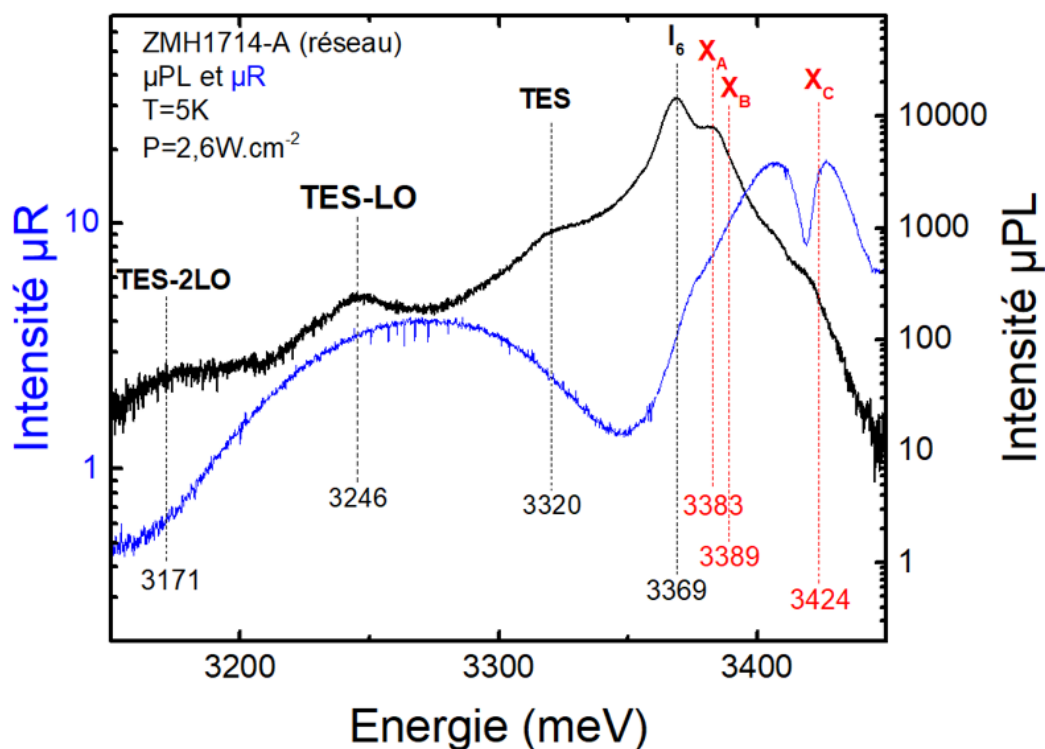


Figure III – 6. Spectres de μR en bleu et de μPL en noir du guide ZMH1714-A, réalisés sur un réseau à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 2.6\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ avec le laser He-Cd. Les énergies excitoniques sont repérées en rouge.

Sur la figure III—6 plusieurs transitions, associées aux excitons localisés sur des donneurs, ont été identifiées en se basant sur les travaux menés par Reynolds et al [114]. et Meyer et al [83] [115]. Afin d'identifier ces raies, ces auteurs ont étudié des échantillons non dopés et dopés avec différentes techniques

expérimentales telles la photoluminescence, la magnéto-photoluminescence, la spectroscopie de masse ou encore la résonance paramagnétique électronique. Les notations utilisées pour les différentes transitions sont celles utilisées par Meyer et al.

La transition I_6 est une transition de type D^0X_A où le donneur est identifié comme de l'aluminium. Les raies du spectre de μ PL situées à plus basse énergie correspondent aux répliques à deux électrons, notées TES. Ces transitions permettent de déterminer la nature chimique des donneurs [83], à partir de la différence d'énergie entre I_6 et TES, celle-ci étant égale à $\frac{1}{4}$ de l'énergie de liaison des donneurs. Sur le spectre, on peut également repérer la réplique phonon associée au TES et situé 74meV en-dessous de la transition TES. L'énergie à laquelle se situe la réplique LO est en accord avec l'énergie des phonons LO trouvée dans la littérature de 72 meV [17].

Le spectre long de μ PL du ZMH1714-A, réalisé avec le laser Q-Switched, est enregistré sur une gamme plus large d'énergie intégrant le bord de bande de ZnO (D^0X_A centré à 3366meV) et celui de ZnMgO (centré à 3793meV).

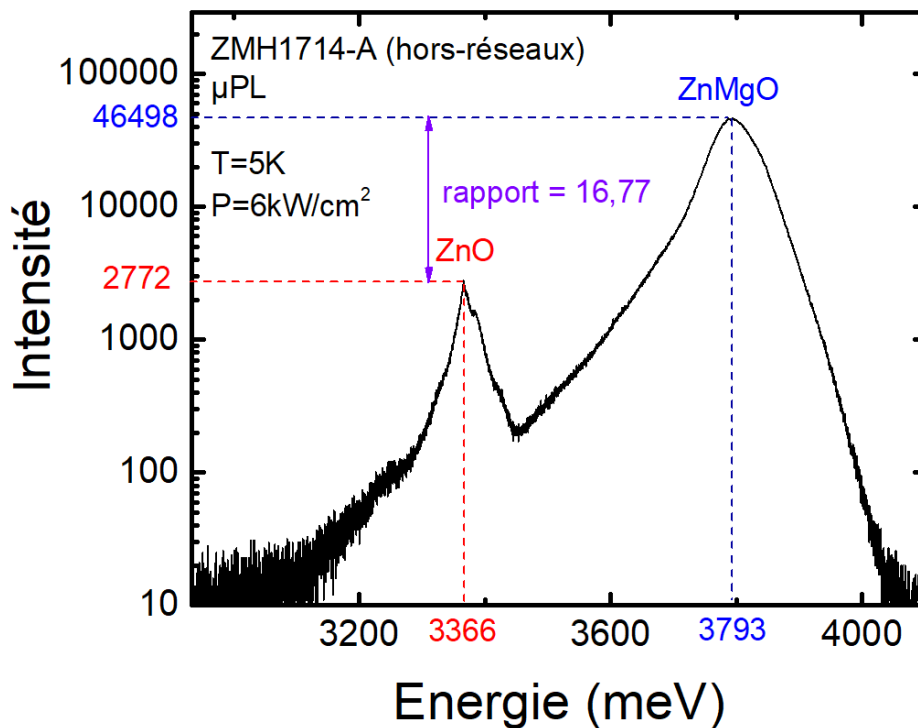


Figure III – 7. Spectres de μ PL du guide ZMH1714-A, réalisés hors-réseau à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 6W \cdot cm^{-2}$ avec le laser Q-Switched. Le rapport des intensités des pics de ZnO et de ZnMgO est de 16,77.

L'intensité du pic de luminescence du ZnMgO est supérieure à celle correspondant au pic d'émission de ZnO et leur rapport est de 16.77. Nous verrons que cette valeur est cohérente avec le rapport trouvé entre les temps de vie de ZnMgO et de ZnO, tel que détaillés au sous-paragraphe 4.b). Le gap du ZnMgO est repéré à 3871 meV en ajoutant d'une part 18meV au pic de ZnMgO situé à 3793meV et correspondant au (D^+X_A). pour arriver à l'énergie de l'exciton X_A puis en ajoutant 60meV correspondant à l'énergie de liaison. La prédominance du pic de ZnO n'a jamais été observé dans notre réserve de guides à base de ZnO.

2) Simulation numérique des courbes de dispersion incluant écrantage de la force d'oscillateur des excitons en fonction de la densité d'excitation

2.1) Construction de l'indice sans exciton

L'indice du ZnO employé dans nos simulations est tiré de mesures d'ellipsométrie réalisées sur un échantillon massif ZnO de référence [116]. La contribution excitonique à la constante diélectrique est retirée. On obtient alors une constante diélectrique ZnO sans exciton ϵ_{ssx} , qui conduit à un indice hors-résonance (partie réelle n_{ssx} et partie imaginaire K_{ssx}) qui sera utilisé pour tous nos échantillons de ZnO.

$$\epsilon_b = \epsilon_{ssx} = \epsilon_{(ellipsométrie)} - \epsilon_{(exciton)} = \epsilon_{(ellipsométrie)} - \frac{A}{E_{X_A}^2 - E^2 + i\Gamma E} - \frac{A}{E_{X_B}^2 - E^2 + i\Gamma E}$$

$$= (n_{ssx}(E) - iK_{ssx}(E))^2$$

E_{X_A} et E_{X_B} sont les énergies des excitons A et B de ZnO. Un élargissement total Γ , incluant l'élargissement homogène et inhomogène, correspondant à la largeur à mi-hauteur de la forme Lorentzienne de ϵ_2 .

Sur la figure III-8, la contribution de chaque exciton, modélisée par une lorentzienne, est soustraite respectivement à la partie réelle et imaginaire de ϵ mesuré par ellipsométrie, puis la courbe est lissée.

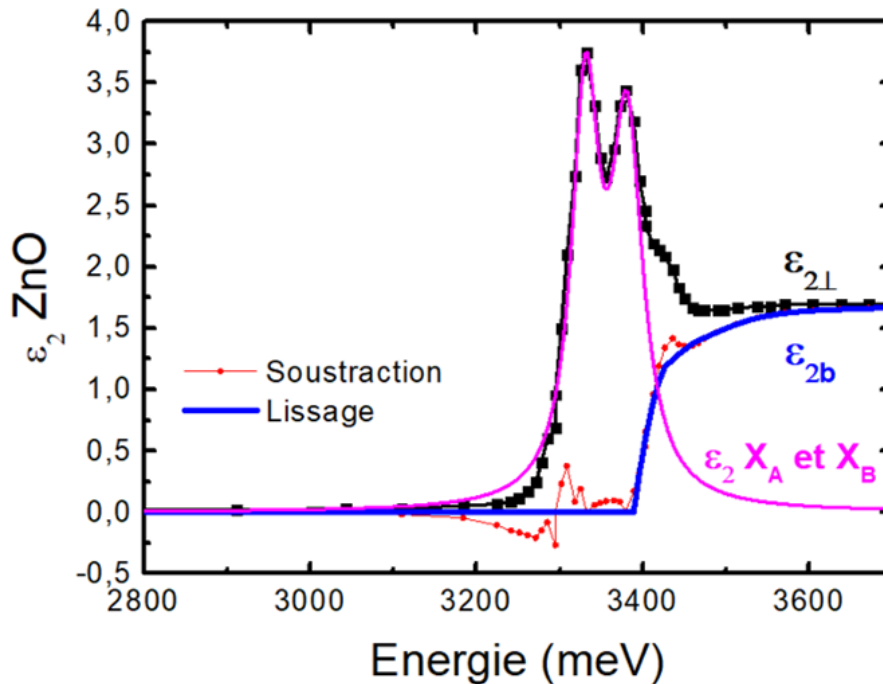


Figure III – 8. La contribution des excitons X_A et X_B , modélisée par deux lorentziennes (courbe violette), est retirée au ϵ_2 mesuré par ellipsométrie (courbe noire). La courbe de soustraction obtenue (en rouge) est lissée pour construire ϵ_2 sans exciton (courbe bleue).

Les courbes lissées de ε_1 et ε_2 conduisent à notre indice ZnO hors contribution excitonique, partie réelle n et partie imaginaire K , servant à modéliser les courbes de dispersions expérimentales. Le lissage est réalisé de telle sorte que l'amorce de ε_2 partant de 3389 meV coïncide avec le maximum de ε_1 conformément à la théorie et à la relation de Kramers-Kronig. Ce fit permet d'avoir les paramètres excitoniques. Ensuite, il est possible d'opérer la soustraction par rapport à ε_1 .

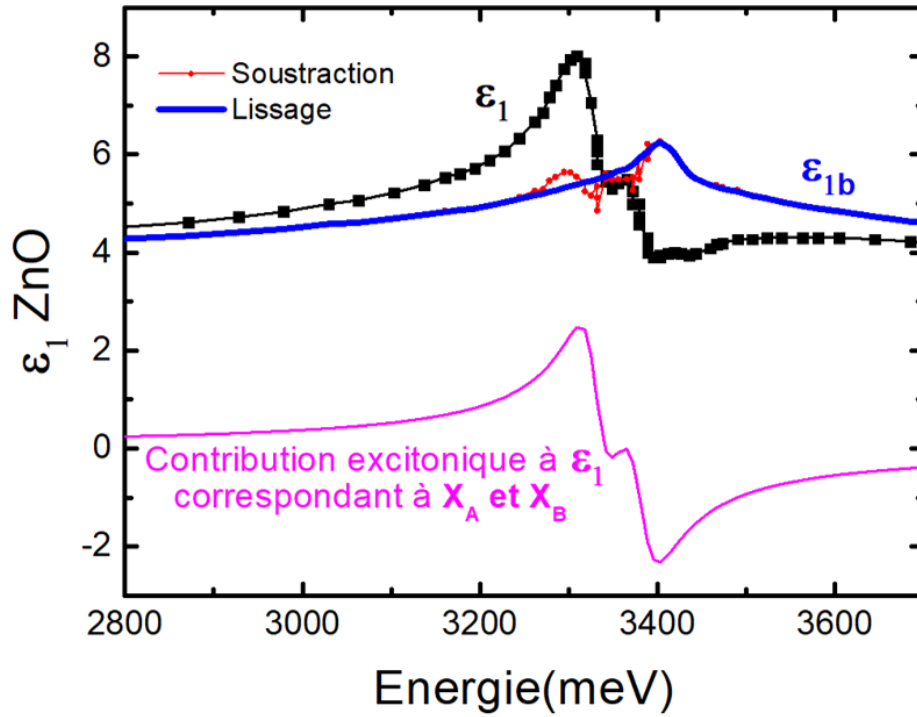


Figure III – 9. La contribution des excitons X_A et X_B est retirée à ε_1 mesuré par éllipsométrie (courbe noire). La courbe de soustraction obtenue (en rouge) est lissée pour construire ε_1 sans exciton (courbe bleue).

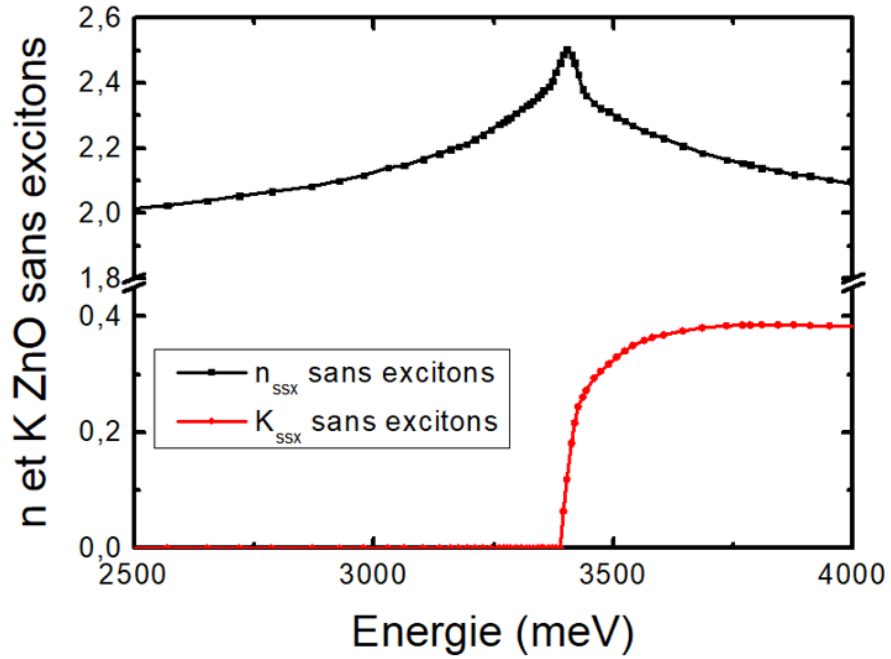


Figure III – 10. Indice ZnO partie réelle n et partie imaginaire K .

La partie réelle n de l'indice ZnO sans excitons est très proche de 2 aux basses énergies puis atteint le maximum de 3,4 à 3389meV, qui correspond à l'amorçage de la partie imaginaire K de l'indice sans excitons qui monte jusqu'à 0,39.

2.2) Construction des excitons à l'indice et prise en compte de l'écrantage

Il s'agit de construire la constante diélectrique adéquate compte tenu des effets de contraintes qui modifient l'énergie de bande interdite de ZnO.

Dès lors, il est possible de rajouter dans un deuxième temps une nouvelle contribution excitonique adéquate à l'échantillon ZMH1714, déterminée par des mesures de μR . Pour cela nous rajoutons à la constante diélectrique deux oscillateurs harmoniques de Lorentz caractérisés par une force d'oscillateur A et B (en meV^2), une énergie de résonance E_{XA} ou E_{XB} et un paramètre d'élargissement Γ . Cette contribution excitonique correspond à une Lorentzienne pour chaque exciton. Par exemple, dans le cas où $\vec{E} \perp \vec{c}$, on considère la contribution des excitons A et B sur l'indice de ZnO

$$n_{simulation(théorique)} = \sqrt{(n_{ssx}(E) - iK_{ssx}(E))^2 + \frac{A}{E_{XA}^2 - E^2 + i\Gamma E} + \frac{B}{E_{XB}^2 - E^2 + i\Gamma E}}$$

Pour le guide ZMH1714-A, l'indice avec exciton est donné sur la figure ci-dessous à titre d'exemple :

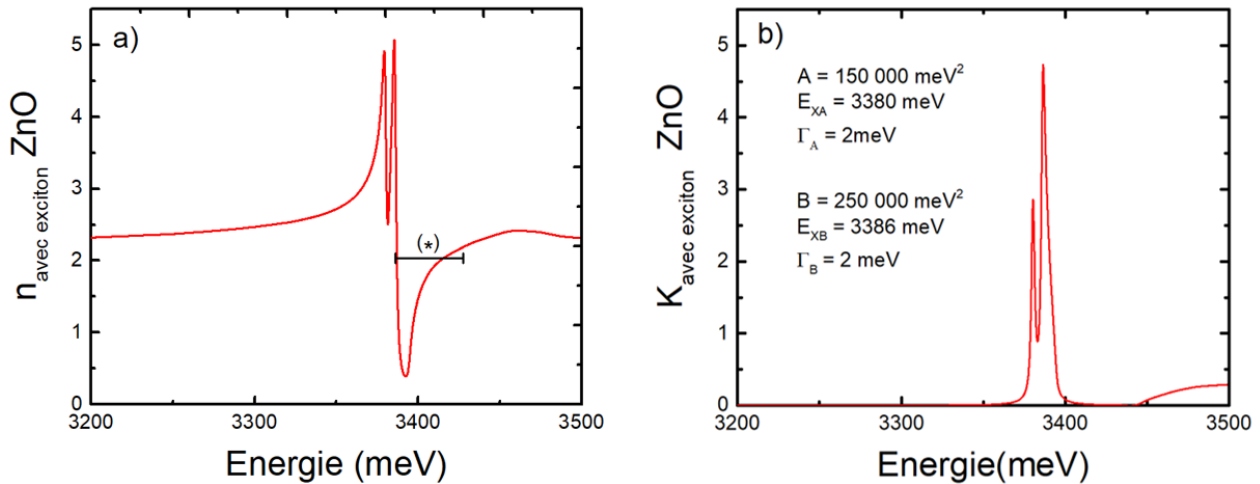


Figure III – 11. Indice ZnO avec exciton du guide ZMH1714-A. a) Partie réelle n b) Partie imaginaire et valeurs des paramètres.

En ajoutant la contribution des excitons à la constante diélectrique sans exciton, la partie réelle n de l'indice oscille jusqu'à 5 au niveau de l'énergie des deux excitons puis se creuse juste au-dessus des excitons, avant de retrouver un niveau légèrement supérieur à l'indice ZnO sans excitons. Pour rappel, cette variation importante de l'indice de ZnO est responsable de la perte de la condition de réflexion totale interne vu que l'indice de ZnO devient inférieur à l'indice de ZnMgO (autour de 1,9) dans la zone d'énergie juste supérieure à celle des excitons (*). Sur la partie imaginaire K de l'indice, les excitons A et B sont responsables de l'apparition des deux pics avant l'amorçage d'absorption du gap.

Notons que lorsque la puissance d'excitation augmente, l'énergie de liaison des excitons diminue en même temps que le gap de ZnO se renormalise. Cette démarche nous permet d'étudier finement l'écrantage des excitons qui conduit à la diminution de la force d'oscillateur en rajoutant la contribution excitonique sur l'indice sans exciton, décalé de la diminution du gap (correspondant à la diminution de l'énergie de liaison).

La relation de dispersion peut être calculée pour une force d'oscillateur donnée exprimée en pourcentage de force d'oscillateur nominale, noté η , en considérant que la réduction de l'énergie de liaison de l'exciton est compensée exactement par la diminution de l'énergie du gap induite par des effets de renormalisation. Ce dernier point est justifié par des calculs théoriques [72].

La dépendance entre la partie imaginaire de la constante diélectrique et la force d'oscillateur initiale $F_{osc}(1)$ d'une part, et la dépendance entre l'énergie du gap E_g et l'énergie de liaison de l'exciton E_b d'autre part, sont données ci-dessous. La démonstration se trouve en annexe E.

$$\varepsilon_{2X} = \eta \frac{F_{osc}(1)}{(E - E_X)^2 + \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2}$$

$$\Delta E_g = -E_b \left(1 - \eta^{\frac{1}{3}}\right)$$

En pratique, comme nous le verrons ci-dessous, une dispersion expérimentale mesurée à basse température et à basse puissance sert de référence pour définir la situation sans écrantage $\eta = 100\%$. L'écrantage progressif de la force d'oscillateur excitonique avec des puissances d'excitation croissantes conduit à une diminution de 60 meV de l'énergie du gap atteinte lorsque $\eta = 0\%$.

Ainsi pour tenir compte de l'écrantage progressif lorsque la puissance d'excitation augmente, il sera important de décaler l'indice sans exciton d'une valeur égale à la variation du gap ΔE_g correspondant à l'écrantage η avant de rajouter la contribution excitonique.

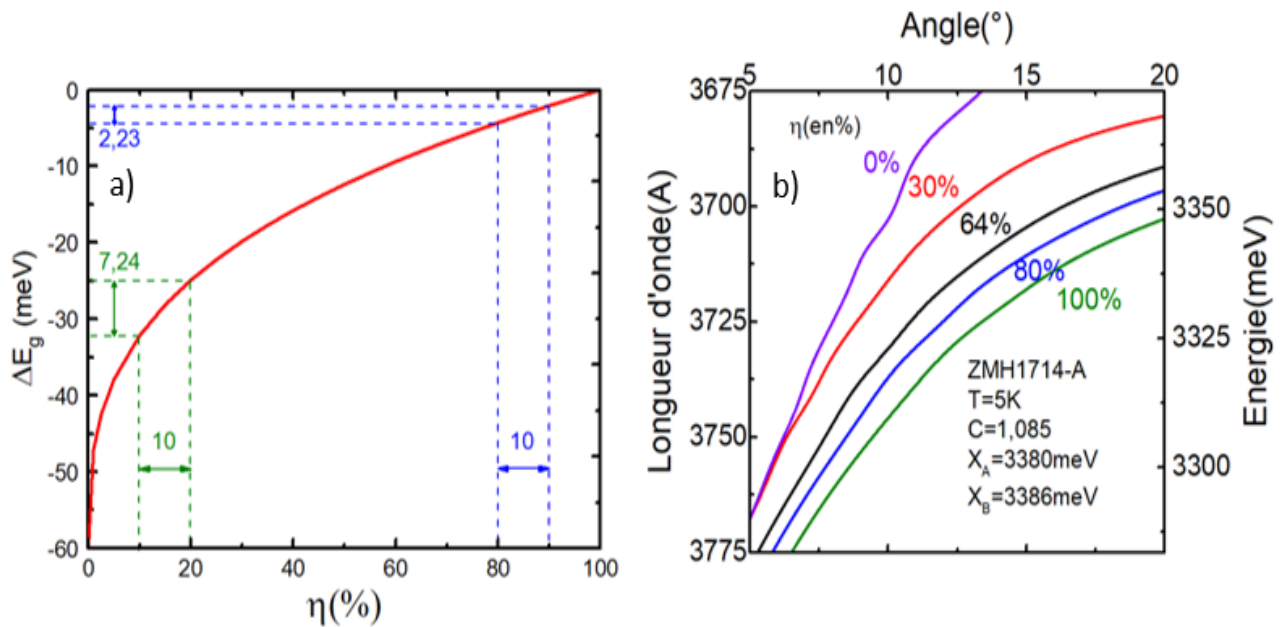


Figure III-12. a) Energie à soustraire au gap en fonction du pourcentage de force d'oscillateur restant. b) Simulation des dispersions expérimentales pour des valeurs de η données tracées sur une gamme de longueur d'onde en fonction des angles d'extraction.

Comme l'illustre la figure III-12.a) la variation de l'énergie du gap ΔE_g est proportionnelle à l'inverse d'une racine cubique, expliquant la faible variation d'énergie de 2.23 meV pour une force d'oscillateur restante

passant de 90% à 80% (pointillés bleus) par rapport à une variation plus importante égale à 7.24meV en passant de 20% à 10% (pointillés verts).

La simulation des dispersions expérimentales en fonction de la puissance d'excitation est réalisée en modifiant le pourcentage de force excitonique restant η . Cette démarche est plus précise à des valeurs de η élevées. Par exemple ; vers 3750 Å dans la zone énergétique de relaxation des polaritons, on remarque qu'une simulée en $\eta = 0\%$ et une autre simulée en $\eta = 30\%$ sont pratiquement confondues alors que des dispersions simulées en $\eta = 80\%$ et $\eta = 100\%$ sont plus espacées.

Vu l'incertitude sur les valeurs de η inférieures à 30%, on peut déjà considérer que le couplage fort est perdu et que le régime du laser a transité d'un laser à polaritons à un laser classique basé sur un gain plasma e-h.

Les courbes de dispersions simulées seront ajustées aux dispersions expérimentales réalisées aux différentes puissances d'excitation.

En pratique, l'expression de $n_{simulation(théorique)}$ ne suffit pas à obtenir des simulations de qualité. En raison d'une petite inclinaison des réseaux par rapport à l'axe \vec{c} , on observe une légère inclinaison de la dispersion des courbes entraînant une petite dissymétrie entre les deux dispersions.

Pour rendre compte de cet effet par la simulation, on introduit un coefficient d'ajustement multiplicatif C ($C < 1.1$) sur la partie réelle de l'indice qui ajuste ce dernier à quelques pourcents près ce qui est rentre dans l'incertitude de la mesure de l'indice par ellipsométrie. La partie imaginaire n'est pas impliquée afin de limiter les changements que cela induirait sur les valeurs de la distance de propagation. L'intervalle de variation de C est inclus entre 1 et 1.1.

Une simulation réussie, c'est-à-dire, la plus fidèle possible à la courbe de dispersion expérimentale, est le résultat d'une combinaison de plusieurs paramètres ajustables : l'énergie des excitons, la valeur du paramètre d'ajustement C sur l'indice, le pourcentage de force d'oscillateur nominale η et dans une moindre mesure l'élargissement Γ des excitons.

3) Guide ZMH1714-Résultats expérimentaux et analyse

Nous présentons dans un premier temps les dispersions expérimentales à $T = 5K$ accompagnées des dispersions simulées puis la même étude est réalisée à $T = 300K$.

3.1) Evaluation des courbes de dispersion en fonction de l'intensité d'excitation à basse température

L'intensité d'excitation optique varie sur 3 décades et la relation de dispersion est enregistrée via un réseau gravé de SiO_2 . La figure III-13 présente la dispersion de l'énergie du mode guidé polaritonique en fonction de l'angle d'émission pour quatre intensités d'excitation différentes. Les énergies excitoniques de A et B utilisées dans les calculs sont respectivement égales à 3379meV et 3385meV, l'élargissement Γ est pris égal à 5 meV et le coefficient d'ajustement C est égal à 1.027. Quant à la valeur non-écrantée des forces d'oscillateur excitoniques, celles-ci sont fixes quelles que soient la température et correspondent à des mesures complémentaires de réflectivité de mélange à quatre ondes et d'autocorrélation interférentielle [64] : $F_{osc(X_A)} = 150\,000\ meV^2$ et $F_{osc(X_B)} = 250\,000\ meV^2$ [47].

La courbe de dispersion tracée en trait blanc sur la figure III-13.a) simule la courbe de dispersion expérimentale enregistrée à très faible puissance et sert de référence correspondant à une force d'oscillateur non écrantée ($\eta = 100\%$). On suppose alors que la force d'oscillateur excitonique n'a pas encore été écrantée vu la faible puissance d'excitation. La relation de dispersion complètement écrantée ($\eta = 0\%$) dans le cas où la force d'oscillateur excitonique est au voisinage de la densité de Mott est tracée en pointillés blanc pour servir de guide visuel.

Lorsque la densité d'excitation augmente, d'une part, les courbes de dispersions se déplacent non-linéairement vers la courbe à $\eta = 0\%$ vu que l'énergie du gap diminue plus rapidement et d'autre part, l'énergie de l'émission se déplace de façon continue vers les basses énergies vu que les états de basses énergies sont plus favorables à l'effet du laser à polaritons, ce qui rejoint la prédiction théorique [60].

D'un point de vue théorique, les états électroniques requièrent plus d'espace de phases que disponible aux fortes densités d'excitation, et en conséquence, les états liés se relaxent amorçant le début de l'écrantage. Ceci est attribué à l'effet de blocage de Pauli concernant le remplissage des bandes qui est que les électrons ne peuvent occuper qu'un seul état.

Les courbes en pointillés rouge correspondent aux simulations permettant de rendre compte de la dispersion expérimentale et permettent d'évaluer les pourcentages de force d'oscillateur restant à chaque puissance.

Le seuil laser polaritonique est atteint pour une puissance d'excitation $P_{th} = 44,5kW.cm^{-2}$ et pour $\eta = 80\%$. Au-delà du seuil, à $3P_{th}$, la dispersion expérimentale est ajustée en prenant $\eta = 64\%$. A des puissances d'excitation élevées, à $22P_{th}$, l'écrantage est quasi-total ; l'émission de lumière est localisée au voisinage de la courbe de dispersion à 0%. Ainsi, jusqu'au seuil laser, la force d'oscillateur n'est que peu réduite alors qu'à $22P_{th}$, elle devient très faible. L'échantillon est soumis à une intensité d'excitation maximale de $979\ kW.cm^{-2}$.

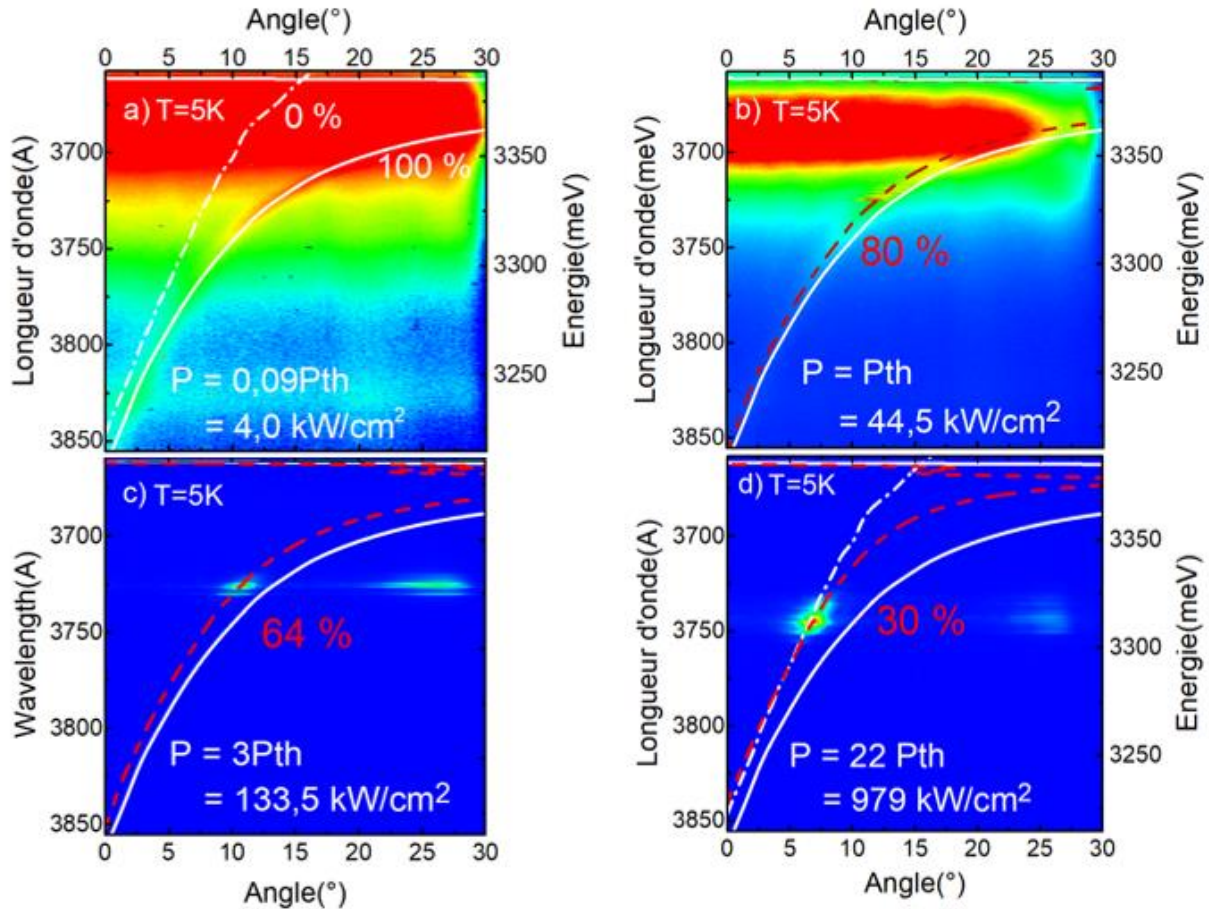


Figure III - 13. Dispersions expérimentales des modes guides polaritoniques à $T=5K$ en fonction de la densité de puissance d'excitation, accompagnées de 3 dispersions simulées. En blanc, les dispersions correspondant aux forces d'oscillateurs 100% (blanc traits plein) et 0% (blanc traits pointillés). La dispersion simulée (en rouge) modélise la dispersion expérimentale en appliquant la force d'oscillateur indiquée en rouge, laquelle décroît lorsque l'intensité d'excitation augmente. La puissance d'excitation part d'en-dessous le seuil a) puis atteint le seuil laser b) ensuite dépasse le seuil c) enfin atteint une puissance bien au-dessus du seuil laser d).

Il faut souligner que la fraction de force d'oscillateur restante η n'est définie rigoureusement qu'à des puissances inférieures au seuil laser. Une fois le mécanisme du laser polaritonique enclenché, la dynamique du système change ; les processus de relaxation et les temps de vie excitonique et photonique sont modifiés. Il est cependant possible de repérer la transition de Mott à la condition que la densité de porteurs en régime quasi-permanent puisse être évaluée. Comme expliqué précédemment, la réduction de la force d'oscillateur excitonique varie comme l'inverse de la racine cubique de l'énergie de liaison excitonique [117]. La simulation numérique de l'évaluation de la courbe de dispersion du mode guidé en ajustant la valeur de η lorsque la puissance d'excitation augmente permet donc de montrer l'écrantage progressif de la force d'oscillateur des excitons et permet aussi une estimation de la densité de Mott.

Le suivi précis de l'évolution de la courbe de dispersion en fonction de l'intensité d'excitation peut être effectué en sélectionnant sur l'image une ligne d'énergie et en traçant l'intensité en fonction de l'angle d'émission θ . Ces graphiques sont reportés aux figures III-14.a), b), c) et d) pour les diverses puissances d'excitation exprimées en unité de P_{th} . Dans chaque cas, l'énergie choisie correspond à l'énergie de l'émission laser.

La ligne verticale repérant $\eta = 100\%$ correspond à la constante de propagation, prise en unité d'angle, et repérée sur la courbe simulée (ligne blanche) calculée avec 100% de force d'oscillateur. La ligne verticale repérant $\eta = 0\%$ correspond à une propagation dans le guide d'onde sans exciton (ligne en pointillés) ; dans ce cas le force d'oscillateur a disparu, et l'énergie du gap a diminuée de l'énergie de liaison.

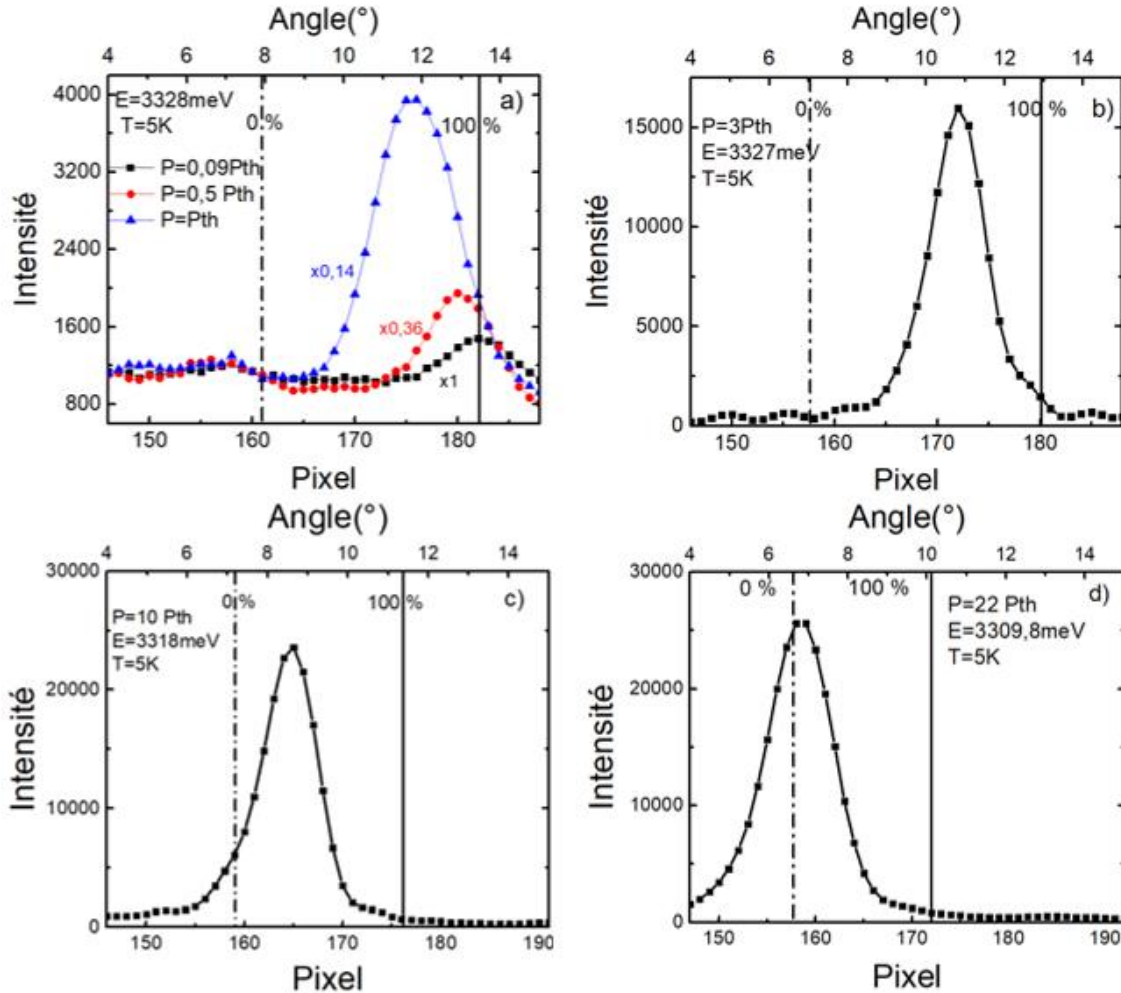


Figure III – 14. Coupe d'intensité à une énergie donnée en fonction des angles illustrant la réduction progressive de la force d'oscillateur. En augmentant de la densité d'excitation, le pic d'intensité se déplace de la référence 100% (à très basse puissance) vers la limite du régime de couplage fort lorsque la force d'oscillateur est complètement écrantée à 0%. Les sections d'intensité sous le seuil et au seuil sont représentées en a) et sont prises à l'énergie du mode laser, puis à 3Pth en b), 10Pth en c) et 22Pth en d)

La réduction de la force d'oscillateur est mise en évidence par le déplacement du pic d'intensité maximale de la référence $\eta = 100\%$ vers le repère de la transition de Mott $\eta = 0\%$. Jusqu'au seuil laser, la force d'oscillateur excitonique est légèrement réduite alors qu'à 22Pth, correspondant à une densité d'excitation de $3,9MW.cm^{-2}$, $\eta \approx 0\%$.

3.2) Evaluation des courbes de dispersion en fonction de l'intensité d'excitation à température ambiante

Les relations de dispersions à 300K sont reportées figure III–15. Selon la direction de la constante de propagation β . Deux dispersions symétriques sont obtenues et correspondent aux deux sens de propagation du mode lorsqu'il se réfléchit sur une fissure.

Contrairement à 5K, où il était possible de ne présenter qu'une des deux dispersions, vu que celles-ci ne se croisaient pas, ici les deux dispersions sont indiquées ; la dispersion 'gauche' dont les angles d'émission sont principalement négatifs à des énergies inférieures aux énergies des excitons et la dispersion 'droite' dont les angles sont principalement positifs. Les fissures représentées sur la figure III–4.c) sont responsables des deux directions de propagation et réfléchissent une partie de polaritons.

La faible réduction de l'éclatement de Rabi $\Omega = 139\text{meV}$, mesuré aux faibles excitations à température ambiante par rapport à $\Omega = 151\text{meV}$ à basse température est attribuée à l'augmentation de l'élargissement excitonique dû à l'interaction des excitons avec les phonons (cf. chapitre 1).

En ce qui concerne l'écrantage à température ambiante, comme le montrent les figures III–8.b), c) et d), à basse puissance d'excitation, la force d'oscillateur est préservée ($\eta = 90\%$ pour $P = 0,45P_{th} = 134,8\text{ kW.cm}^{-2}$) et n'est que légèrement écrantée au niveau du seuil laser ($\eta = 77\%$ pour $P_{th} = 299,6\text{ kW.cm}^{-2}$). La force d'oscillateur diminue jusqu'à 0% pour une puissance d'excitation $3.33P_{th} = 997\text{ kW.cm}^{-2}$ qui est la valeur la plus élevée avec notre dispositif expérimental.

Les franges d'interférence sont visibles sur les figures III–15.c) et d) en dépit du filtrage spatial mais ne perturbent pas l'analyse et l'interprétation des données.

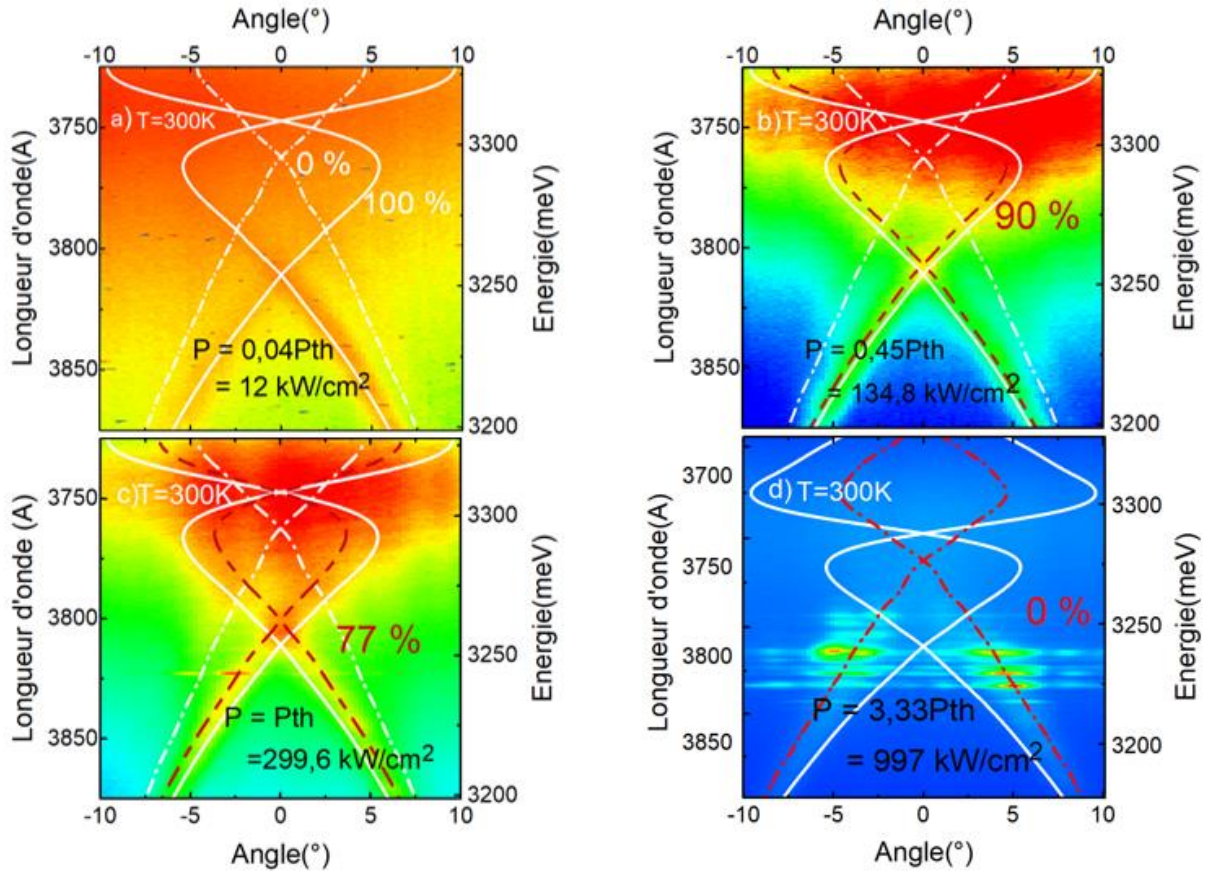


Figure III - 15. Dispersion expérimentales des modes guides polaritoniques à $T=300K$ en fonction de la densité de puissance d'excitation, accompagnées de 3 dispersions simulées. En blanc, les dispersions correspondant aux forces d'oscillateurs excitoniques 100% (blanc traits plein) et 0% (blanc traits pointillés). La dispersion simulée (en rouge) modélise la dispersion expérimentale en appliquant la force d'oscillateur indiquée en rouge. La puissance d'excitation part d'en-dessous le seuil a) puis se rapproche du seuil b) ensuite atteint c) enfin atteint une puissance au-dessus du seuil laser.

Les profils de l'intensité à une énergie fixée, proche de l'énergie de l'émission laser à 300K, sont présentés à la figure III-16 et sont tirées de la courbe de dispersion 'droite' de la figure III-15.

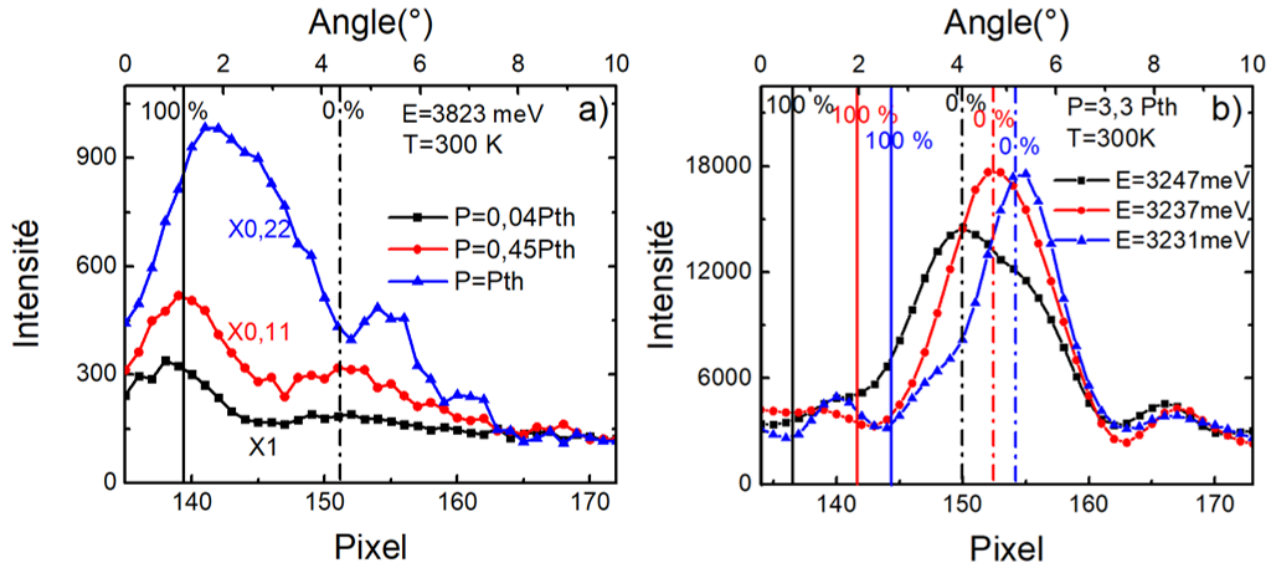


Figure III – 16. Profil d'intensité à une énergie donnée en fonction des angles illustrant la réduction progressive de la force d'oscillateur, au départ d'une valeur de 100% à très basse puissance, puis tombant à 0% au-dessus du seuil laser lorsque la force d'oscillateur excitonique est complètement écrantée à 0%. Les sections d'intensité sous le seuil et au seuil sont représentées en a) et sont prises à l'énergie du mode laser, puis à $3.3P_{th}$ en b) aux énergies des trois modes lasers, visibles sur la figure III – 15.d).

La figure III – 16 montre que, comparativement aux basses températures, au-delà du seuil laser, l'écrantage de la force d'oscillateur est très vite obtenu. L'épaule à la droite de la barre verticale $\eta = 0\%$ est attribuée sans ambiguïté à une frange d'interférence vu que, premièrement, il se situe en dehors du domaine défini par une force d'oscillateur située entre les barres $\eta = 0\%$ et $\eta = 100\%$, deuxièmement, son intensité est plus faible que les modes laser et troisièmement que les pics d'intensité sont espacés périodiquement.

Sur la figure III – 16.b), le pic de plus forte intensité est centré sur la barre $\eta = 0\%$ pour les trois modes lasers de la dispersion 'droite' figure III – 16.d).

Au-delà du seuil laser à 300K, on passe rapidement d'un régime de couplage fort à un régime de couplage faible. Bien que la force d'oscillateur soit rapidement perdue au-delà du seuil laser à 300K, nous ne constatons pas de variations notables de la force d'oscillateur nominale η à 5K et 300K au niveau du seuil laser. On peut en conclure que la valeur de l'écrantage au seuil laser ne permet pas de prévoir l'évolution de l'écrantage au-delà du seuil.

4) Estimation de la densité de Mott et du facteur de qualité – application à l'échantillon ZMH1714-A

Cette étude s'appliquant toujours au guide ZMH1714-A est mise dans un sous-paragraphe à part afin de pouvoir détailler toutes les étapes permettant d'évaluer la densité de porteurs. Tout d'abord, nous définissons une fourchette raisonnable de la densité de porteurs, puis donnons une estimation du temps de vie, nécessaire à l'évaluation de la densité de porteurs. Enfin, à partir de la dispersion de la LPB et des distances de propagations mesurées (cf. chapitre III – 8.1), nous avons pu estimer le facteur de qualité des cavités naturelles (formées par deux fissures naturelles voisines parallèles).

4.1) Estimation de la fourchette de densité de porteurs

Pour évaluer la densité de Mott, il faut pouvoir estimer correctement la densité de porteur en sélectionnant une distance appropriée à la structure du guide. Une fourchette raisonnable de la densité de porteurs est donnée en définissant une borne minimale, notée n_1 , et une borne élevée, notée n_2 . Commençons par définir les grandeurs.

Tout d'abord, les épaisseurs du cladding supérieur de ZnMgO et de la couche active de ZnO sont notées d_{ZnMgO} et d_{ZnO} , qui valent par exemple pour le guide ZMH1714-A respectivement $100nm$ et $50nm$.

Ensuite, on définit la longueur d'absorption de la lumière dans ZnMgO, qui en théorie, désigne la profondeur à laquelle l'intensité est réduite à $1/e$ de sa valeur de surface, par :

$$p_{ZnMgO} = \frac{1}{\alpha_{ZnMgO}} = 90,9 \text{ nm}$$

Où α_{ZnMgO} est le coefficient d'absorption de ZnMgO à la longueur d'onde du laser [118] :

$$\alpha_{ZnMgO} = 1,1 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$$

Cette valeur est déterminée en considérant que $\alpha_{ZnMgO} = \frac{4\pi K(\lambda)}{\lambda}$, avec K la partie imaginaire de l'indice.

De même, on définit la distance d'absorption de la lumière dans ZnO : $p_{ZnO} = \frac{1}{\alpha_{ZnO}} = 62 \text{ nm}$.

Où α_{ZnO} est le coefficient d'absorption de ZnO à la longueur d'onde du laser [116] :

$$\alpha_{ZnO} = 1,61 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$$

On rappelle que le flux φ de photon [$m^{-2} \cdot s^{-1}$] est donné par : $\varphi = \frac{P_{crête}}{\hbar\omega}$ où $P_{crête}$ est la puissance crête en $W \cdot cm^{-2}$.

Comme expliqué précédemment au chapitre 2, en régime stationnaire, $n = G\tau$ et l'évolution du nombre de photoporteurs varie suivant la loi :

$$\frac{dn}{dt} = G - \frac{n}{\tau_r} - \frac{n}{\tau_{nr}} = G - \frac{n}{\tau}$$

Où G le terme de génération qui regroupe deux processus, τ_r et τ_{nr} sont respectivement les temps de vie radiatif et non-radiatif. En physique statistique, la densité de porteur d'une couche excitée en surface est :

$$n = \frac{P_{crête} \tau}{\hbar\omega d}$$

Pour nos guides formés d'un cladding supérieur recouvrant une couche active, la densité de porteurs n dans la couche active est calculée en divisant le flux par la distance appropriée (suivant la borne d_{ZnO} , p_{ZnO} ou $d_{ZnO} + d_{ZnMgO}$), puis en le multipliant par $\tau_{porteurs}$, la durée de vie des porteurs en négligeant les recombinaisons radiatives dans ZnMgO, puis multipliée par un coefficient d'absorption des porteurs, déterminé selon deux modèles schématisés figure III-17.

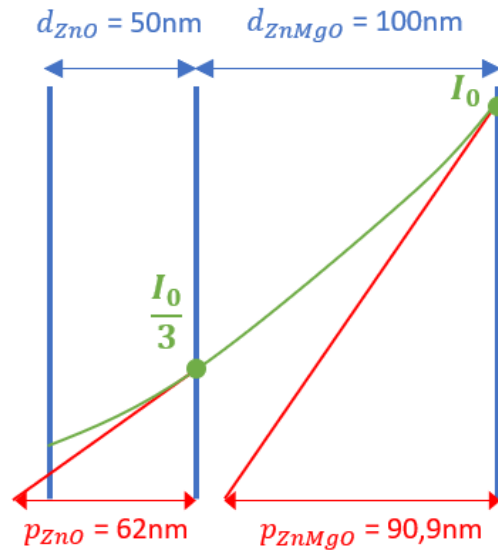


Figure III – 17. Schéma de principe A à l'échelle dans l'exemple du guide ZMH1714-A- présentant les grandeurs intervenant dans le calcul de la densité de porteurs. En bleu, les épaisseurs de ZnMgO et de ZnO. En rouge, leurs distances d'absorption. En vert, l'évolution schématisée de l'intensité en vert selon le premier modèle avec une intensité exponentielle décroissante dans ZnMgO, ajoutant un facteur $\frac{1}{3}$ sur l'intensité.

Soit on calcule la densité de porteurs n_1 directement injectés dans ZnO, en considérant que seule la partie non-absorbée dans ZnMgO se retrouve dans ZnO avec une intensité décroissante exponentielle dans ZnMgO ; les processus de diffusion sont négligés. Entre les distances d_{ZnO} et p_{ZnO} , c'est la plus grande des deux qui intervient dans le calcul d'après Klingshirn [68]. Ces deux distances sont résumées par une grandeur notée D . L'expression de n_1 est propre à chaque guide.

$$n_1 = \varphi \tau_{ZnO} e^{-\frac{d_{ZnMgO}}{p_{ZnMgO}}} = \frac{P_{crête} \tau_{ZnO} e^{-\alpha_{ZnMgO} \cdot d_{ZnMgO}}}{\hbar\omega D}$$

Soit on calcule la densité de porteurs injectés dans ZnMgO, toujours en négligeant les processus de diffusion. Tout ce qui est absorbé dans ZnMgO se retrouve dans ZnO ; la densité de porteurs calculée à la surface du ZnMgO est reprise comme la densité de porteurs injectée à l'interface ZnMgO/ZnO. On obtient alors n_2 , une estimation haute de la densité de porteur dans ZnO. Ici la distance appropriée est l'épaisseur combinée ; quel que soit le guide $D = d_{ZnMgO} + d_{ZnO}$.

$$n_2 = \varphi \tau_{\text{porteurs}} \alpha_{\text{ZnO}} = \frac{P_{\text{crête}}}{\hbar \omega} \tau \alpha_{\text{ZnO}} = \frac{P_{\text{crête}} \tau_{\text{ZnO}}}{\hbar \omega (d_{\text{ZnMgO}} + d_{\text{ZnO}})}$$

La densité maximale qui pourrait être atteinte dans la couche de ZnO ne peut pas excéder $3n_1 > n_2$, ce qui revient à considérer que le ZnMgO est transparent, ce qui n'est pas raisonnable.

Le tableau III–1 regroupe les résultats des simulations des dispersions expérimentales du ZMH1714-A réalisées pour différentes puissances d'excitation nominales en précisant la puissance crête correspondante en $kW.cm^{-2}$ et le pourcentage de force d'oscillateur excitonique nominal η correspondant. La densité de porteur a aussi été calculée pour les puissances jusqu'au seuil laser.

Pour cet échantillon à cladding supérieur épais de 100nm et épaisseur de couche active moyenne de 50nm, n_1 correspond à une estimation basse de la densité de porteur dans ZnO et n_2 à une estimation haute.

4.2) Estimation du temps de vie – mesure de TRPL à 5K

Le temps de vie des porteurs dans ZnO et ZnMgO du guide ZMH1714-A a été étudié par des mesures de TRPL à 5K.

Sur la figure III–18, l'intensité en fonction du temps de vie (en bleu) est modélisée par une bi-exponentielle (en rouge) de type :

$$y = A_1 e^{-\frac{(x-t_0)}{T_1}} + A_2 e^{-\frac{(x-t_0)}{T_2}}$$

Avec A_1 et A_2 des paramètres d'ajustements dépendants des niveaux d'intensité, t_0 le temps au maximum d'intensité, et deux temps de vie des porteurs, un court $T_1 = 33ps$ et un long $T_2 = 834ps$, attribués respectivement au ZnO et au ZnMgO. Des mesures de TRPL centrées sur le pic de ZnMgO donne un temps de vie autour de 700ps.

La valeur des autres paramètres est présentée dans le tableau de la figure III–18. Le coefficient de corrélation d'une valeur de 0,9986.

La variation du nombre de porteurs n' dans ZnMgO est donnée par :

$$\frac{dn'}{dt} = -\frac{n'}{T_{2R}} - \frac{n'}{T_{2NR}} = -\frac{n'}{T_2}$$

$$n'(t) = n'(0) e^{-\frac{t}{T_2}}$$

Avec T_2 le temps de vie des porteurs dans ZnMgO, séparé en composante radiative T_{2R} et non-radiative T_{2NR} . Avec $n'(0)$ le nombre de porteur créé dans ZnMgO au moment de l'excitation.

La variation du nombre de porteurs n dans ZnO est donnée par :

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{n}{T_{1R}} - \frac{n}{T_{1NR}} + \chi \frac{n'}{T_1} = -\frac{n}{T_1} + \chi \frac{n'}{T_1} = -\frac{n}{T_1} + \chi n'(0) e^{-\frac{t}{T_2}}$$

Avec T_1 le temps de vie des porteurs dans ZnO, séparé en composante radiative T_{1R} et non-radiative T_{1NR} . Le coefficient χ permet de tenir compte du transfert de porteurs du ZnMgO au ZnO par recombinaison. Le terme $\chi \frac{n'}{T_1}$ correspond alors au nombre de porteurs supplémentaires à considérer dans le ZnO.

Pour résoudre cette dernière équation, on considère une solution particulière de type :

$$n(t) = A_2 e^{-\frac{t}{T_2}}$$

$$A_2 = \chi \frac{T_2}{T_2 - T_1} n'(0) = \chi \frac{T_2}{T_2 - T_1} \frac{I_0 t_{pulse}}{\hbar \omega d_{ZnMgO}}$$

Comme expliqué au sous-paragraphe précédent, $d_{ZnMgO} = 100nm > \frac{1}{\alpha_{ZnMgO}} = 90,9nm$, d'où le choix de d_{ZnMgO} . Ainsi la variation temporelle du nombre de porteurs dans ZnO est exprimée par :

$$n(t) = A_1 e^{-\frac{t}{T_1}} + \chi \frac{T_2}{T_2 - T_1} n'(0) e^{-\frac{t}{T_2}}$$

$$n(t = 0^+) = A_1 + \chi \frac{T_2}{T_2 - T_1} n'(0)$$

Notons que lorsque χ tend vers 0, on a nécessairement $A_1 = n(0)$ tel que défini ci-dessus.

De même dans ZnO, comme $d_{ZnO} = 50nm < \frac{1}{\alpha_{ZnO}} = 62nm$, on a sans tenir compte du transfert :

$$A_1 = n(0) = \frac{I_0 t_{pulse}}{3\hbar\omega \frac{1}{\alpha_{ZnO}}}$$

Où l'explication du facteur $\frac{1}{3}$ est donnée au sous-paragraphe précédent.

$$\frac{n'(0)}{n(0)} = \frac{3 \frac{1}{\alpha_{ZnO}}}{d_{ZnMgO}} = 1,86$$

Ainsi, initialement, le nombre de porteurs créés dans ZnMgO est 1,86 fois plus important que dans ZnO. Ensuite, parmi les porteurs créés dans ZnMgO, une fraction des porteurs se recombine :

$$\frac{A_2}{A_1} = \chi \frac{T_2}{T_2 - T_1} \frac{n'(0)}{n(0)} \rightarrow \chi = 0,10$$

Donc 10% des porteurs créés dans ZnMgO sont transmis au ZnO. Le nombre de porteurs supplémentaires dans ZnO est donc de :

$$\frac{n'(0)}{n(0)} \chi = 1,86 \cdot 0,10 = 0,186$$

Finalement, grâce à la recombinaison, le nombre de porteurs total dans ZnO est 18,6% plus élevé.

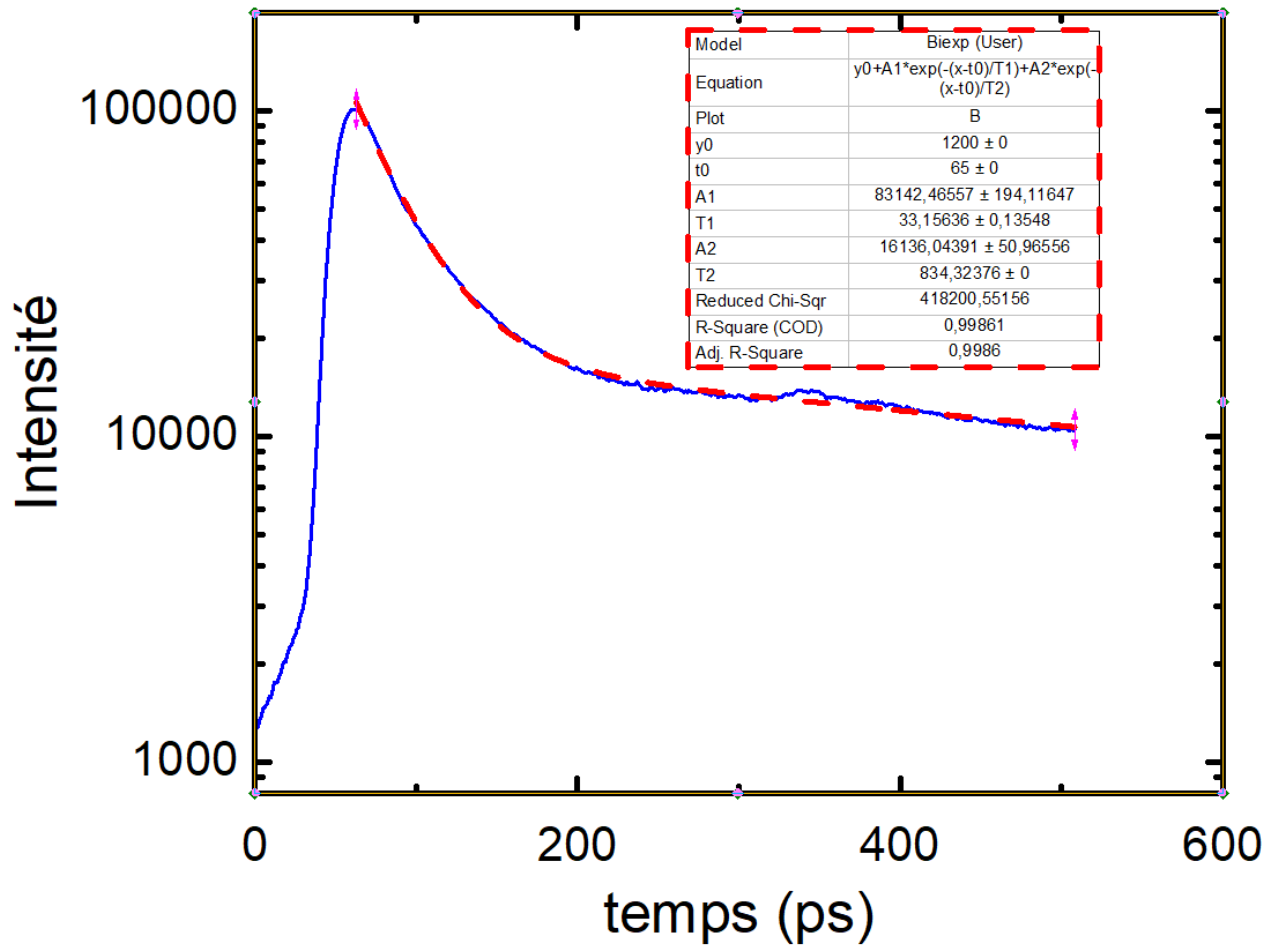


Figure III – 18. Mesure de TRPL guide ZMH1714-A à 5K à haute puissance.

Le rapport équivalent en considérant n_2 - estimation haute de la densité de porteurs, définie au sous-chapitre précédent pour laquelle était considérée une seule couche équivalente – est donnée par :

$$\frac{n_2(0)}{n(0)} = \frac{3p_{ZnO}}{d_{ZnMgO} + d_{ZnO}} = 1,24$$

Les deux valeurs $1,186.n(0)$ et $1,24.n(0)$ étant très proches à quelques pourcents près, nous avons démontré que la densité de porteurs n_2 est une limite haute pertinente de la densité de porteurs en tenant compte des porteurs supplémentaires transférés par ZnMgO au ZnO.

4.3) Evaluation des densités de porteurs

Tableau III – 1. Guide ZMH1714-A. Résumé des forces d'oscillateur excitonique nominales η à différentes puissances d'excitation nominales et crêtes. Les densités de porteurs n_1 et n_2 peuvent être calculées jusqu'au seuil laser. En rouge, l'estimation de la densité de porteur au seuil. En bleu, les densités de porteurs à la puissance maximales si la dynamique des porteurs n'était pas modifiée au-delà du seuil laser.

T=5K	0,09P_{th}	P_{th}	3P_{th}	22P_{th}
$\eta(\%)$	100	80	64	≤ 30
P(kW.cm ⁻²)	4,0	44,5	133,5	979
$n_1(\text{cm}^{-3})$	$9,6 \cdot 10^{15}$	$1,1 \cdot 10^{17}$	$3,3 \cdot 10^{17}$	$2,4 \cdot 10^{18}$
$n_2(\text{cm}^{-3})$	$1,2 \cdot 10^{16}$	$1,3 \cdot 10^{17}$	$3,9 \cdot 10^{17}$	$2,9 \cdot 10^{18}$
T=300K	0,04P_{th}	0,45P_{th}	P_{th}	3,33P_{th}
$\eta(\%)$	100	90	77	0
P(kW.cm ⁻²)	12,0	134,8	299,6	997,7
$n_1(\text{cm}^{-3})$	$1,7 \cdot 10^{16}$	$1,9 \cdot 10^{17}$	$4,3 \cdot 10^{17}$	$1,4 \cdot 10^{18}$
$n_2(\text{cm}^{-3})$	$2,1 \cdot 10^{16}$	$2,4 \cdot 10^{17}$	$5,4 \cdot 10^{17}$	$1,8 \cdot 10^{18}$

La densité de porteurs à faible puissance d'excitation sert de référence ($\eta = 100\%$) et est comprise à basse température dans une fourchette [$9,6 \cdot 10^{15}$; $1,2 \cdot 10^{16}$] cm^{-3} et à température ambiante [$1,1 \cdot 10^{17}$; $1,3 \cdot 10^{17}$] cm^{-3} , respectivement pour les puissances d'excitation $0,09P_{th}$ à 5K et $0,04P_{th}$ à 300K.

On constate que la densité de porteurs au niveau du seuil laser (en rouge) est multipliée par cinq entre 5K et 300K, en passant de $n_{P_{th}(T=5K)} = 1,3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ à $n_{P_{th}(T=300K)} = 5,4 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$; les forces d'oscillateurs restantes nominales sont respectivement de 80% et de 77%, ce qui indique que l'écrantage est amorcé mais pas suffisamment pour considérer que le régime de laser ne soit plus polaritonique.

Ces résultats sont en accord avec une transition de Mott qui augmente avec la température, ce qui est en accord avec des calculs théoriques prédisant l'augmentation de la densité de Mott avec la température [67]

Les densités en bleu dans le tableau III-1 calculées pour les puissances d'excitation supérieures au seuil sont données à titre indicatif car la dynamique du système change au-dessus du seuil ; ce qui se traduit certainement par une modification de la densité des porteurs.

La valeur maximale atteinte pour la densité de porteurs à 5 K est $n_{Mott} = 2,9 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$; que l'on peut définir comme une densité de Mott puisque $\eta \approx 0\%$. Il s'agit d'une estimation maximale car au-dessus du seuil, les temps de vie sont surestimés. Les densités à 5K sont calculées en prenant le temps de vie tiré de la mesure par TRPL à 5K, égale à 33ps.

En revanche, pour la densité de porteur calculés à la puissance maximale mesurée à 300K, $n_{Mott} = 1,8 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, calculée en prenant un temps de vie égal à 20ps.

Ce temps de vie n'a pas été mesuré par TRPL sur le guide ZMH1714, mais par une mesure de TRCL [17] réalisée sur un autre guide, le ZMH1715, de structure similaire au ZMH1714-A mise à part pour l'épaisseur de couche active de 80 nm au lieu de 50 nm. De même qu'à 5K, cette dernière densité est une borne supérieure.

Aux puissances d'excitation maximales à 5K et 300K, en gardant ces mêmes temps de vie, les densités de porteurs calculées, représentant des bornes supérieures, sont de l'ordre de 10^{18} cm^{-3} , typiquement celles calculées à la transition de Mott dans la littérature, ce qui est cohérent avec $\eta \approx 0\%$.

Comme pour le ZMH1714-A, les énergies excitoniques des trois autres guides étudiés en montage de Fourier - ZMH1715, ZMH1716 et ZMH1817-B - seront déterminées au paragraphe suivant en confrontant les spectres de réflectivité (en bleu) et de photoluminescence (en noir), permettant de repérer facilement l'énergie de l'exciton libre A.

4.4) Estimation du facteur de qualité de cavités naturelles (non-gravées)

A partir de la courbure de la dispersion de la LPB du guide ZMH1714-A à 5K, on détermine la vitesse de groupe v_g :

$$v_g = \frac{d\omega}{d\beta} = \frac{1}{\hbar} \frac{dE}{d\beta}$$

Le temps de vie polaritonique est ensuite déterminé à partir des distances d de propagation des polaritons. Ces dernières sont mesurées en étudiant la diminution du signal de luminescence extrait par des fissures successives (cf. figure III – 30 au paragraphe III - 8.1). Pour obtenir un facteur de qualité Q représentatif de l'ensemble des cavités, il faut considérer la moyenne des distances de propagation mesurées. Pour le guide ZMH1714-A à 5K, cette moyenne s'élève à $15,7\mu\text{m}$.

$$\tau_{pol} = \frac{\text{distance de propagation}}{\text{vitesse de groupe}} = \frac{d}{v_g} = \frac{15,7 \cdot 10^{-6}}{2,7 \cdot 10^7} = 0,6 \text{ ps}$$

L'inverse du temps de vie polaritonique peut être écrit comme une somme du poids photonique et excitonique divisés par leur temps de vie respectifs. Le temps de vie des excitons $\tau_X = 33\text{ps}$ à 5K est connu grâce à aux mesures de TRPL.

$$\frac{1}{\tau_{pol}(\beta)} = \frac{|P|^2(\beta)}{\tau_{ph}} + \frac{|X|^2(\beta)}{\tau_X}$$

Pour rappel, les poids excitonique $|X|^2(\beta)$ et photonique $|P|^2(\beta)$ des polaritons pour une valeur de β sont donnés par le module au carré des coefficients d'Hopfield. Ceux-ci sont calculés à $\beta = 32,2\mu\text{m}$ et pour un Rabi de $\Omega = 153\text{meV}$ (tiré de La dispersion du ZMH1714-A à 5K, voir figure I-18 paragraphe I-3.2). L'énergie des excitons $E_X(\beta) = 3383\text{meV}$ est constante et correspond à la moyenne des énergies excitoniques de X_A et X_B . L'énergie de la branche polaritonique basse $E_{LPB}(\beta)$ est variable.

$$|X_{k_{\parallel}}(\delta)|^2 = \left| \frac{\Omega}{\sqrt{\Omega^2 + 4(E_{LPB}(\beta) - E_X(\beta))^2}} \right|^2 = 0,18$$

$$|P_{k_{\parallel}}(\delta)|^2 = \left| \frac{2(E_{LPB}(\beta) - E_X(\beta))}{\sqrt{\Omega^2 + 4(E_{LPB}(\beta) - E_X(\beta))^2}} \right|^2 = 0,82$$

Ces deux valeurs sont repérées sur la figure ci-dessous en pointillés. La valeur de $\beta = 32,2\mu\text{m}$ choisie pour estimer la distance de propagation des polaritons est prise dans la zone où le poids photonique (en rouge) est élevé. En effet, en se rapprochant de la résonance excitonique, le poids excitonique (en bleu) augmente et l'absorption du matériau augmente, ce qui diminue la distance de propagation.

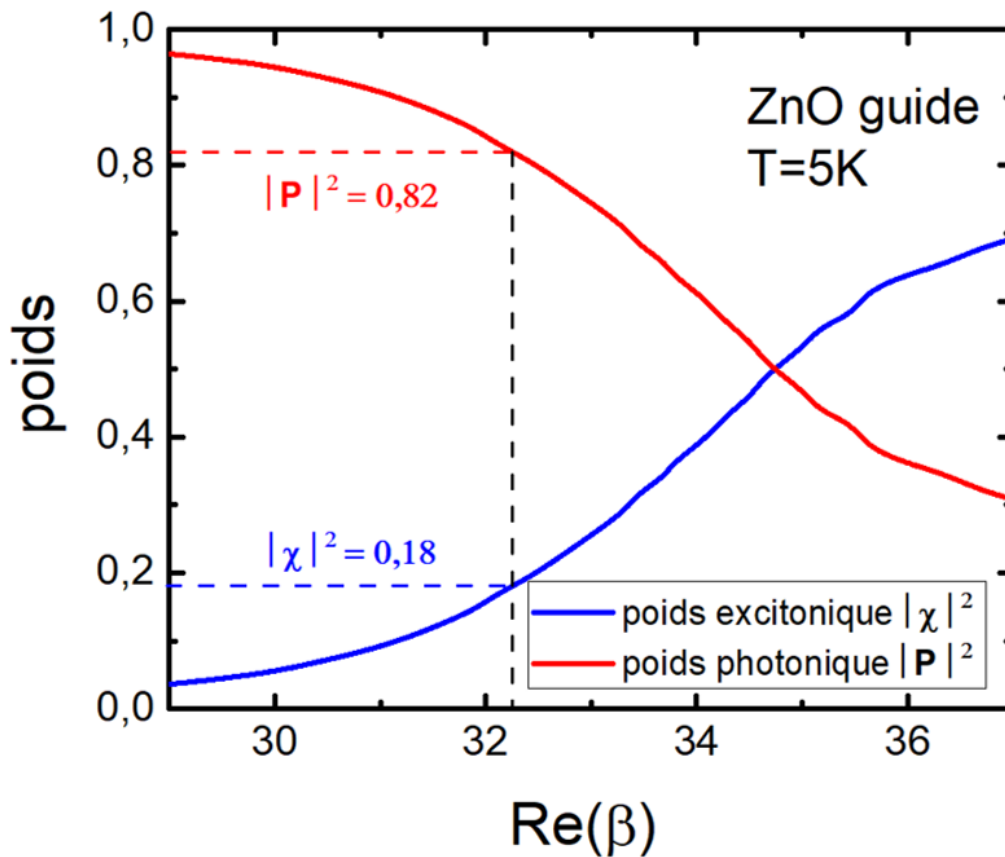


Figure III - 19. Poids excitonique et photonique déterminés à partir des coefficients d'Hopfield d'un guide ZnO de 50 nm d'épaisseur en fonction de la partie réelle de la constante de propagation β , pour des énergies inférieures aux énergies excitoniques. En pointillés, les poids photonique $P_{k_{\parallel}}(\delta) = 0,18$ et excitonique $X_{k_{\parallel}}(\delta) = 0,82$ repérés à $\beta = 32,2 \mu\text{m}$.

$$\tau_{ph} = \frac{|X|^2(32,2)}{\frac{1}{\tau_{pol}(32,2)} - \frac{|P|^2(32,2)}{\tau_X}} = 0,5ps$$

Le facteur de qualité peut ensuite être calculé en multipliant τ_{ph} par la pulsation ω (rappel $\lambda_{femto} = 266nm$) :

$$Q = \omega\tau_{ph} = 3496$$

Plus la distance de propagation est élevée, plus le temps de vie polaritonique l'est aussi, de même pour le facteur de qualité. Si l'on prend la distance de propagation la plus grande mesurée à 5K égale à $19,2\mu m$, on obtient un facteur de qualité supérieur Q_{sup} , décrivant les meilleures cavités du ZMH1714-A.

$$Q_{sup} = 4098$$

Cette valeur est très proche de celle trouvée par Ciers [49] de 4900 pour des guides d'onde à base de puits quantiques de GaN.

Il serait intéressant de réaliser une étude de l'évolution de la distance de propagation des polaritons (et donc du facteur de qualité) en fonction de la température.

5) Autres guides étudiés en imagerie de Fourier

Dans ce sous-paragraphe, après une courte étude sur le Rabi en fonction de l'épaisseur, les guides ZMH1716, ZMH1715 et ZMH1817-B sont étudiés en Fourier en suivant la même démarche que pour ZMH1714-A : d'abord, on réalise les spectres de μ PL et de μ R (donnés en annexe F) afin de positionner les énergies excitoniques, puis on étudie l'écrantage en fonction de la puissance d'injection et enfin on évalue la densité de porteurs. Il est important de noter qu'à défaut d'avoir pu réaliser des mesures de TRPL pour chaque guide à 5K et 300K, les densités de porteurs sont calculées à 5K en se reprenant la mesure de TRPL du ZMH1714-A (33ps) et à 300K en reprenant la mesure de TRCL du ZMH1715 (20ps).

5.1) Etude du Rabi en fonction de l'épaisseur des guides ZnO

Les guides d'onde sont formés d'une couche active de ZnO d'épaisseur variable (30, 50, 80 ou 100 nm, voir tableau III-6) encadrée par deux couches de confinement de $\text{Zn}_{0,72}\text{Mg}_{0,28}\text{O}$, d'épaisseurs 50 ou 100 nm pour le cladding supérieur et 500 ou 1000 nm pour le cladding inférieur. La structure des guides d'onde dont les dispersions en montage de Fourier ont été étudiées est détaillée dans le tableau III-2. L'ordre et la nomenclature des échantillons indiquent l'ordre de fabrication.

Tableau III – 2. Comparaison des Rabi à 5K et 300K pour les guides ZnO en fonction de l'épaisseur de couche active. L'étude de la dispersion de l'émission lumineuse en montage de Fourier n'a pas pu être réalisée à 300K pour les guides ZMH1715 et ZMH1716 par manque de signal de luminescence.

Nom échantillon	Epaisseurs (nm) ZnMgO/ZnO/ZnMgO	Rabi à T=5K (meV)	Rabi à T=300K (meV)
ZMH1714-A	100/50/1000	154	147
ZMH1715	100/80/1000	163	156
ZMH1716	100/30/1000	127	118
Massif	-	176	170

L'échantillon ZMH1714-A avec sa couche active de 50 nm conduit à un mode guidé monomode, plus facile à analyser dans un premier temps qu'un guidage multimode lorsque la couche active est plus épaisse à 80 nm comme c'est le cas pour l'échantillon ZMH1715.

Au contraire, pour une épaisseur de couche active plus mince à 30 nm, le Rabi est moins élevé en raison du débordement accru du champ électrique dans les claddings. L'étude du Rabi en fonction de l'épaisseur de ZnO (nm) est présentée figure III-20. Les Rabi sont estimés par des simulations des dispersions expérimentales à très basse puissances de telle sorte que la force d'oscillateur excitonique ne soit pas écrantée.

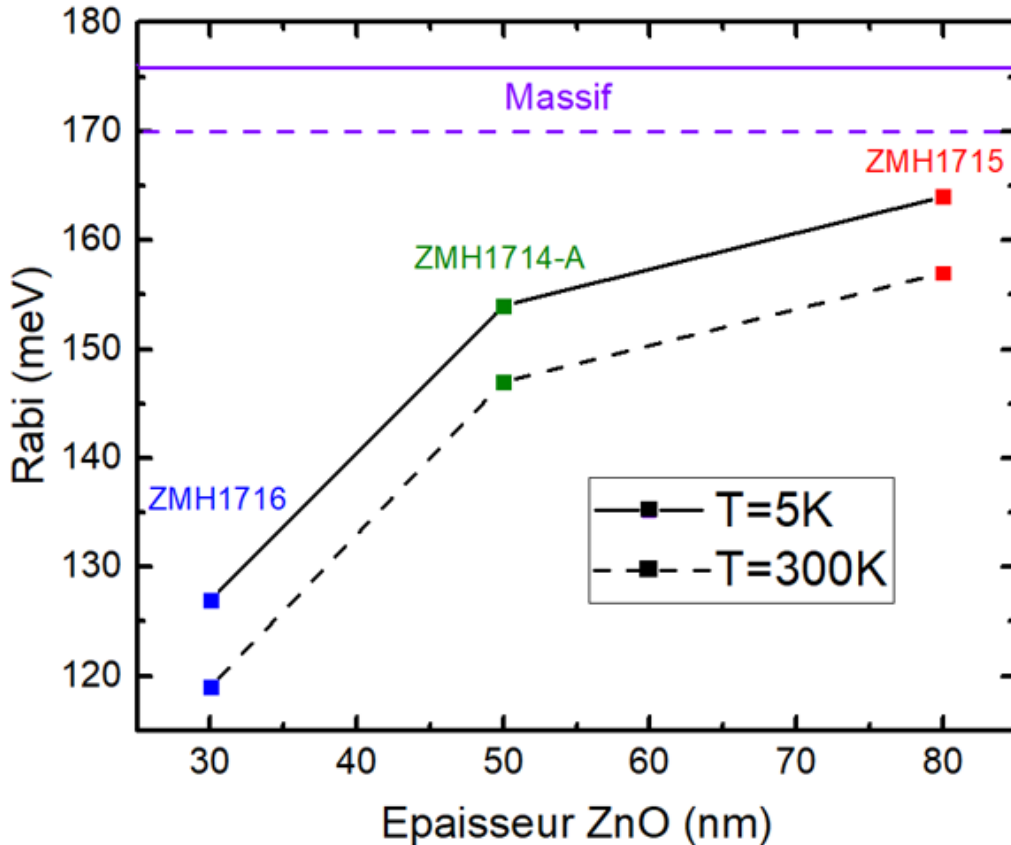


Figure III – 20. Evolution du couplage de Rabi (meV) en fonction de l'épaisseur de la couche active de ZnO (nm), issue des simulations des courbes de dispersions expérimentales, en représentation $E = f(\beta)$, mesurées à la référence très basse puissance.

Le Rabi augmente avec l'épaisseur de la couche active du guide d'onde. Plus la couche active est épaisse, meilleur est le confinement du champ électrique dans la zone active comprenant les excitons. En augmentant l'épaisseur de couche active, on tend progressivement vers le Rabi du massif, donné en violet à 5K en trait plein et à 300K en pointillés, tiré des dispersions modélisées pour le massif au chapitre 1.

5.2) Etude du guide ZMH1716

Le guide ZMH1716 présente un cladding supérieur de 100nm d'épaisseur et une couche active de faible épaisseur de 30nm. L'extraction du mode guidé est réalisée par des réseaux.

5.2.a) Spectres de μ PL et de μ R et étude de l'inhomogénéité des énergies excitoniques

L'objectif de ce paragraphe est de présenter le spectre de μ PL et μ R du guide ZMH1716 (deux morceaux d'un même échantillon) et de montrer l'inhomogénéité de la contrainte à travers le guide. Les spectres de μ PL et de μ R sont donnés en annexe F.1) Pour résumer, au sein d'un même réseau d'extraction, l'énergie

de l'exciton A ne varie pas. Cependant, cette énergie peut varier de façon significative dans la zone entre deux réseaux d'extraction ou lorsqu'on passe d'un morceau d'échantillon à l'autre.

5.2.b) Etude de l'écrantage en fonction de la puissance d'injection

La figure III–21 présente la dispersion de l'énergie du mode guidé polaritonique en fonction de l'angle d'émission pour l'intensité d'excitation minimale. Celle-ci sert de référence comme force d'oscillateur non écrantée ($\eta = 100\%$) et correspond à la courbe de dispersion simulée tracée en trait blanc. On suppose alors que la force d'oscillateur excitonique n'a pas encore été écrantée compte tenu de la faible puissance d'excitation. La relation de dispersion complètement écrantée ($\eta = 0\%$) dans le cas où la force d'oscillateur excitonique est au voisinage de la densité de Mott est tracée en pointillés blanc.

Les énergies excitoniques de A et B utilisées dans les calculs sont respectivement égales à 3388meV et 3394meV, l'élargissement Γ est pris égal à 5 meV et le coefficient d'ajustement C relatif à l'indice de ZnO est égal à 1.15. Comme pour le ZMH1714-A, la valeur non-écrantée des forces d'oscillateur excitoniques sont fixées quelles que soient la température et la puissance d'excitation à : $F_{osc(X_A)} = 150\,000\text{ meV}^2$ et $F_{osc(X_B)} = 250\,000\text{ meV}^2$ [47].

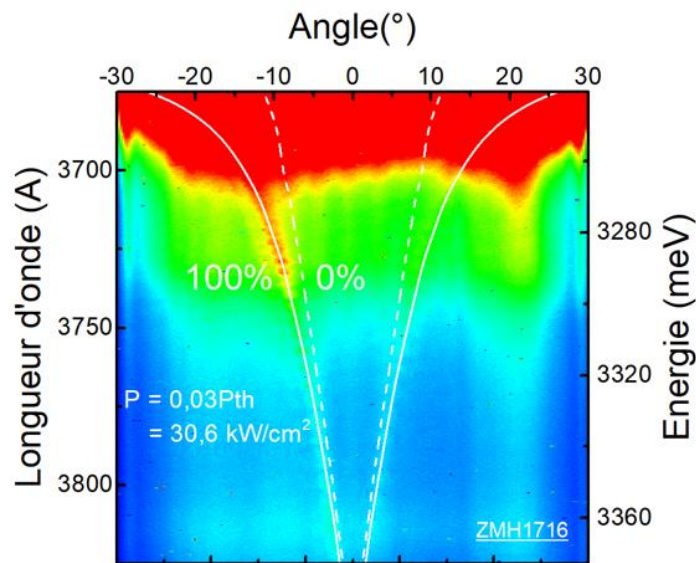


Figure III -21. Dispersion expérimentale des modes guidés polaritoniques du guide ZMH1716 à $T=5K$ à très basse puissance servant de référence non-écrantée, c'est-à-dire 100% de force d'oscillateur (traits plein blancs). Puis, la dispersion écrantée 0% de force d'oscillateur (blanc traits pointillés) est obtenue en retirant 60meV à l'énergie du gap.

Tel qu'illustré sur les figures III–22.a) et figures III–22.b), lorsque la densité d'excitation augmente, les courbes de dispersions se déplacent non-linéairement vers la courbe à $\eta = 0\%$. La courbe en pointillés rouge permettant de rendre compte de la dispersion expérimentale passe de $\eta = 65\%$ lorsque $P = P_{th} = 950\text{ kW.cm}^{-2}$ à $\eta = 60\%$ lorsque $P = 2.3P_{th} = 2175\text{ kW.cm}^{-2}$. Contrairement au guide ZMH1714-A, la transition de Mott n'a pas été atteinte.

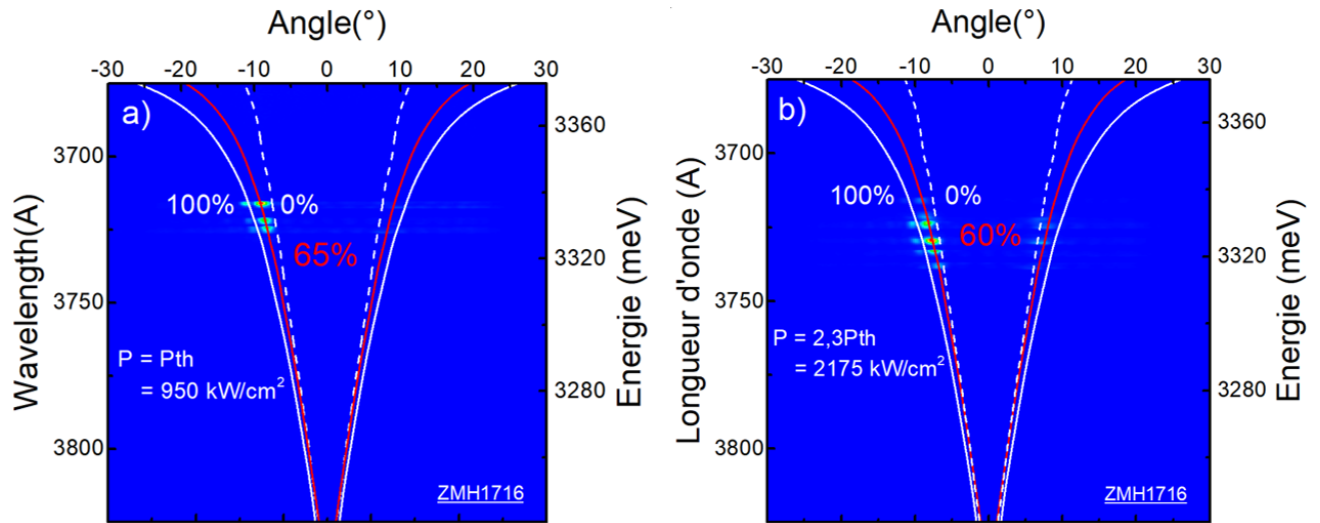


Figure III -22. Dispersions expérimentales des modes guides polaritoniques du guide ZMH1716 à $T=5K$ en fonction de la densité de puissance d'excitation, accompagnées de 3 dispersions simulées. En blanc, les dispersions correspondant aux forces d'oscillateurs 100% (blanc traits pleins) et 0% (blanc traits pointillés). La dispersion simulée (en rouge) modélise la dispersion expérimentale en appliquant la force d'oscillateur indiquée en rouge, laquelle décroît lorsque l'intensité d'excitation augmente. La puissance d'excitation est celle au seuil laser a) puis la puissance maximale atteinte au-dessus du seuil laser b).

5.2.c) Evaluation de la densité de porteurs

Le tableau III- 3 regroupe les résultats des simulations des dispersions expérimentales du ZMH1716 à 5K et à 300K. A défaut d'avoir réalisé des mesures de TRPL sur le guide ZMH1716 à 5K et 300K, les densités de porteurs sont calculées à 5K en se reprenant la mesure de TRPL du ZMH1714-A (33ps) et à 300K en reprenant la mesure de TRCL du ZMH1715 (20ps).

La densité de porteur estimée au seuil à $3,2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ est plus élevée qu'elle ne l'était pour le ZMH1714-A (près d'un facteur 20) et l'écrantage au seuil laser est légèrement plus avancé ($\eta = 70\%$) que par rapport au ZMH1714-A ($\eta = 80\%$). A noter que cela n'est pas dû à l'épaisseur plus fine de la couche active (30nm contre 50nm) ; la densité est indépendante de l'épaisseur pour des couches actives inférieures à 62nm (cf. paragraphe III.4.b)

La force d'oscillateur excitonique est mieux conservée au-delà du seuil laser pour ZMH1716. Aux puissances maximales, $\eta = 60\%$ (2175 kW.cm^{-2}) pour ZMH1716 contre $\eta < 30\% \approx 0\%$ (979 kW.cm^{-2}) pour ZMH1714.

Tableau III - 3. Guide ZMH1716 à 5K. Résumé des forces d'oscillateur excitonique nominales η à différentes puissances d'excitation nominales et crêtes. En rouge, l'estimation de la densité de porteur au seuil

T=5K	$0,03P_{th}$	P_{th}	$1,6P_{th}$	$2,3P_{th}$
$\eta(\%)$	100	70	65	60
$P(kW.cm^{-2})$	30,6	949,7	1532	2175
$n_1(cm^{-3})$	$7,3.10^{16}$	$2,3.10^{18}$	$3,6.10^{18}$	$5,2.10^{18}$
$n_2(cm^{-3})$	$1,0.10^{17}$	$3,2.10^{18}$	$5,0.10^{18}$	$7,4.10^{18}$

La dispersion servant de référence non-écrantée ($\eta = 100\%$) est réalisée à plus haute puissance surfacique ($30,6 kW.cm^{-2}$) par rapport au ZMH1714-A ($4,0 kW.cm^{-2}$). Or pour ce dernier, l'écrantage était amorcé ($\eta = 80\%$) pour une puissance surfacique de $44,5 kW.cm^{-2}$. On peut alors douter de la valeur de η à quelques pourcents près à $0,03P_{th}$. Néanmoins, à une puissance donnée, le pourcentage de η reste vrai en relatif. Dans le cas pessimiste, si l'on considère qu'à la puissance de référence, le pourcentage de η n'est en fait que de 80%, alors au seuil $\eta = 54,5\%$ (contre 70%) et à $2.3P_{th}$ $\eta = 46\%$ (contre 60%).

La puissance de référence est plus élevée pour ZMH1716 car le spot d'excitation a été focalisé de façon plus optimale que par rapport au ZMH1714-A. Pour ce dernier, le signal de luminescence est plus intense et donc l'estimation du spot d'excitation aboutit à une taille de spot plus élevée et donc à une puissance de référence plus faible. Concernant l'effet des fissures sur la détermination de la surface du spot, se référer au paragraphe II.2.5.d).

Nous remarquons que $n_{P_{th},5K}(ZMH1716) = 3,2.10^{18} cm^{-3} \approx 22.n_{P_{th},5K}(ZMH1714 - A) = 2,9.10^{18} cm^{-3}$. Dans le cas du ZMH1714-A, le processus d'écrantage arrive à son terme ($\eta = 30\% \approx 0\%$) alors que pour ZMH1716, le processus d'écrantage n'est pas aussi avancé ($\eta = 60\%$).

Bien que la densité au seuil laser du ZMH1716 soit estimée un ordre de grandeur au-dessus du ZMH1714-A, on observe des valeurs de η proches. On peut expliquer cet écart des densités de porteurs au seuil laser de trois façons.

Premièrement, en considérant un début l'écrantage à la puissance référence de ZMH1716 comme expliqué précédemment. Deuxièmement, en considérant que le spot d'excitation du ZMH1714-A est peut-être surestimé à cause de son signal de luminescence important et de l'espacement de ses fissures (en moyenne une dizaine de μm contre une vingtaine pour ZMH1716). Troisièmement, en rappelant que la valeur de τ_{ZnO} peut différer de 33ps. Le temps de vie non-radiatif de ZnO peut être plus faible du fait que la couche active est plus fine et que les recombinaisons de surface constituent les fuites de porteurs se recombinant non radiativement les plus importantes.

5.3) Etude du guide ZMH1715

Le guide ZMH1715 présente toujours un cladding supérieur de 100nm mais une couche active plus épaisse égale à 80nm. L'extraction du mode guidé est réalisée par des réseaux. Attention, l'étude de la réduction de la force d'oscillateur n'a pas pu être menée comme pour les guides ZMH1714-A et ZMH1716 car la faible intensité du signal de la luminescence ne permet pas de fixer la référence à une basse puissance comparable à deux autres guides. Il est alors impossible de s'assurer du non-écrantage de la force d'oscillateur à la dispersion choisie comme référence.

5.3.a) Spectre de μ PL et de μ R

Les spectres de μ PL et de μ R du ZMH1715 sont donnés en annexe F.2). L'exciton A est repéré à 3385meV, l'exciton B à 3391meV et l'exciton C à 3425meV, soit 1 à 2 meV plus haut que les excitons du ZMH1714-A.

5.3.b) Etude de l'écrantage en fonction de la puissance d'injection

Contrairement aux guides ZMH1714-A et ZMH1716 où la référence 100% de force d'oscillateur est fixée à très basse puissance, ce qui permet de s'assurer du non-écrantage, ici dans le cas du guide ZMH1715 où l'intensité du signal de luminescence est plus faible, on choisit une référence la moins écrantée possible dès lors que le signal devient exploitable. On ne peut donc pas garantir le non-écrantage de la force d'oscillateur de notre référence. L'étude de la réduction de la force d'oscillateur est donc moins fiable que pour les guides ZMH1714-A et ZMH1716 mais reste exploitable.

La méthode de suivi de l'écrantage de la force d'oscillateur est différente. La référence est prise à plus haute puissance lorsque la dispersion est bien visible, en fait à haute puissance à $1678 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$, puis on s'intéresse aux dispersions à plus basses puissances en essayant de deviner si la dispersion s'est déplacée. Cela n'est pas évident car le signal de luminescence ne laisse deviner que des bouts de dispersion.

Cependant en les superposant, elles semblent dessiner la même dispersion qu'à haute puissance. Le fait qu'aucun déplacement de la dispersion ne soit détecté en diminuant la puissance d'excitation impliquerait une absence de changement de la force d'oscillateur des basses puissances jusqu'à $1678 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$.

Les énergies excitoniques de A et B utilisées dans les calculs sont respectivement égales à 3373meV et 3379meV, l'élargissement Γ est pris égal à 5 meV et le coefficient d'ajustement C est égal à 1.06. Comme pour le ZMH1714-A, la valeur non-écrantée des forces d'oscillateur excitoniques sont fixées quelles que soient la température et la puissance d'excitation à : $F_{osc(X_A)} = 150\,000 \text{ meV}^2$ et $F_{osc(X_B)} = 250\,000 \text{ meV}^2$ [47].

Ci-dessus, seule la dispersion à $1678 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ est présentée car les dispersions à plus basse puissance ne sont pas visibles. Quant à la dispersion au seuil laser, ce dernier n'est tout simplement pas détecté.

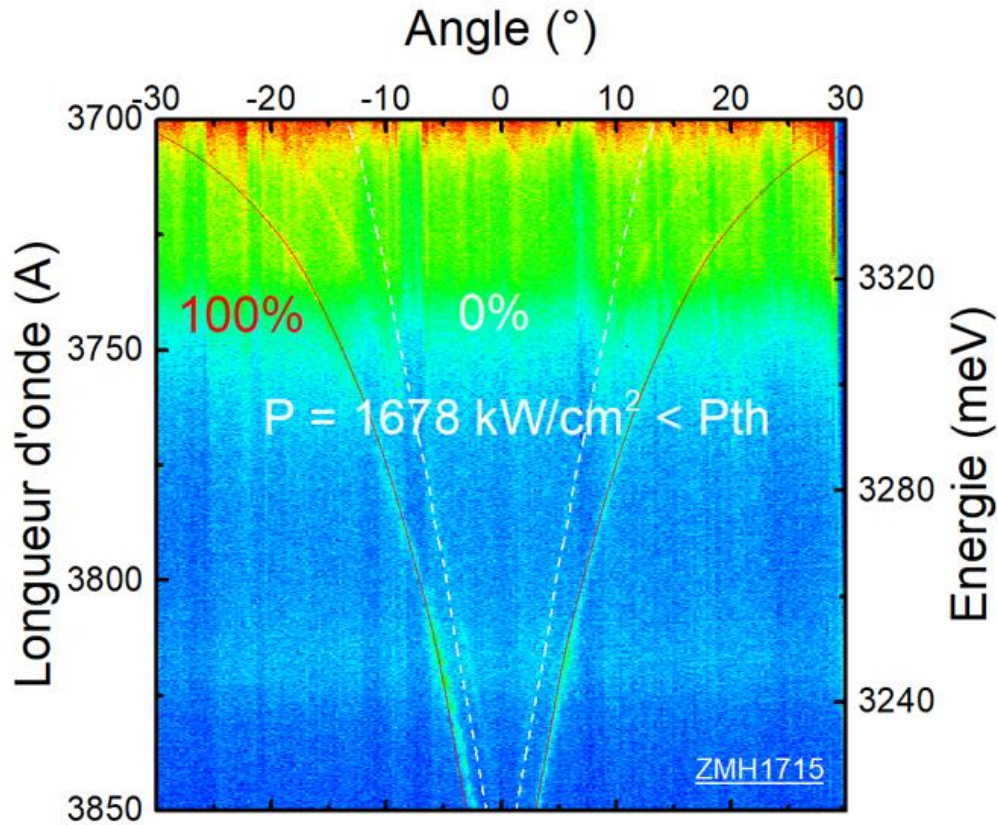


Figure III -23. Dispersion expérimentale des modes guidés polaritoniques du guide ZMH1715 à $T=5\text{K}$, réalisé au maximum de puissance. La dispersion à très basse puissance n'est pas présentée faute de signal ; l'intensité très faible du signal de luminescence laisse deviner des bouts de dispersion et permet de fixer la référence 100% de force d'oscillateur (trait plein rouge), qui modélise également la dispersion expérimentale à la puissance maximale donnée $P = 1678 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$. La dispersion écrantée 0% de force d'oscillateur (blanc traits pointillés) est obtenue en retirant 60meV à l'énergie du gap.

5.3.c) Evaluation des densités de porteurs

Le tableau F – 2 regroupe les résultats des simulations des dispersions expérimentales du ZMH1715 à 5K . La puissance de référence est comprise entre celle des guides précédents ($4,0 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ pour ZMH1714-A et $30,6 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ pour ZMH1716).

L'intensité de μPL est faible et l'effet laser n'est pas détecté. Cela pourrait s'expliquer par un τ_{ZnO} très faible. Si l'on prend $\tau_{\text{ZnO}} = 3\text{ps}$, alors $n_2(P_{\text{max}}) = 4,1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, ce qui expliquerait qu'aucun amorçage de l'écrantage n'est détecté.

Tableau III -4. Guide ZMH1715 à 5K. Résumé des forces d'oscillateur excitonique nominales η à différentes puissances d'excitation nominales et crêtes accompagnées des densités de porteurs n_1 et n_2 .

T=5K	0,01P_{max}	0,05P_{max}	P_{max}
$\eta(\%)$	100	100	100
$P(kW.cm^{-2})$	16,8	83,9	1680
$n_1(cm^{-3})$	$3,1.10^{16}$	$1,5.10^{17}$	$3,1.10^{18}$
$n_2(cm^{-3})$	$4,1.10^{16}$	$2,0.10^{17}$	$4,1.10^{18}$

5.4) Etude du guide ZMH1817-B

LeZMH1817-B présente le seuil laser le plus faible parmi les guides étudiés (toujours en considérant un temps de vie commun de 33ps à 5K) et a été analysé en imagerie de Fourier pour cette qualité.

5.4.a) Spectre de μ PL et de μ R

Les spectres de μ PL et de μ R du ZMH1837 sont donnés en annexe F.3). Le guide ZMH1817-B combine deux attributs : cladding inférieur et supérieur sont moitiés plus faibles (50nm) que pour le ZMH1714-A. L'extraction du mode guidé est réalisée par des réseaux.

5.4.b) Etude de l'écrantage en fonction de la puissance d'injection

La figure III–24 présente la dispersion de l'énergie du mode guidé polaritonique en fonction de l'angle d'émission pour l'intensité d'excitation minimale. Celle-ci sert de référence comme force d'oscillateur non écrantée ($\eta = 100\%$) et correspond à la courbe de dispersion simulée tracée en trait plein blanc. On suppose alors que la force d'oscillateur excitonique n'a pas encore été écrantée vu la faible puissance d'excitation. La relation de dispersion complètement écrantée ($\eta = 0\%$) dans le cas où la force d'oscillateur excitonique est au voisinage de la densité de Mott est tracée en pointillés blanc.

Les énergies excitoniques utilisées pour calculer la dispersion ne sont pas forcément celles repérées sur le spectre de μ PL. Il est possible que la zone de l'échantillon analysée en montage de Fourier présente une contrainte différente. Pour les premières simulations de la dispersion, le calcul est réalisé en prenant les énergies excitoniques du spectre. Puis ces dernières sont modifiées meV par meV jusqu'à ce que la dispersion calculée soit superposée avec la dispersion expérimentale.

Les énergies excitoniques de A et B utilisées dans les calculs sont respectivement égales à 3373meV et 3379meV, l'élargissement Γ est pris égal à 5 meV et le coefficient d'ajustement C est égal à 1.024. Comme pour le ZMH1714-A, les valeurs non-écrantées des forces d'oscillateur excitoniques sont fixées quelles que soient la température et la puissance d'excitation à : $F_{osc(X_A)} = 150\,000\text{ meV}^2$ et $F_{osc(X_B)} = 250\,000\text{ meV}^2$ [47].

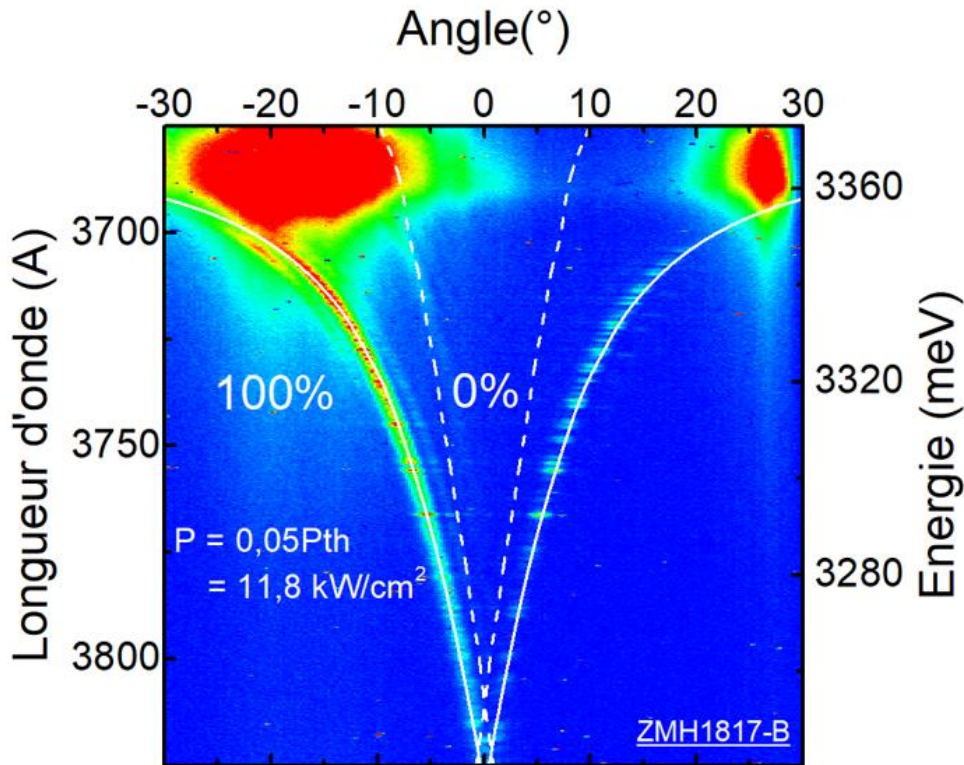


Figure III -24. Dispersion expérimentale des modes guidés polaritoniques du guide ZMH1817-B à $T=5\text{K}$ à très basse puissance servant de référence non-écrantée, c'est-à-dire 100% de force d'oscillateur (traits plein blancs). Puis, la dispersion écrantée 0% de force d'oscillateur (blanc traits pointillés) est obtenue en retirant 60meV à l'énergie du gap.

Contrairement aux guides étudiés précédemment, l'écrantage n'est ni détecté au seuil à $P_{th} = 235\text{kW.cm}^{-2}$, ni même à haute puissance $\eta = 95\%$ lorsque $P = 15P_{th} = 3528\text{kW.cm}^{-2}$ comme le montre la figure III-25.b), correspondant à une densité de porteurs égale à $n_{Mitutoyo} = 9,7 \cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$.

Ce seuil laser est supérieur à celui du ZMH1714-A qui est détecté à 44.5kW.cm^{-2} . Le guide ZMH1714-A semble donc avoir la meilleure structure des deux en vue de concevoir un composant avec un seuil laser le plus faible possible.

Or dans l'autre configuration d'excitation - confocale avec l'objectif thorlabs (cf. tableau III-7) – le seuil laser du ZMH1817-B diminue drastiquement à $P_{th(Thorlabs)} = 20\text{kW.cm}^{-2}$ est devient inférieur au seuil du ZMH1714-A de $P_{th(Thorlabs)} = 203\text{kW.cm}^{-2}$. Ici, c'est le ZMH1817-B qui semble être le meilleur des deux. Précisons que toutes les mesures de seuil lasers pour ZMH1817-B et ZMH1714-A ont été réalisées sur un réseau et sont donc comparables.

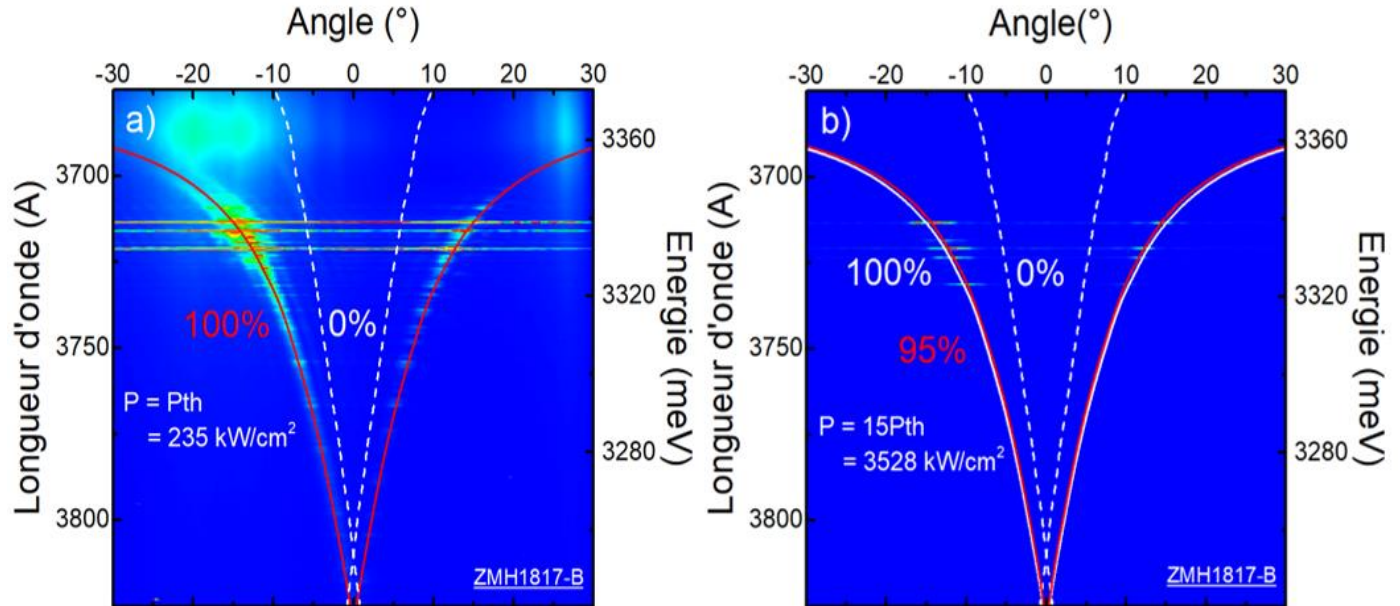


Figure III -25. Dispersions expérimentales des modes guides polaritoniques du guide ZMH1817-B à $T=5K$ en fonction de la densité de puissance d'excitation, accompagnées de 3 dispersions simulées. En blanc, les dispersions correspondant aux forces d'oscillateurs 100% (blanc traits plein) et 0% (blanc traits pointillés). La dispersion simulée (en rouge) modélise la dispersion expérimentale en appliquant la force d'oscillateur indiquée en rouge, laquelle décroît lorsque l'intensité d'excitation augmente. La puissance d'excitation est celle au seuil laser a) puis la puissance maximale atteinte au-dessus du seuil laser b).

Le ZMH1817-B et ZMH1714-A guides ne répondent pas de la même façon au changement configuration d'excitation. On observe qu'en passant d'une excitation sur le côté mitutoyo à une excitation confocale thorlabs, le seuil laser du ZMH1714-A augmente environ d'un facteur 4 alors que ZMH1817-B diminue environ d'un ordre de grandeur ; leurs évolutions sont opposées avec une différence plus marquée pour ZMH1817-B.

Le guide ZMH1714-A, tout comme ZMH1716, donne les meilleurs seuils en excitation gros spot alors que ZMH1817-B préfère une excitation petit spot. La différence notable de ce dernier est son cladding inférieur moitié plus fin de 500nm, qui permet de relaxer les contraintes lors de la croissance et de réduire la fissuration. La réduction du nombre de fissures souterraines laissait présager que la réduction du seuil laser par rapport aux autres guides avec 1000nm de cladding inférieur.

Si l'on considère uniquement le seuil $P_{th(Thorlabs)} = 20kW.cm^{-2}$ du ZMH1817-B, correspondant à une densité de porteurs égale à $n_{thorlabs} = 8,4.10^{16} cm^{-3}$, la conservation de la force d'oscillateur excitonique devient cohérente avec les écrantages précédemment observés au seuil laser des guides ZMH1714-A et ZMH1716.

On pourrait attribuer la différence d'un ordre de grandeur du seuil laser du ZMH1817-B en fonction de la configuration d'excitation à la taille du spot d'excitation. En moyenne pour ce guide, on mesure des seuils lasers moins élevés en gros spot indépendamment de la qualité des cavités. (Rappelons que les cavités sont formées par deux fissures adjacentes servant à extraire la luminescence du mode guidé).

En effet, le spot formé par l'objectif Thorlabs de faible surface ($75\mu m^2$, cf. figure II–11) excite rarement plus d'une cavité à la fois. Expérimentalement, on est en mesure de réaliser une cartographie de la qualité de chaque cavité. Seulement, si la cavité excitée en thorlabs est encadrée par des cavités de moindre qualité, cela se traduit par un accroissement du seuil laser.

En revanche, le spot formé par l'objectif Mitutoyo ($650\mu m^2$, cf. figure II–13) excite généralement plusieurs cavités, qui chacune contribuent au seuil. Le risque d'inclure dans la zone étudiée des défauts locaux ou des fissures souterraines est certes accru mais d'un autre côté, on mesure des seuils très faibles au niveau de zones où se succèdent les cavités de qualité. Cela explique que généralement la fourchette des seuils lasers mesurés en Mitutoyo est plus large qu'avec une excitation petit spot.

Une autre considération est le temps de passage (cf. I–4.3.a) qui augmente avec la taille du spot d'excitation et favorise la formation d'une population macroscopique cohérente. Normalement, le seuil laser devrait être abaissé avec l'objectif Mitutoyo. Comme seul ZMH1817-B vérifie cette prédiction, on en déduit que l'absence de fissuration est primordiale pour abaisser le seuil laser. Si tel n'est pas le cas, comme pour ZMH1714-A, il vaut mieux mesurer le seuil avec une excitation gros spot.

5.4.c) Evaluation de la densité de porteurs et de l'inhomogénéité de l'échantillon

Le tableau III–5 regroupe les résultats des simulations des dispersions expérimentales du ZMH1817-B à 5K et à 300K. Pour cette dernière température, l'évolution de la dispersion avec la densité d'excitation a été réalisée pour 3 points successifs A-B-C, alignés horizontalement et espacés de moins d'un demi-micromètre.

Tableau III -5. Guide ZMH1817-B. Résumé des forces d'oscillateur excitonique nominales η à différentes puissances d'excitation nominales et crêtes à 5K et 300K aux points A, B et C.

T=5K	$0,05P_{th}$	P_{th}	$16,1P_{th}$	T=300K (Point B)	$0,003P_{th}$	$0,1P_{th}$	$0,7P_{th}$	P_{th}	$1,16P_{th}$
$\eta(\%)$	100	100	95	$\eta(\%)$	100	100	95	92	90
$P(kW.cm^{-2})$	11,8	235,2	3528	$P(kW.cm^{-2})$	5,2	156	1099	1570	1831
$n_1(cm^{-3})$	$4,8.10^{16}$	$9,0.10^{17}$	$1,5.10^{19}$	$n_1(cm^{-3})$	$1,3.10^{16}$	$3,9.10^{17}$	$2,7.10^{18}$	$4,6.10^{18}$	$5,3.10^{19}$
$n_2(cm^{-3})$	$5,2.10^{16}$	$9,7.10^{17}$	$1,6.10^{19}$	$n_2(cm^{-3})$	$1,4.10^{16}$	$4,2.10^{17}$	$2,9.10^{18}$	$4,9.10^{18}$	$5,3.10^{19}$
T=300K (Point A)	$0,0007P_{th}$	$0,51P_{th}$	P_{th}	T=300K (Point C)	$0,002P_{th}$	$0,47P_{th}$	$0,71P_{th}$	P_{th}	
$\eta(\%)$	100	80	55	$\eta(\%)$	100	95	80	65	
$P(kW.cm^{-2})$	1,1	820,4	1595	$P(kW.cm^{-2})$	5,2	1047	1570	2224	
$n_1(cm^{-3})$	$2,8.10^{15}$	$2,0.10^{18}$	$4,0.10^{18}$	$n_1(cm^{-3})$	$1,3.10^{16}$	$2,6.10^{18}$	$3,9.10^{18}$	$5,5.10^{18}$	
$n_2(cm^{-3})$	$3,1.10^{15}$	$2,2.10^{18}$	$4,3.10^{18}$	$n_2(cm^{-3})$	$1,4.10^{16}$	$2,8.10^{18}$	$4,2.10^{18}$	$6,0.10^{18}$	

A défaut d'avoir réalisé des mesures de TRPL sur le guide ZMH1817-B à 5K et 300K, les densités de porteurs sont calculées à 5K en se reprenant la mesure de TRPL du ZMH1714-A (33ps) et à 300K en reprenant la mesure de TRCL du ZMH1715 (20ps).

Les densités de porteurs à très basse puissance, servant de référence non-écrantée, sont $n_{ref(T=5K)} \in [4,8 \cdot 10^{16}; 5,2 \cdot 10^{16}] \text{ cm}^{-3}$ et $n_{ref(T=300K)} \in [2,8 \cdot 10^{15}; 3,1 \cdot 10^{15}] \text{ cm}^{-3}$, obtenues respectivement aux puissances d'excitation nominales de $0,05P_{th}$ à 5K et $0,0007P_{th}$ à 300K au niveau du point A.

A 5K, nous n'observons pas d'écrantage de la force d'oscillateur au niveau du seuil laser et cela reste vrai au-delà du seuil. On peut interpréter cette absence d'écrantage en argumentant que la densité de porteur au seuil est probablement inférieure à la densité de Mott de cet échantillon. Le changement de la dynamique des porteurs bloque la densité de porteurs à sa valeur au seuil même pour des injections d'excitation plus élevées.

De plus, en comparant le pourcentage de force d'oscillateur restant aux densités de porteurs au seuil laser correspondantes pour les 3 guides : ZMH1714-A ($\eta = 80\%$, $n = 1,3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), ZMH1716 ($\eta = 70\%$, $n = 3,2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), et ZMH1817-B ($\eta = 100\%$, $n = 9,7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), on s'attendrait à ce que η du ZMH1817-B soit compris entre η du ZMH1716 et ZMH1714, à supposer bien entendu que le temps de vie de 33ps soit effectivement commun aux trois guides.

Or l'écrantage du ZMH1817-B n'est pas amorcé au seuil bien que la densité de porteurs soit supérieure à celle du ZMH1714-A au seuil pour lequel l'écrantage est déjà amorcé. La finesse relative de l'épaisseur du cladding supérieur du ZMH1817-B (moitié celle des deux autres guides) semble pointer vers une différence du temps de vie des porteurs. La densité de porteurs réelle au seuil du ZMH1817-B pourrait alors être inférieure à celle présentée dans le tableau III-5, ce qui rendrait cohérent la non-amorce de l'écrantage.

En passant de 5K à 300K, la densité de porteur au niveau du seuil laser est multipliée par un facteur de l'ordre de 7 pour les points A et B, et de l'ordre de 16 pour le point C. Cette différence entre des points très proches met en évidence des inhomogénéités à une échelle de l'ordre du μm qui peuvent être attribués à de multiples facteurs : défauts de surface, relaxation locale des contraintes en raison de fissures dissimulées sous la surface ou encore modification du facteur de qualité en se rapprochant de la fissure la plus extractrice de la cavité.

La différence ne se limite pas au seuil mais également à l'évolution de la force d'oscillateur. Alors que A et B ont un seuil laser équivalent, la force d'oscillateur excitonique est mieux préservée pour le point B avec $\eta_{A P_{th,300K}} = 55\%$ et $\eta_{B P_{th,300K}} = 92\%$.

De surcroît, pour le point C au seuil plus élevé, le processus d'écrantage est intermédiaire au point A et B. Aussi n'existe-il pas de lien évident entre la valeur du seuil laser et l'écrantage ; un seuil laser plus élevé n'entraîne pas forcément un écrantage plus avancé.

Comme la montée en température de 5K à 300K entraîne un léger déplacement de l'échantillon par vibration, il n'est pas possible de réaliser l'étude exactement au même endroit à 5K et 300K. On pourrait réaliser une étude similaire à 5K pour voir si les différences de seuil et d'écrantage sont aussi prononcés qu'à 300K.

5.5) Récapitulatif des seuils lasers détectés en montage de Fourier

Le seuil crête mesuré en Fourier est minimal pour le ZMH1714-A et vaut $44,5 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ à 5K et est multiplié par un facteur de près de 7 à 300K. On retrouve ce rapport pour le ZMH1817-B avec un seuil laser à $235,2 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ à 5K. Même si en premier lieu, le guide au meilleur seuil semble être le ZMH1714-A, des mesures complémentaires en configuration d'excitation latérale avec l'objectif Mitutoyo désigne plutôt le ZMH1817-B.

Cela peut être attribué à la différence entre les spots ainsi qu'à l'inhomogénéité de contrainte et de l'intensité variable de la luminescence dépendante des qualités d'extraction des fissures.

Tableau III – 6. Comparaison des seuils laser crête minimaux détectés (en $\text{kW} \cdot \text{cm}^{-2}$) à 5K et 300K pour quatre guides ZnO dont la structure est indiquée. L'étude de la dispersion de l'émission lumineuse en montage de Fourier n'a pas pu être réalisée à 300K pour les guides ZMH1715 et ZMH1716 par manque de signal de luminescence.

Nom échantillon	Epaisseurs (nm)		Seuil crête minimal (Mesures Fourier) (kW/cm ²) détecté à T=5K	Seuil crête minimal (Mesures Fourier) (kW/cm ²) détecté à T=300K
	ZnMgO/ZnO/Zn	MgO		
ZMH1714-A	100/50/1000		44,5	299,6
ZMH1715	100/80/1000		1680	Non-détecté
ZMH1716	100/30/1000		949,7	Non-détecté
ZMH1817-B	50/50/500		235,2	1570

Les seuils crêtes minimaux détectés à 5K en montage de Fourier de ZMH1715 et ZMH1716 sont plus élevés, respectivement de $1680 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ et de $949,7 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ et les seuils à 300K n'ont pas été détectés.

6) Présentation de l'ensemble des guides et comparaison de leur seuil laser

Tous les guides étudiés au cours de ma thèse sont listés dans le tableau III-7 ci-dessous.

Plusieurs technologies de surface, représentées sur la figure III-25., permettent d'extraire le mode guidé : sur toute leur surface comme les réseaux ou au niveau des extrémités comme les shallow et deep ridge. Les échantillons ZMH1714-A, ZMH1714-B et ZMH1714-C sont trois morceaux issus de ZMH1714, présentant des réseaux en surface avec en plus des cavités FIB gravées en surface pour le troisième. Les échantillons ZMH1715 et ZMH1716, étudiés précédemment, ont une épaisseur de couche active différente, respectivement de 30nm et de 80 nm.

Nom échantillon	Epaisseurs (nm) ZnMgO/ZnO/ZnMgO	Technologie de surface
ZMH1714	100/50/1000	Aucune
ZMH1714-A	100/50/1000	Réseaux (α)
ZMH1714-B	100/50/1000	Réseaux (α)
ZMH1714-C	100/50/1000	Cavités FIB (β)
ZMH1715	100/80/1000	Réseaux (α)
ZMH1716	100/30/1000	Réseaux (α)
ZMH1814-A	100/50/500	Aucune
ZMH1815	50/50/1000	Shallow Ridge (γ) (profondeur 30 nm dans ZnMgO)
ZMH1817-B	50/50/500	Réseaux (α)
ZMH1837	50/100/500	Réseaux/Cavités FIB (β)/Deep ridge (δ)

Tableau III – 7. Liste des guides ZnO (épitaxiés sur substrat ZnO plan m) présentant les épaisseurs des couches (cladding supérieur de ZnMgO/couche active de ZnO/cladding inférieur de ZnMgO) et les technologies de surface : (α) Réseaux (β) Cavités FIB (γ) Shallow ridge (δ) Deep ridge (cf. figure suivante)

L'échantillon ZMH1814-A a un cladding inférieur moitié plus faible que les premiers échantillons de 500nm. Cela doit permettre de réduire les fissurations dans ZnO et d'améliorer la qualité cristalline, ce qui devrait réduire les seuils lasers. Le guide ZMH1815 est constitué d'un cladding supérieur moitié plus faible de 50nm afin de réduire le nombre de photons absorbés en amont de la couche active. De plus, des ridges peu profonds (shallow) sont gravés dans ZnMgO. Le guide ZMH1817-B combine les deux attributs : cladding inférieur et supérieur sont moitiés plus faibles. Des réseaux permettent également d'extraire le mode guidé.

Enfin le guide ZMH1837 a l'épaisseur de couche active du ZMH1714-A (100nm) mais les claddings du ZMH1817-B. De plus, il présente aussi des cavités FIB en surface qui sont décrites plus en détail figure III-31.

La structure du réseau est rappelée figure III-25.(α). Tel que représenté sur le schéma (γ), le cladding supérieur de ZnMgO de 50 nm d'épaisseur est gravé sur 30 nm pour former le shallow ridge. Sur le schéma (δ) est représenté le deep ridge de largeur W comprise entre 0,4 et 1,2 μm et délimité par deux gravures FIB d'une profondeur inconnue mais supérieure à 5 μm .

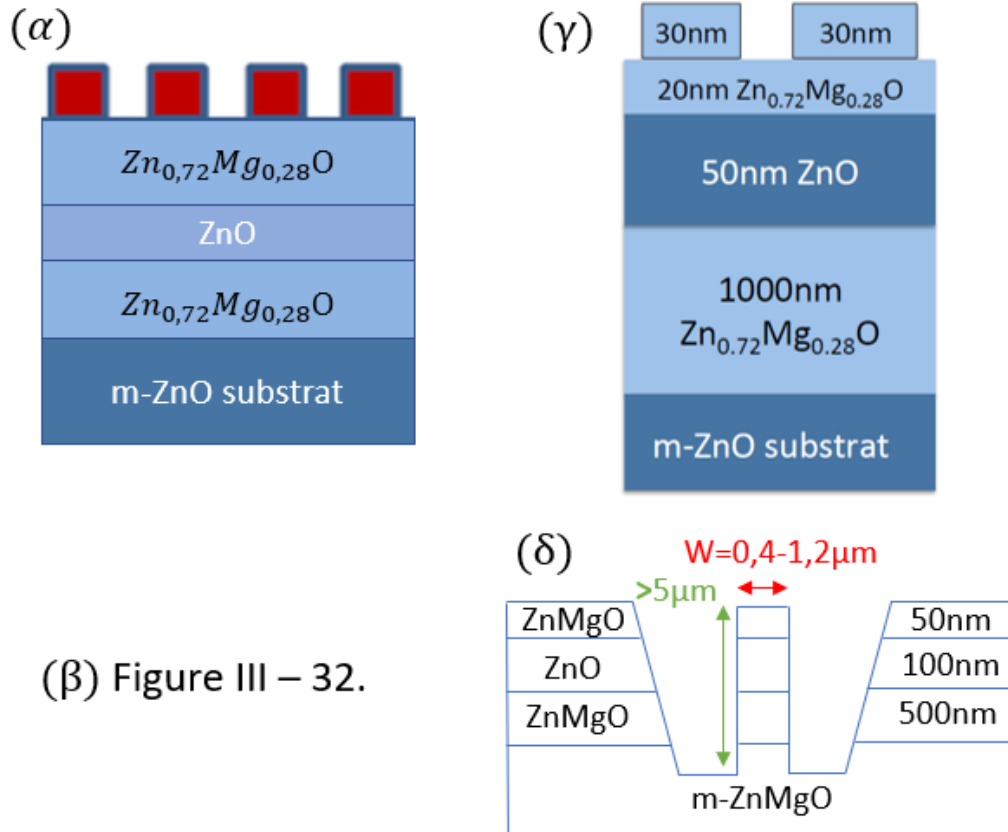


Figure III – 26. Schéma des technologies de surface du tableau III-7. (α) Réseaux (β) Cavités FIB (γ) Shallow ridge (δ) Deep ridge

Le seuil laser est déterminé à partir d'une rupture de pente de l'intensité intégrée lors d'une étude en puissance, sauf dans le cas où le seuil est trop élevé et une étude en puissance impossible sans risquer de détériorer la surface du guide.

Le cas échéant, le seuil est apprécié visuellement dès l'émergence d'un pic d'intensité. Ci-dessous est illustrée la méthode de rupture de pente pour le ZMH1817-B dont le seuil laser faible permet révéler clairement le changement de pente.

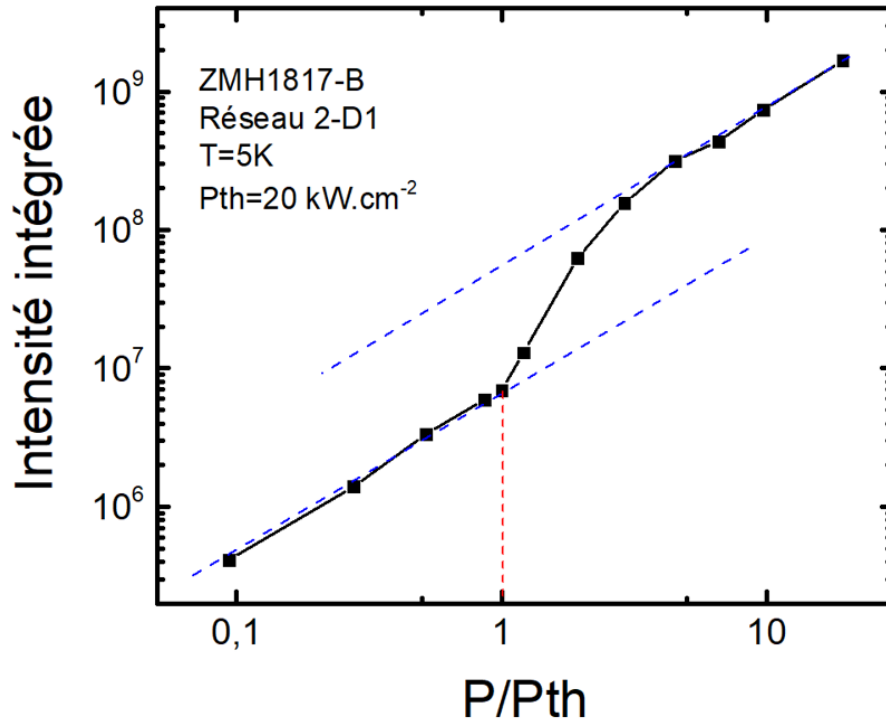


Figure III – 27. Intensité intégrée du guide ZMH1815 en fonction de la puissance normalisée à $P_{th} = 20 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$. Le seuil laser polaritonique est repéré au changement de pente en pointillés rouges verticaux.

Lorsque le mécanisme de condensation polaritonique débute, l'intensité intégrée augmente de façon logarithmique. Le seuil laser est repéré au changement de pente [18]. Une fois le seuil laser franchi, la courbe d'intensité intégrée retrouve la pente de départ.

Le tableau III–8 répertorie pour chaque guide la puissance surfacique minimum mesurée au seuil laser à 5K en configuration confocale (objectif Thorlabs avec un spot d'excitation d'environ $75 \mu\text{m}^2$). La position d'enregistrement, la taille de la cavité et la méthode de détermination du seuil sont également précisées.

Les seuils lasers, exprimés en $\text{kW} \cdot \text{cm}^{-2}$, sont repérés visuellement avec l'apparition d'un premier pic en dernier recours si la méthode de rupture de pente de l'intensité intégrée ne peut pas être employée, typiquement pour des seuils difficilement détectables à nos puissances d'injection. Dans le cas particulier du guide ZMH1715, une méthode intermédiaire consistant à suivre l'intensité intégrée en particulier, a été adoptée.

Echantillon	Seuil minimal crête, objectif Thorlabs [kW/cm^2] (densité de porteurs [cm^{-3}])	Position d'Enregistrement (taille cavité [μm])	Méthode de détermination (commentaires)
ZMH1714 100/50/1000	2849 ($8,4 \cdot 10^{18}$)	Cavité naturelle entre fissures (8)	Appréciation visuelle de la non-linéarité de l'intensité (apparition d'un pic laser)
ZMH1714-A 100/50/1000	203 ($6,0 \cdot 10^{17}$)	Cavité naturelle sur réseau D1-2 (21)	Tracé de l'intensité intégrée en fonction de la puissance intégrée (rupture de pente)
ZMH1714-B 100/50/1000	1180 ($3,5 \cdot 10^{18}$)	Cavité naturelle hors-réseaux (7)	Tracé de l'intensité intégrée en fonction de la puissance intégrée (rupture de pente)
ZMH1714-C 100/50/1000	1203 ($3,5 \cdot 10^{18}$)	Cavité naturelle, hors cavité FIB (13)	Appréciation visuelle de la non-linéarité de l'intensité (apparition d'un pic laser)
ZMH1715 100/80/1000	570 ($1,9 \cdot 10^{18}$)	Cavité naturelle hors-réseau (12,2)	Tracé de l'intensité intégrée au mode 3724 meV en fonction de la puissance intégrée (rupture de pente)
ZMH1716 100/30/1000	1266 ($7,0 \cdot 10^{18}$)	Cavité naturelle hors réseau (6,7)	Tracé de l'intensité intégrée en fonction de la puissance intégrée (rupture de pente)
ZMH1814-A 100/50/500	1988 ($5,9 \cdot 10^{18}$)	Cavité naturelle hors réseaux (9)	Appréciation visuelle de la non-linéarité de l'intensité (apparition d'un pic laser)
ZMH1815 50/50/1000	20 ($8,4 \cdot 10^{16}$)	Cavité naturelle sur carré non-gravé (12.2)	Appréciation visuelle de la non-linéarité de l'intensité (apparition d'un pic laser)
ZMH1817-B 50/50/500	20 ($8,4 \cdot 10^{16}$)	Cavité naturelle, réseau 2-D1 (10.5)	Tracé de l'intensité intégrée en fonction de la puissance intégrée (rupture de pente)
ZMH1837 50/100/500	152 ($4,5 \cdot 10^{17}$)	Cavité FIB L4C2 (L=4, W=30)	Appréciation visuelle de la non-linéarité de l'intensité (apparition d'un pic laser)

Tableau III – 8. Liste des seuils minimaux crêtes en ($\text{kW} \cdot \text{cm}^{-2}$) mesurés sur chaque guide avec l'objectif Thorlabs (excitation confocale) à 5K. La position d'enregistrement de la mesure du seuil est précisée ainsi que la méthode de détermination du seuil laser.

Les seuils varient dans une fourchette de deux ordres de grandeur. Commençons par une remarque préliminaire essentielle. La mesure du seuil n'est pas reliée directement à la densité de porteurs car les temps de vie des couches de ZnO et de ZnMgO peuvent varier d'un guide à l'autre. Ainsi, sans connaissance du temps de vie, un seuil laser élevé ne présage pas nécessairement d'un nombre de porteurs plus élevé. Des mesures supplémentaires de TRPL devront être réalisées afin de déterminer le temps de vie des porteurs propre à chaque guide à 5K et 300K.

Dans la suite de ce chapitre, les performances des guides seront comparées suivant leur puissance surfacique au seuil car nous utilisons les mêmes temps de vie pour estimer les densités de porteurs. Si les temps de vie propre à chaque guide étaient connus, la discussion se ferait évidemment au niveau de leur densité de porteurs au seuil.

Dans le groupe des guides ZMH1714-X, le faible seuil relatif du guide ZMH1714-A se démarque des autres valeurs. La faiblesse du seuil pourrait être attribuée à des fissures profondes qui modifieraient le temps de vie des porteurs, saturant les canaux non-radiatifs et conduisant à des densités de porteurs plus faibles que prévu.

On note toutefois que l'ajout de réseau à la surface semble être responsable de la baisse du seuil de moitié par rapport au guide ZMH1714 d'origine. De même, La gravure abaisse a priori le seuil laser ; le meilleur seuil mesuré sur le ZMH1714-C est au niveau des cavités FIB.

Les guides ZMH1715 et ZMH1716 ne partagent pas le faible seuil relatif du ZMH1714-A. Le seuil du ZMH1716 est très similaire au ZMH1714-C alors que le ZMH1715 est moitié plus faible. La différence de couche active de 30nm à 80 nm a multiplié le seuil par un facteur 2.

Le cladding inférieur réduit de moitié (500nm) du guide ZMH1814-A n'a pas entraîné la diminution de seuil escomptée avec la réduction de la fissuration. Par contraste, le guide ZMH1815 présente le seuil laser le plus bas détecté. La réduction de moitié du cladding supérieur (50nm) semble être responsable de la diminution du seuil laser de deux ordres de grandeurs. Le seuil laser optimal est mesuré au niveau d'un carré non-gravé (n'ayant subi aucune dégradation dû à l'ajout d'une technologie de surface).

Ailleurs sur l'échantillon, les seuils sont à peine doublés et restent très inférieurs par rapport aux autres guides. Ce seuil laser optimal est aussi mesuré pour le guide ZMH1817-B. Cela confirme a priori qu'un cladding supérieur plus faible permet d'abaisser les seuils en diminuant l'absorption dans le ZnMgO. La deuxième observation est la réduction de moitié du cladding inférieur n'a pas modifié le seuil par rapport au ZMH1815.

Dernièrement, les seuils du guide ZMH1837 sont intermédiaires aux résultats précédents, ce qui est cohérent avec sa structure : un cladding supérieur fin impactant positivement le seuil mais une couche active épaisse impactant négativement le seuil. Les seuils sont de l'ordre de ceux du ZMH1714-A pour certaines cavités FIB et de l'ordre de ceux du ZMH1715 pour d'autres.

Par ailleurs, un lien entre la longueur de la cavité et le seuil n'a pas pu être clairement démontré. L'augmentation du seuil laser avec la longueur de la cavité, à laquelle on peut s'attendre, n'est pas systématiquement observée. Il est possible que certaines cavités soient gravées plus proprement que d'autres, ce qui empêche de dégager une tendance.

7) Analyse de la luminescence de la couche ZnO

Afin de comprendre la particularité du guide ZMH1714-A par rapport au reste de son groupe, nous avons comparé son spectre de μ PL à ceux du guide initial ZMH1714 et du guide ZMH1714-C ayant subi la plus grande altération de sa surface avec les gravures des cavités FIB. Pour que les spectres soient comparables, nous avons réalisé la mesure de μ PL du ZMH1714-A hors d'un réseau et du ZMH1714-C hors d'une cavité FIB. Nous avons tenu à montrer la bonne homogénéité du ZMH1714 en ajoutant la mesure μ PL sur un réseau.

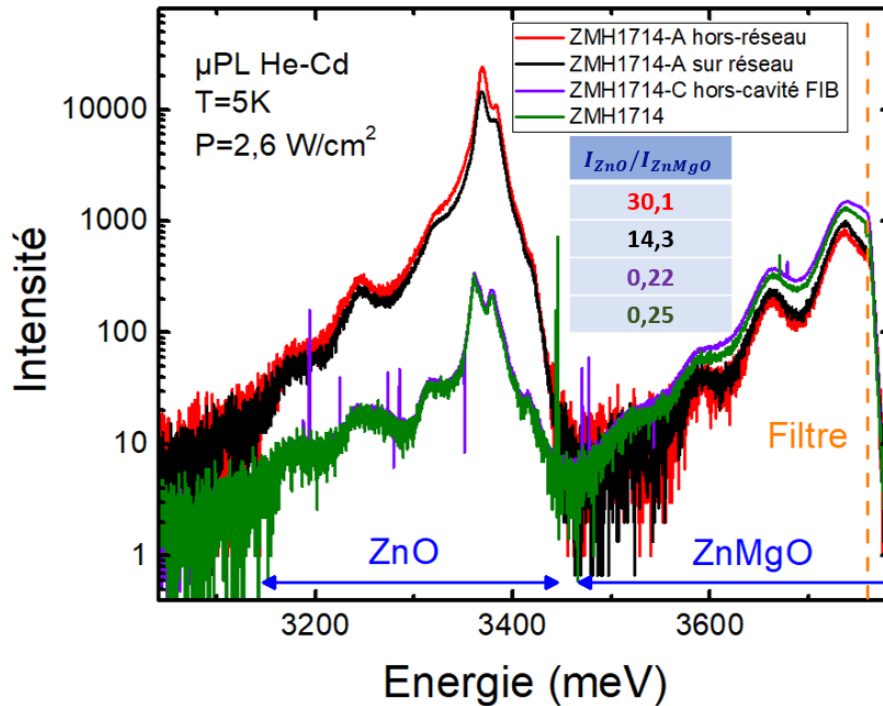


Figure III – 28. Comparaison des rapports des pics d'intensité de ZnO sur les pics d'intensité de ZnMgO tirés des spectres de μ PL à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 2,6W \cdot cm^{-2}$ de trois guides : ZMH1714-A sur réseau (noir) et hors réseaux (rouge), ZMH1714 (vert) et ZMH1714-C (violet).

Sur la zone spectrale de ZnMgO, repérée par la flèche bleue correspondante, on repère des oscillations périodiques dont les pics peuvent être identifiés aux répliques phonons [119], espacées de 73 meV. La raie zéro-phonon n'étant pas détectée en raison de la présence d'un filtre. En comparant l'intensité μ PL du ZMH1714-A hors réseaux et sur réseaux (pour une même injection), on constate que l'émission de ZnMgO est plus intense d'environ 10% avec une excitation sur réseau que hors réseau. Le gain de transmission entre une zone sur réseau par rapport à une zone hors-réseau a été estimée au sous-paragraphe III -1.1).

Concernant le ZMH1714 et le ZMH1714-C, on constate que l'émission de ZnMgO est un peu plus intense que précédemment, à peine un facteur 2. L'injection étant la même, il se pourrait que la qualité du ZnMgO soit meilleure ou bien qu'il y ait moins de recombinaison non radiatives (de surface par exemple). Il est à noter que l'intensité de ZnO est beaucoup plus faible dans les deux derniers échantillons par rapport à l'intensité dans l'échantillon ZMH1714A.

L'explication qui peut être avancée est que le temps de recombinaison non radiatif soit très petit dans les deux derniers échantillons ; ceci pourrait être due à des fissures qui viennent émerger du fond de l'échantillon dans ZnO sans pour cela atteindre la couche de ZnMgO supérieure. Ce point doit être confirmé par des mesures de TRPL sur ces échantillons. La luminescence ne permet pas trop de quantifier l'absorption. Il faut aussi préciser que la qualité des couches de ZnO et de ZnMgO peut être variable entre les guides et présenter par conséquent des temps de vie différents.

Les points enregistrés sur les échantillons ZMH1714C et ZMH1714 présentent une contrainte (décalage de l'énergie du pic de luminescence) cela pourrait être dû au fait que la zone explorée est proche d'une fissure donc d'un endroit où les recombinaisons non radiatives sont importantes. Pour chaque spectre de μ PL, le rapport des intensités du pic de plus haute intensité de ZnO (3660-3370meV) sur le pic de de plus haute intensité de la réplique phonon de ZnMgO (3735-3740meV), est calculé. Il ressort clairement que plus ce rapport est élevé, plus le seuil laser est bas.

Sur la figure III–28., la puissance d'injection est multipliée par 10 par rapport à la figure précédente à $P = 26 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$; l'intensité de ZnO augmente plus vite que celle de ZnMgO. On peut peut-être en déduire qu'il y a moins de centres non radiatifs et qu'ils sont saturables plus rapidement. Par ailleurs, l'intensité de ZnO dans les échantillons ZMH1714C et ZMH1714 augmente plus rapidement que celle de l'échantillon ZMH1714-A. De plus, l'écart des rapports s'est creusé entre la mesure sur réseau et hors réseau du guide ZMH1714-A. Quant aux intensités de deux autres guides, elles restent presque confondues comme précédemment.

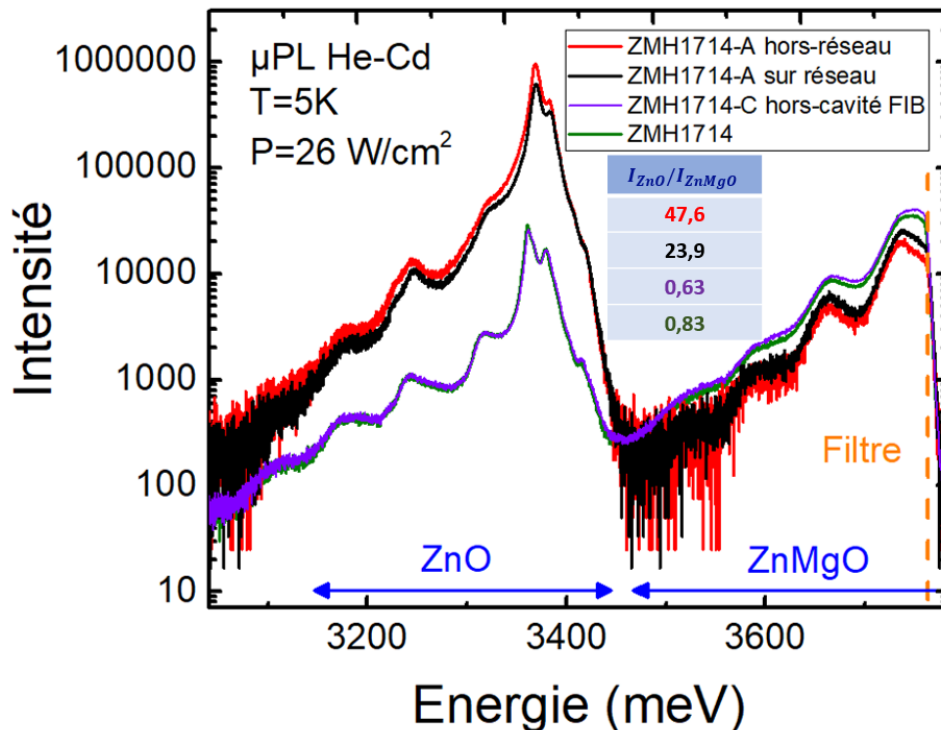


Figure III – 29. Comparaison des rapports des pics d'intensité de ZnO sur les pics d'intensité de ZnMgO tirés des spectres de μ PL à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 26 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ de trois guides : ZMH1714-A sur réseau (noir) et hors réseaux (rouge), ZMH1714 (vert) et ZMH1714-C (violet).

8) Détermination de la longueur de propagation à travers l'atténuation de l'intensité

La méthode de mesure usuelle de la distance de propagation des polaritons consiste à mesurer la perte d'intensité de l'émission lumineuse extraite soit par des fissures successives ou par d'autres milieux extracteur, comme le long d'un guide shallow ridge ou d'un réseau ; on détermine ainsi l'absorption et en prenant son inverse, on obtient la distance de propagation des polaritons.

Les distances de propagation ont été mesurées pour les guides aux faibles seuils relatifs ZMH1714-A et ZMH1837. Pour ZMH1714-A, qui présente de nombreuses fissures peu espacées, la fenêtre de détection de l'émission est bougée d'une fissure à l'autre, en l'éloignant du spot d'excitation qui est fixe. Ceci est réalisé en déplaçant la lentille de collecte à l'aide d'un support motorisé. Pour ZMH1837, la mesure de la propagation est réalisée grâce à des réseaux d'extraction longs et des cavités étroites (similaires à des ridges shallows).

8.1) Analyses des distances de propagation mesurées sur ZMH1714-A

Au niveau du spot d'excitation (fixe), la densité de porteurs est supérieure à la densité de Mott. La densité d'excitation est prise élevée afin de détecter un signal de luminescence pour plusieurs cavités. Au niveau des fissures, la densité de porteurs devient inférieure à la densité de Mott et le couplage fort est établi. Aux hautes températures, la diminution de l'intensité du signal de luminescence requiert des cavités de qualité et des fissures à extractions élevées. C'est pourquoi, les cavités étudiées ne sont pas les mêmes à chaque température.

Les longueurs de propagation polaritoniques sont déterminées pour le guide ZMH1714-A à partir de mesures expérimentales de la décroissance de l'intensité de la luminescence extraite par des fissures successives. Le spot d'excitation est fixe et la détection est déplacée de fissure en fissure en bougeant la lentille de collecte. La méthode consiste à calculer le rapport d'intensité de 2 fissures successives et à le relier à une valeur d'absorption en construisant une fonction analytique. Cette approche requiert de formuler des hypothèses sur la réflectivité ou l'extraction des fissures.

En appliquant la méthode analytique aux intensités de luminescence du système à deux fissures présentées en annexe G, on aboutit aux distances de propagations de la figure ci-dessous.

En augmentant la température, les énergies d'émission se décalent vers les basses énergies (redshift) en suivant la diminution de l'énergie du gap décrite par la loi de Varshni [42]. Les distances de propagation mesurées sont essentiellement comprises entre 10 et 40 μm . A basse température, les valeurs restent inférieures à 20 μm alors qu'à haute température, quelques distances atteignent les 60-70 μm . Retenons que la distance de propagation à ($E=3320\text{meV}$; $T=5\text{K}$) est de 16,6 μm . Cette valeur sera comparée aux distances mesurées avec le ZMH1837 au sous paragraphe suivant.

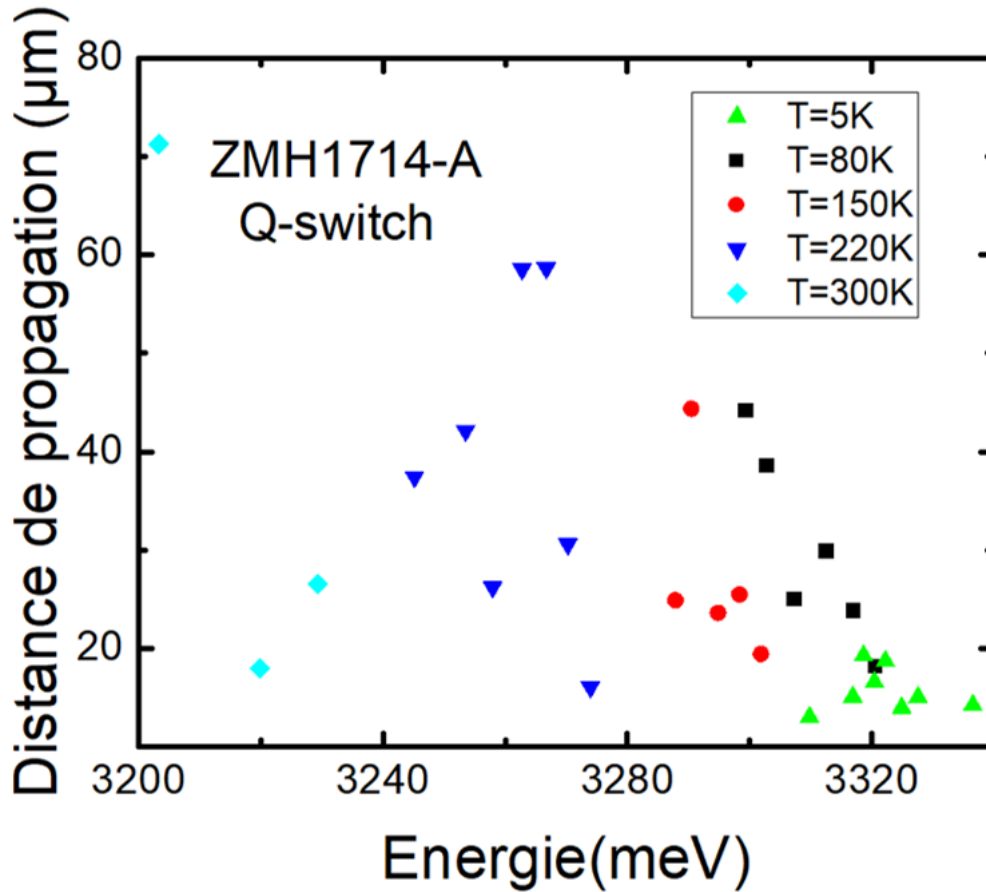


Figure III – 30. Distances de propagation des polaritons du ZMH1714-A en fonction de l'énergie d'émission à plusieurs températures avec une excitation Q-switched. L'absorption est déduite des rapports des intensités de deux fissures voisines grâce à une fonction analytique.

Lorsque l'énergie d'émission de luminescence se rapproche des excitons ($X_A = 3380\text{meV}$), la distance de propagation est a priori réduite du fait de l'augmentation de la partie imaginaire de l'indice. Ceci est observé à 80K (en excluant le point situé à 3307,1 meV) mais pas aux autres températures, ce que l'on attribue aux qualités d'extraction variables des fissures.

8.2) Analyses des distances de propagation mesurées sur ZMH1837

Plus généralement, il faudrait beaucoup plus que 3 points pour arriver à une fourchette représentative des inhomogénéités spatiales des seuils lasers et d'écrantage d'un échantillon.

La méthode analytique employée pour ZMH1714-A est appliquée lorsque les distances de propagation sont mesurées à partir d'une extraction par des fissures formant des cavités naturelles. Pour ZMH1837, deux types de structures dédiées à la mesure des distances de propagation des polaritons ont été gravées à la surface : des réseaux d'extraction longs et des cavités étroites, pareilles à des ridges shallows (cf. annexe H).

La mesure de propagation est réalisée avec un réseau long servant d'extracteur. Cette méthode, notée (α), illustrée sur la figure III-30 ci-dessous, permet de déplacer le spot d'excitation en 2 étapes. La première étape consiste à décaler la lentille de collecte d'une distance égale à la norme du vecteur $\vec{\Delta}$, ce qui permet de déplacer la fenêtre de détection vers la droite (traits verts parallèles de la position 1 à la position 2). En seconde étape, on déplace cette fois-ci l'échantillon d'un même vecteur $\vec{\Delta}$, ce qui permet de repositionner la détection à sa position initiale en bord gauche du réseau, mais située à une distance de $|\vec{\Delta}|$ par rapport au spot d'excitation. La méthode (α) permet donc d'éloigner le spot de la détection sans pour autant dérégler l'alignement de l'excitation optique. Le spot est immobile dans le référentiel du laboratoire mais est bougé de $|\vec{\Delta}|$ dans le référentiel de l'échantillon. Alternativement, on pourrait refaire l'alignement du spot à chaque mesure cela coûterait du temps expérimental. En annexe H est présentée une méthode (β) plus classique à spot mobile et à détection fixe, servant de comparaison à d'autres études utilisant traditionnellement ce protocole de mesure.

Pour éviter les différences de transmission de l'excitation entre la zone sur réseau et la zone hors-réseau, le spot ne doit pas entrer ou sortir d'un réseau mais rester dans l'une des deux zones. Cela permet aussi de ne pas ajouter une différence de contrainte supplémentaire existant à la frontière des deux zones. Dans notre cas, l'espacement entre les réseaux est plus large que les réseaux donc le spot reste dans la zone hors-réseau.

A l'exception de la méthode de déplacement du spot d'excitation, toutes les conditions expérimentales (endroit de la mesure et puissance d'excitation de $P = 2535 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$) sont identiques au cas précédent. La rupture de pente des distances mesurées est située vers 3350 meV, ce qui serait en accord avec la partie imaginaire de notre indice. A des énergies supérieures à cette rupture, les distances de propagation sont autour de $10 \mu\text{m}$. En revanche, les distances tendent à être doublées vers les basses énergies. A 3320 meV, on mesure une distance de propagation de $35.8 \mu\text{m}$ contre $20,3 \mu\text{m}$ pour la méthode (β).

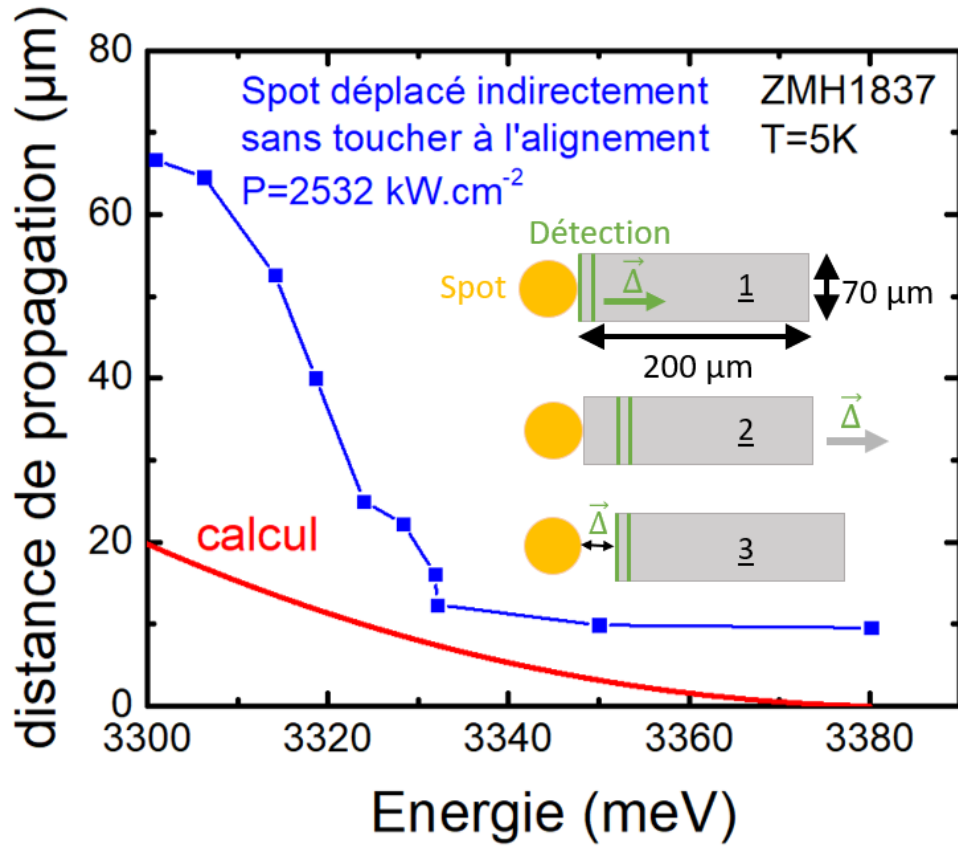


Figure III – 31. Distance de propagation réalisée sur le guide ZMH1837 en fonction de l'énergie de l'émission extraite du bord du réseau D3-4 ($\lambda = 186\text{nm}$) en éloignant progressivement le spot d'excitation par une méthode indirecte sans modifier l'alignement optique.

9) Gravure intentionnelle de cavités par gravure ionique (FIB)

9.1) Structure gravée

Une étude en puissance a été menée sur la cavité L2C2 gravée sur le guide ZMH1837. Sur la figure ci-dessous sont précisées les profondeurs de gravure suivant une coupe verticale (AA') perpendiculaire aux faces gravées FIB et suivant une coupe horizontale (BB') parallèle. Les coupes sont indiquées en pointillés pour la cavité L2C2.

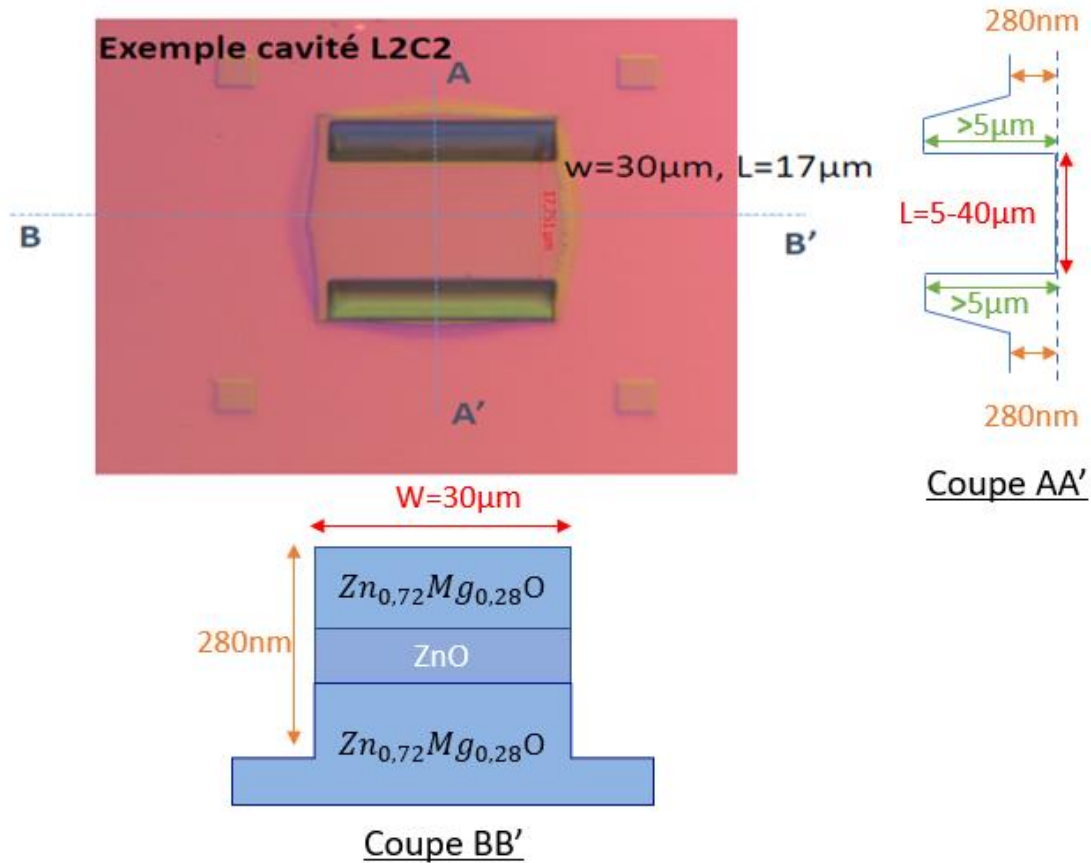


Figure III – 32. Structure des cavités FIB du guide ZMH1837 accompagnée d'une image réalisée au microscope optique pour le repérage des coupes AA' et BB'.

La longueur de cavité L varie entre 5 et $40\mu\text{m}$ et est délimitée par deux gravures FIB d'une profondeur inconnue mais supérieure à $5\mu\text{m}$. La largeur de cavité W est de $30\mu\text{m}$ pour des cavités larges, à l'instar de la cavité L2C2, et ont un bord en profil de marche de 280nm .

9.2) Mise en évidence du phénomène laser et étude des modes de cavité

La cavité L2C2 a été étudiée en puissance au Q-switched. La figure III-32 présente l'empilement des spectres. La puissance en unité de P_{th} est indiquée pour le spectre de puissance minimale s'élevant à $0,017P_{th}$ (en orange), pour le spectre enregistré à $0,66P_{th}$ (en vert) et le spectre de puissance maximale réalisée à $2P_{th}$ (en rouge). Le spectre de couleur magenta est identifié à P_{th} sur la figure III-33.b).

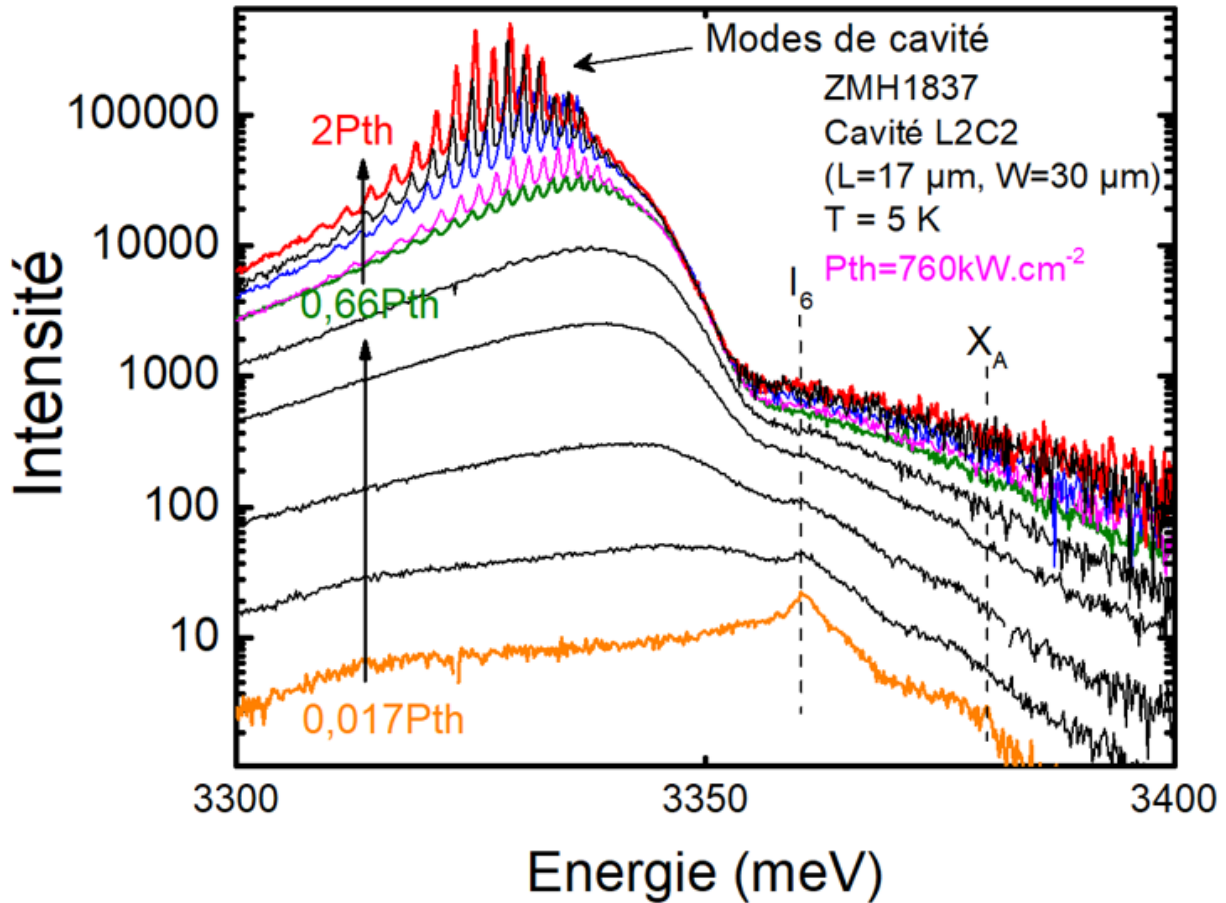


Figure III – 33. Etude en puissance (μ PL) à 5K de la cavité FIB L2C2 gravée à la surface du guide ZMH1837.

Le pic attribué à D^0X_A (transition I_6 où le donneur est identifié comme de l'aluminium) et le pic de l'exciton libre A sont repérés par des traits noirs verticaux. En augmentant la puissance d'injection, leur signature est progressivement dissipée. Cela signale que la force d'oscillateur excitonique est écrantée au niveau du seuil laser. Les modes de cavité, repérés par une flèche noire, sont discernables à partir du spectre marqué en vert. La réalisation des cavités FIB, conçues pour servir d'extracteur à la place des cavités naturelles, a certainement abimée la surface au moment du retrait du masque, ce qui explique les seuils lasers élevés.

D'un autre côté, d'autres guides n'ayant subi aucun traitement en surface, tel que le ZMH1714, présente des seuils encore plus élevés. Il est possible que le guide ZMH1837 présentait déjà un seuil très élevé avant la gravure des cavités FIB.

Pour comprendre l'effet de la gravure des cavités FIB sur l'état de la surface et sur le seuil laser, de nouvelles cavités FIB ont été prévues d'être gravées à la surface du guide ZMH1815 au niveau de carrées de $100\mu\text{m}^2$ n'ayant subi aucune gravure antérieure. Le seuil de ce guide est optimal, s'élevant à $P_{th(\text{Thorlabs})} = 20\text{kW}\cdot\text{cm}^{-2}$, ce qui correspond à une densité de porteurs de $n_{\text{thorlabs}} = 8,4\cdot 10^{16}\text{cm}^{-3}$ à laquelle la force d'oscillateur excitonique n'est a priori pas écartée.

A nos puissances maximales d'excitation autour de $1,5\text{MW}\cdot\text{cm}^{-2}$, aucun mode laser ne se dégage des autres. Dans le cas de modes de cavité, la non-linéarité est répartie sur plusieurs modes, lesquels sont alternativement favorisés, entraînant des montées puis des descentes d'un mode relativement aux autres.

La méthode précédente (cf. figure III – 27) de repérage d'une rupture de pente dans le tracé de l'intensité intégrée en fonction de la puissance normalisée ne permet pas de repérer clairement un changement de pente (figure III–34.a). La rupture de pente est repérable en se limitant à l'évolution de l'intensité maximale d'un seul mode de cavité en fonction de la puissance normalisée (figure III–34.b).

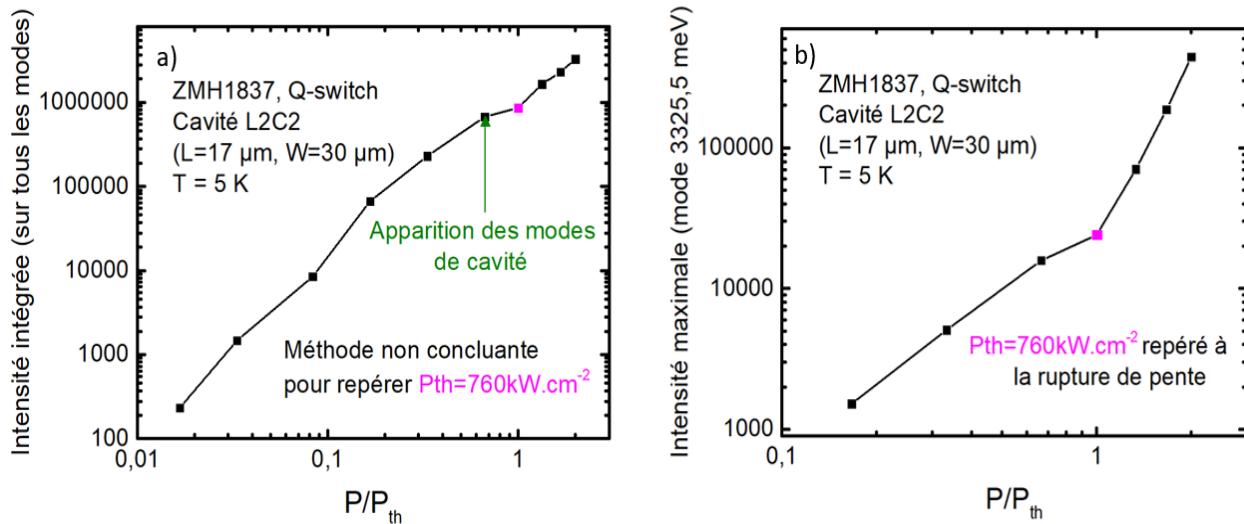


Figure III – 34. Intensités du signal de luminescence extrait par une facette FIB de la cavité L2C2 du guide ZMH1817-B. a) Intensité intégrée en fonction de la puissance en unité de P_{th} . b) Intensité maximale du mode de cavité à 3325,5 meV en fonction de la puissance en unité de P_{th} . La rupture de pente n'est repérable que pour b).

Pour les FIB, la cavité entretenant le mode laser peut être en théorie soit perpendiculaire aux côtés gravés de la cavité FIB dans le sens de longueur L soit parallèle dans le sens de la largeur W . En effet, le processus de gravure y forme une marche de quelques centaines de nanomètres

De plus, la longueur de la cavité effective, notée d , n'est pas forcément celle de la cavité naturelle formée par deux fissures naturelles consécutives. En effet, des fissures souterraines invisibles en lumière blanche peuvent raccourcir la cavité. La longueur de cavité réelle peut être déduite de la distance interfrange du mode laser [120].

En considérant deux pics de luminescence voisins centrés en λ_1 et en λ_2 :

$$\begin{cases} 2n(\lambda_1)d = (k + 1)\lambda \\ 2n(\lambda_2)d = k\lambda_2 \end{cases}$$

Soit h la distance séparant λ_1 et λ_2 est faible par rapport à λ_1 , par développement limité, $n(\lambda_2)$ devient :

$$n(\lambda_2) = n(\lambda_1 + h) = n(\lambda_1) + (\lambda_2 - \lambda_1) \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_1}$$

$$\begin{cases} 2n(\lambda_1)d = (k+1)\lambda_1 \\ 2 \left(n(\lambda_1) + (\lambda_2 - \lambda_1) \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_1} \right) d = k\lambda_2 \end{cases}$$

$$2n(\lambda_1)d = 2 \left(n(\lambda_1) + (\lambda_2 - \lambda_1) \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_1} \right) d \frac{\lambda_1}{\lambda_2} + \lambda_1$$

L'indice ne dépend plus que de λ_1 . On aboutit à :

$$2d = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1) \left[n(\lambda_1) - \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_1} \lambda_1 \right]}$$

La longueur de cavité réelle d est déterminée en moyennant les longueurs obtenues pour chaque interfrange. Pour la cavité L2C2, ce calcul est réalisé à P_{th} et à $2P_{th}$ et on obtient $20,5\mu\text{m}$ et $21\mu\text{m}$ respectivement. Cela confirme que la cavité est bien formée par les faces FIB gravées. En augmentant la puissance d'excitation, la force d'oscillateur excitonique est progressivement écrantée. Cela entraîne un aplatissement de $n(\lambda)$ soit une diminution de $\left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_1}$ et donc à une valeur d plus grande, ce qui explique l'écart de quelques μm trouvées par rapport à la valeur attendue de $L = 17\mu\text{m}$.

Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons pu étudier l'écrantage progressif de la force d'oscillateur des excitons avec l'augmentation de la densité de porteurs. Rappelons que le temps de vie mesuré par TRPL à 5K sur le guide ZMH1714-A est utilisé pour les autres guides et qu'il est possible que les densités de porteurs calculées dans ces structures soient différentes de celles indiquées.

Les dispersions angulaires obtenues en montage de Fourier peuvent être modélisées par une dispersion calculée en ajustant la force d'oscillateur excitonique restante η qui se traduit, avant la transition de Mott, par une réduction de l'énergie de liaison de l'exciton compensée par la diminution de l'énergie de bande interdite. L'analyse des images obtenues en champ lointain (imagerie de Fourier) sur le guide ZMH1714-A, a été effectuée en extrayant les profils d'intensité à énergie constante. Cette démarche permet un suivi visuel du déplacement du pic d'intensité, correspondant à l'émission du mode guidé polaritonique, par rapport à la référence non-écrantée ($\eta = 100\%$ de force d'oscillateur restante) jusqu'à la limite du couplage fort ($\eta = 0\%$).

Dans cet échantillon et dans d'autres, il apparaît que le couplage fort est maintenu pour des puissances plusieurs fois supérieures au seuil laser à 5K et à 300K. A température ambiante, la conservation de la force d'oscillateur est possible du fait de l'importance du dédoublement de Rabi de ZnO, lié aux forces d'oscillateurs élevées. Si l'on se réfère à l'échantillon de référence ZMH1714-A, on détecte l'apparition de l'écrantage ($\eta = 80\%$) au seuil laser à partir de $n = 1,3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ à 5K et de $n = 5,4 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ à 300K pour un écrantage similaire $\eta = 77\%$).

Nous avons démontré que l'écrantage de la force d'oscillateur excitonique au seuil laser dépend de la qualité cristalline et de la présence potentielle de fissures souterraines. Un guide présente en effet des zones d'écrantage variables selon l'endroit étudié. Pour une même puissance d'injection, le processus d'écrantage est plus avancé dans certaines cavités. Au seuil laser, le processus d'écrantage est amorcé pour la plupart des guides étudiés, à l'exception du ZMH1817-B.

Au-delà du seuil laser, la dynamique des phénomènes de relaxation est modifiée et le temps de recombinaison peut diminuer. Les densités de porteurs peuvent être calculées à condition de réaliser des mesures de TRPL une fois le seuil laser franchi.

Afin de concevoir des guides avec des seuils encore plus faibles, nous devons considérer le rôle de la technologie de surface servant à extraire le mode guidé. Une excitation sur un réseau ne modifie pas le seuil laser alors que la gravure des cavités FIB pourrait détériorer la qualité cristalline en surface et expliquer les seuils plus élevés.

Enfin, nous avons mesuré les distances de propagation des polaritons soit en développant un modèle analytique basé sur la mesure de l'intensité extraite par deux fissures naturelles voisines ; soit directement, à partir de structures dédiées comme des réseaux longs ou des ridges. Nous trouvons des distances de propagation de l'ordre de quelques dizaines de μm , se rapprochant des $100 \mu\text{m}$ à plus faible énergie lorsque l'on s'éloigne de la résonance excitonique.

Conclusion et perspectives

Au cours de cette thèse, nous avons étudié les propriétés polaritoniques de guides d'onde à base d'oxyde de zinc (ZnO) homoépitaxiés sur substrat de ZnO. Ce matériau est un semiconducteur inorganique à large bande interdite très prometteur pour la réalisation d'un laser à polaritons fonctionnant à température ambiante. Ce type de laser présente un faible seuil par rapport aux lasers classiques à inversion de population car l'émission des photons provient d'un condensat de polaritons qui est dû à la relaxation stimulée par l'occupation de l'état fondamental.

Suite à la description du phénomène de condensation des polaritons dans un état quantique unique dans les microcavités, permettant l'émission de photon partagent les propriétés d'une émission laser classique (cohérence spatiale et temporelle, directivité), analogue à un effet laser classique mais à très bas seuil, nous nous sommes focalisés sur la compréhension du phénomène d'amplification polaritonique qui permet d'obtenir l'effet laser à polaritons dans des structures supportant uniquement des modes guidés.

Les polaritons résultent du couplage fort entre les excitons d'un matériau d'une couche active avec le mode photonique guidé dans cette couche. Un guide d'onde est intéressant pour réaliser un composant optoélectronique car l'implémentation de l'injection électrique requiert moins d'étapes technologiques.

Contrairement à la microcavité, il n'existe pas d'état fondamental pour le guide d'onde. L'émission laser est favorisée suivant la dynamique de relaxation le long de la branche polaritonique basse. L'expression de la fonction diélectrique a ensuite été déterminée en se fondant sur le modèle de l'oscillateur harmonique. Les dédoublements de Rabi de ZnO ont été comparés à ceux du GaN dans le cas d'une couche massive et pour les guides d'onde.

La seconde partie de cette thèse est consacrée au dispositif expérimental que j'ai utilisé durant ma thèse et surtout à l'évaluation de la densité de porteurs à partir de la mesure de l'intensité d'excitation pour les deux configurations d'excitation : confocale avec l'objectif Thorlabs et de côté via une lentille asphérique.

Le calcul de la puissance surfacique est particulièrement détaillé. Dans ce chapitre, j'explique aussi comment utiliser notre dispositif pour des mesures de micro-photoluminescence et de micro-réflexivité qui me permettent de repérer les énergies des excitons qui varient selon la position d'analyse sur l'échantillon à cause de la contrainte imposée par le cladding inférieur dans la couche active de ZnO.

L'objectif de la troisième partie de cette thèse est d'identifier les différents paramètres (température, contrainte, épaisseur des claddings et de la couche active) qui influencent le seuil laser à polaritons dans les guides d'onde afin de déterminer les conditions les plus optimales pour le développement d'un laser à polaritons injectés électriquement avec le seuil le plus bas possible. Cela a pu être réalisé grâce à des expériences de spectroscopie optique combinant micro-photoluminescence en espace réel et espace réciproque.

Pour l'instant, la croissance et la fabrication de guides polaritoniques peut conduire à des inhomogénéités au niveau de la qualité cristalline et des défauts et donc aboutir à des seuils lasers variant sur un ordre de grandeur. En excitation confocale, le spot d'excitation est de diamètre optimal lorsqu'il éclaire toute la cavité formée par deux fissures. En excitation sur le côté, les seuils sont optimaux lorsque le spot est focalisé.

Une partie importante de cette troisième partie est ensuite consacrée à l'évaluation de l'écrantage de la force d'oscillateur des excitons lorsque la puissance d'excitation augmente jusqu'à atteindre le seuil laser. Afin de mieux appréhender ce mécanisme de l'écrantage, plusieurs structures de guide avec des épaisseurs de couche active et de cladding variables ont été étudiées. Il a fallu dans un premier temps identifier les meilleures structures (épaisseurs optimales des couches, réseau de couplage pour l'extraction du mode polaritonique) dans lesquelles l'effet laser à polaritons peut être atteint de 5K jusqu'à 300K.

De façon très logique, il apparaît qu'un cladding supérieur fin de ZnMgO (de l'ordre de 50 μ m) permet de réduire considérablement les seuils lasers grâce à une injection plus efficace des porteurs dans la couche de ZnO. La gravure de « ridges » en surface semble être une voie à exploiter car elle devrait permettre un confinement dans une dimension du mode polaritonique et abaisser le seuil laser.

Après avoir démontré expérimentalement le régime de couplage fort et l'effet laser à polaritons à 5K et 300K, nous nous sommes intéressés à l'analyse de la courbe de dispersion du mode polaritonique guidé mesurée en imagerie de Fourier en fonction de la puissance d'excitation. A très faible puissance et en l'absence d'écrantage, la courbe de dispersion sert de référence.

Lorsque la puissance d'excitation augmente fortement jusqu'à atteindre le seuil laser voire plusieurs fois ce seuil, nous avons montré à travers une démarche associant l'analyse précise de l'évolution de la courbe de dispersion du mode polaritonique et des simulations numériques incluant les effets combinés de l'écrantage de l'interaction coulombienne et de la renormalisation du gap qu'il était possible d'approcher la transition de Mott dans ZnO.

Ainsi, le couplage fort polaritonique peut être perdu lorsque la densité de porteurs dépasse la densité critique de Mott qui dépend de la température. Si l'on se réfère à notre échantillon de référence, le guide ZMH1714-A, on détecte l'apparition de l'écrantage (80% restant) au seuil laser à partir de $n = 1,3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ à 5K et de $n = 5,4 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ à 300K pour un écrantage similaire (77% restant).

Une détermination précise de la densité de Mott reste cependant délicate. La détermination des porteurs injectés est très dépendante de la qualité des échantillons et du temps de vie du réservoir excitonique. De plus, nous avons montré qu'il reste possible d'observer une conservation de la force d'oscillateur des excitons au-delà du seuil laser, ce qui attribuable au changement de la dynamique des processus après le seuil.

La fin de la troisième partie concerne les expériences menées pour estimer la distance de propagation des polaritons qui sont de l'ordre de quelques dizaines de μ m. A 5K, le guide ZMH1837 avec de structures gravées par faisceaux d'ions (FIB) de type « ridge » dédiées à l'étude de la propagation des polaritons a permis d'estimer des longueurs de propagation allant jusqu'à 66 μ m à 3300 meV. A plus basse énergie lorsque l'on s'éloigne du réservoir excitonique, les valeurs déduites de nos mesures deviennent plus importantes. D'autres mesures réalisées sur le guide planaire ZMH1714-A, à partir de l'intensité du signal de luminescence extrait par les fissures, conforte ces résultats.

Il sera important d'étudier rapidement des structures guidées avec implémentation de puits quantiques dans la couche guidante. Dans cette structure, le pic de luminescence associé au ZnO devient alors prépondérant par rapport à celui du ZnMgO contrairement à ce que nous avons pu observer dans nos guides. Les puits quantiques pourraient permettre d'améliorer le confinement des porteurs tout en conservant le guidage via le saut d'indice entre ZnO et ZnMgO.

Bien que de nombreuses recherches étudient le GaN, le dopage p de ZnO qui à l'heure actuelle n'est pas maîtrisé ne doit pas nécessairement encourager à favoriser GaN dans de futures thèses ou projets. Les difficultés à réaliser un dopage p ne semblent pas être un obstacle pour l'obtention d'une structure injectée électriquement, en effet une couche d'AlGaIn dopée p peut être insérée dans la structure.

Par ailleurs, la faible énergie de liaison des excitons de GaN, très proche de l'énergie d'agitation thermique à 300K, reste une difficulté au développement de composants polaritoniques à base de GaN, sans parler d'un fonctionnement à plus haute température. Certes, des composants laser de type VCSEL pourront être développés mais l'intérêt principal des polaritons pourrait être perdu.

L'utilisation d'un signal polaritonique dans un composant de très faible dimensions (de l'ordre de la dizaine de μm) à la place d'un signal électrique dans des transistors par exemple peut être envisageable dans un futur proche. Le passage d'une injection optique à une injection électrique reste encore une étape à franchir avant la réalisation de composants tout optique.

Sources

- [1] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell, *Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor*, *Science* (80-.). **269**, 198 (1995).
- [2] K. B. Davis, M. O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. Van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle, *Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3969 (1995).
- [3] J. M. Blatt, K. W. Böer, and W. Brandt, *Bose-Einstein Condensation of Excitons*, *Phys. Rev.* (1962).
- [4] D. Bajoni, *Polariton Lasers. Hybrid Light-Matter Lasers without Inversion*, *Journal of Physics D: Applied Physics*.
- [5] G. Malpuech, A. Di Carlo, A. Kavokin, J. J. Baumberg, M. Zamfirescu, and P. Lugli, *Room-Temperature Polariton Lasers Based on GaN Microcavities*, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 412 (2002).
- [6] M. Zamfirescu, A. Kavokin, B. Gil, G. Malpuech, and M. Kaliteevski, *ZnO as a Material Mostly Adapted for the Realization of Room-Temperature Polariton Lasers*, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **65**, 1 (2002).
- [7] E. Berkowicz, D. Gershoni, G. Bahir, E. Lakin, D. Shilo, and E. Zolotoyabko, *Measured and Calculated Radiative Lifetime and Optical Absorption of Quantum Structures*, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **61**, 10994 (2000).
- [8] M. Leszczynski, H. Teisseyre, T. Suski, I. Grzegory, M. Bockowski, J. Jun, S. Porowski, K. Pakula, J. M. Baranowski, C. T. Foxon, and T. S. Cheng, *Lattice Parameters of Gallium Nitride*, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 73 (1996).
- [9] H. Karzel, W. Potzel, M. Köfferlein, W. Schiessl, M. Steiner, U. Hiller, G. Kalvius, D. Mitchell, and T. Das, *Lattice Dynamics and Hyperfine Interactions in ZnO and ZnSe at High External Pressures*, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **53**, 11425 (1996).
- [10] A. B. M. Almamun Ashrafi, A. Ueta, A. Avramescu, H. Kumano, I. Suemune, Y. W. Ok, and T. Y. Seong, *Growth and Characterization of Hypothetical Zinc-Blende ZnO Films on GaAs(001) Substrates with ZnS Buffer Layers*, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 550 (2000).
- [11] K. Domen, K. Horino, A. Kuramata, and T. Tanahashi, *Analysis of Polarization Anisotropy along the c Axis in the Photoluminescence of Wurtzite GaN*, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1996 (1997).
- [12] P. Pant, J. D. Budai, and J. Narayan, *Nonpolar ZnO Film Growth and Mechanism for Anisotropic In-Plane Strain Relaxation*, *Acta Mater.* **58**, 1097 (2010).
- [13] A. Polian, M. Grimsditch, and I. Grzegory, *Elastic Constants of Gallium Nitride*, *J. Appl. Phys.* **79**, 3343 (1996).
- [14] G. Carlotti, G. Socino, A. Petri, and E. Verona, *Acoustic Investigation of the Elastic Properties of ZnO Films*, *Appl. Phys. Lett.* **51**, 1889 (1987).
- [15] V. Y. Davydov, Y. E. Kitaev, I. Goncharuk, A. Smirnov, J. Graul, O. Semchinova, and D. Uffmann, *Phonon Dispersion and Raman Scattering in Hexagonal GaN and AlN*, *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **58**, 12899 (1998).
- [16] T. Hanada, *Oxide and Nitride Semiconductors*, *Adv. Mater. Res.* **12**, 1 (2009).

- [17] R. Cuscó, E. Alarcón-Lladó, J. Ibáñez, L. Artús, J. Jiménez, B. Wang, and M. J. Callahan, *Temperature Dependence of Raman Scattering in ZnO*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **75**, (2007).
- [18] E. Mallet, P. Disseix, D. Lagarde, M. Mihailovic, F. Réveret, T. V. Shubina, and J. Leymarie, *Accurate Determination of Homogeneous and Inhomogeneous Excitonic Broadening in ZnO by Linear and Nonlinear Spectroscopies*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **87**, (2013).
- [19] K. Kornitzer, T. Ebner, M. Grehl, K. Thonke, R. Sauer, C. Kirchner, V. Schwegler, M. Kamp, M. Leszczynski, I. Grzegory, and S. Porowski, *High-Resolution Photoluminescence and Reflectance Spectra of Homoepitaxial GaN Layers*, Phys. Status Solidi Basic Res. **216**, 5 (1999).
- [20] M. Suzuki, T. Uenoyama, and A. Yanase, *First-Principles Calculations of Effective-Mass Parameters of AlN and GaN*, Phys. Rev. B **52**, 8132 (1995).
- [21] P. Perlin, I. Gorczyca, N. E. Christensen, I. Grzegory, H. Teisseyre, and T. Suski, *Pressure Studies of Gallium Nitride: Crystal Growth and Fundamental Electronic Properties*, Phys. Rev. B **45**, 13307 (1992).
- [22] A. Janotti and C. G. Van De Walle, *Fundamentals of Zinc Oxide as a Semiconductor*, Reports Prog. Phys. **72**, (2009).
- [23] C. Klingshirn, *Semiconductor Optics* (2007).
- [24] W. R. Lambrecht, A. V. Rodina, S. Limpijumnong, S. Limpijumnong, B. Segall, and B. K. Meyer, *Valence-Band Ordering and Magneto-Optic Exciton Fine Structure in ZnO*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **65**, 752071 (2002).
- [25] A. V. Rodina, M. Strassburg, M. Dworzak, U. Habocek, A. Hoffmann, A. Zeuner, H. R. Alves, D. M. Hofmann, and B. K. Meyer, *Magneto-Optical Properties of Bound Excitons in ZnO*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **69**, (2004).
- [26] A. J. Nathan and A. Scobell, *How China Sees America*, Vol. 91 (2012).
- [27] Y. C. Yeo, T. C. Chong, and M. F. Li, *Electronic Band Structures and Effective-Mass Parameters of Wurtzite GaN and InN*, J. Appl. Phys. **83**, 1429 (1998).
- [28] H. Morkoç and Ü. Özgür, *Zinc Oxide: Fundamentals, Materials and Device Technology* (2009).
- [29] J. Frenkel, *On the Transformation of Light into Heat in Solids. I*, Phys. Rev. **37**, 17 (1931).
- [30] G. H. Wannier, *The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals*, Phys. Rev. **52**, 191 (1937).
- [31] N. F. Mott, *Conduction in Polar Crystals. II. The Conduction Band and Ultra-Violet Absorption of Alkali-Halide Crystals*, Trans. Faraday Soc. **34**, 500 (1938).
- [32] D. G. Thomas, *The Exciton Spectrum of Zinc Oxide*, J. Phys. Chem. Solids **15**, 86 (1960).
- [33] O. Aoudé, P. Disseix, J. Leymarie, A. Vasson, M. Leroux, E. Aujol, B. Beaumont, A. Trassoudaine, and Y. André, *Continuous-Wave and Ultrafast Coherent Reflectivity Studies of Excitons in Bulk GaN*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **77**, (2008).
- [34] A. S. Barker and M. Illegems, *Infrared Lattice Vibrations and Free-Electron Dispersion in GaN*, Phys. Rev. B **7**, 743 (1973).

- [35] J. L. Birman, *Some Selection Rules for Band-Band Transitions in Wurtzite Structure*, Phys. Rev. **114**, 1490 (1959).
- [36] R. Laskowski and N. E. Christensen, *Ab Initio Calculation of Excitons in ZnO*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **73**, (2006).
- [37] D. C. Reynolds, D. C. Look, B. Jogai, A. W. Saxler, S. S. Park, and J. Y. Hahn, *Identification of the Γ_5 and Γ_6 Free Excitons in GaN*, Appl. Phys. Lett. **77**, 2879 (2000).
- [38] S. Chuang and C. Chang, *K-p Method for Strained Wurtzite Semiconductors*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **54**, 2491 (1996).
- [39] G. Rossbach, *High-Density Excitonic Effects in GaN : Mott-Transition and Polariton Lasing PAR*, Thèse **6245**, (2014).
- [40] K. P. Korona, A. Wysmołek, K. Pakuła, R. Stępniewski, J. M. Baranowski, I. Grzegory, B. Łucznik, M. Wróblewski, and S. Porowski, *Exciton Region Reflectance of Homoepitaxial GaN Layers*, Appl. Phys. Lett. **69**, 788 (1996).
- [41] L. Soziade, *Spectroscopie Optique de Couches Massives de GaN et d'hétérostructures (In,Ga)N/GaN*, Université Blaise Pascal, 2000.
- [42] Y. P. Varshni, *Temperature Dependence of the Energy Gap in Semiconductors*, Physica **34**, 149 (1967).
- [43] L. Wang and N. C. Giles, *Temperature Dependence of the Free-Exciton Transition Energy in Zinc Oxide by Photoluminescence Excitation Spectroscopy*, J. Appl. Phys. **94**, 973 (2003).
- [44] O. Aoud and O. Aoud, *Etes Excitoniques de GaN Par Spectroscopies Continue et Résolue En Temps à l'Échelle de La Femtoseconde Ouloum AOUDÉ Étude Des Propriétés Excitoniques de GaN Par Spectroscopies Continue et Résolue En Temps à l'Échelle de La Femtoseconde*, (2006).
- [45] K. G. Lagoudakis, M. Wouters, M. Richard, A. Baas, I. Carusotto, R. André, L. S. Dang, and B. Deveaud-Plédran, *Quantized Vortices in an Exciton-Polariton Condensate*, Nat. Phys. **4**, 706 (2008).
- [46] S. Rudin and T. L. Reinecke, *Temperature-Dependent Exciton Linewidths in Semiconductor Quantum Wells*, Phys. Rev. B **41**, 3017 (1990).
- [47] E. Mallet, E. Mallet, D. Zno, G. Application, and B. Pascal, *Etude Des Propriétés Polaritoniques de ZnO et GaN. Application à l'étude de l'effet Laser à Polaritons Dans Une Microcavité.*, (2015).
- [48] *Polarons and Excitons in Polar Semiconductors and Ionic Crystals* (1984).
- [49] J. Ciers, J. G. Roch, J. F. Carlin, G. Jacopin, R. Butté, and N. Grandjean, *Propagating Polaritons in III-Nitride Slab Waveguides*, Phys. Rev. Appl. **7**, (2017).
- [50] *Moosh: A Numerical Swiss Army Knife for the Optics of Multilayers in Octave/Matlab*, J. Open Res. Softw. **4**, (2016).
- [51] E. M. Purcell, *Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies*, in (1995), pp. 839–839.
- [52] J. J. Hopfield, *Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals*, Phys. Rev. **112**, 1555 (1958).

- [53] A. Einstein, *Quantum Theory of a Monoatomic Ideal Gas A Translation of Quantentheorie Des Einatomigen Idealen Gases (Einstein , 1924)*, Sitzungsberichte Der Preuss. Akad. Der Wissenschaften **1**, 1 (1925).
- [54] J. M. kosterlitz and D. J. Thouless, *Ordering, Metastability and Phase Transitions in Two-Dimensional Systems*, J. Phys. C Solid State Phys. **6**, 1181 (1973).
- [55] H. Morkoç, *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices*, Vol. 1 (2009).
- [56] K. T. Tsen, D. K. Ferry, A. Botchkarev, B. Sverdlov, A. Salvador, and H. Morkoç, *Direct Measurements of Electron-Longitudinal Optical Phonon Scattering Rates in Wurtzite GaN*, Appl. Phys. Lett. **71**, 1852 (1997).
- [57] A. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, and F. P. Laussy, *Microcavities* (2008).
- [58] F. Tassone, C. Piermarocchi, V. Savona, and A. Quattropani, *Bottleneck Effects in the Relaxation and Photoluminescence of Microcavity Polaritons*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **56**, 7554 (1997).
- [59] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymńska, R. André, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, and L. S. Dang, *Bose-Einstein Condensation of Exciton Polaritons*, Nature **443**, 409 (2006).
- [60] D. D. Solnyshkov, H. Terças, and G. Malpuech, *Optical Amplifier Based on Guided Polaritons in GaN and ZnO*, Appl. Phys. Lett. **105**, (2014).
- [61] O. Jamadi, *Spectroscopie de Condensats Polaritoniques Dans Des Microcavités et Guides d ' Onde à Base de GaN et ZnO To Cite This Version : HAL Id : Tel-02005985*, (2019).
- [62] G. L. Pikus and G. E. Bir, *Symmetry and Strain-Induced Effects in Semiconductors*, Mater. Res. 484 (1974).
- [63] K. H. Pantke and I. Broser, *Damping Dispersion of Excitonic Polaritons in CdS*, Phys. Rev. B **48**, 11752 (1993).
- [64] E. Mallet, F. Réveret, P. Disseix, T. V. Shubina, and J. Leymarie, *Influence of Excitonic Oscillator Strengths on the Optical Properties of GaN and ZnO*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **90**, (2014).
- [65] N. F. Mott, *The Transition to the Metallic State*, Philos. Mag. **6**, 287 (1961).
- [66] E. Hendry, M. Koeberg, and M. Bonn, *Exciton and Electron-Hole Plasma Formation Dynamics in ZnO*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **76**, (2007).
- [67] M. A. M. Versteegh, T. Kuis, H. T. C. Stoof, and J. I. Dijkhuis, *Ultrafast Screening and Carrier Dynamics in ZnO: Theory and Experiment*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **84**, (2011).
- [68] C. Klingshirn, R. Hauschild, J. Fallert, and H. Kalt, *Room-Temperature Stimulated Emission of ZnO: Alternatives to Excitonic Lasing*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **75**, (2007).
- [69] T. Nagai, T. J. Inagaki, and Y. Kanemitsu, *Band-Gap Renormalization in Highly Excited GaN*, Appl. Phys. Lett. **84**, 1284 (2004).
- [70] F. Binet, J. Y. Duboz, J. Off, and F. Scholz, *High-Excitation Photoluminescence in GaN: Hot-Carrier Effects and the Mott Transition*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **60**, 4715 (1999).

- [71] R. Cingolani, M. Ferrara, and M. Lugarà, *Electron-Hole Plasma Generation in Gallium Nitride*, Solid State Commun. **60**, 705 (1986).
- [72] C. Klingshirn, J. Fallert, O. Gogolin, M. Wissinger, R. Hauschild, M. Hauser, H. Kalt, and H. Zhou, *Linear and Nonlinear Optics, Dynamics, and Lasing in ZnO Bulk and Nanostructures*, J. Lumin. **128**, 792 (2008).
- [73] K. Kyhm, R. A. Taylor, J. F. Ryan, B. Beaumont, and P. Gibart, *Electron-Hole Plasma Mott Transition and Stimulated Emission in GaN*, in *Journal of the Korean Physical Society*, Vol. 45 (2004).
- [74] C. K. Choi, Y. H. Kwon, J. S. Krasinski, G. H. Park, G. Setlur, J. J. Song, and Y. C. Chang, *Ultrafast Carrier Dynamics in a Highly Excited GaN Epilayer*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **63**, (2001).
- [75] R. Zimmermann, *Many-Particle Theory of Highly Excited Semiconductors*, (1987).
- [76] H. Schweizer, A. Forchel, A. Hangleiter, S. Schmitt-Rink, J. P. Löwenau, and H. Haug, *Ionization of the Direct-Gap Exciton in Photoexcited Germanium*, Phys. Rev. Lett. **51**, 698 (1983).
- [77] G. Rossbach, J. Levrat, E. Feltn, J. F. Carlin, R. Butté, and N. Grandjean, *Impact of Saturation on the Polariton Renormalization in III-Nitride Based Planar Microcavities*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **88**, (2013).
- [78] T. J. Schmidt, J. J. Song, Y. C. Chang, R. Horning, and B. Goldenberg, *Large Optical Nonlinearities near the Band Gap of GaN Thin Films*, Appl. Phys. Lett. **72**, 1504 (1998).
- [79] S. Wachter, M. Maute, H. Kalt, and I. Galbraith, *Coherent Exciton Interactions: Dependence on Excitation Fluence and Polarization*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **65**, 2053141 (2002).
- [80] G. Manzke, Q. Y. Peng, K. Henneberger, U. Neukirch, K. Hauke, K. Wundke, J. Gutowski, and D. Hommel, *Density Dependence of the Exciton Energy in Semiconductors*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4943 (1998).
- [81] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, *Band Parameters for III-V Compound Semiconductors and Their Alloys*, J. Appl. Phys. **89**, 5815 (2001).
- [82] A. M. Witowski, K. Pakuła, J. M. Baranowski, M. L. Sadowski, and P. Wyder, *Electron Effective Mass in Hexagonal GaN*, Appl. Phys. Lett. **75**, 4154 (1999).
- [83] B. K. Meyer, H. Alves, D. M. Hofmann, W. Kriegseis, D. Forster, F. Bertram, J. Christen, A. Hoffmann, M. Straßburg, M. Dworzak, U. Haboek, and A. V. Rodina, *Bound Exciton and Donor-Acceptor Pair Recombinations in ZnO*, Phys. Status Solidi Basic Res. **241**, 231 (2004).
- [84] Y. Wang, W. Tang, J. Zhu, and J. Liu, *Strain Induced Change of Band Structure and Electron Effective Mass in Wurtzite ZnO: A First-Principles Study*, Comput. Mater. Sci. **99**, 145 (2015).
- [85] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau, and Y. Yamamoto, *Nonequilibrium Condensates and Lasers without Inversion: Exciton-Polariton Lasers*, Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **53**, 4250 (1996).
- [86] L. S. Dang, D. Heger, R. André, F. Bœuf, and R. Romestain, *Stimulation of Polariton Photoluminescence in Semiconductor Microcavity*, Phys. Rev. Lett. **81**, 3920 (1998).
- [87] A. Pawlis, A. Khartchenko, O. Husberg, D. J. As, K. Lischka, and D. Schikora, *Large Room*

- Temperature Rabi-Splitting in a ZnSe/(Zn,Cd)Se Semiconductor Microcavity Structure*, Solid State Commun. **123**, 235 (2002).
- [88] N. Antoine-Vincent, F. Natali, D. Byrne, A. Vasson, P. Disseix, J. Leymarie, M. Leroux, F. Semond, and J. Massies, *Observation of Rabi Splitting in a Bulk GaN Microcavity Grown on Silicon*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **68**, 1533131 (2003).
- [89] 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*, Appl. Phys. Lett. **87**, (2005).
- [90] R. Balili, V. Hartwell, D. Snoke, L. Pfeiffer, and K. West, *Bose-Einstein Condensation of Microcavity Polaritons in a Trap*, Science (80-.). **316**, 1007 (2007).
- [91] D. Bajoni, P. Senellart, E. Wertz, I. Sagnes, A. Miard, A. Lemaître, and J. Bloch, *Polariton Laser Using Single Micropillar GaAs-GaAlAs Semiconductor Cavities*, Phys. Rev. Lett. **100**, (2008).
- [92] E. Wertz, L. Ferrier, D. D. Solnyshkov, P. Senellart, D. Bajoni, A. Miard, A. Lemàtre, G. Malpuech, and J. Bloch, *Spontaneous Formation of a Polariton Condensate in a Planar GaAs Microcavity*, Appl. Phys. Lett. **95**, (2009).
- [93] P. Tsotsis, P. S. Eldridge, T. Gao, S. I. Tsintzos, Z. Hatzopoulos, and P. G. Savvidis, *Lasing Threshold Doubling at the Crossover from Strong to Weak Coupling Regime in GaAs Microcavity*, New J. Phys. **14**, (2012).
- [94] R. Shimada, J. Xie, V. Avrutin, Ü. Özgür, and H. Morkoç, *Cavity Polaritons in ZnO-Based Hybrid Microcavities*, Appl. Phys. Lett. **92**, (2008).
- [95] S. Faure, C. Brimont, T. Guillet, T. Bretagnon, B. Gil, F. M̀dard, D. Lagarde, P. Disseix, J. Leymarie, J. Zúiga-Préz, M. Leroux, E. Frayssinet, J. C. Moreno, F. Semond, and S. Bouchoule, *Relaxation and Emission of Bragg-Mode and Cavity-Mode Polaritons in a ZnO Microcavity at Room Temperature*, Appl. Phys. Lett. **95**, (2009).
- [96] K. Sebald, A. Trichet, M. Richard, L. S. Dang, M. Seyfried, S. Klemmt, C. Kruse, and D. Hommel, *Optical Polariton Properties in ZnSe-Based Planar and Pillar Structured Microcavities*, Eur. Phys. J. B **84**, 381 (2011).
- [97] G. Oohata, T. Nishioka, D. Kim, H. Ishihara, and M. Nakayama, *Giant Rabi Splitting in a Bulk CuCl Microcavity*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **78**, (2008).
- [98] S. Christopoulos, G. B. H. Von Högersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Christmann, R. Butté, E. Feltn, J. F. Carlin, and N. Grandjean, *Room-Temperature Polariton Lasing in Semiconductor Microcavities*, Phys. Rev. Lett. **98**, (2007).
- [99] G. Christmann, R. Butté, E. Feltn, J. F. Carlin, and N. Grandjean, *Room Temperature Polariton Lasing in a GaNAlGaN Multiple Quantum Well Microcavity*, Appl. Phys. Lett. **93**, (2008).
- [100] F. 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**, (2013).
- [101] A. Trichet, E. Durupt, F. Médard, S. Datta, A. Minguzzi, and M. Richard, *Long-Range Correlations in a 97% Excitonic One-Dimensional Polariton Condensate*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater.

- Phys. **88**, (2013).
- [102] D. Xu, W. Xie, W. Liu, J. Wang, L. Zhang, Y. Wang, S. Zhang, L. Sun, X. Shen, and Z. Chen, *Polariton Lasing in a ZnO Microwire above 450 K*, Appl. Phys. Lett. **104**, (2014).
- [103] S. Kéna-Cohen and S. R. Forrest, *Room-Temperature Polariton Lasing in an Organic Single-Crystal Microcavity*, Nat. Photonics **4**, 371 (2010).
- [104] J. D. Plumhof, T. Stöferle, L. Mai, U. Scherf, and R. F. Mahrt, *Room-Temperature Bose-Einstein Condensation of Cavity Exciton-Polaritons in a Polymer*, Nat. Mater. **13**, 247 (2014).
- [105] C. P. Dietrich, A. Steude, L. Tropsch, M. Schubert, N. M. Kronenberg, K. Ostermann, S. Höfling, and M. C. Gather, *An Exciton-Polariton Laser Based on Biologically Produced Fluorescent Protein*, Sci. Adv. **2**, (2016).
- [106] T. Ellenbogen and K. B. Crozier, *Exciton-Polariton Emission from Organic Semiconductor Optical Waveguides*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **84**, (2011).
- [107] P. M. Walker, L. Tinkler, M. Durska, D. M. Whittaker, I. J. Luxmoore, B. Royall, D. N. Krizhanovskii, M. S. Skolnick, I. Farrer, and D. A. Ritchie, *Exciton Polaritons in Semiconductor Waveguides*, Appl. Phys. Lett. **102**, (2013).
- [108] M. Sich, D. N. Krizhanovskii, M. S. Skolnick, A. V. Gorbach, R. Hartley, D. V. Skryabin, E. A. Cerda-Méndez, K. Biermann, R. Hey, and P. V. Santos, *Observation of Bright Polariton Solitons in a Semiconductor Microcavity*, Nat. Photonics **6**, 50 (2012).
- [109] P. M. Walker, L. Tinkler, B. Royall, D. V. Skryabin, I. Farrer, D. A. Ritchie, M. S. Skolnick, and D. N. Krizhanovskii, *Dark Solitons in Waveguide Polariton Fluids Shed Light on Interaction Constants*, ArXiv (2017).
- [110] P. Bhattacharya, T. Frost, S. Deshpande, M. Z. Baten, A. Hazari, and A. Das, *Room Temperature Electrically Injected Polariton Laser*, Phys. Rev. Lett. **112**, (2014).
- [111] B. Deveaud, *Comment on "Room Temperature Electrically Injected Polariton Laser,"* Physical Review Letters.
- [112] I. Pelant and J. Valenta, *Luminescence Spectroscopy of Semiconductors*, Vol. 9780199588 (2012).
- [113] S. A. Self, *Focusing of Spherical Gaussian Beams*, Appl. Opt. **22**, 658 (1983).
- [114] D. Reynolds, D. Look, B. Jogai, and C. Litton, *Neutral-Donor-Bound-Exciton Complexes in ZnO Crystals*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. (1998).
- [115] B. K. Meyer, J. Sann, S. Eisermann, S. Lautenschlaeger, M. R. Wagner, M. Kaiser, G. Callsen, J. S. Reparaz, and A. Hoffmann, *Excited State Properties of Donor Bound Excitons in ZnO*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. (2010).
- [116] R. Schmidt-Grund, A. Carstens, B. Rheinländer, D. Spemann, H. Hochmut, G. Zimmermann, M. Lorenz, M. Grundmann, C. M. Herzinger, and M. Schubert, *Refractive Indices and Band-Gap Properties of Rocksalt Mg XZn 1-XO (0.68 ≤ x ≤ 1)*, J. Appl. Phys. **99**, (2006).
- [117] F. Bassani, G. P. Parravicini, R. A. Ballinger, and J. L. Birman, *Electronic States and Optical Transitions in Solids*, Phys. Today **29**, 58 (1976).
- [118] C. W. Teng, J. F. Muth, Ü. Özgür, M. J. Bergmann, H. O. Everitt, A. K. Sharma, C. Jin, and J.

Narayan, *Refractive Indices and Absorption Coefficients of Mg_xZn_{1-x}O Alloys*, Appl. Phys. Lett. (2000).

[119] J. F. Kong, W. Z. Shen, Y. W. Zhang, C. Yang, and X. M. Li, *Resonant Raman Scattering Probe of Alloying Effect in ZnMgO Thin Films*, Appl. Phys. Lett. **92**, (2008).

[120] M. Law, D. J. Sirbuly, J. C. Johnson, J. Goldberger, R. J. Saykally, and P. Yang, *Nanoribbon Waveguides for Subwavelength Photonics Integration*, Science (80-.). (2004).

Annexes

Dans l'annexe A nous détaillons le principe de fonctionnement d'un laser classique par émission stimulée reposant sur l'inversion de la population. Les annexes B et C présentent les dispersions du mode polaritonique à 300K (en prenant l'indice ZnO constant ou dispersif) respectivement pour du massif et pour un guide d'onde. L'annexe D détaille le calcul de l'équation complexe du mode TE. L'annexe E est dédiée à la démonstration de l'expression du paramètre "force d'oscillateur excitonique restant" et à sa variation du gap comme l'inverse de la racine cubique de ce paramètre. L'annexe F présente les études en Fourier détaillées des guides ZMH1716, ZMH1715 et ZMH1817-B à l'instar de qui a été fait pour le ZMH1714-A au chapitre III-4. L'annexe G détaille le modèle analytique permettant de calculer les distances de propagation du ZMH1714-A à partir des fissures naturelles. Enfin, l'annexe H est consacrée à deux méthodes de mesures de propagations à partir des réseaux longs, considérées comme moins fiables que la méthode présentée au chapitre III-8.1.

A) Laser par émission stimulée

Le terme LASER, acronyme de Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation, révèle que le fonctionnement du laser repose sur le processus d'émission stimulée, que nous allons tâcher de décrire en détail dans un système à 2 niveaux d'énergie avant de considérer un système viable à 3 niveaux d'énergie.

L'émission stimulée de photon est le processus par lequel un photon incident d'énergie $\hbar\omega_{21}$ provoque la transition d'un électron d'un niveau d'énergie E_2 vers un niveau E_1 $\hbar\omega_{21} = E_2 - E_1$. Au préalable, la population a dû être inversé, c'est-à-dire que la densité de population d'un état d'énergie supérieure est plus nombreuse que celle d'un niveau d'énergie inférieure.

Le photon incident d'énergie $\hbar\omega_{21}$ stimule la transition électronique et ainsi l'émission d'un photon également d'énergie $\hbar\omega_{21}$. Le processus d'amplification stimule l'émission de photons additionnels de même énergie.

Dans le processus d'émission stimulée (ou induite), l'absorption est un processus induit par le champ électromagnétique incident. Pour un système à deux niveaux d'énergie E_2 et E_1 et de population respective N_2 et N_1 , le processus d'absorption entraîne une variation de la population dN_2 du niveau 2 pendant un temps dt de :

$$dN_2 = \sigma_{12}\Gamma N_1 dt$$

Avec Γ le flux de photons incident Γ en $m^{-2}.s^{-1}$, σ_{12} la section efficace d'absorption en m^2

Au cours de ce processus, la population du niveau 1 diminue de la quantité dN_{1abs} :

$$dN_{1abs} = -\sigma_{12}\Gamma N_1 dt$$

La variation du flux de photon absorbés vaut :

$$d\Gamma_{abs} = \sigma_{12}\Gamma N_1 c dt$$

Où l'on considère des photons qui traversent une surface S pendant un temps dt occupant le volume $S c dt$.

L'émission induite consiste alors en la désexcitation d'un atome du niveau 2 sur le niveau 1 par un photon incident d'énergie $E_2 - E_1$.

De même, la variation de la population du niveau 2 pendant le temps dt s'écrit :

$$dN_2 = -\sigma_{12}\Gamma N_2 dt$$

Pour le flux de photons induit, on obtient :

$$d\Gamma_{ind} = \sigma_{12}\Gamma N_2 c dt$$

L'émission induite et l'émission spontanée sont deux processus fondamentalement différents.

Premièrement, dans l'émission spontanée, la présence préalable de photons n'est nullement nécessaire. En revanche, dans l'émission induite, c'est un photon incident qui déclenche le processus. L'émission induite est donc caractérisée par un taux proportionnel à Γ alors que le taux d'émission stimulée en est indépendant.

Deuxièmement, le photon créé par émission induite possède exactement les mêmes propriétés que le photon déclencheur (fréquence, direction, phase, polarisation). L'émission spontanée est à l'inverse un processus aléatoire au caractère désordonné conduisant à un rayonnement dont toutes les directions sont équiprobables.

Le problème de l'émission spontanée est qu'elle tend à réduire l'amplification lumineuse puisqu'elle vide le niveau 2. Le rapport entre l'émission induite et l'émission spontanée dépend de la durée de vie du niveau 2 et du carré de la longueur d'onde. Ainsi, si l'émission induite est le phénomène prépondérant dans l'infrarouge, l'émission spontanée est loin d'être négligeable dans l'ultraviolet.

A présent, nous allons expliquer comment l'introduction d'un troisième état intermédiaire couplé à la différence des temps de relaxation entre les niveaux va permettre d'atteindre l'inversion de population.

Sous certaines conditions, un système quantique à trois niveaux d'énergie permet d'atteindre l'inversion de population désirée tel que présentée sur la figure ci-dessous :

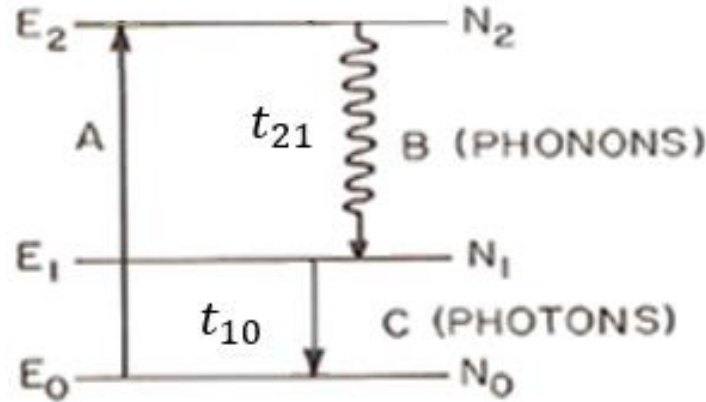


Figure A - 1. Diagramme à 3 niveaux d'énergie E_0 , E_1 et E_2 avec leur population d'électron. La transition laser C émet des photons d'énergie $\hbar\omega_{10} = E_1 - E_0$.

Un photon incident d'énergie $\hbar\omega_{20}$ excite un électron de l'état 0 (fondamental) à l'état 2 (le plus excité) schématisé par la transition fléchée A. La transition B du niveau 2 vers le niveau 1 (excité inférieur) n'est pas radiative (libération de phonons dans le cristal) et est caractérisé par un temps de vie t_{21} . La transition C est radiative et décrit la désexcitation d'un électron du niveau 1 vers le niveau 0, caractérisé par le temps de vie t_{10} . Les populations d'électrons des trois niveaux sont notées N_2 , N_1 et N_0 .

L'absorption d'un photon d'énergie $\hbar\omega_{10}$ est susceptible de façon équiprobable de conduire à la transition $E_0 \rightarrow E_1$ plutôt que de stimuler l'émission d'un photon additionnel lors de la transition $E_1 \rightarrow E_0$.

Dans le système à deux niveaux d'énergie E_2 et E_0 , un photon incident d'énergie $E_2 - E_0$ remplissait au plus le niveau E_2 à 50%.

Pour cela, il faut que le taux de déclin des électrons de l'état 2 vers l'état 1 soit plus rapide que le taux de déclin de l'état 1 vers l'état 0. Autrement dit les temps de relaxation doivent vérifier : $t_{10} \gg t_{21}$.

L'énergie libérée, par unité de volume, dû à l'émission stimulée est égale à $\hbar\omega_{10}N_1P_{10}$ avec P_{10} la probabilité de transition par unité de temps de l'énergie stimulée associée à la transition $E_1 \rightarrow E_0$. De la même manière, l'énergie absorbée dû à l'absorption d'un photon d'énergie $\hbar\omega_{10}$ est égale à $\hbar\omega_{10}N_0P_{01}$ avec P_{01} la probabilité de transition par unité de temps de l'énergie absorbée associée à la transition $E_0 \rightarrow E_1$.

Les probabilités de transition étant égales, la différence entre ces deux quantités d'énergie est égale à $\hbar\omega_{10}P_{10}(N_1 - N_0)$. Ainsi lorsque $N_1 > N_0$, on a atteint la condition d'inversion de population ; l'énergie du système augmente par émission stimulée et l'amplification photonique a lieu.

Cela signifie qu'une énergie considérable doit être apportée dans la transition d'excitation A pour réussir à inverser la population. Cependant, le processus est auto-limitant. En effet, l'état fondamental est compliqué à vider puisqu'il se repeuple dès que le laser fonctionne.

Un système à quatre niveaux d'énergie permet de contourner cet inconvénient tel que représenté figure A - 2. Il suffit alors que les temps de relaxation vérifient :

$$t_{21} \gg t_{32}, t_{10},$$

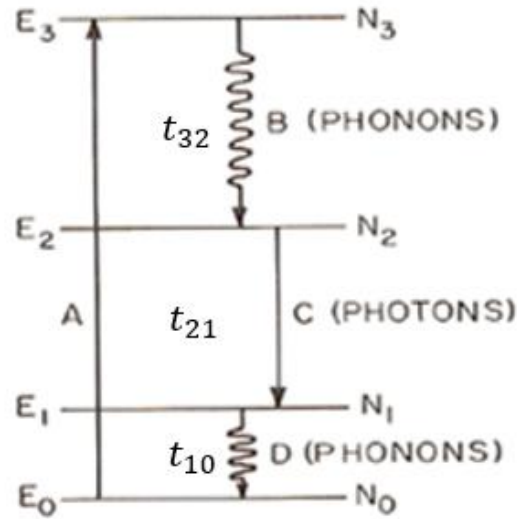


Figure A – 2. Diagramme à 4 niveaux d'énergie E_0, E_1, E_2 et E_3 avec leur population d'électron. La transition laser C émet des photons d'énergie $\hbar\omega_{21} = E_2 - E_1$.

Nous montrons que le mécanisme du laser à polaritons est différent dans le paragraphe I – 4.3) et I – 4.4) respectivement pour une microcavité et pour un guide d'onde.

B) Mode polaritonique TE à 300K dans ZnO massif

Le cas à basse température est modélisé au paragraphe I-3.1. Ci-dessous les dispersions polaritoniques dans ZnO massif sont données à température ambiante avec un indice constant (hors résonance non dispersif) ou bien avec un indice dispersif dont la partie réelle passe par un maximum au voisinage de l'énergie de bande interdite.

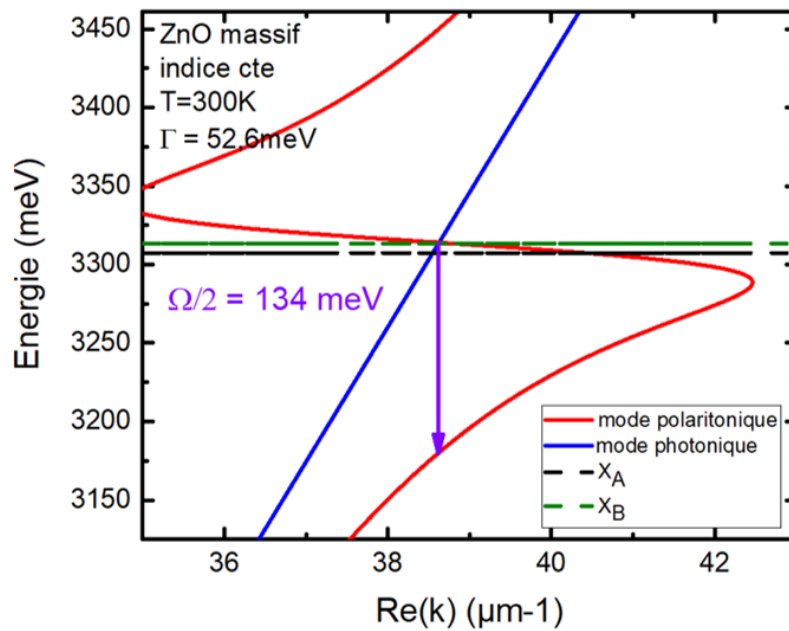


Figure B - 1. Dispersion du mode polaritonique dans ZnO massif à 300K en prenant un indice constant égal à 2.3.

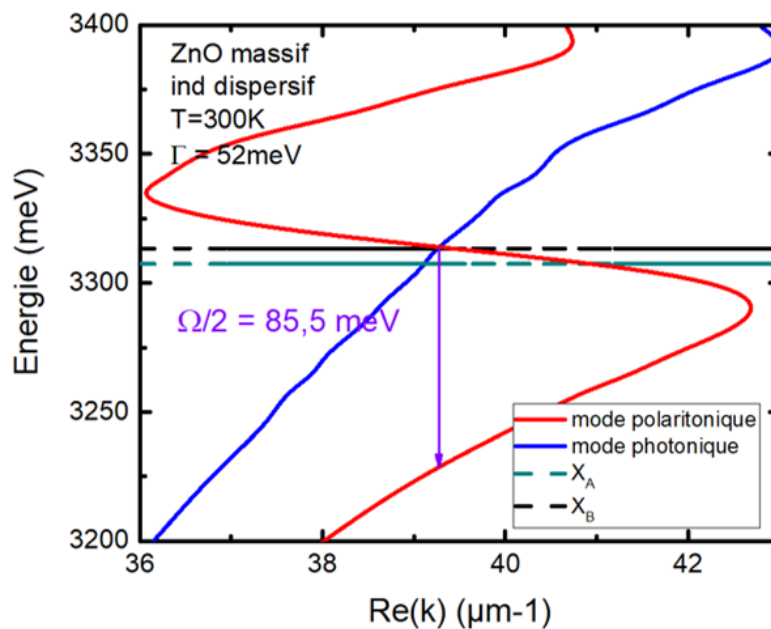


Figure B - 2. Dispersion du mode polaritonique dans ZnO massif à 300K en prenant un indice dispersif.

C) Mode polaritonique TE à 300K dans un guide ZnO

Le cas à basse température est modélisé au paragraphe I-3.2.c.i). Ci-dessous les dispersions polaritoniques dans un guide ZnO sont données à température ambiante avec un indice constant (hors résonance non dispersif) ou bien avec un indice dispersif (dont la partie réelle passe par un maximum au voisinage de l'énergie de bande interdite).

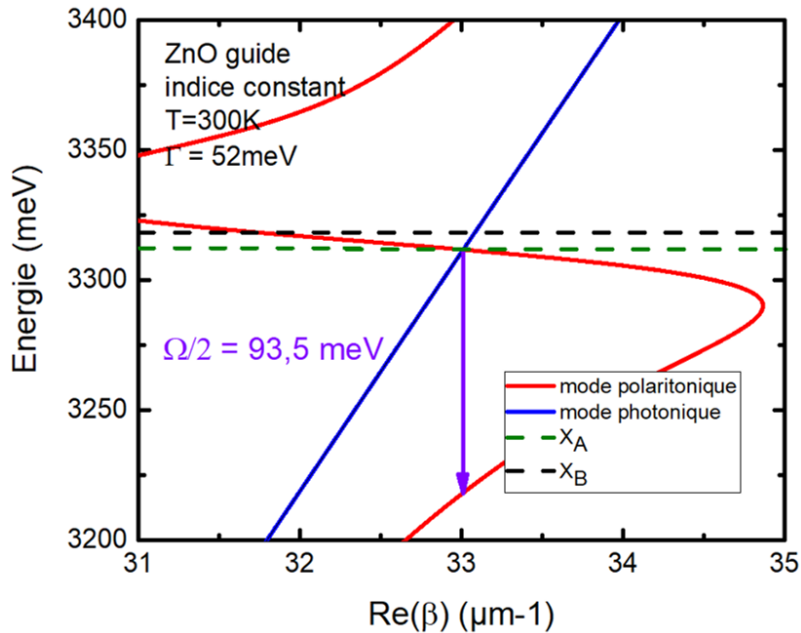


Figure C - 20. Dispersion du mode polaritonique TE dans un guide ZnO à 300K avec un indice constant égal à 2.3.

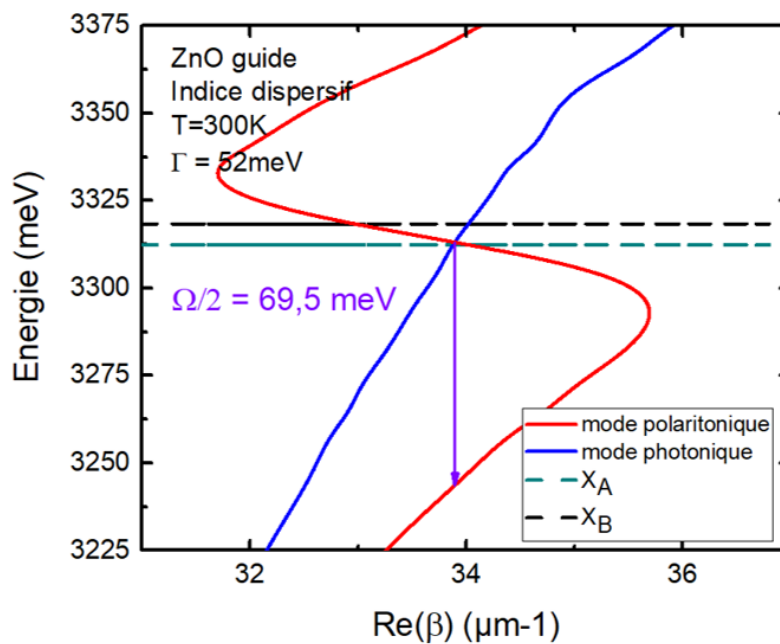


Figure C - 22. Dispersion du mode polaritonique TE dans un guide ZnO à 300K avec un indice dispersif

D) Calcul de l'équation complexe du mode TE

L'équation de propagation devient :

$$\frac{\partial^2 E_y(x)}{\partial x^2} + (k_0^2 \epsilon_r - \beta^2) E_y(x) = 0$$

Les équations du champ dans les différentes couches sont exprimées par :

$$x > 0 \quad E_y(x) = A e^{-K_1 x}$$

$$K_1^2 + k_0^2 n_0^2 - \beta^2 = 0$$

$$K_1 = \sqrt{\beta^2 - n_0^2 k_0^2}$$

$$0 > x > -d_1 \quad E_y(x) = B e^{-i\alpha_1 x} + C e^{i\alpha_1 x}$$

$$-\alpha_1^2 + k_0^2 n_1^2 - \beta^2 = 0$$

$$\alpha_1 = \sqrt{n_1^2 k_0^2 - \beta^2}$$

$$-d_1 > x > -d_2 \quad E_y(x) = D e^{-i\alpha_2(x+d_1)} + E e^{i\alpha_2(x+d_1)}$$

$$-\alpha_2^2 + k_0^2 n_2^2 - \beta^2 = 0$$

$$\alpha_2 = \sqrt{n_2^2 k_0^2 - \beta^2}$$

$$-d_2 > x \quad E_y(x) = F e^{K_2(x+d_2)}$$

$$K_2^2 + k_0^2 n_3^2 - \beta^2 = 0$$

$$K_2 = \sqrt{\beta^2 - n_3^2 k_0^2}$$

En écrivant la continuité de $E_y(x)$ et de $\frac{\partial}{\partial x} E_y(x)$ aux interfaces, on obtient :

En $x=0$

$$A = B + C$$

$$B = C \left(\frac{1 - i \frac{K_1}{\alpha_1}}{1 + i \frac{K_1}{\alpha_1}} \right)$$

En $x=-d_1$

$$D = \frac{1}{2} \left[B e^{i\alpha_1 x} \left(1 + \frac{\alpha_1}{\alpha_2} \right) + C e^{-i\alpha_1 x} \left(1 - \frac{\alpha_1}{\alpha_2} \right) \right]$$

$$E = \frac{1}{2} \left[B e^{i\alpha_1 x} \left(1 - \frac{\alpha_1}{\alpha_2} \right) + C e^{-i\alpha_1 x} \left(1 + \frac{\alpha_1}{\alpha_2} \right) \right]$$

En $x=-d_2$

$$D = e^{-2i\alpha_2(d_2-d_1)} \frac{-K_2 + i\alpha_2}{K_2 + i\alpha_2} E$$

On aboutit à une équation dont il faut trouver les zéros dans le plan complexe :

$$a(\beta, \omega) + ib(\beta, \omega) = 0$$

En remplaçant D et E par leur expression en fonction de B et C :

$$\left(\frac{1 - i \frac{K_1}{\alpha_1}}{1 + i \frac{K_1}{\alpha_1}} \right) (\alpha_2 + \alpha_1) - e^{-2i\alpha_2(d_2-d_1)} \frac{-K_2 + i\alpha_2}{K_2 + i\alpha_2} (\alpha_2 - \alpha_1) \left(\frac{1 - i \frac{K_1}{\alpha_1}}{1 + i \frac{K_1}{\alpha_1}} \right) + e^{-2i\alpha_1(d_2-d_1)} [(\alpha_2 - \alpha_1) - e^{-2i\alpha_1(d_2-d_1)} \left(\frac{-K_2 + i\alpha_2}{K_2 + i\alpha_2} \right) (\alpha_2 + \alpha_1)] = 0$$

On procède de même pour le mode TM en considérant la continuité de $B_y(x)$ et de $\frac{1}{\epsilon_{ex}} \frac{\partial}{\partial x} B_y(x)$ aux interfaces.

En $x=0$

$$A = B + C$$

$$B = C \left(\frac{1 - i \frac{K_1 n_1^2}{\alpha_1 n_0^2}}{1 + i \frac{K_1 n_1^2}{\alpha_1 n_0^2}} \right)$$

En $x=-d_1$

$$D = \frac{1}{2} \left[B e^{i\alpha_1 x} \left(1 + \frac{n_2^2 \alpha_1}{n_1^2 \alpha_2} \right) + C e^{-i\alpha_1 x} \left(1 - \frac{n_2^2 \alpha_1}{n_1^2 \alpha_2} \right) \right]$$

$$E = \frac{1}{2} [B e^{i\alpha_1 x} \left(1 - \frac{n_2^2 \alpha_1}{n_1^2 \alpha_2} \right) + C e^{-i\alpha_1 x} \left(1 + \frac{n_2^2 \alpha_1}{n_1^2 \alpha_2} \right)]$$

En $x = -d_2$

$$D = e^{-2i\alpha_2(d_2-d_1)} \frac{-n_2^2 K_2 + i n_3^2 \alpha_2}{n_2^2 K_2 + i n_3^2 \alpha_2} E$$

Cette équation pour les modes TM est :

$$\begin{aligned} & \left(\frac{1 - i \frac{K_1 n_1^2}{\alpha_1 n_0^2}}{1 + i \frac{K_1 n_1^2}{\alpha_1 n_0^2}} \right) (n_1^2 \alpha_2 + n_2^2 \alpha_1) - e^{-2i\alpha_2(d_2-d_1)} \frac{-n_2^2 K_2 + i n_3^2 \alpha_2}{n_2^2 K_2 + i n_3^2 \alpha_2} (n_1^2 \alpha_2 - n_2^2 \alpha_1) \left(\frac{1 - i \frac{K_1 n_1^2}{\alpha_1 n_0^2}}{1 + i \frac{K_1 n_1^2}{\alpha_1 n_0^2}} \right) \\ & + e^{-2i\alpha_1(d_2-d_1)} [(n_1^2 \alpha_2 - n_2^2 \alpha_1) - e^{-2i\alpha_1(d_2-d_1)} \left(\frac{-n_2^2 K_2 + i n_3^2 \alpha_2}{n_2^2 K_2 + i n_3^2 \alpha_2} \right) (n_1^2 \alpha_2 + n_2^2 \alpha_1)] = 0 \end{aligned}$$

E) Paramètre "force d'oscillateur excitonique restant

La partie imaginaire de la constante diélectrique ε_2 , rapportée à l'élément de matrice optique $|P_{cv}|$, est donnée par :

$$\varepsilon_{2X} \equiv |P_{cv}|^2 |\varphi_0|^2 \delta(E - E_X)$$

On identifie $|\varphi_0| = \frac{1}{\sqrt{3(na_b)^3}}$ et on remplace la fonction Dirac par une fonction Lorentzienne normalisée $\delta(E - E_X) = \frac{k}{(E - E_X)^2 + (\frac{\gamma}{2})^2}$ avec E_X l'énergie des excitons quel que soit le pourcentage de force d'oscillateur excitonique restant F_{osc} et k est la constante de normalisation

$$\varepsilon_{2X} \equiv \frac{k}{3n^3 a_b^3} \frac{1}{(E - E_X)^2 + (\frac{\gamma}{2})^2} = F_{osc} \frac{1}{(E - E_X)^2 + (\frac{\gamma}{2})^2} = \frac{K}{a_b^3} \frac{1}{(E - E_X)^2 + (\frac{\gamma}{2})^2}$$

On remarque que F_{osc} varie en $\frac{1}{a_b^3}$. Compte tenu de l'hypothèse fixée, la réduction du gap est égale à la réduction de E_b . Cherchons la dépendance de E_b en fonction de a_b . Dans le cadre du modèle hydrogénoïde appliqué à l'exciton, le rayon de Bohr est donné par :

$$a_b = \frac{\hbar^2 \varepsilon_0 \varepsilon_R}{\pi \mu e^2}$$

L'énergie de liaison est donnée par :

$$E_b = \frac{\mu e^4}{32\pi^2 (\varepsilon_0 \varepsilon_R)^2 \hbar^2}$$

En associant les deux équations précédentes :

$$E_b = \frac{e^2}{32\pi^3 \varepsilon_0 \varepsilon_R} \frac{1}{a_b} = \alpha \frac{1}{a_b}$$

D'où l'on tire la dépendance de F_{osc} en fonction de E_b :

$$F_{osc} = \frac{K}{a_b} = K \left(\frac{E_b}{\alpha} \right)^3 = \beta E_b^3$$

On introduit η la fraction de la force d'oscillateur restante comme le rapport de la force d'oscillateur F_{osc} à une puissance d'excitation donnée sur la force d'oscillateur non-écrantée à faible injection $F_{osc}(1)$ et l'équation précédente devient :

$$\eta = \frac{F_{osc}}{F_{osc}(1)}$$

$$E_b = \alpha (F_{osc})^{1/3} = \alpha (\eta F_{osc}(1))^{1/3} = E_b(\eta)$$

$$E_b(1) = \alpha (1 \cdot F_{osc}(1))^{1/3}$$

En faisant le rapport des deux équations précédentes, on tire l'évolution de l'énergie de liaison E_b [117].

$$\frac{E_b(\eta)}{E_b(1)} = \eta^{1/3}$$

Avec $E_b(1)$ l'énergie de liaison de l'exciton en l'absence d'écrantage sous faible injection égale à 60meV pour ZnO.

La variation de l'énergie du gap est donc une fonction affine de $\eta^{1/3}$.

$$\Delta E_g = -(E_b(1) - E_b(\eta)) = -E_b(1) \left(1 - \eta^{1/3}\right) = -60 \left(1 - \eta^{1/3}\right)$$

En résumé :

$$\varepsilon_{2X} = \eta \frac{F_{osc}(1)}{(E - E_X)^2 + \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2}$$

$$\Delta E_g = -E_b \left(1 - \eta^{1/3}\right)$$

F) Autres guides étudiés en Fourier

F.1) Etude du guide ZMH1716 : Spectres de μ PL et de μ R et étude de l'inhomogénéité des énergies excitoniques

Sur un premier morceau du guide, le spectre de la figure III–20 a été réalisé avec le spot d'excitation éclairant un réseau.

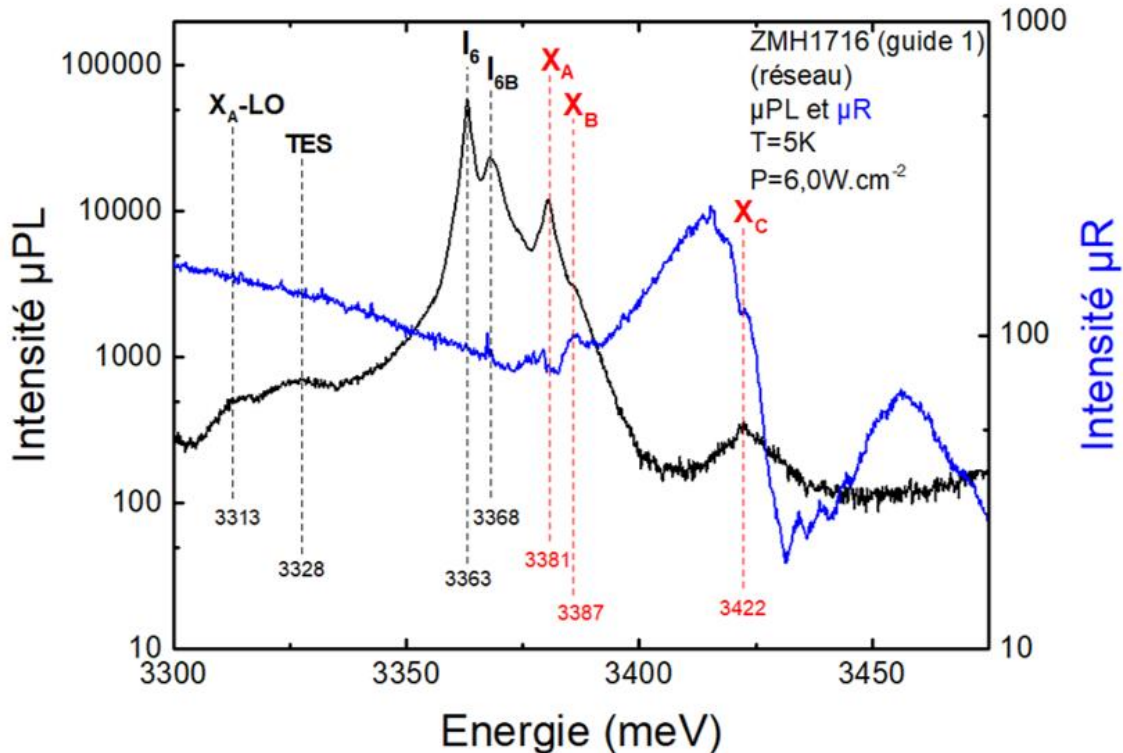


Figure F - 1. Spectres de μ R en bleu et de μ PL en noir du guide ZMH1716, réalisés sur le premier morceau du guide ZMH1716 sur un réseau (6-D4) à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 6,0W \cdot cm^{-2}$ avec le laser He-Cd. Les énergies excitoniques sont repérées en rouge.

Mesurées par μ PL sur le réseau, les énergies excitoniques de A, B et C sont respectivement de 3381, 3387 et de 3422meV. Par rapport à l'exciton A de référence du ZnO massif donné à 3375meV, l'effet de la contrainte est de 6meV. La transition I_6 est une transition de type D^0X_A où le donneur est identifié comme de l'aluminium [83] [115]. La transition I_{6B} implique le même type de donneur (Al) neutre sur lequel est piégé l'exciton B.

Un autre spectre enregistré au voisinage du réseau est tout à fait similaire à celui présenté figure III – 20. Les énergies sont globalement réduites d'à peine 1meV révélant une contrainte un peu plus faible.

Toujours sur le premier morceau du guide, le spectre de la Figure III–21 a été réalisé à mi-chemin entre deux réseaux.

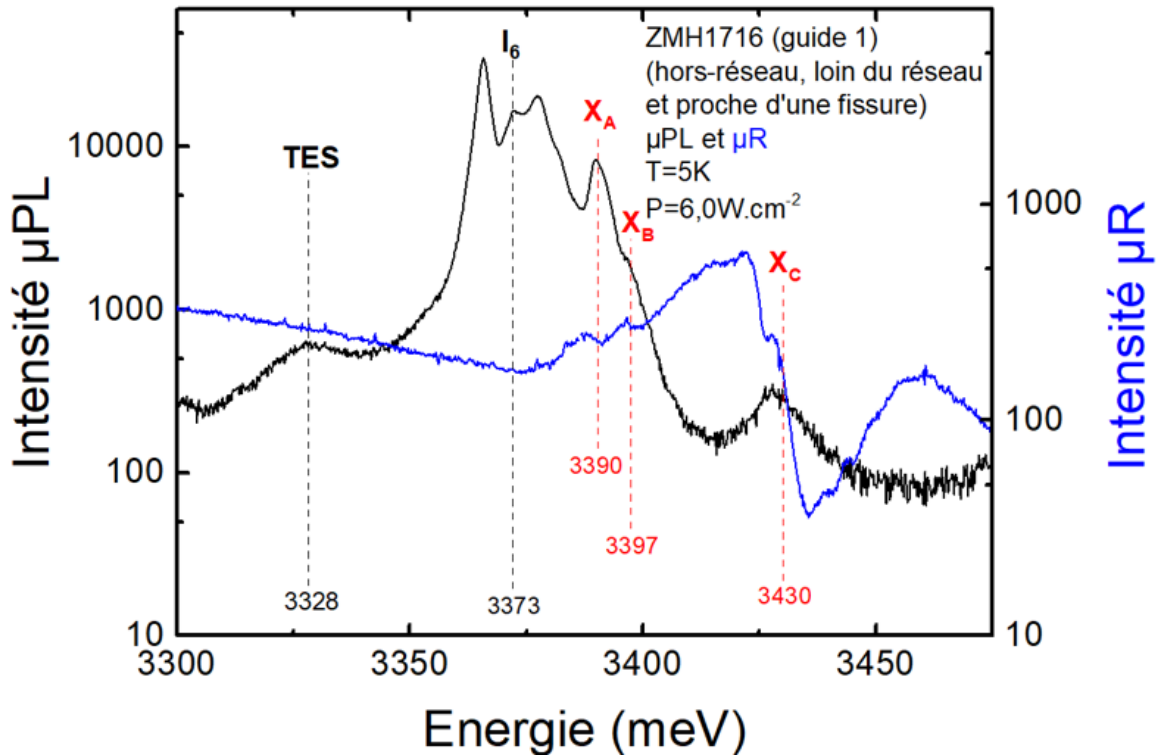


Figure F - 2. Spectres de μR en bleu et de μPL en noir du guide ZMH1716, réalisés sur le premier morceau du guide ZMH1716 hors-réseau (entre 5-D4 et 6-D4) à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 6.0W \cdot cm^{-2}$. Les énergies excitoniques sont repérées en rouge.

Mesurées loin du réseau précédent à environ $100\mu m$ de distance, à mi-chemin entre le réseau précédent et le réseau adjacent sur une même ligne, le spectre obtenu présente davantage de raies qui peuvent s'expliquer par deux contributions : une contribution dû à ZnO fortement contraint et une contribution dû à ZnO moins contraint. Les énergies excitoniques de A, B et C pour cette dernière contribution sont repérées respectivement à 3390, 3397 et de 3430meV, soit 10 meV de plus que pour la mesure sur réseau. Cette différence d'une dizaine de meV est expliquée par la position de la mesure, proche d'une fissure. En effet, l'énergie des excitons augmente graduellement en se rapprochant des fissures qui relaxent la contrainte dans le cladding inférieur de ZnMgO ce qui a pour effet d'induire une contrainte compressive de la couche de ZnO.

Sur le second morceau du même échantillon, le spectre de la figure III-22 a été réalisé à mi-chemin entre deux réseaux.

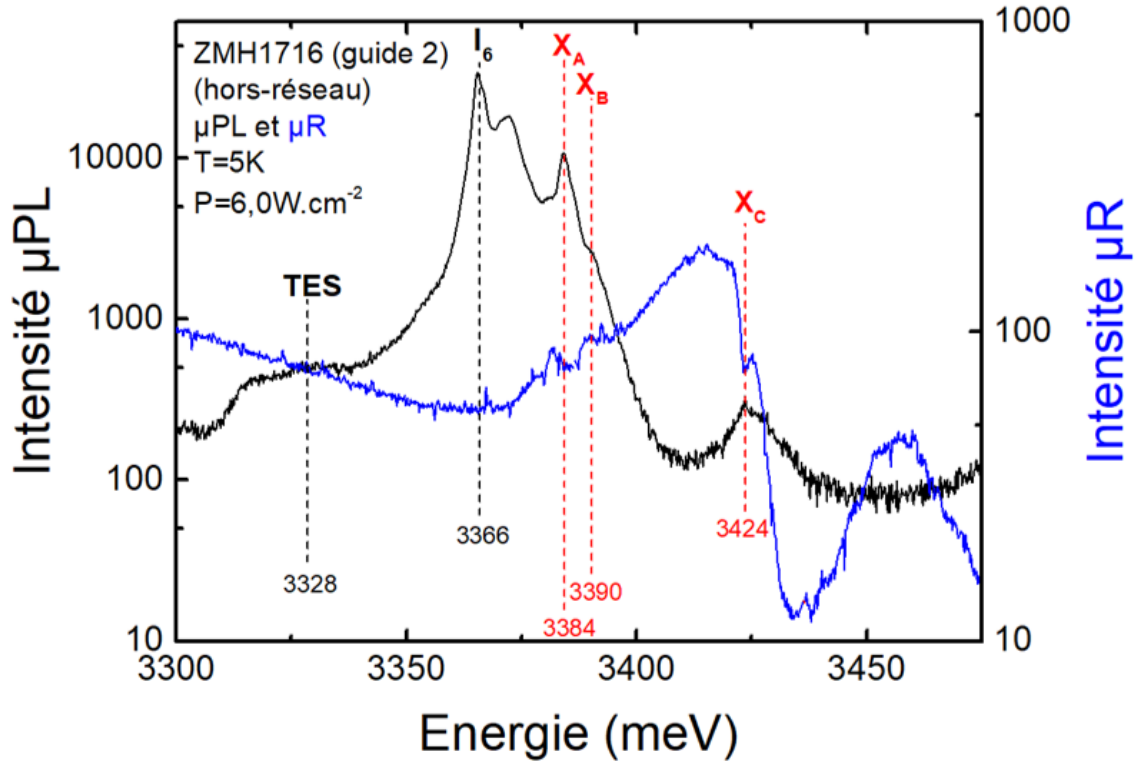


Figure F-3. Spectres de μR en bleu et de μPL en noir du guide ZMH1716, réalisés sur le deuxième morceau du guide ZMH1716 hors-réseau (entre 5-D4 et 6-D4) à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 6,0W \cdot cm^{-2}$. Les énergies excitoniques sont repérées en rouge.

Mesurées sur un autre bout du même échantillon et également hors-réseau, les énergies excitoniques de A, B et C sont intermédiaires par rapports aux résultats précédents, respectivement repérées à 3384, 3390 et 3424 meV. Cette étude des énergies excitoniques en fonction de la position donne une fourchette de tolérance de 0 à 10meV pour les énergies excitoniques qui seront utilisées lors de nos modélisations des dispersions expérimentales puisque même si la mesure est a priori loin d'une fissure, rien ne permet d'exclure la présence de fissures souterraines ajoutant quelques meV aux énergies excitoniques.

F.2) Etude du guide ZMH1715 : Spectre de μ PL et de μ R

L'exciton A est repéré à 3385meV, l'exciton B à 3391meV et l'exciton C à 3425meV, soit 1 à 2 meV plus haut que les excitons du ZMH1714-A. La position de l'état excité de A est également repérée par des pointillés noirs, situé à 45 meV au-dessus de l'état fondamental de A, ce qui correspond bien aux trois-quarts de l'énergie de liaison (60meV) en accord avec la théorie.

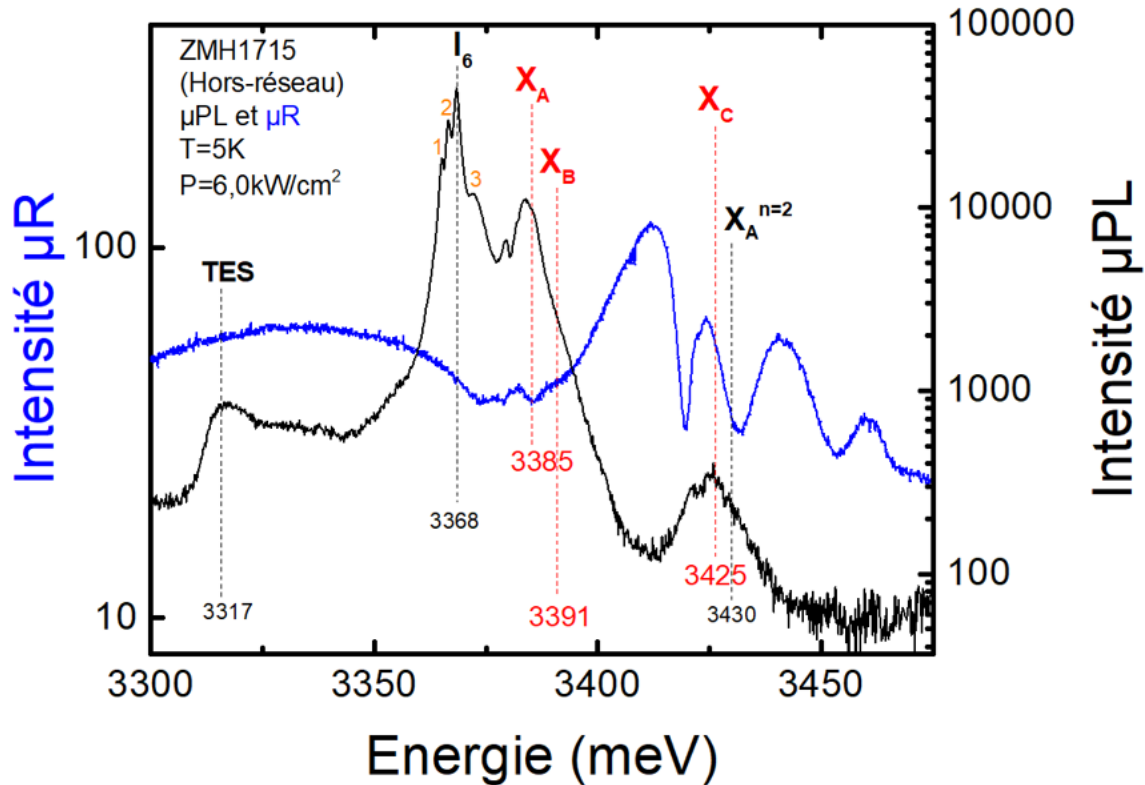


Figure F-6. Spectres de μ R en bleu et de μ PL en noir du guide ZMH1715 hors-réseau à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 6,0W \cdot cm^{-2}$ avec le laser He-Cd. Les énergies excitoniques sont repérées en rouge.

On note une meilleure définition des pics déjà identifiés pour le ZMH1714-A et ZMH1716 et l'apparition de nouveaux pics. Une faible variation de la contrainte n'est pas à exclure ; par exemple, il pourrait y avoir plusieurs pics pour X_A soumis à des contraintes différentes.

Autre hypothèse, le pic noté 1 (3365meV) pourrait être une transition I_9 de type D^0X_A dont le donneur est l'indium. Les pics notés 2 (3367meV) et 3 (3372meV) pourraient correspondre aux transitions I_7 et I_{7B} , respectivement de type D^0X_A et D^0X_B où la nature de l'impureté est encore discutée mais il est fort probable qu'il s'agisse d'un halogène (F, Cl, Br, ou I) [114].

L'état excité $X_A^{n=2}$ a été repéré par des pointillés noirs à 3430meV, soit 45 meV au-dessus de l'état fondamental X_A , ce qui correspond bien aux trois-quarts de l'énergie de liaison (60meV) en accord avec la théorie.

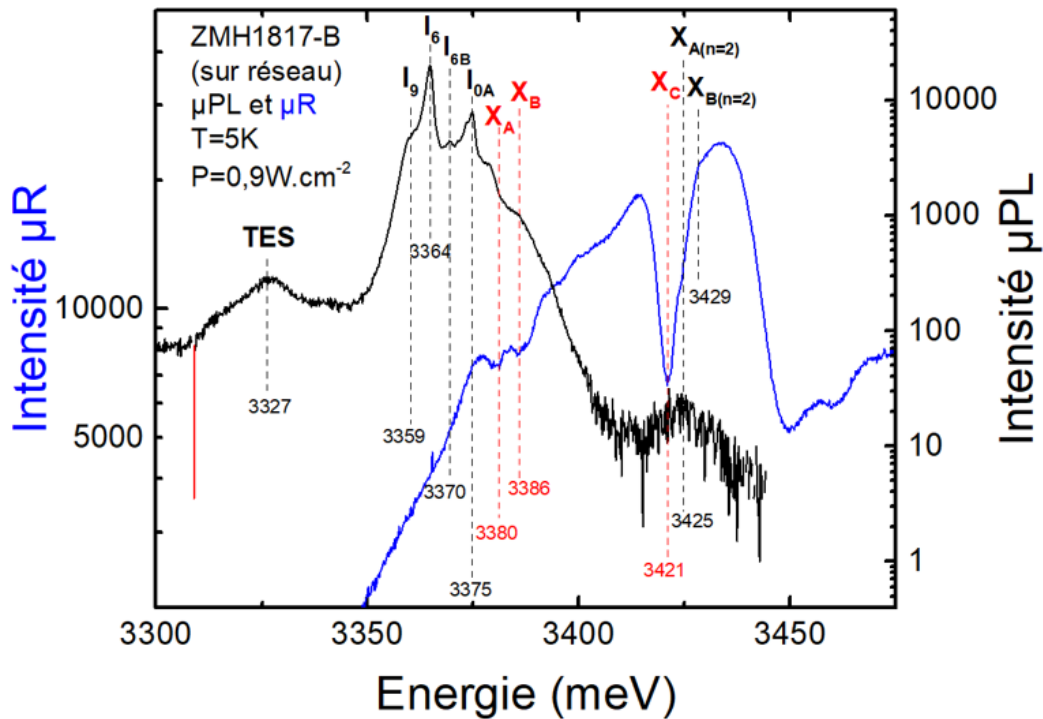
F.3) Etude du guide ZMH1817-B : Spectre de μ PL et de μ R

Figure F-8. Spectres de μ R en bleu et de μ PL en noir du guide ZMH1817-B, réalisés sur un réseau (2-D1) à 5K et à faible puissance d'excitation $P = 0,9 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ avec le laser He-Cd. Les énergies excitoniques sont repérées en rouge.

L'exciton A est repéré à 3380 meV, soit 4 meV plus bas que le ZMH1714-A, et donne un spectre de μ PL similaire à celui du ZMH1715. La transition I_{6B} est une transition de type $D^0 X_B$ où le donneur est identifié comme de l'aluminium. La position des états excités de A et de B sont également repérés par des pointillés noirs, ils sont situés respectivement 45 meV et 43 meV au-dessus des états fondamentaux de A et B, ce qui correspond bien aux trois-quarts de l'énergie de liaison (60 meV) en accord avec la théorie.

G) Analyses des distances de propagation mesurées sur ZMH1714-A

Expérimentalement, le mode guidé traverse trois fissures, notées 0-1-2 et formant deux cavités de longueur d_1 et d_2 . Les intensités du signal de luminescence extrait de ces fissures sont respectivement notées y_0 , y_1 et y_2 , et sont représentées figure III-34. Le faisceau incident d'intensité $I_{X=0,1,2}$ arrive perpendiculairement à la fissure X . Une partie du faisceau est réfléchi, l'autre est extraite par la fissure et la dernière est transmise à la fissure suivante. L'intensité est conservée selon l'expression :

$$I_X = RI_X + TI_X + \varphi I_X$$

Avec R le coefficient de réflexion des fissures, T leur coefficient de transmission et φ leur coefficient d'extraction. Nous formulons l'hypothèse de départ que T n'est pas négligeable et qu'au moins 50% du signal arrivant sur une fissure est transmis.

Plusieurs fonctions analytiques ont été testées Si la fonction analytique donne des distances de propagation négatives ou très dispersées, c'est-à-dire, sur plusieurs ordres de grandeur, elle n'est pas adaptée et les hypothèses faites sur R , T et φ sont à revoir.

Une fonction analytique adaptée est trouvée en prenant une extraction φ identique entre les fissures et de l'ordre de quelques pourcents, ce qui la rend négligeable par rapport au coefficient de réflexion. Une valeur exacte n'a pas besoin d'être attribuée au coefficient d'extraction φ vu qu'il se simplifie dans notre calcul. Le coefficient de réflexion R est non-négligeable et est pris identique pour toutes les fissures. La construction de cette fonction analytique est illustrée figure III-35.

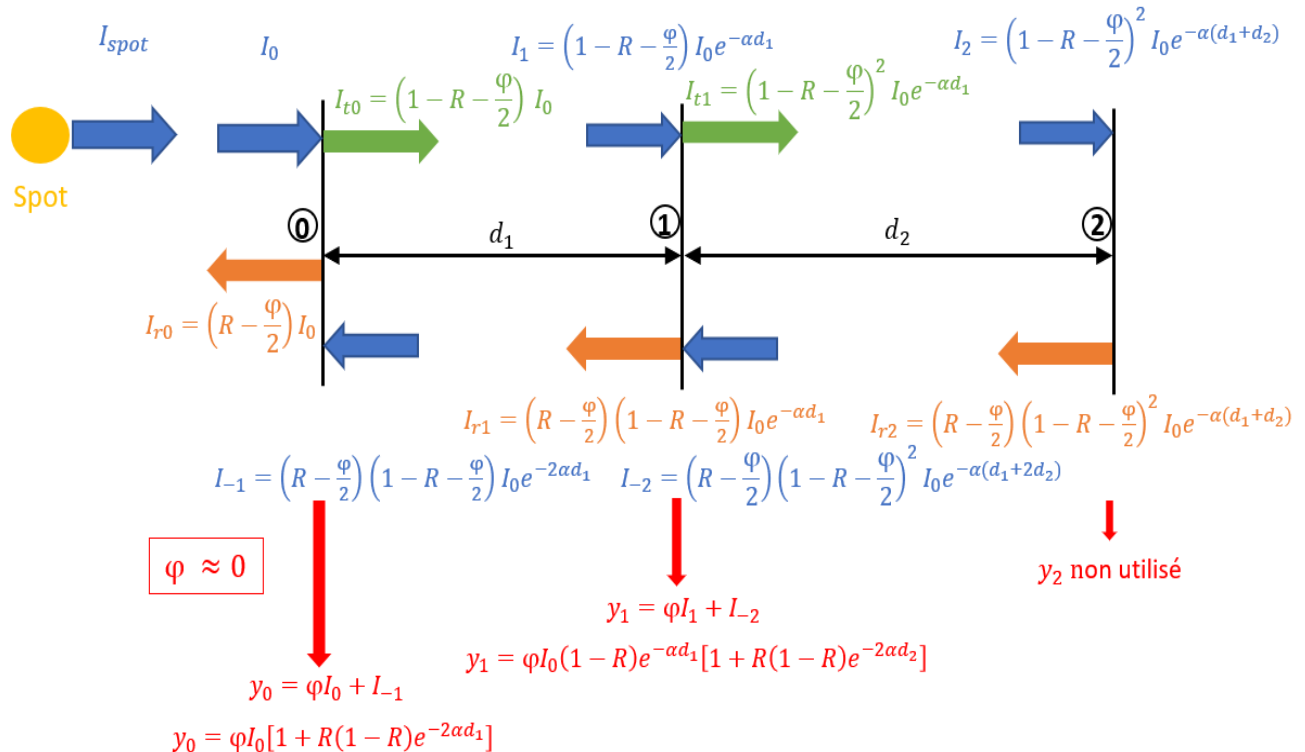


Figure G -1. Principe de la transmission du mode guidé partant du spot d'excitation et traversant trois fissures. L'intensité de luminescence extraite par une fissure prend en compte le signal réfléchi par la fissure suivante.

Prenons l'exemple de la fissure 0. L'intensité I_0 arrivant sur la fissure est en partie transmise avec une intensité I_{t0} , en partie réfléchié avec une intensité I_{r0} et quelques pourcents sont extraits correspondant à une intensité égale à φI_0 . On fait l'hypothèse que la perte intensité issue de l'extraction est répartie de façon égale entre la réflexion et la transmission. Ce n'est qu'un point de détail vu que φ est négligeable par rapport à R et $T = 1 - R$. D'où : $I_{t0} = \left(R - \frac{\varphi}{2}\right) I_0$ et $I_{r0} = \left(1 - R - \frac{\varphi}{2}\right) I_0$.

Pour avoir l'expression de y_0 , on tient aussi compte de la contribution de l'extraction venant du signal réfléchi par la fissure suivante dont l'intensité est notée I_{-1} . Lorsque le signal transmis par la fissure 0 arrive sur la fissure 1, son intensité devient $I_1 = I_{t0} e^{-\alpha d_1} = \left(1 - R - \frac{\varphi}{2}\right) I_0 e^{-\alpha d_1}$, ce qui donne une intensité réfléchié égale à $I_{r1} = \left(R - \frac{\varphi}{2}\right) \left(1 - R - \frac{\varphi}{2}\right) I_0 e^{-\alpha d_1}$, qui devient $I_{-1} = I_{r1} e^{-\alpha d_1} = \left(R - \frac{\varphi}{2}\right) \left(1 - R - \frac{\varphi}{2}\right) I_0 e^{-2\alpha d_1}$ en arrivant à la fissure 0. D'où $y_0 = \varphi I_0 + I_{-1}$.

L'intensité y_0 de l'émission lumineuse de la première fissure 0 est donc exprimée par :

$$y_0 = \varphi I_0 \left(1 + \left(1 - R - \frac{\varphi}{2}\right) \left(R - \frac{\varphi}{2}\right) e^{-2\alpha d_1}\right) \approx \eta \left(1 + (1 - R)(R) e^{-2\alpha d_1}\right)$$

On suit le même raisonnement pour l'intensité $y_1 = \varphi I_1 + I_{-2}$ de la fissure suivante 1 :

$$y_1 = \left(1 - R - \frac{\varphi}{2}\right) e^{-\alpha d_1} \left(1 + \left(1 - R - \frac{\varphi}{2}\right) \left(R - \frac{\varphi}{2}\right) e^{-2\alpha d_2}\right) \approx \eta (1 - R) e^{-\alpha d_1} \left(1 + (1 - R) R e^{-2\alpha d_2}\right)$$

On définit la fonction $f(R, d_1, d_2, \alpha)$ implicite comme le rapport de y_0 sur y_1 :

$$f(R, d_1, d_2, \alpha) = \frac{y_0}{y_1} = \frac{(1 + (1 - R) R e^{-2\alpha d_1})}{(1 - R) e^{-\alpha d_1} (1 + (1 - R) R e^{-2\alpha d_2})}$$

Remarquons que I_0 n'intervient plus dans l'expression de la fonction f . Cela s'explique par le fait que l'absorption, ne dépend pas directement l'intensité I_0 , mais de sa répartition entre partie réfléchié et transmise, et du rapport des intensités extraites par les fissures. De même l'extraction φ se simplifie puisque nous faisons l'hypothèse qu'elle est identique à toutes les fissures.

Le coefficient de réflexion résulte d'un compromis entre le cas simple où seule la réflexion sur la première face d'une fissure est considérée, donnant $R = 0,167$ ($n_{zn0} = 2,4$), et le cas où l'on ajoute la contribution de la réflexion sur la deuxième face de la fissure, donnant $R = 0,3$ ($n_{zn0} = 2,4$). Ce deuxième cas est une borne maximale où l'on suppose l'absence d'extraction. On calcule les distances en prenant $R = 0,25$. La fonction f est représentée sur la figure suivante dans l'exemple où $d_1 = 16,7\mu m$ et $d_2 = 25\mu m$.

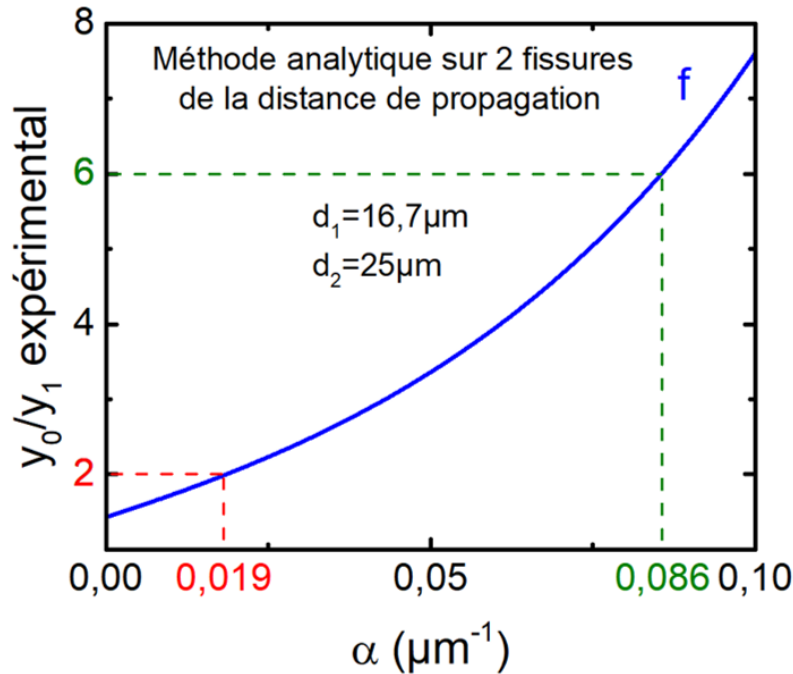


Figure G -2. Détermination de l'absorption à partir du rapport d'intensité de la luminescence extraite par deux fissure successives grâce à la fonction analytique f en prenant $d_1 = 16,7\mu\text{m}$ et $d_2 = 25\mu\text{m}$.

Plus le rapport $\left(\frac{y_0}{y_1}\right)$ est élevé, plus la distance de propagation est faible. En pointillés rouges est présenté le cas $\left(\frac{y_0}{y_1}\right) = 2$, lorsque l'intensité de luminescence d'une fissure à la suivante est réduite de moitié, la valeur de l'absorption est de $\alpha_R = 0,019 \mu\text{m}^{-1}$, ce qui correspond à une distance de propagation de $d_R = \frac{1}{\alpha_R} = 52\mu\text{m}$. Lorsque l'intensité de luminescence d'une fissure n'est que le sixième de la fissure précédente $\left(\frac{y_0}{y_1}\right) = 6$, $\alpha_V = 0,086 \mu\text{m}^{-1}$, soit $d_V = \frac{1}{\alpha_V} = 11,6\mu\text{m}$. En appliquant la méthode analytique aux intensités de luminescence du système à deux fissures présentée figure III-34., on aboutit aux distances de propagation de la figure III-36 au paragraphe III-8.1.

Notons qu'un modèle à trois fissures peut être envisagé faisant intervenir y_{01} et y_{12} . Son principal avantage est de ne pas nécessiter de fonction analytique pour calculer l'absorption. Cette dernière est de la forme $\alpha = \frac{\ln(y_{10}) - \ln(y_{21})}{d_2 - d_1}$ (le facteur exprimant la réflexion de la fissure suivante n'est pas inclus). Malheureusement, ce modèle nécessite des fissures d'extraction similaire. Autrement lorsque $y_{10} < y_{21}$, $\alpha < 0$, ce qui donne des distances de propagations négatives. En plus, il existe un défaut supplémentaire de ce modèle lorsque $d_2 \approx d_1$; on trouve des distances de propagations de l'ordre de $100\mu\text{m}$. Lorsque l'extraction des fissures est similaire et les cavités de taille suffisamment différente, les distances de propagations sont dans la même fourchette que celle calculées par la méthode à deux fissures avec une fonction analytique.

H) Analyses des distances de propagation mesurées sur ZMH1837

Toutes les conditions expérimentales (endroit de la mesure et puissance d'excitation de $P = 2535 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$) sont identiques au cas présenté à la figure III-31 au paragraphe III-8.1 mais la mesure des distances de propagations suit la méthode (β) à spot mobile et à détection fixe. Le spot part de la frontière avec le réseau puis s'en éloigne et la détection est fixe en bord du réseau afin de s'affranchir de défauts locaux potentiels, observés sur un certain nombre de réseau. L'intensité extraite en bord du réseau est mesurée pour une dizaine de position de spot. La rupture de pente des distances mesurées est toujours située vers 3350 meV. A des énergies supérieures à cette rupture, les distances de propagation sont autour de $10 \mu\text{m}$, similaires à celles mesurées par la méthode (α).

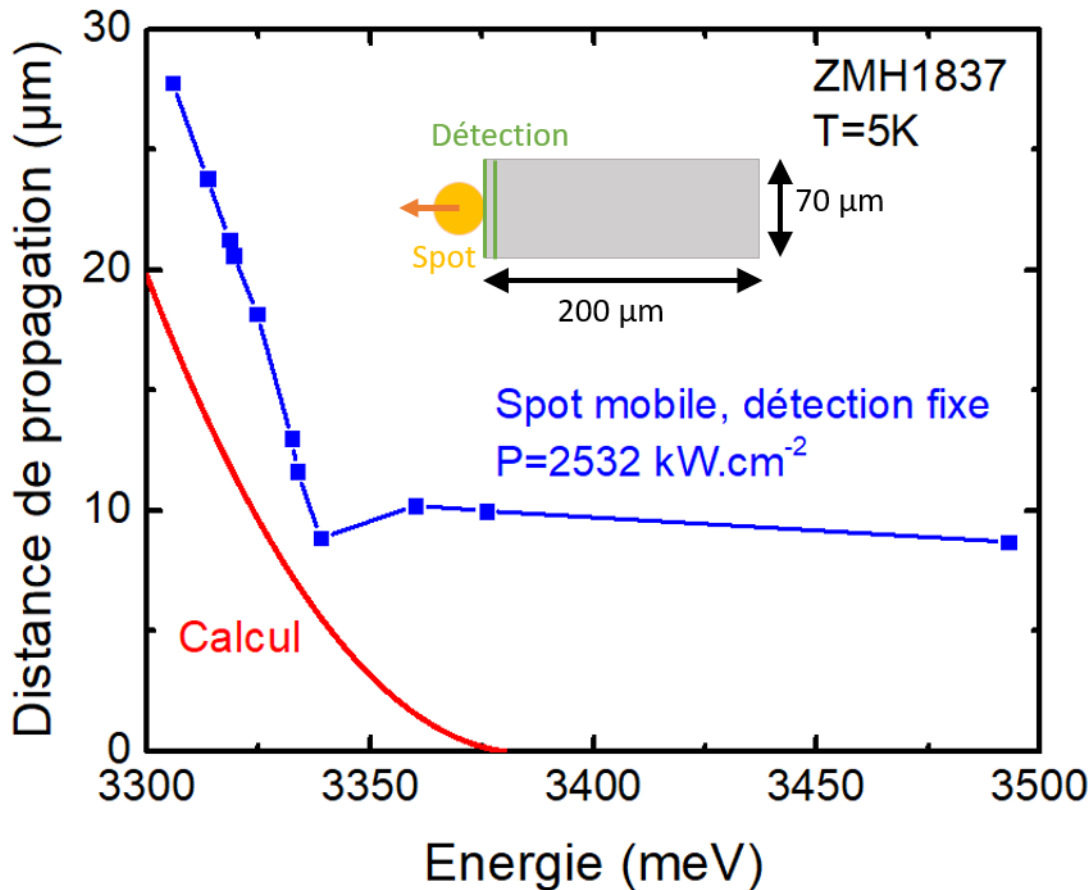


Figure H-1. Distance de propagation en fonction de l'énergie de l'émission du guide ZMH1837 déduite de la réduction de l'intensité. Le spot mobile est progressivement éloigné du bord du réseau D3-4 ($\lambda = 186 \text{ nm}$) et la détection est fixée sur le bord du réseau (méthode β).

A 3320 meV, on mesure une distance de propagation de $20,3 \mu\text{m}$ contre $35,3 \mu\text{m}$ pour la méthode (α). Les distances calculées (en rouge) à partir de la partie imaginaire de la dispersion de β suivent l'allure des distances mesurées (en bleu) jusqu'à une énergie de 3340 meV environ.

Ceci met en évidence les limitations de notre calcul à partir de 3340meV. En effet, au niveau de l'énergie des excitons, notre calcul de la dispersion β perd en précision et à l'énergie des excitons vers 3380meV diverge même, ce qui donne des distances très fluctuantes voire aberrantes avec des sauts de centaine de μm . A contrario, les distances mesurées sont très stables au-dessus de l'énergie des excitons ; 10,2 μm à 3360meV et 8.69 μm à 3493meV. Cette légère baisse peut s'expliquer par l'augmentation de l'absorption à haute énergie au-dessus des excitons. Accessoirement, c'est pour cette raison que notre méthode de lecture du Rabi consiste à prendre le demi-Rabi sous les excitons et à le doublant.

Dans la figure ci-dessous, la mesure des distances de propagation est toujours réalisée selon la méthode de mesure (β) sur le guide ZMH1837 étroit L8C1 ($L = 100\mu\text{m}$, $W \approx 30\mu\text{m}$) en fonction de l'énergie de l'émission.

Le spot de détection est déplacé le long du ridge L8C1 (voir l'imagerie par microscopie optique) et éloignée progressivement de la détection qui est positionnée d'une facette FIB servant d'extracteur de la luminescence et gravée au bout du ridge. Par rapport aux mesures réalisées sur ZMH1714-A à la figure III-31 au paragraphe III-8.1, la puissance d'excitation est plus faible et s'élève à $P = 1076\text{kW}\cdot\text{cm}^{-2}$ car le signal de luminescence est plus intense que pour le réseau d'extraction longs, ce qui permet de détecter un signal lorsque le spot se trouve à plusieurs dizaines de μm de la facette FIB.

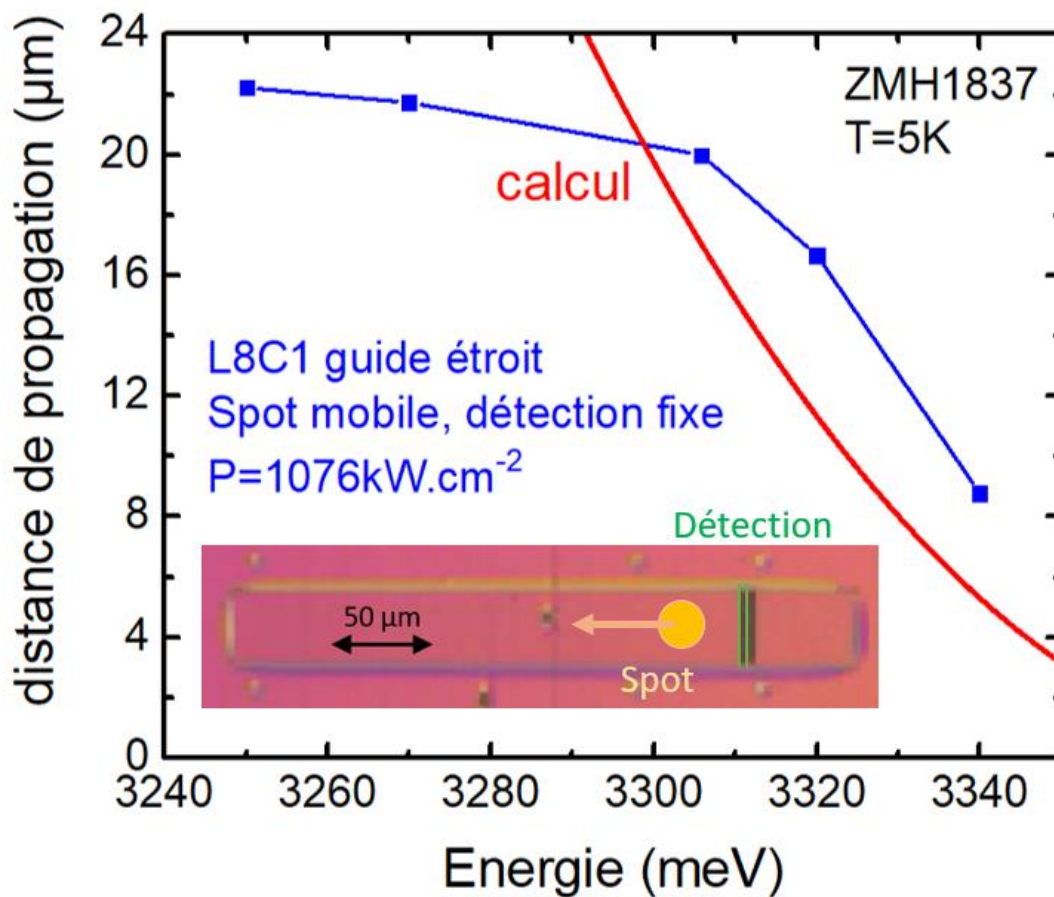


Figure H – 2. Distance de propagation des polaritons dans le guide ZMH1837 étroit L8C1 ($L = 100\mu\text{m}$, $W \approx 30\mu\text{m}$) en fonction de l'énergie de l'émission. Le spot est mobile et la fenêtre de détection est fixe (méthode β).

Les distances de propagation expérimentales (courbe bleue), mesurées à 5K, sont de l'ordre de 20 μm à basse énergie et diminuent progressivement à 8 μm vers 3340meV (40meV sous les excitons). On remarque une rupture nette de la pente vers 3305meV. A plus basse énergie, entre 3270 et 3305meV, la distance de propagation passe de 22 à 20 μm , soit une perte d'à peine 2 μm .

A plus haute énergie, entre 3305 et 3340meV, pour une même augmentation de l'énergie de 35meV, on passe de 20 μm à 8,7 μm ; soit une perte de 12 μm . Cela est dû au fait qu'en se rapprochant de la résonance excitonique, la partie imaginaire de l'indice n'est plus pratiquement nulle et peut monter jusqu'à 5 (cf. figure III-11.b) entraînant une augmentation de l'absorption.

Remarquons que la partie imaginaire de notre indice de ZnO (avec excitons) n'est plus infime qu'à partir de 3350 meV, ce qui est 45meV au-dessus de la rupture de pente expérimentale. Il est possible que la partie imaginaire de notre indice soit sous-estimée juste avant le décollement observé à 3370meV.

Les distances peuvent être calculées (courbe rouge) de façon plus précise à partir de la relation $d = \frac{1}{2\text{Im}(\beta)}$, en prenant la partie imaginaire de la dispersion $E = f(\beta)$, représentée par exemple pour ZMH1714-A au paragraphe I – 3.2.d)i).

Les distances de propagation calculées sont surestimées par rapport à celles mesurées aux énergies inférieures à 3300meV puis s'en approchent à plus haute énergie en restant inférieures de quelques μm . Pour comparer aux autres mesures suivantes, réalisées avec un réseau extracteur, retenons qu'à 3320 meV, la distance de propagations est de 16.7 μm .

Résumé

Ce travail de thèse expérimental porte sur l'étude de la préservation du couplage fort dans des guides ZnO sous forte injection optique en vue de la réalisation d'un laser à polaritons à température ambiante. L'effet laser à polaritons est examiné dans des structures guidantes à base de ZnO en variant le confinement du champ électromagnétique grâce à la modification de l'épaisseur des claddings et de la couche active. Dans un premier temps, des expériences de spectroscopie combinant micro-photoluminescence en espace réel et en espace réciproque ont été effectuées sur des guides planaires ZnMgO/ZnO/ZnMgO épitaxiés sur substrat de ZnO plan m avec des réseaux d'extraction gravés en surface. La deuxième partie a consisté en l'étude de l'écrantage de l'interaction coulombienne des excitons sous forte injection optique. En partant d'une dispersion servant de référence (pas d'écrantage) réalisée à très basse puissance, l'écrantage progressif de l'interaction coulombienne des excitons est étudié lorsque la puissance d'excitation augmente jusqu'à atteindre le seuil laser, voire plusieurs fois ce seuil. L'évolution de la courbe de dispersion du mode polaritonique est simulée numériquement en ajustant le pourcentage de force d'oscillateur restant et en tenant compte de la renormalisation du gap et de la réduction de l'énergie de liaison des excitons lorsque la densité des porteurs augmente. Lorsque le processus d'écrantage est total et que la force d'oscillateur restante tombe à 0%, les excitons laissent la place à un plasma de trous et d'électrons. Le couplage fort est perdu et le gain du laser ne peut plus être polaritonique. Cette transition se produit lorsqu'une densité critique de porteurs atteint celle correspondant à la transition de Mott. La dernière partie du travail de thèse concerne l'estimation de la distance de propagation des polaritons qui est de l'ordre de quelques dizaines de μm jusqu'à $70 \mu\text{m}$ permettant une implémentation plus facile et plus directe des circuits intégrés à polaritons.

Mots clés : Matière condensée, interaction lumière-matière, condensation de Bose-Einstein, laser à polaritons, exciton-polaritons, guide d'onde ZnO, écrantage excitonique, densité de Mott.

Abstract

This experimental thesis work deals with the study of strong coupling preservation in ZnO waveguides under high optical injection in order to realize polariton laser at 300K. The polariton lasing effect was investigated in ZnO waveguides whose cladding and active layers varied in thickness to control the electromagnetic field confinement. Firstly, spectroscopy experiments combining micro-photoluminescence in real and reciprocal space were carried out on ZnMgO/ZnO/ZnMgO planar waveguides grown on a m-plane ZnO substrate with extraction gratings etched on the surface. Secondly, the screening of Coulomb interaction under high optical injection was assessed through the measurement of the experimental dispersions of the guided mode extracted by a grating. Starting from a low temperature and low-density dispersion serving as reference (no screening) the excitation intensity was raised until lasing threshold and much above. The evolution of the polaritonic mode is simulated numerically by adjusting the remaining oscillator excitonic strength and by reducing the gap by an amount equal to the reduction of the reduction of excitonic binding energy. Once the screening is reached, strong coupling is lost, and the laser gain is no longer polaritonic; the excitonic oscillator strength drops to 0% and a plasma of uncorrelated electrons and holes is created. This transition occurs once a critical density is reached corresponding to the Mott density. Lastly, the propagation length of polaritons was measured and found to be of the order of a few tens of μm up to $70 \mu\text{m}$, which would allow for an easier and more direct implementation onto polaritonic integrated circuits.

Key words : Condensed matter, light-matter interaction, Bose-Einstein condensation, polariton laser, exciton-polaritons, ZnO waveguide, excitonic screening, Mott density