

Recherche du couplage fort lumière-matière dans des microcavités nitrurées

N. Antoine-Vincent

▶ **To cite this version:**

N. Antoine-Vincent. Recherche du couplage fort lumière-matière dans des microcavités nitrurées. Matière Condensée [cond-mat]. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2003. Français. NNT : . tel-00523220

HAL Id: tel-00523220

https://theses.hal.science/tel-00523220

Submitted on 4 Oct 2010

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

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

Numéro d'ordre : D. U. 1481

UNIVERSITE BLAISE PASCAL – CLERMONT-FERRAND II
(U.F.R. de Recherche Scientifique et Technique)

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES
N° 406

THESE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE
(Spécialité : Physique des matériaux)

par

Nadège ANTOINE-VINCENT
(Diplômée d'Etudes Approfondies de Physique)

Recherche du couplage fort lumière-matière dans des microcavités nitrurées

Soutenue publiquement le 19/12/2003 devant la commission d'examen :

Pierre DISSEIX	Invité
Jean-Yves DUBOZ	Rapporteur
Alexey KAVOKIN	Président
Joël LEYMARIE	Directeur de thèse
Henri MARIETTE	Rapporteur
Martine MIHAILOVIC	Examinateur
Fabrice SEMOND	Examinateur

A mes parents,
A mes frères David et Jason,
A mon mari Vincent,
Et à toute ma famille ...

Remerciements

Ce travail a été effectué au sein du Laboratoire des Sciences et Matériaux pour l'Electronique, et d'Automatique (LASMEA) dans l'équipe Opération Spectroscopie des Solides (OSS).

Mes premiers remerciements s'adressent à mon directeur de thèse, M. Joël LEYMARIE, Professeur à l'Université Blaise Pascal, pour la confiance qu'il a su m'accorder en m'accueillant au sein de son équipe, pour sa rigueur et sa pédagogie et pour ses précieux conseils qui m'ont permis de mener à bien ce travail.

J'exprime mes sincères remerciements à l'ensemble des membres du jury pour l'attention qu'ils ont porté à mon travail et pour avoir également accepté de participer à la commission d'examen.

Je tiens à remercier M. Alexey KAVOKIN, Professeur à l'Université Blaise Pascal, qui a présidé le jury de soutenance.

Je remercie également M. Henri MARIETTE, Directeur de Recherche au Laboratoire de Spectrométrie Physique de Grenoble, et M. Jean-Yves DUBOZ, Directeur de Recherche au Centre de Recherche sur l'Hétéroépitaxie et ses Applications (CRHEA) de Valbonne, d'avoir bien voulu être rapporteurs de ce travail.

Les résultats qui sont issus de ce travail sont les fruits d'une étroite collaboration avec les membres du CRHEA de Valbonne, en particulier, Fabrice SEMOND, Chargé de Recherche, Franck NATALI, Doctorant, Declan BYRNE, Post-doctorant, Mathieu LEROUX, Chargé de Recherche, et M. Jean MASSIES, Directeur de Recherche. Je les remercie tous sincèrement pour m'avoir permis de bénéficier d'échantillons d'excellente qualité sans lesquels ce travail n'aurait jamais vu le jour. Je les remercie également pour leur bonne humeur, leur sympathie et pour la confiance qu'ils ont eue en moi. Les nombreuses discussions que nous avons eues ensemble nous ont permis d'aboutir aux résultats que nous avons tous tant attendus.

Je tiens à remercier très chaleureusement M. Pierre DISSEIX et Mme Martine MIHAILOVIC, tous deux Maîtres de Conférence à l'Université Blaise Pascal. Ce fut un très grand plaisir de travailler avec eux. Je les remercie vraiment profondément pour leur dévouement, leur disponibilité et l'ambiance de travail très agréable qu'ils ont instaurée dès mon arrivée. Je les remercie pour le soutien et les encouragements qu'ils ont su m'apporter

dans les moments où j'en avais le plus besoin et en particulier dans les derniers mois précédant la soutenance.

Je veux adresser des remerciements tout particulier à M. Aimé VASSON, Ingénieur de Recherche au CNRS, pour son aide précieuse et ses conseils avisés concernant les expériences de spectroscopie. Je le remercie également pour sa sympathie, son soutien et pour la grande disponibilité dont il a fait preuve tout au long de ces trois ans.

Sans oublier Mme Annie GAVAIX, Professeur à l'Université Blaise Pascal, que je remercie pour sa bonne humeur et surtout pour les encouragements qu'elle m'a prodigués tout au long de mes années d'étude universitaire et qui m'ont permis d'en être là aujourd'hui.

Je remercie également les autres membres de l'équipe OSS pour les discussions que nous avons eues ensemble : M. Alexey KAVOKIN, M. Guillaume MALPUECH, M. Pierre BIGENWALD, Fabrice LAUSSY, Tarik BOURAGBA et Ouloum AOUDE. Juste une attention particulière à Ouloum avec qui j'ai partagé mon bureau et que j'ai appris à connaître, je lui souhaite beaucoup de courage pour la suite.

Je tiens également à remercier tous les doctorants que j'ai côtoyés pendant ces trois années, en particulier : Arnaud VIDECOQ, Yamina ANDRE, Matthieu PETIT, Laure SIOZADE et Marian ZAMFIRESCU. Je leur souhaite à tous une grande réussite professionnelle et je les remercie encore pour leur soutien et leur sympathie.

Je remercie également l'ensemble des membres du LASMEA, et en particulier M. Jean-Paul GERMAIN, directeur du laboratoire et M. Michel DHOME, directeur-adjoint, pour leur accueil chaleureux.

Je n'oublierai pas de remercier les différentes personnes de l'IUT Mesures Physiques de Clermont-Ferrand, qui m'ont accueilli au sein de leurs locaux et, en particulier M. Gérard RIVES et Mme Agnès TRASSOUDAINE qui m'ont fait profiter de leurs expériences d'enseignement et qui m'ont fait confiance tout au long de mes années de monitorat.

Merci à M. Gérard PUYSTIENS qui a fourni l'azote et l'hélium nécessaires au fonctionnement des expériences à basse température.

Merci également aux membres des ateliers de mécanique du département de Physique, tout particulièrement, M. Jacquy LAMPRE, qui ont effectué de nombreux éléments faisant partie des dispositifs expérimentaux que j'ai utilisés tout au long de ma thèse.

Enfin, j'ai l'occasion ici d'exprimer ma profonde reconnaissance et mes remerciements les plus sincères à mes parents, mes frères, mon mari ainsi qu'à toute ma famille pour leur soutien et leur encouragement. Je les remercie du fond du cœur et je leur dédie ce travail ...

Table des matières

Introduction générale 7

Chapitre 1 Notions fondamentales 10

1 Les nitrures d'éléments III : intérêt et propriétés 11

1.1 Intérêt et applications 11

1.2 Structure cristalline des nitrures 12

1.3 Croissance des nitrures 13

1.4 Structure de bandes de GaN 15

2 L'exciton 18

2.1 Définition et relation de dispersion 18

2.2 Modélisation de l'exciton pour l'étude de propriétés optiques 20

2.3 Force d'oscillateur dans un semi-conducteur massif 23

2.4 Puits quantiques 24

3 Les cavités à miroirs de Bragg 29

3.1 Principe de la cavité Fabry-Pérot 29

3.2 Les miroirs de Bragg 32

3.3 Les microcavités à miroirs de Bragg 38

4 Les polaritons de cavité 44

4.1 Définitions 44

4.2 Relation de dispersion du polariton de cavité 45
4.3 Dédoublement de Rabi 49
4.4 Conditions d'observation du régime de couplage fort 51
Conclusion du chapitre 52

Chapitre 2 Les dispositifs expérimentaux et la modélisation de la réponse optique d'une structure multicouche 54

1 Techniques expérimentales 56
1.1 Réflectivité 56
1.2 Réflectivité résolue en angle 57
1.3 Photoluminescence 59
1.4 Photoluminescence résolue en angle 64
1.5 Photoréflectivité 65
1.6 Ellipsométrie 66

2 Approches théoriques 69
2.1 Modélisation de la réflectivité 69
2.2 Modélisation de la photoluminescence 77
2.3 Modélisation de la photoréflectivité 80
2.4 Modélisation de l'ellipsométrie 81
Conclusion du chapitre 87

Chapitre 3 Indices de réfraction et miroirs de Bragg à base de nitrures 89

1 Détermination des indices de réfraction des nitrures 90
1.1 Description des échantillons 90
1.2 Analyse des spectres expérimentaux 92
1.3 Résultats et discussions 94

2 Miroirs de Bragg à base de nitrures 106
2.1 Description des échantillons 106
2.2 Expériences de réflectivité et modélisations 110
2.3 Discussion 115
Conclusion du chapitre 116

Chapitre 4 Etude de microcavités à miroirs de Bragg à base de nitrures 118

1 Avant de commencer …. 119

1.1 Mise en évidence expérimentale du polariton 119

1.2 Gradient d'épaisseur des microcavités 123

1.3 Influence des mesures angulaires sur la microcavité 124

2 La microcavité A247 125

2.1 Description de l'échantillon 125

2.2 Elaboration de l'échantillon 127

2.3 Caractérisation optique de la microcavité 128

2.4 Discussion sur la microcavité A247 136

3 La microcavité A284 137

3.1 Description de l'échantillon 137

3.2 Elaboration de l'échantillon 138

3.3 Caractérisation optique de la microcavité 139

3.4 Discussion sur la microcavité A284 143

4 La microcavité A269 144

4.1 Description de l'échantillon 144

4.2 Caractérisations optiques de la microcavité 147

4.3 Discussion sur la microcavité A269 158

5 Perspectives 160

5.1 Augmentation de l'épaisseur de la couche active 160

5.2 Microcavités à puits quantiques 162

Conclusion du chapitre 170

Conclusion générale 171

Annexe A - Force d'oscillateur dans les puits quantiques 174

Annexe B - Raccordement de la partie imaginaire de l'indice de GaN au voisinage du gap 176

Bibliographie.....181

Index 193

Liste des travaux.....196

Introduction générale

Parmi les semi-conducteurs, les composés binaires tels que le nitrure de gallium (GaN) ou le nitrure d'aluminium (AlN), et les composés ternaires tels que le nitrure d'aluminium et de gallium (AlGaN) sont regroupés sous le nom général de "nitrures".

D'un point de vue fondamental, les nitrures sont de très bons matériaux en ce qui concerne l'étude du couplage entre la lumière (les photons) et la matière (les excitons) [1]. Une manière d'amplifier la force du couplage est de réaliser des volumes optiques, de dimension de l'ordre de la longueur d'onde des photons : les microcavités [1,2]. Dans certains cas, on peut obtenir ce qu'on appelle un régime de "couplage fort", à savoir un couplage lumière-matière très important. Ce régime de couplage fort a été observé pour la première fois en 1992 par C. Weisbuch lors d'expériences de réflectivités à basse température dans le système GaAs/AlGaAs [2]. Ces expériences ont mis en évidence la présence d'une quasi-particule, appelée "polariton de cavité". Le polariton est un état mixte exciton-photon, ce qui lui confère de nouvelles propriétés que ne possèdent pas les excitons et les photons séparément. En particulier, dans le régime de couplage fort, les spectres relatifs à l'absorption ou à l'émission d'une microcavité sont caractérisés par la présence de deux raies bien distinctes dont l'écart en énergie est appelé "dédoublement de Rabi" ou "splitting".

Le couplage fort lumière-matière dans les microcavités semi-conductrices a donné lieu à de nombreuses études théoriques et expérimentales [3-10]. Dans les microcavités à base de GaAs, un dédoublement de l'ordre de 5 à 7 meV a été obtenu [3,11,12].

Des expériences récentes [13] permettent d'envisager la possibilité de réalisation d'une nouvelle génération de dispositifs optoélectroniques basés sur le régime de couplage fort : les

lasers à polaritons [14-17]. Ces lasers sont *a priori* sans seuil et ne requièrent pas d'inversion de population contrairement aux lasers classiques. Ce type de composant présente un intérêt considérable s'il peut fonctionner à température ambiante. Or, pour conserver le régime de couplage fort à température ambiante, le dédoublement de Rabi doit atteindre des valeurs beaucoup plus grandes que celles obtenues dans le cas des matériaux à base de GaAs. Ainsi, le but est désormais d'augmenter la force du couplage ; une des manières d'y parvenir consiste à utiliser des matériaux semi-conducteurs dont les forces d'oscillateur et les énergies de liaison sont plus grandes ; ainsi les matériaux II-VI (ZnSe/ZnMgSe et CdTe/CdMnTe) et III-V (GaN/AlGaN) sont de très bons candidats pour l'obtention d'un couplage lumière-matière encore plus important [18,19]. A notre connaissance, la plus grande valeur du dédoublement de Rabi observé dans une microcavité à base de ZnSe est 44 meV [20,21]. Dans le cas de structures à base de nitrures, des valeurs du dédoublement de Rabi allant de 45 à 90 meV sont prédites [1,18,22] mais jusqu'à présent, aucune expérience ne démontre l'obtention du régime de couplage fort dans des microcavités à base de GaN. En effet, l'observation de ce régime requiert des structures aux propriétés particulières comme une qualité cristalline accrue, or, dans le cas de structures à base de GaN, on se heurte à des difficultés technologiques liées à la fabrication des échantillons.

Ce travail est donc consacré à la **recherche du couplage fort lumière-matière dans des microcavités nitrurées**. Le manuscrit est constitué de quatre chapitres, dont nous donnons ici une brève description :

Le **chapitre 1** est une introduction générale aux microcavités à miroirs de Bragg et au régime de couplage fort exciton-photon. Nous définissons différentes notions telles que l'exciton, premier état excité d'un cristal, la force d'oscillateur et les paramètres utilisés pour la décrire, ainsi que les puits quantiques. Nous décrivons ensuite les propriétés générales des cavités Fabry-Pérot ainsi que celles des miroirs de Bragg, conduisant à l'étude de microcavités à miroirs de Bragg et à la relation de dispersion du photon à l'intérieur de celles-ci. Les polaritons de cavité, résultant du couplage entre les excitons et les photons, sont introduits par la suite et les caractéristiques du régime de couplage fort entre l'exciton et le mode de cavité sont présentées : dédoublement de Rabi et conditions d'observation de ce régime.

Le **chapitre 2** est divisé en deux parties. La première est consacrée à la présentation des expériences de spectroscopie optique effectuées : la réflectivité sous incidence normale et résolue en angle, la photoluminescence sous incidence normale et résolue en angle, la

photoréflectivité ainsi que l'ellipsométrie. Nous décrivons les montages expérimentaux et leur principe de fonctionnement. La seconde partie présente les différents modèles théoriques utilisés pour rendre compte des spectres expérimentaux obtenus par chacune de ces techniques.

Les chapitres 3 et 4 sont dédiés à la caractérisation des échantillons étudiés.

Le **chapitre 3** constitue une étude préliminaire indispensable à aborder avant l'étude proprement dite des microcavités. Dans une première partie , des expériences de réflectivité et d'ellipsométrie ont permis de déterminer les indices de réfraction à 300 K et à 5 K d'AlN, de GaN et d'$Al_xGa_{1-x}N$ pour différentes compositions x d'aluminium. L'étude de miroirs de Bragg à base de nitrures constitue la seconde partie de ce chapitre ; nous présentons les spectres expérimentaux de réflectivité relatifs à trois miroirs de Bragg ainsi que les ajustements théoriques effectués en utilisant les indices déterminés dans la première partie.

Le **chapitre 4** est, quant à lui, consacré à la description de trois microcavités et à leur caractérisation grâce à des mesures de réflectivité et de photoluminescence. Les ajustements théoriques de ces spectres permettent de déterminer les paramètres importants relatifs aux structures. Dans ce chapitre, nous mettons en évidence la première observation expérimentale du régime de couplage fort dans une microcavité à base de GaN. Nous terminons par la description des perspectives que nous envisageons pour la suite.

Chapitre 1

Notions fondamentales

Ce premier chapitre rassemble les notions utiles à la compréhension de ce manuscrit.

La première partie évoquera les aspects essentiels concernant les nitrures, matériaux à la base de notre travail. L'intérêt de leur utilisation d'un point de vue des applications technologiques ou de la recherche fondamentale sera mis en avant ; puis nous décrirons sommairement leur structure cristalline, la technique d'élaboration des structures étudiées, ainsi que les propriétés électroniques du nitrure de gallium (GaN), matériau constituant la couche active des microcavités.

Dans la seconde partie, la notion d'exciton sera définie et nous décrirons le modèle théorique qui permet de rendre compte de l'influence des excitons dans les spectres issus des expériences de spectroscopie.

La troisième partie de ce chapitre sera dédiée à la description des microcavités ; elle débutera par un rappel sur la cavité Fabry-Pérot, et sur les miroirs de Bragg. Puis, les microcavités à miroirs de Bragg seront décrites et leurs propriétés énoncées.

La dernière partie traite de la notion de polariton, qui résulte du couplage lumière-matière dans les microcavités. Nous étudierons les équations qui le régissent puis les notions de couplage faible et couplage fort seront introduites.

1 Les nitrures d'éléments III : intérêt et propriétés

1.1 Intérêt et applications

Les matériaux semi-conducteurs à base de nitrures possèdent une bande interdite directe qui couvre un large domaine conduisant à des applications multiples. La figure 1.1 rapporte l'énergie de bande interdite des nitrures ainsi que celle relative à d'autres semi-conducteurs. Une des propriétés remarquables des nitrures est leur bande interdite : 3400 meV pour GaN, 1300-1400 meV pour InN et 6200 meV pour AlN, ce qui présage des qualités potentielles d'émetteurs de lumière dans une gamme s'étendant du visible à l'ultraviolet [23-26]. Plus précisément, les alliages ternaires ou quaternaires (Al,Ga,In)N couvrent tout le spectre visible.

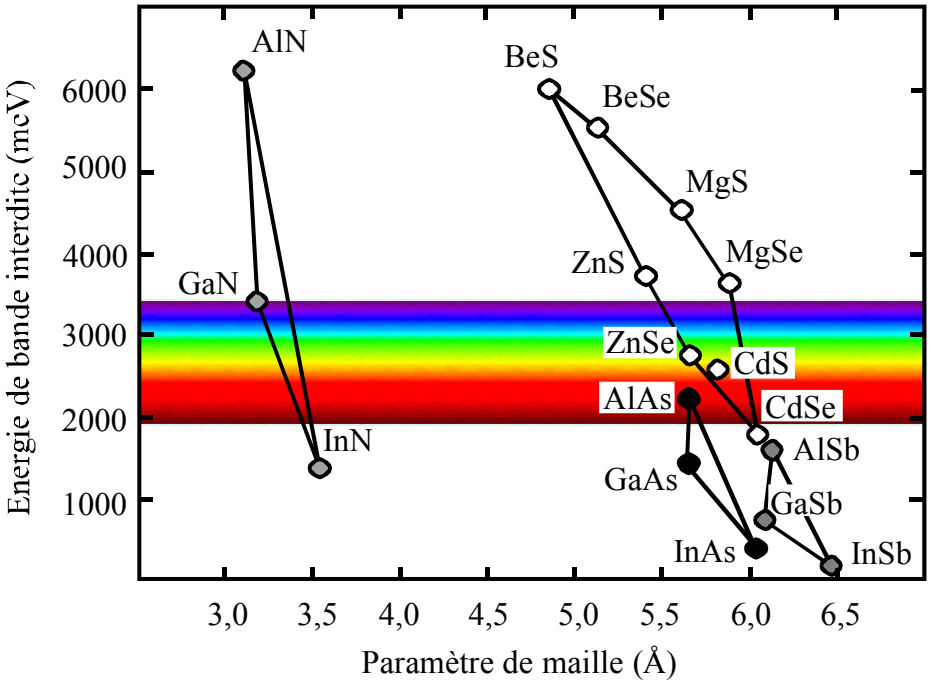


figure 1.1 : Energie de bande interdite de plusieurs semi-conducteurs en fonction de leurs paramètres de maille ; pour les semi-conducteurs hexagonaux, l'abscisse correspond au paramètre cristallin a.

Les nitrures sont ainsi des matériaux très intéressants pour les applications dans l'optoélectronique telles que les diodes-laser ou les diodes électroluminescentes [27-30]. Des écrans géants ont même été réalisés au Japon grâce à des diodes vertes et bleues à base d'alliages de GaN et d'InN [31]. La brillance et la durée de vie de ces diodes font penser qu'elles sont susceptibles de remplacer l'éclairage conventionnel à filament : feux de signalisation tricolores, éclairage domestique, lampes de poche, voyants lumineux,… . Dans le domaine des lasers, les lasers à courte longueur d'onde (aux alentours de 400 nm)

permettent une meilleure résolution spatiale dans les applications telles que le stockage optique de l'information, que ceux par exemple basés sur des composés tels que l'arséniure de gallium (GaAs). Un laser émettant dans le bleu, permet d'augmenter la densité d'informations d'un facteur 4 par rapport aux lasers classiques [32].

Le phénomène de couplage fort lumière-matière pourrait être utilisé pour améliorer les performances des composants optoélectroniques et ainsi atteindre des régimes de fonctionnement inaccessibles aux composants classiques, par exemple l'émission de lumière cohérente à très bas seuil [33,34] avec l'espoir, à terme, de fabriquer des lasers à très bas seuils (laser à polaritons [14-17]) ou des diodes très performantes. Le couplage fort ouvrirait également la voie à des systèmes optiques rapides, dans le domaine des télécommunications par exemple [35].

1.2 Structure cristalline des nitrures

La forme la plus stable de la matière à température nulle est celle formée par un arrangement périodique d'atomes dans une structure cristalline [36]. Une structure cristalline est engendrée par un réseau périodique à chaque point duquel se situe un motif, qui peut être un atome ou un assemblage d'atomes.

Les nitrures peuvent cristalliser en phase wurtzite (structure hexagonale), qui est la phase stable dans les conditions ambiantes ou, sous certaines conditions, en phase blende de zinc (structure cubique).

En fait, le type de structure obtenue dépend de la surface de départ du substrat [37].

La structure wurtzite est constituée de deux réseaux hexagonaux, interpénétrés et décalés suivant l'axe *c* de 5/8 de la maille élémentaire. La structure blende de zinc est constituée de deux sous-réseaux cubiques faces centrées, interpénétrés et décalés de 1/4 par rapport à la diagonale de la maille. Les vues en perspective des mailles wurtzite (direction [0001]) et blende de zinc (direction [111]) sont présentées sur la figure 1.2.

Dans le cas de la structure blende de zinc, le volume de la maille est directement relié au paramètre de maille cubique a_0, alors que dans le cas wurtzite, deux paramètres de maille hexagonaux décrivent la structure : *a* et *c*. On trouvera dans le tableau 1.1 ces paramètres pour les mailles hexagonale et cubique de GaN et AlN [38].

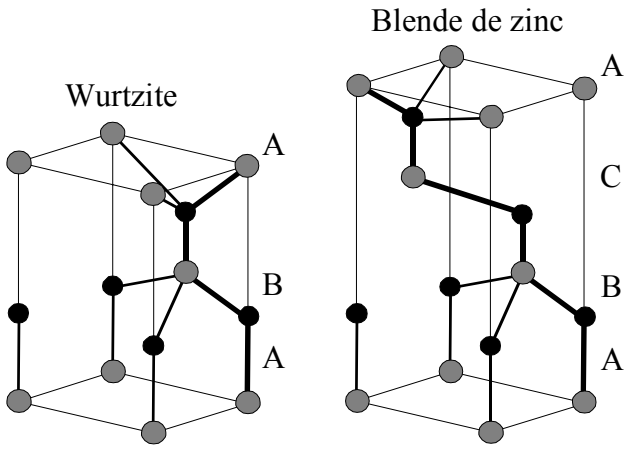


figure 1.2 : Arrangement des atomes dans les mailles des structures wurtzite (à gauche) et blende de zinc (à droite).

	Paramètres de maille		
	a (Å)	c (Å)	a_0 (Å)
GaN	3,15	5,14	4,46
AlN	3,08	4,95	4,34

tableau 1.1 : Paramètres de maille de GaN et d'AlN : structure hexagonale (a et c) et cubique (a_0).

1.3 Croissance des nitrures

En l'absence du matériau GaN massif, la croissance s'effectue sur des substrats en désaccord de maille avec GaN. Ainsi, la technique de croissance mise en jeu lors de l'élaboration de structures à base de nitrures relève de l'hétéroépitaxie. Elle implique la présence de contraintes élevées dans les matériaux en cours de croissance et lors du refroidissement, en raison des coefficients de dilatation thermique différents. Cette élaboration se traduit également par la présence de nombreux défauts dans les couches : dislocations, fautes d'empilement, joints de grain. Le développement de ces matériaux n'a pu se faire qu'après la mise au point de procédures complexes d'hétéroépitaxie permettant de diminuer considérablement la densité de ces défauts.

Tous les échantillons présentés par la suite ont été élaborés sur substrat de silicium (111) par épitaxie sous jets moléculaires [37]. Nous allons donc présenter succinctement le substrat de silicium et décrire la méthode utilisée pour faire croître les échantillons étudiés.

1.3.1 Le substrat : Si(111)

Les substrats Al_2O_3 et SiC sont les plus utilisés pour l'élaboration de dispositifs optoélectroniques à base de nitrures. Cependant et malgré un désaccord de maille important entre le silicium et les nitrures, le silicium est un substrat pour l'épitaxie des nitrures sur lequel beaucoup d'espoirs sont fondés. Les avantages du silicium sont une grande disponibilité, de grandes surfaces, une haute qualité cristalline, un très faible coût et une grande maturité technologique.

Cependant, plusieurs difficultés majeures existent : le silicium réagit avec l'ammoniac aux températures de croissance pour former Si_xN_y sur lequel la croissance épitaxiale est impossible ; pour y remédier, il est nécessaire d'utiliser une couche tampon d'AlN [39-42]. De plus, le silicium présente un grand désaccord de coefficient de dilatation thermique avec les nitrures (voir le tableau 1.2 [43]), qui se traduit par une contrainte biaxiale extensive dans GaN pouvant provoquer l'apparition de fissures dans les échantillons. Pour les éviter, il faut compenser la contrainte biaxiale extensive dans GaN par une contrainte compressive ; ceci peut être réalisé par des alternances de couches AlN/GaN [44].

	a ($\times 10^{-6}$ K^{-1})	c ($\times 10^{-6}$ K^{-1})
GaN	5,59	3,20
AlN	4,20	5,30
Si	3,59	-

tableau 1.2 : Coefficient de dilatation thermique de GaN, AlN et Si [43].

1.3.2 L'épitaxie sous jets moléculaires

L'épitaxie sous jets moléculaires (EJM) consiste à évaporer ou sublimer sous ultra-vide, les éléments de l'alliage qui sont ensuite adsorbés à la surface du substrat. Dans le cas de GaN, la voie la plus employée consiste à utiliser une source solide pour le Ga et une source gazeuse (NH_3) comme précurseur de l'azote. La température du substrat, comprise entre 450 et 850°C, permet la condensation des atomes, tout en leur conférant suffisamment d'énergie pour leur permettre de rejoindre leurs sites. Le transport des gaz s'effectue sous forme de jets

moléculaires. Un jet moléculaire est obtenu en chauffant le matériau source (le gallium pour la croissance de GaN) jusqu'à ce qu'il se vaporise dans une cellule percée d'un petit orifice. Les molécules sortant alors de la cellule, forment un jet directionnel grâce à l'environnement ultra-vide qui règne à l'extérieur de la cellule. L'élément V, quant à lui, est obtenu par décomposition catalytique (pyrolyse) de NH_3. La particularité de la croissance des nitrures sous ammoniac est le craquage du précurseur azote à la surface de l'échantillon.

Un des grands avantages de l'EJM est son environnement ultra-vide, qui autorise de nombreuses techniques d'analyses "in-situ", telles que la diffraction d'électrons rapides en incidence rasante (RHEED : Reflexion High Energy Electron Diffraction), particulièrement associée au développement des structures de basse dimensionnalité. Le diagramme RHEED, qui correspond à la diffraction et à la réflexion d'électrons rasants incidents de haute énergie, est très riche d'informations. Il fournit des indications sur la géométrie et la morphologie de la surface, la rugosité et/ou la dimensionnalité de la couche épitaxiale. Il permet de plus une mesure très fine des vitesses de croissance ; il est ainsi possible de contrôler à l'échelle de la monocouche, le dépôt de couches bidimensionnelles [45], et de réaliser des structures à puits quantiques [46].

1.4 Structure de bandes de GaN

1.4.1 Bandes d'énergies [36]

La conséquence de l'interaction entre une onde électronique et le potentiel périodique d'un cristal est l'existence de bandes d'énergie interdites aux électrons. Il existe plusieurs manières de comprendre l'existence de ces bandes interdites. Une de celles-ci est fondée sur le modèle chimique, appelé modèle des liaisons fortes ou des combinaisons linéaires d'orbitales atomiques.

Lorsque deux atomes se rapprochent, les orbitales électroniques s'hybrident. Par levée de dégénérescence entre les niveaux d'énergies sur chaque atome, il se forme deux niveaux distincts : le niveau liant et le niveau anti-liant. La généralisation de l'interaction entre un grand nombre d'atomes conduit à l'apparition d'un ensemble compact de niveaux liants et de niveaux anti-liants, formant une bande de valence et une bande de conduction : ces deux bandes forment des continuums d'états permis aux électrons. Il y a apparition d'une bande d'énergie interdite si l'écart entre les deux niveaux chimiques de départ est suffisamment grand pour que les bandes de conduction et de valence ne se chevauchent pas.

1.4.2 Energies de bord de bande

La symétrie propre à la structure wurtzite de GaN rend sa structure de bande complexe. Le minimum de la bande de conduction de GaN se situe au centre de la zone de Brillouin (point Γ, k=0). Le maximum de la bande de valence est également situé en ce même point, ce qui confère à GaN une bande interdite directe.

En raison du champ cristallin, le sommet de la bande de valence se partage en deux sous-bandes (en l'absence de couplage spin-orbite). L'écart d'énergie entre ces deux niveaux est noté Δ_{CR}. Ce paramètre peut évoluer en fonction de l'état de contrainte dans la couche.

Si le couplage spin-orbite est également pris en compte, la bande de valence est éclatée en trois sous-bandes, et l'écart d'énergie dû à ce couplage spin-orbite est noté Δ_{SO}. La structure des bandes de valence et de conduction est schématisée sur la figure 1.3.

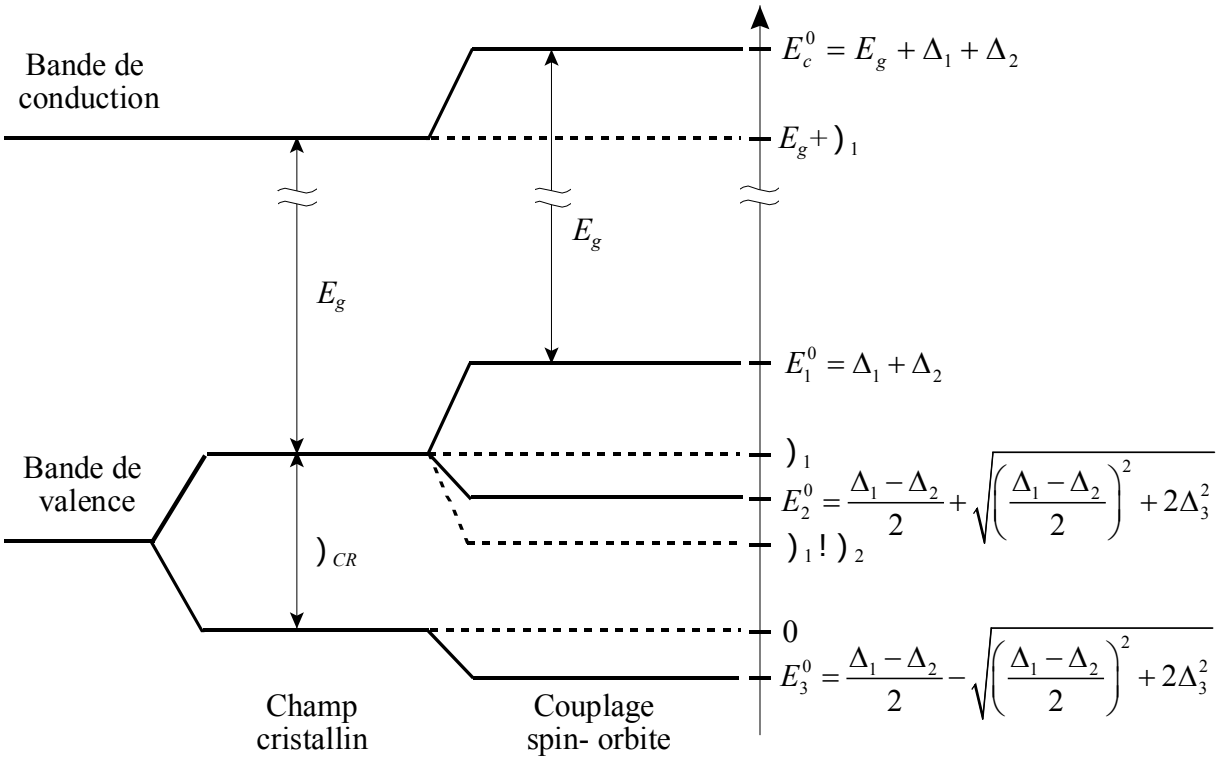


figure 1.3 : Représentation schématique du positionnement des bandes de valence et de conduction de GaN wurtzite au point Γ (en k=0) tenant compte du champ cristallin (CR) puis de l'interaction spin-orbite (SO).

Les valeurs des énergies de bord de bandes E_c^0, E_1^0, E_2^0 et E_3^0, indiquées sur la figure 1.3 résultent du modèle de Kane pour les semi-conducteurs de type wurtzite [47,48].

Les paramètres Δ_1, Δ_2 et Δ_3 sont reliés aux énergies relatives au champ cristallin Δ_{CR} et au couplage spin-orbite Δ_{SO} par les relations suivantes [49] :

$$\begin{cases} \Delta_1 = \Delta_{CR} \\ \Delta_2 = \Delta_3 = \frac{1}{3}\Delta_{SO} \end{cases} \tag{1.1}$$

Près des extrema de bandes, les relations de dispersion $E(k)$ sont paraboliques. L'expression de $E(k)$ est similaire à celle de l'électron libre ($E=\hbar^2k^2/2m_0$), mais avec une masse différente appelée "masse effective", qui provient de l'interaction des électrons avec le potentiel périodique du cristal. Les bandes à faible courbure sont celles qui conduisent à des masses effectives élevées : c'est le cas de la bande de trous lourds notée *hh* (heavy hole). Les bandes à forte courbure correspondent à des masses effectives faibles (bande de trous légers notée *lh* (light hole)).

Dans le cas de GaN, et dans le cas plus général où : $\Delta_1>\Delta_2>0$, les trois bandes de valence, en partant de celle située à plus haute énergie, sont la bande des trous lourds (*hh*), la bande des trous légers (*lh*) et la bande des trous découplés notée *sh* ou *ch* (spin-orbit splitt-off).

1.4.3 Energies de bord de bande sous l'effet d'une contrainte biaxiale

Le nitrure de gallium présente des désaccords de paramètre de maille et de coefficient de dilatation thermique importants avec le silicium ; il en résulte des déformations de la couche épitaxiée. Malgré une relaxation partielle de ces déformations sous forme de défauts et de dislocations, une contrainte résiduelle subsiste dans la couche, qui se traduit par une modification des relations de dispersion des bandes du matériau. Les effets des contraintes sont décrits par la théorie des potentiels de déformation [50]. Dans notre cas, la contrainte résiduelle est une contrainte biaxiale planaire.

En l'absence de déformation, la levée de dégénérescence des trois niveaux de la bande de valence de GaN conduit à considérer trois transitions excitoniques *A*, *B* et *C*. Les énergies des transitions excitoniques *A*, *B* et *C* sont tracées en fonction de l'énergie de la transition excitonique *A* sur la figure 1.4 pour différents échantillons de GaN épitaxiés sur substrat saphir (triangle), SiC (rond) et silicium (carré) [51]. L'effet de la contrainte biaxiale se traduit par une variation de l'énergie des transitions et même par une inversion de l'ordonnancement des transitions A et B dans le cas d'une contrainte extensive [52] ; les points expérimentaux

possèdent une contrainte allant de la compression pour le saphir à l'extension pour le silicium ou SiC. Il faut noter que la contrainte résiduelle présente dans la couche de GaN diffère d'un échantillon à l'autre.

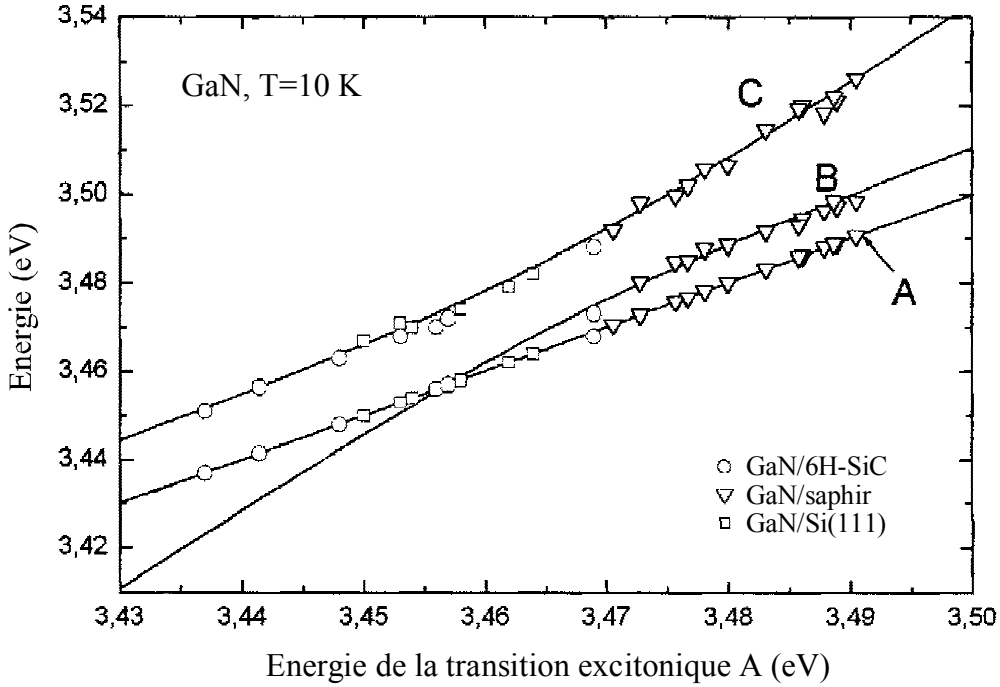


figure 1.4 : Energie des transitions excitoniques A, B et C en fonction de l'énergie de la transition A pour différents échantillons de GaN épitaxiés sur substrat saphir, SiC et silicium. Les courbes en trait plein correspondent aux calculs de B. Gil [52].

2 L'exciton

2.1 Définition et relation de dispersion

2.1.1 Définition

La figure 1.5 présente un schéma simplifié de la création d'un exciton dans un modèle à deux bandes.

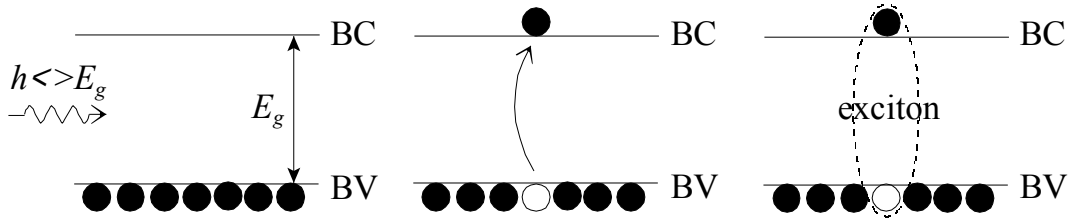


figure 1.5 : Schéma simplifié de l'exciton ; BV et BC indiquent respectivement les bandes de valence et conduction ; E_g est l'énergie de bande interdite du matériau.

Considérons un état fondamental dans lequel tous les électrons se trouvent dans la bande de valence ; lorsqu'un photon est absorbé, un électron de la bande de valence peut être excité vers un état d'énergie situé dans la bande de conduction. Un électron passe alors dans la bande de conduction et la place vacante dans la bande de valence est assimilée à une pseudo-particule de charge positive et de masse effective m_h (m_h>0), appelé "trou". L'interaction coulombienne entre l'électron et le trou forme un état lié et stable, premier état excité du cristal, appelé "exciton", dont l'énergie est légèrement inférieure à l'énergie de bande interdite du cristal [53].

2.1.2 Relation de dispersion de l'exciton

Dans l'approximation de la masse effective où l'exciton est supposé délocalisé, c'est-à-dire que la distance électron-trou est grande devant le paramètre de maille du cristal, l'énergie potentielle entre l'électron et le trou s'écrit :

$$V_{cb} = -\frac{e^2}{4\pi\,\varepsilon_0\varepsilon_r\,|r_e - r_h|} \tag{1.2}$$

où ε_r est la constante diélectrique du matériau et r_e et r_h sont les positions respectives de l'électron et du trou.

Ce système électron-trou se décrit tout à fait comme un atome hydrogénoïde en introduisant une masse réduite. En introduisant les coordonnées du centre de masse de l'exciton ($\vec{R}$) ainsi que celles relatives à la distance électron-trou ($\vec{r}$), l'hamiltonien s'écrit dans le formalisme de la fonction enveloppe :

$$H = \frac{P^2}{2M} + \frac{p^2}{2\mu} - \frac{e^2}{4\pi\,\varepsilon_0\varepsilon_r r} + E_g \tag{1.3}$$

où $P^2/(2M)$ est l'énergie cinétique du centre de masse, $p^2/(2\mu)$ l'énergie cinétique du mouvement relatif entre l'électron et le trou, $e^2/(4\pi\,\varepsilon_0\varepsilon_r r)$ l'énergie potentielle entre l'électron et le trou, avec $r=|r_e-r_h|$ et E_g l'énergie de bande interdite du matériau. μ est la masse réduite et M la masse effective totale de la paire électron-trou. Elles sont définies par les expressions suivantes :

$$\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h} \text{ et } M = m_e + m_h \tag{1.4}$$

La fonction enveloppe de l'exciton s'exprime sous la forme suivante :

$$X_{n,\vec{K}}(\vec{r},\ \vec{R})=F_n(\vec{r})\exp(j\vec{K}.\ \vec{R}) \tag{1.5}$$

où $\vec{K}$ est le vecteur d'onde de l'exciton et $F_n(\vec{r})$ une fonction décrivant le mouvement relatif. $F_n(\vec{r})$ est donc solution d'une équation équivalente à celle de l'atome d'hydrogène :

$$\left[\frac{p^2}{2\mu}-\frac{e^2}{4\pi.\varepsilon_0\varepsilon_r r}\right]F_n(\vec{r})=\left(E-E_g-\frac{\hbar^2K^2}{2M}\right)F_n(\vec{r})=E_n\,F_n(\vec{r}) \tag{1.6}$$

où E_n est l'énergie de liaison de l'exciton.

Finalement, l'énergie de l'exciton a pour expression [54]:

$$E_{exc}(K)=E_g+E_n+\frac{\hbar^2K^2}{2M}\ \text{avec}\ E_n=-\frac{1}{n^2}\frac{\mu}{m_0\varepsilon_r^2}R_y \tag{1.7}$$

où E_n est l'énergie de liaison de l'exciton, R_y le Rydberg de l'atome d'hydrogène (R_y=13,6 eV) et ε_r la constante diélectrique du milieu.

L'énergie de formation de l'état 1*s* (*n*=1) vaut donc pour $\vec{K}=\vec{0}$:

$$E_{exc}(\vec{0})=E_g-\frac{\mu}{m_0\varepsilon_r^2}R_y \tag{1.8}$$

Dans le cas de GaN, la levée de dégénérescence de la bande de valence sous l'effet du champ cristallin et de l'interaction spin-orbite conduit à considérer trois transitions excitoniques qui sont notées *A*, *B* et *C*.

2.2 Modélisation de l'exciton pour l'étude de propriétés optiques

2.2.1 Modèle de l'oscillateur harmonique : Modèle de Lorentz

On peut assimiler l'exciton à un oscillateur harmonique ; ainsi, le système photon-exciton peut être décrit par le modèle de Lorentz [55]. On se limitera à l'approximation locale, c'est-à-dire qu'on ne tient pas compte de la dispersion spatiale de l'oscillateur : la pulsation propre de l'oscillateur ω_{exc0} est supposée constante, indépendante du vecteur d'onde.

Le modèle de Lorentz consiste en un ensemble d'oscillateurs mis en vibration forcée par le rayonnement. Dans un champ électrique de la forme $\vec{E}=\vec{E}_m.\mathrm{e}^{j\omega t}$, l'équation du mouvement de l'oscillateur s'écrit :

$$m_0\ddot{\vec{r}} + m_0\Gamma\dot{\vec{r}} + m_0\omega_{exc0}^2\vec{r} = -e\vec{E} \tag{1.9}$$

où $\vec{r}$ est le déplacement par rapport à la position d'équilibre de l'électron et peut s'écrire sous forme sinusoïdale : $\vec{r} = \vec{r}_m\,\mathrm{e}^{j\omega t}$, $-m_0\omega_{exc0}^2\vec{r}$ est la force de rappel liant l'électron et le trou, $-m_0\Gamma\dot{\vec{r}}$ la force de frottement introduite pour traduire la dissipation d'énergie (absorption) et ω_{exc0} la pulsation propre de l'oscillateur.

Si N est le nombre d'oscillateurs par unité de volume, le vecteur polarisation du milieu s'écrit :

$$\vec{P} = -eN\vec{r} = \vec{P}_m\,\mathrm{e}^{j\omega t} = \frac{Ne^2}{m_0\left(\omega_{exc0}^2 - \omega^2 + j\Gamma\omega\right)}\vec{E}_m\mathrm{e}^{j\omega t} \tag{1.10}$$

on pose : $\omega_p^2 = \dfrac{Ne^2}{m_0\varepsilon_0}$, il vient : $\vec{P} = \dfrac{\varepsilon_0\omega_p^2}{\omega_{exc0}^2 - \omega^2 + j\Gamma\omega}\vec{E}_m\,e^{j\omega t}$ (1.11)

où ω_p est la pulsation propre de l'oscillation collective de charges libres, appelée pulsation plasma.

L'évaluation du vecteur polarisation permet de calculer le vecteur déplacement et de déduire les propriétés optiques du milieu via la constante diélectrique :

$$\vec{D} = \varepsilon_0\varepsilon_b\vec{E} + \vec{P} = \varepsilon\vec{E} = \varepsilon_0\varepsilon_r\vec{E} \tag{1.12}$$

où ε_0 représente la constante diélectrique statique du milieu et ε_b la constante diélectrique "background" qui tient compte de la contribution non dispersive d'autres oscillateurs sur la constante diélectrique autour de la pulsation de l'oscillateur auquel on s'intéresse (ω_{exc0}).

On définit la constante diélectrique relative $\varepsilon_r(\omega)$ par la relation :

$$\varepsilon_r(\omega) = \varepsilon_b + \frac{\omega_p^2}{\omega_{exc0}^2 - \omega^2 + j\Gamma\omega} = \varepsilon_b + \frac{B}{E_{exc0}^2 - E^2 + j\hbar\Gamma E} \tag{1.13}$$

On décrit ainsi l'exciton comme une résonance particulière du matériau, représenté par un oscillateur de Lorentz dont la constante diélectrique est donnée par l'expression (1.13), où E_{exc0} est l'énergie de l'exciton, $\hbar\Gamma$ l'élargissement de la transition, B=$(\hbar\omega_p)^2$ le paramètre lié à la force d'oscillateur et ε_b la constante diélectrique hors résonance.

Cette expression est établie dans le cas de l'approximation locale : ε_r dépend uniquement de l'énergie E (ou de la pulsation ω) et ne prend pas en compte la relation de dispersion de l'exciton (cas de l'approximation non-locale).

- **Prise en compte de l'élargissement inhomogène**

Dans l'équation (1.13), nous avons implicitement supposé que la raie excitonique était de nature purement homogène et nous avons considéré un élargissement global de la transition, noté $\hbar\Gamma$. Or, les fluctuations d'épaisseurs, de composition et/ou de contraintes introduisent un "désordre", qui se traduit par un élargissement inhomogène de la raie excitonique. Il y a donc une distribution en énergie des excitons et des oscillateurs harmoniques qui les représentent. Nous pouvons modéliser ce "désordre" en prenant une constante diélectrique ayant la forme suivante [5,56,57] :

$$\varepsilon_r(E) = \varepsilon_b + \int \frac{B}{x^2 - E^2 + j\,\hbar\Gamma\,E} f(x, E_{exc0})dx \tag{1.14}$$

où $f(x,E_{exc0})$ est une distribution gaussienne centrée sur l'énergie moyenne de l'exciton. Ainsi :

$$\varepsilon_r(E) = \varepsilon_b + \int \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta} \frac{B}{x^2 - E^2 + j\,\hbar\Gamma\,E} \exp\left(-\frac{(x - E_{exc0})^2}{\Delta^2}\right)dx \tag{1.15}$$

où Δ est le paramètre d'élargissement inhomogène qui dépend uniquement de la qualité de la couche étudiée et $\hbar\Gamma$ est l'élargissement homogène de la transition qui évolue en fonction de la température en raison de l'interaction exciton-phonon. A basse température, l'élargissement homogène $\hbar\Gamma$ est très faible devant l'élargissement inhomogène Δ. Ainsi, on peut relier Δ à la largeur à mi-hauteur de la transition (*FWHM*) par la relation :

$$FWHM = 2\sqrt{\ln 2}\,\Delta \tag{1.16}$$

2.2.2 Relations entre les constantes diélectrique et optique complexes

Nous allons par la suite étudier les propriétés optiques des excitons présents dans des couches de GaN ; l'exciton étant décrit à partir de la constante diélectrique relative du matériau, il faut relier ε_r aux propriétés optiques, c'est-à-dire à l'indice optique du matériau.

L'indice de réfraction complexe d'un matériau N peut être vu comme la "résistance" du milieu à la pénétration de la lumière. Il est défini à partir du rapport des constantes diélectriques dans le matériau et dans le vide par la relation :

$$N = n - jK = \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0}\right)^{1/2} = \varepsilon_r^{1/2} \tag{1.17}$$

où n est l'indice de réfraction réel traduisant la dispersion et K le coefficient d'extinction, traduisant l'atténuation dans le matériau. Quant à la constante diélectrique, elle s'écrit :

$\varepsilon_r = \varepsilon_1 - j\varepsilon_2$ avec : $\varepsilon_1 = n^2 - K^2$ et $\varepsilon_2 = 2\,nK$ (1.18)

2.3 Force d'oscillateur dans un semi-conducteur massif

Par la suite, pour décrire le couplage fort dans les microcavités, les excitons seront caractérisés par leur énergie de résonance E_{exc0}, les élargissements de leur transition ($\hbar\Gamma$ et Δ) ainsi que par leur "force d'oscillateur". Cette dernière grandeur caractérise l'intensité d'une transition entre un état initial $|i\rangle$ et un état final $|f\rangle$. Pour des transitions dipolaires électriques, elle est définie par [58] :

$$f_{osc} = \frac{2}{m_0 E}\left|\langle f|\vec{\varepsilon}.\vec{p}|i\rangle\right|^2 \tag{1.19}$$

où E est l'énergie de la transition et $\vec{\varepsilon}$ la polarisation de la lumière.

Dans le cas d'une transition excitonique, cette grandeur qualifie l'intensité de la transition entre l'état fondamental $|\Psi_0\rangle$ du semi-conducteur où tous les électrons sont dans la bande de valence, et l'état final $|\Psi_{exc}\rangle$ qui est celui de l'exciton. La force d'oscillateur par unité de volume est alors donnée par l'expression [58] :

$$\frac{f_{osc}}{V} = \frac{2}{m_0 E} p_{cv}^2 2\left|F_n(0)\right|^2 \tag{1.20}$$

où E est l'énergie de la transition, p_{cv} l'élément de matrice dipolaire entre la bande de conduction et de valence et F_n la fonction décrivant le mouvement relatif de l'exciton. Dans le modèle classique de l'oscillateur harmonique décrit précédemment, la force d'oscillateur est représentée par le paramètre B.

2.4 Puits quantiques

2.4.1 Définition

Un puits quantique est constitué d'une couche fine d'un semi-conducteur A, d'énergie de bande interdite E_g, placée entre deux couches d'un semi-conducteur B (appelé barrière), d'énergie de bande interdite E_g^b,comme indiqué sur la figure 1.6 *(a)*. On choisit un matériau A dont le gap est inférieur à celui du matériau B. On crée ainsi à l'interface de ces deux matériaux une discontinuité des bandes de valence et de conduction, qui conduit à un puits de potentiel aussi bien pour les trous que pour les électrons.

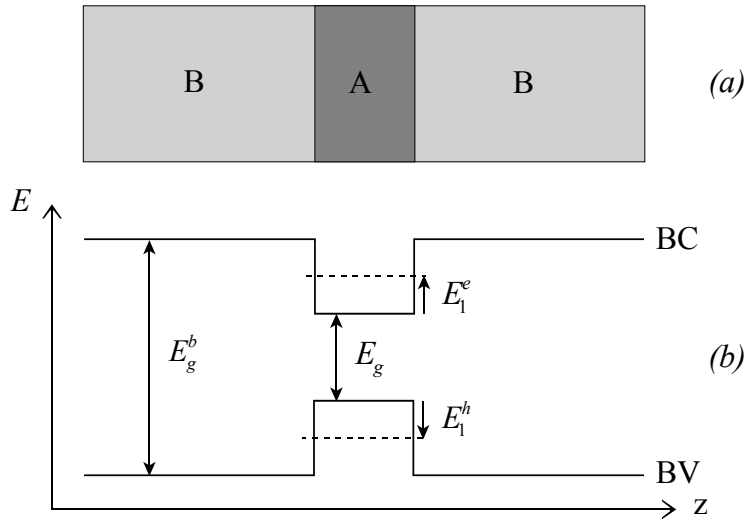


figure 1.6 : (a) Description d'un puits quantique de type I : le matériau A constitue le puits, B, la barrière ; (b) Alignement des bandes de valence (BV) et de conduction (BC) suivant l'axe de croissance (z). Les pointillés représentent les niveaux fondamentaux des électrons et des trous (n=1) et E_1^e et E_1^h sont les énergies de confinement correspondantes.

Il existe différents types de puits quantiques selon que les électrons et les trous sont confinés dans la même couche : type I ou dans des couches différentes : type II. La figure 1.6 *(b)* représente le schéma d'un puits quantique de type I.

2.4.2 Niveaux électroniques

Le puits confine les porteurs dans la direction de croissance tout en laissant libre le mouvement dans le plan des couches. Le confinement quantifie les états de l'électron ou du trou dans la direction de croissance. Les énergies de l'électron et du trou sont fonction du vecteur d'onde dans le plan des couches $k_{//}$.

L'énergie totale d'un électron a pour expression [59,60] :

$$E_n^e(k_{//}) = E_g + E_n^e + \frac{\hbar^2 k_{//}^2}{2m_{//e}} \tag{1.21}$$

où E_g est l'énergie de bande interdite du matériau A, $m_{//e}$ la masse effective des électrons dans le plan des couches et E_n^e correspond à l'énergie du $n^{\text{ième}}$ niveau confiné dans le puits pour $k_{//}$=0. Pour les trous, le traitement des niveaux confinés est exactement le même : ils sont localisés suivant z et libres dans le plan des couches. Les états localisés dans le puits quantique se distinguent suivant qu'ils correspondent à des états de trous lourds (*hh*) ou de trous légers (*lh*). En gardant les mêmes notations que précédemment, les énergies des niveaux de trous dans le puits sont données par [59,60] :

$$E_n^{hh}(k_{//}) = E_n^{hh} + \frac{\hbar^2 k_{//}^2}{2m_{//hh}} \qquad E_n^{lh}(k_{//}) = E_n^{lh} + \frac{\hbar^2 k_{//}^2}{2m_{//lh}} \tag{1.22}$$

E_n^{hh} (resp. E_n^{lh}) traduisent l'énergie de quantification du niveau n de trous lourds (resp. légers) dans le puits quantique et $m_{//hh}$ (resp. $m_{//lh}$) la masse de ces trous dans le plan des couches.

Par la suite, on se limitera aux niveaux n=1 pour les électrons et les trous.

2.4.3 Exciton dans un puits quantique

- **Relations de dispersion**

Le mouvement des excitons dans le plan des couches est décrit par un vecteur $K_{//}$ traduisant l'impulsion du centre de masse des deux particules : $K_{//}$ n'est pas quantifié. Les états excitoniques peuvent être dus à l'interaction d'un électron avec un trou lourd ou léger : ils correspondent donc aux excitons lourds (E_{exc}^{hh}) et légers (E_{exc}^{lh}). L'énergie d'un état excitonique s'écrit [59,60] :

$$E_{exc}^{hh}(K_{//}) = E_{hh} + \frac{\hbar^2 K_{//}^2}{2M_{//hh}} \qquad E_{exc}^{lh}(K_{//}) = E_{lh} + \frac{\hbar^2 K_{//}^2}{2M_{//lh}} \tag{1.23}$$

où $M_{//hh}$ et $M_{//lh}$ sont les masses effectives totales des excitons lourd et léger dans le plan des couches ; on a par exemple : $M_{//hh}=m_{//e}+m_{//h}$ (1.24)

Les énergies E_{hh} et E_{lh} sont données par les expressions suivantes :

$$E_{hh} = E_g + E_1 + E_1^e + E_1^{hh} \qquad E_{lh} = E_g + E_1 + E_1^e + E_1^{lh} \tag{1.25}$$

où E_g est l'énergie de bande interdite du matériau, E_1 est l'énergie de liaison des excitons (on suppose que l'énergie de liaison - valeur négative - est la même pour les deux excitons [61]) et E_1^e, E_1^{hh} et E_1^{lh} désignent respectivement les énergies de confinement des premiers niveaux d'électrons, de trous lourds et de trous légers.

- **Modélisation de l'exciton dans un puits quantique pour l'étude des propriétés optiques**

Il existe plusieurs modèles permettant de décrire les propriétés optiques d'excitons à l'intérieur d'un puits quantique. Nous allons exposer deux de ces modèles : le modèle de l'oscillateur harmonique et celui de la théorie semi-classique de la réponse optique d'un puits quantique.

- *Modèle de l'oscillateur harmonique*

Le modèle de Lorentz, décrit dans la partie (2.2.1), s'applique également aux excitons dans un puits quantique. La constante diélectrique du matériau est alors définie par l'expression (1.13) :

$$\varepsilon_r(E) = \varepsilon_b + \frac{B}{E_{exc0}^2 - E^2 + j\,\hbar\Gamma\,E} \tag{1.26}$$

avec : E_{exc0} l'énergie de l'exciton, $\hbar\Gamma$ l'élargissement de la transition, B le paramètre lié à la force d'oscillateur et ε_b la constante diélectrique hors résonance du matériau. Par l'intermédiaire de la constante diélectrique ε_r, les excitons modifient les propriétés optiques du matériau via la relation (1.17) : $N = \sqrt{\varepsilon_r}$.

- *Théorie semi-classique de la réponse optique d'un puits quantique*

Dans ce formalisme [62-65], le puits quantique est vu comme une "interface" et non comme une couche à part entière. On suppose que l'indice optique hors résonance est le même à l'intérieur du puits et dans les barrières ; l'exciton est alors décrit par l'intermédiaire d'une constante diélectrique de la forme :

$$\varepsilon(\omega) = \frac{\Gamma_0}{\omega_{exc0} - \omega - j\,\gamma} = \frac{\hbar\Gamma_0}{E_{exc0} - E - j\,\hbar\gamma} \tag{1.27}$$

où $\hbar\Gamma_0$ est le taux de décroissance radiatif dans le puits quantique, c'est une mesure de la force du couplage exciton-photon et $\hbar\gamma$ est l'élargissement de la transition. Le puits quantique étant assimilé à une interface, l'interaction des excitons du puits avec la lumière est modélisée à partir des coefficients de réflexion et transmission du puits quantique r_{QW} et t_{QW} :

$$\begin{cases} r_{QW} = \dfrac{j\,\varepsilon(\omega)}{1 - j\,\varepsilon(\omega)} = \dfrac{j\,\hbar\Gamma_0}{E_{exc0} - E - j\left(\hbar\gamma + \hbar\Gamma_0\right)} \\ t_{QW} = 1 + r_{QW} \end{cases} \tag{1.28}$$

- **Force d'oscillateur dans les puits quantiques**

Dans le cas d'excitons confinés dans un puits quantique, l'intensité de la transition est reliée à la force d'oscillateur par unité de surface f_{osc}/S, définie par :

$$\frac{f_{osc}}{S} = g\,\frac{2}{m_0 E}\,p_{cv}^2\left|\int F_n(r=0,Z)\,dZ\right|^2 \tag{1.29}$$

où E est l'énergie de la transition, p_{cv} l'élément de matrice dipolaire entre la bande de conduction et de valence, F_n la fonction décrivant le mouvement relatif de l'exciton et g le facteur de couplage spin-orbite.

Nous pouvons relier cette grandeur aux paramètres utilisés dans les différents modèles, à savoir le paramètre B du modèle de l'oscillateur harmonique et le paramètre $\hbar\Gamma_0$ de la théorie semi-classique.

- *Relation entre le paramètre B et la force d'oscillateur f_{osc}/S*

Pour obtenir la relation liant le paramètre B à la force d'oscillateur f_{osc}/S, il faut écrire le coefficient d'absorption issu du modèle classique de l'oscillateur harmonique et l'égaler à sa forme issue du modèle semi-quantique [66].

♦ Coefficient d'absorption dans le cas du modèle de l'oscillateur harmonique :

Le coefficient d'absorption α est lié au coefficient d'extinction K par la relation : $\alpha = 4\pi K/\lambda$.

Compte tenu de l'expression (1.18) et de : $2\pi/\lambda = \omega/c$, on a : $\alpha = \dfrac{\omega\,\varepsilon_2}{nc}$ (1.30)

avec, d'après (1.13) : $\varepsilon_2 = \dfrac{\hbar\Gamma E\,B}{\left(E_{exc0}^2 - E^2\right)^2 + \left(\hbar\Gamma E\right)^2}$ (1.31)

$$\text{donc : } \alpha = \frac{1}{\hbar nc}\frac{\hbar\Gamma E^2\, B}{\left(E_{exc0}^2 - E^2\right)^2 + \left(\hbar\Gamma E\right)^2} \tag{1.32}$$

que l'on peut approximer, au voisinage de la résonance excitonique ($E \approx E_{exc0}$) à :

$$\alpha = \frac{\pi B}{2\hbar nc}\Delta(E - E_{exc0}) \tag{1.33}$$

où $\Delta(E–E_{exc0})$ est une fonction lorentzienne centrée sur E_{exc0} et normalisée à l'unité.

♦ Coefficient d'absorption dans le cas de la théorie semi-quantique :

Le coefficient d'absorption α dans le cas du modèle semi-quantique est relié à la force d'oscillateur f_{osc}/S par l'expression suivante [67-69] :

$$\alpha = \frac{\pi e^2\hbar}{2\varepsilon_0 ncm_0 L_{QW}}\frac{f_{osc}}{S}\Delta(E - E_{exc0}) \tag{1.34}$$

où $\Delta(E–E_{exc0})$ est une fonction de Lorentz centrée sur E_{exc0} et normalisée à l'unité et L_{QW} est l'épaisseur du puits quantique.

♦ La comparaison des expressions (1.33) et (1.34) fournit :

$$B = \frac{\hbar^2}{\varepsilon_0 m_0 L_{QW}}\frac{f_{osc}}{S} \text{ où le paramètre } B \text{ est exprimé en eV}^2 \tag{1.35}$$

- *Relation entre le paramètre $\hbar\Gamma_0$ et la force d'oscillateur f_{osc}/S*

Le paramètre $\hbar\Gamma_0$ est relié à la force d'oscillateur par unité de surface par l'expression suivante [70,71] :

$$\hbar\Gamma_0 = \frac{e\hbar}{4n_{cav}m_0 c\varepsilon_0}\frac{f_{osc}}{S} \text{ où } \hbar\Gamma_0 \text{ est exprimé en eV} \tag{1.36}$$

- *Relation de passage entre les paramètres B, $\hbar\Gamma_0$ et f_{osc}/S*

Nous pouvons écrire les relations de passage entre les paramètres décrivant la force d'oscillateur des excitons dans les puits quantiques :

$$\begin{cases} \hbar\Gamma_0 = \dfrac{e\hbar}{4n_{cav}m_0 c\varepsilon_0}\dfrac{f_{osc}}{S} \\ B = \dfrac{\hbar^2}{\varepsilon_0 m_0 L_{QW}}\dfrac{f_{osc}}{S} \end{cases} \tag{1.37}$$

avec f_{osc}/S en m^{-2}, B en eV^2, $\hbar\Gamma_0$ en eV et L_{QW} en m.

En regroupant les constantes, et avec f_{osc}/S en m^{-2}, B en eV^2, $\hbar\Gamma_0$ en eV et L_{QW} en m :

$$\hbar\Gamma_0 = \frac{1,744.10^{-21}}{n_{cav}} \cdot \frac{f_{osc}}{S} \qquad B = \frac{1,378.10^{-27}}{L_{QW}} \cdot \frac{f_{osc}}{S} \tag{1.38}$$

Il nous semble nécessaire de connaître les relations de passage entre les différents paramètres décrivant la force d'oscillateur de manière à pouvoir comparer les valeurs recensées dans la littérature ; ces relations sont détaillées dans l'annexe A.

3 Les cavités à miroirs de Bragg

3.1 Principe de la cavité Fabry-Pérot

Il s'agit d'un système composé de deux miroirs métalliques M_1 et M_2 séparés par un milieu diélectrique d'indice n_c et d'épaisseur d_c (voir figure 1.7).

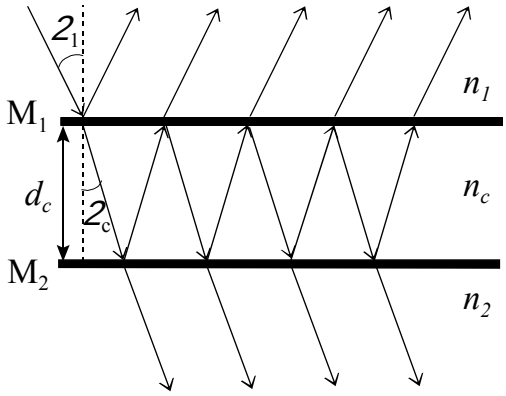


figure 1.7 : Schéma de principe du résonateur Fabry-Pérot.

On suppose que n_1=n_2=1 ; les miroirs M_1 et M_2 ont des coefficients de réflexion et transmission en amplitude notés r_1, t_1 et r_2, t_2. Un champ électromagnétique incident sur le miroir M_1 fait des allers-retours dans la cavité, donnant lieu à un champ réfléchi et un champ transmis qui résultent d'interférences multiples à l'intérieur et à l'extérieur de la cavité.

L'expression du coefficient de transmission T_{FP} en intensité du résonateur Fabry-Pérot s'écrit [72] :

$$T_{FP} = \frac{(t_1 t_2)^2}{(1 - r_1 r_2)^2} \frac{1}{1 + M \sin^2\left(\frac{\varphi}{2}\right)} \tag{1.39}$$

où $M = \frac{4r_1 r_2}{(1-r_1 r_2)^2}$ est le contraste de la cavité et $\frac{1}{1+M\sin^2\left(\frac{\varphi}{2}\right)}$ est appelé fonction d'Airy.

Il traduit la modulation de l'intensité de la phase de l'onde φ à l'intérieur de la cavité. Cette fonction vaut 1 lorsque les allers-retours dans la cavité sont en phase, soit lorsque φ est égale à $2m\pi$. Il est plus commode d'utiliser les coefficients de réflexion et transmission en intensité tels que : $R_i=|r_i|^2$ et $T_i=|t_i|^2$, i=1,2, et avec $R_i+T_i=1$ dans le cas d'un milieu non absorbant. L'expression (1.39) devient alors :

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

La figure 1.8 *(a)* indique la variation du coefficient de transmission T_{FP} du résonateur en fonction de la phase φ pour R_1=R_2=0,8. Le Fabry-Pérot sélectionne donc des modes de champ : seuls ces modes sont transmis et ils donnent lieu à des creux en réflectivité (figure 1.8 *(b)*). Le déphasage φ entre deux rayons transmis consécutifs est donné par la formule suivante :

$$\varphi = \frac{2\pi\delta}{\lambda_c} = \frac{4\pi n_c d_c \cos\theta_c}{\lambda_c} \tag{1.41}$$

où l'angle θ_c est lié à l'angle d'incidence par la Loi de Snell-Descartes : $n_1 \sin\theta_1 = n_c \sin\theta_c$.

L'apparition de modes est la conséquence d'interférences constructives à partir des rayons transmis, c'est-à-dire que les résonances ont lieu pour $\varphi = 2m\pi$. Ainsi :

$$\frac{4\pi n_c d_c \cos\theta_c}{\lambda_c} = 2m\pi \tag{1.42}$$

et donc, on peut exprimer la position des modes en longueur d'onde :

$$\lambda_c = \frac{2n_c d_c \cos\theta_c}{m} \tag{1.43}$$

et également en énergie : $E_c = \frac{hc}{\lambda_c} = \frac{mhc}{2n_c d_c \cos\theta_c}$ (1.44)

λ_c et E_c sont appelés respectivement longueur d'onde et énergie de "résonance", c'est-à-dire longueur d'onde ou énergie pour lesquelles il y a apparition d'un mode.

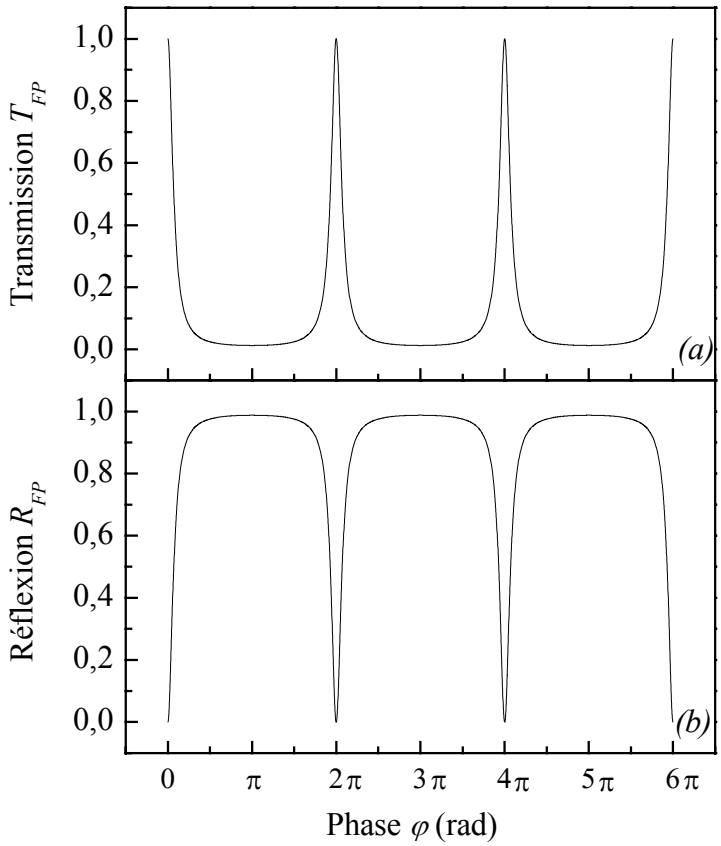


figure 1.8 : Variation des coefficients de transmission T_{FP} (a) et de réflexion R_{FP} (b) du résonateur Fabry-Pérot en fonction de la phase φ pour $R_1=R_2=0,8$.

A partir de l'équation (1.43), on peut exprimer l'épaisseur optique de la cavité L_{opt} qui est un multiple entier de la demi-longueur d'onde, sous incidence normale :

$$L_{opt} = n_c d_c = m\frac{\lambda_c}{2} \tag{1.45}$$

où m=1,2,… est l'ordre du mode.

La séparation entre deux modes, appelée intervalle spectral libre, vaut :

♦ en longueur d'onde : $\Delta\lambda = \lambda_{c(m+1)} - \lambda_{c(m)} = \dfrac{2n_c d_c \cos\theta_c}{m(m+1)} = \dfrac{\lambda_{c(m)}}{m+1}$ (1.46)

♦ en énergie : $\Delta E = E_{c(m+1)} - E_{c(m)} = \dfrac{hc}{2n_c d_c \cos\theta_c}$ (1.47)

3.2 Les miroirs de Bragg

3.2.1 Principe

Un miroir de Bragg est constitué d'un empilement périodique de couches, dont la période est composée de deux milieux notés 1 et 2 d'indices différents n_1 et n_2 et d'épaisseurs d_1 et d_2, comme le montre la figure 1.9.

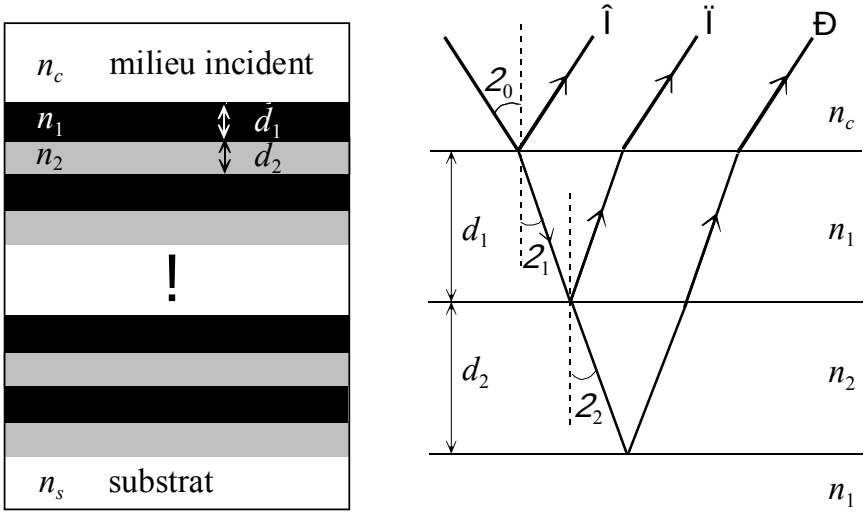


figure 1.9 : Schéma de principe d'un miroir de Bragg ; on suppose que le milieu incident est un milieu d'indice n_c=2,6 ; les indices n_1 et n_2 sont tels que : $n_1<n_2<n_c$.

Les miroirs de Bragg sont des miroirs interférentiels, c'est-à-dire que le champ électromagnétique y subit des interférences ; ces interférences sont destructives en transmission et constructives en réflexion. La condition d'interférences constructives sur les rayons réfléchis s'écrit : $\varphi = 2m\pi$, où φ est le déphasage introduit par la traversée du miroir. Or : $\varphi = 2\pi\delta/\lambda$, où δ est la différence de marche entre deux rayons réfléchis. Il existe deux types de rayons : ceux qui se réfléchissent sur un milieu plus réfringent (par exemple, le rayon numéroté ② dans le cas de figure 1.9) et ceux qui se réfléchissent sur un milieu moins réfringent (rayons numérotés ① et ③). Ainsi, pour avoir des interférences constructives pour chaque rayon réfléchi, il faut tenir compte du déphasage φ_1 entre les rayons ① et ② et du déphasage φ_2 entre les rayons ① et ③.

Le déphasage φ_1 s'écrit : $\varphi_1 = \dfrac{4\pi}{\lambda_0} n_1 d_1 \cos\theta_1 + \pi = 2m\pi$ (1.48)

Le déphasage supplémentaire π provient du fait que le rayon ② subit une réflexion sur un milieu plus réfringent. Ainsi : $n_1 d_1 \cos\theta_1 = (2m-1)\frac{\lambda_0}{4}$ (1.49)

On obtient donc une première condition sur l'épaisseur optique $n_1 d_1$, sous incidence normale :

$$n_1 d_1 = (2m-1)\frac{\lambda_0}{4} \quad (1.50)$$

Le déphasage φ_2 s'écrit : $\varphi_2 = \frac{4\pi}{\lambda_0}\left(n_1 d_1 \cos\theta_1 + n_2 d_2 \cos\theta_2\right) = 2m\pi$ (1.51)

Ainsi : $n_1 d_1 \cos\theta_1 + n_2 d_2 \cos\theta_2 = m\frac{\lambda_0}{2}$ (1.52)

On obtient donc la condition sur les épaisseurs optiques des couches constituant le miroir de Bragg, qui est la relation de Bragg, sous incidence normale :

$$n_1 d_1 + n_2 d_2 = m\frac{\lambda_0}{2} \quad (1.53)$$

Pour minimiser les épaisseurs, on prend l'entier *m* égal à 1 ; les épaisseurs des couches d'un miroir de Bragg sont finalement données par les formules suivantes :

$$d_1 = \frac{\lambda_0}{4n_1} \quad \text{et} \quad d_2 = \frac{\lambda_0}{4n_2} \quad (1.54)$$

avec λ_0 la longueur d'onde à laquelle est centré le miroir de Bragg.

Par la suite, l'ensemble des formules est valable dans le cas où les épaisseurs sont celles définies par (1.54).

3.2.2 Différences avec les miroirs métalliques

Les miroirs de Bragg diffèrent des miroirs métalliques pour trois raisons principales [59] :

❶ Le coefficient de réflectivité d'un miroir de Bragg dépend de la longueur d'onde incidente. Nous avons effectué le calcul de réflectivité d'un miroir de Bragg contenant 10, 15 puis 20 paires de couches d'AlN d'indice n_1=2,10 et d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ d'indice n_2=2,40. Sur la figure 1.10, on note n_c l'indice du milieu d'où est issue la lumière incidente (ici, le milieu est GaN d'indice n_c=2,60) et n_s le milieu de l'autre côté du miroir (AlN, d'indice n_s=2,10). Les spectres présentés sur la figure sont constitués de deux zones bien distinctes : l'une de grande réflectivité, qu'on appelle "stop band" (bande d'arrêt), centrée sur l'énergie de résonance E_0,

et l'autre qu'on observe pour des énergies éloignées de E_0 où des fluctuations importantes de la réflectivité, qui forment les "ailes" du miroir, sont présentes.

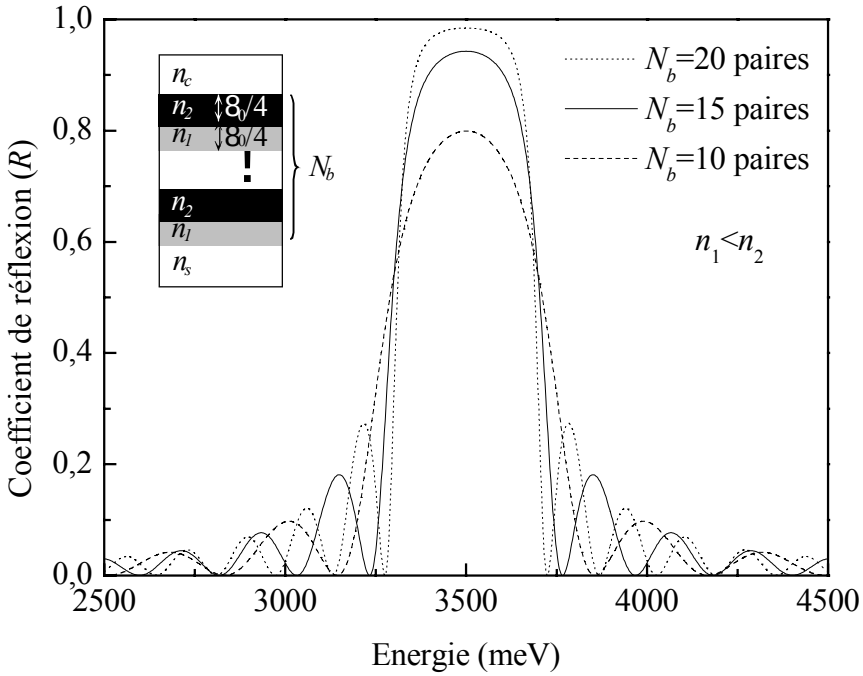


figure 1.10 : Calcul de la réflectivité d'un miroir de Bragg contenant 10, 15 et 20 paires d'AlN (n_1=2,10) et d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ (n_2=2,40) ; n_c=2,60 (GaN) et n_s=2,10 (AlN).

Plus on augmente le nombre de paires du miroir, plus la valeur de la réflectivité maximale augmente et plus la limite de la stop band est marquée. La réflectivité du miroir peut être évaluée pour $E=E_0$ [73,74] :

$$R = \left(\frac{1 - \frac{n_s}{n_c}\left(\frac{n_1}{n_2}\right)^{2N_b}}{1 + \frac{n_s}{n_c}\left(\frac{n_1}{n_2}\right)^{2N_b}} \right)^2 \qquad (1.57)$$

où n_s est l'indice du substrat, n_c l'indice du milieu ambiant et N_b le nombre de paires de couches constituant le miroir. On peut remarquer que si le contraste d'indice est faible, il faudra un nombre important de paires pour augmenter la réflectivité du miroir de Bragg.

La présence de la stop band peut s'expliquer en considérant le miroir comme un système périodique unidimensionnel. Ainsi, la forme d'onde dans cette structure doit obéir au théorème de Bloch, ce qui implique, comme dans le cas des électrons dans un cristal, une

zone de solutions interdites pour le vecteur d'onde : le gap. Cette stop band est donc la zone des modes photoniques interdits dans la structure.

La largeur en énergie Δ_{SB} de la stop band est donnée, pour un grand nombre de paires, par la formule suivante [75] :

$$\Delta_{SB} = \frac{2E_0 |n_1 - n_2|}{\pi n_{eff}} \text{ avec : } n_{eff} \approx \frac{n_1 + n_2}{2} \tag{1.56}$$

Cette formule montre la grande importance du contraste d'indice sur la largeur de la stop band. Dans le cas du calcul de la figure 1.10, Δ_{SB} vaut 297 meV.

❷ Pour toutes les longueurs d'onde, le champ électromagnétique pénètre plus profondément à l'intérieur de ces miroirs que dans le cas de miroirs métalliques. En effet, dans un miroir métallique, le champ électromagnétique ne pénètre quasiment pas car il est très rapidement écranté à l'intérieur du miroir. Par contre, dans le cas d'un miroir de Bragg, la réflectivité s'établit progressivement par un mécanisme d'interférences à l'intérieur de chaque couche.

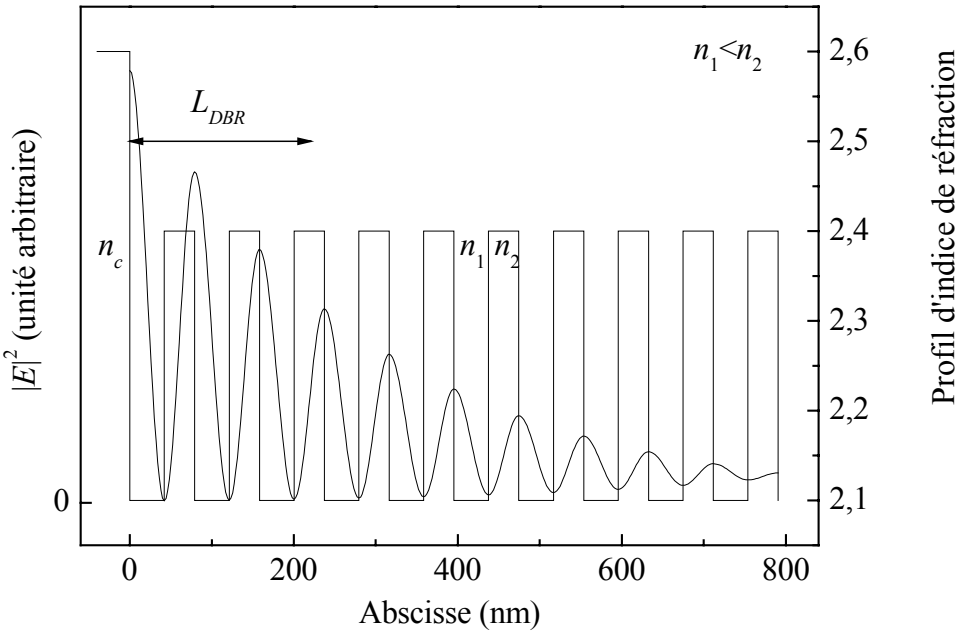


figure 1.11 : Distribution du champ électromagnétique à l'intérieur d'un miroir de Bragg contenant 10 paires d'AlN d'indice n_1=2,10 et d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ d'indice n_2=2,40 ainsi que profil d'indices à l'intérieur de la structure ; n_c=2,60 (GaN) et n_s=2,10 (AlN).

La quantification de cette pénétration dans le miroir est la longueur de pénétration L_{DBR} qui est donnée par la formule [4,34,76] :

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_0}{4} \frac{n_1 n_2}{n_c^2 \left(n_2 - n_1\right)} \quad (n_1 < n_2) \tag{1.57}$$

La longueur de pénétration dépend donc essentiellement des valeurs des indices des couches constituant le miroir. Plus le contraste d'indice est important et plus la longueur de pénétration est faible. Cette notion de pénétration du champ est illustrée sur la figure 1.11, où l'on remarque que le champ électromagnétique oscille dans une enveloppe exponentielle. La valeur de L_{DBR} vaut 220 nm dans le cas de ce calcul et est reportée sur la figure 1.11.

❸ La phase de l'onde réfléchie à l'extérieur de la structure, par rapport à celle de l'onde incidente, dépend de la longueur d'onde incidente. Elle est donnée par la formule suivante, en fonction de la pulsation :

$$\phi_r = \frac{n_c L_{DBR}}{c}\left(\omega - \omega_0\right) \text{ ou en fonction de l'énergie : } \phi_r = \frac{n_c L_{DBR}}{\hbar c}\left(E - E_0\right) \tag{1.58}$$

Elle est tracée sur la figure 1.12 en fonction de la différence (E–E_0), différence entre l'énergie incidente et l'énergie de résonance du miroir. On remarque que la phase vaut 0 au centre de la stop band, et non π comme pour un miroir métallique.

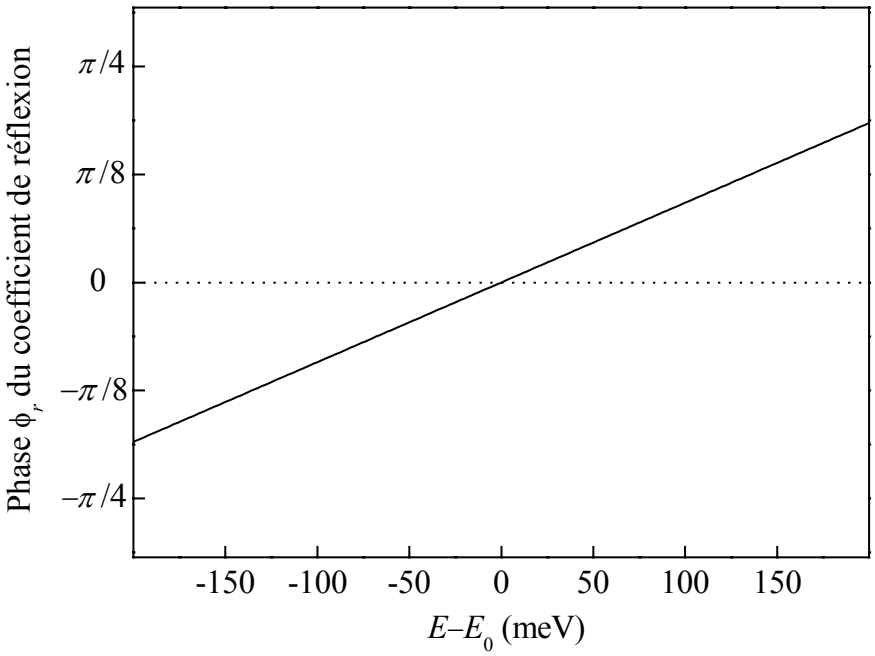


figure 1.12 : Phase ϕ_r du coefficient de réflexion d'un miroir de Bragg.

3.2.3 Sensibilité vis à vis de l'épaisseur des couches

On note d_1 et d_2 les épaisseurs respectives des couches 1 et 2 d'indices n_1 et n_2 qui définissent la période du miroir. Sur la figure 1.13, nous montrons l'influence d'une variation des épaisseurs - qui ne satisfont plus les conditions de Bragg - sur la réflectivité du miroir.

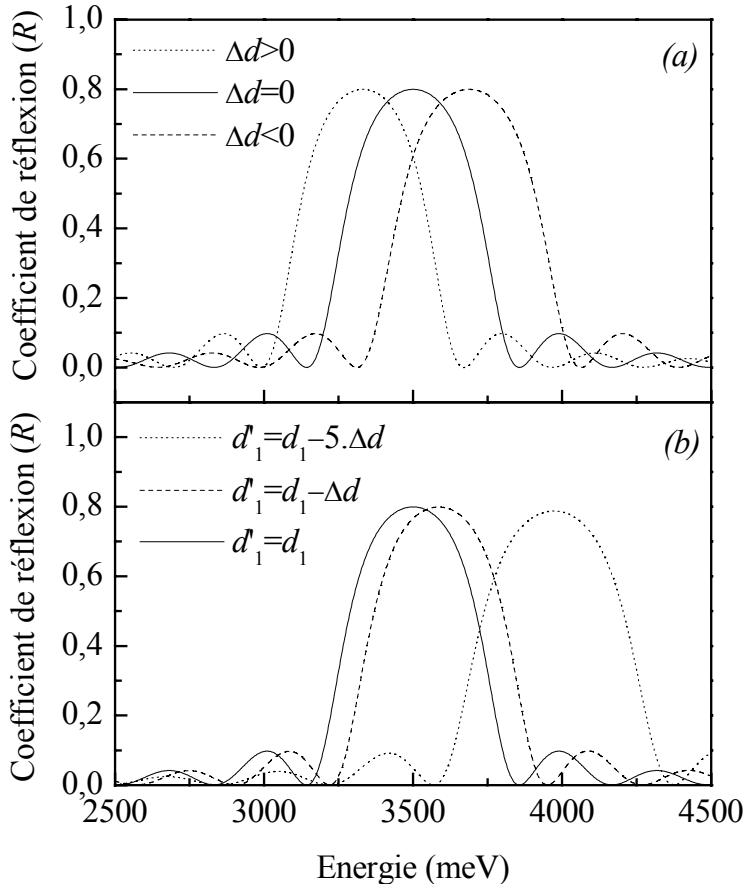


figure 1.13 : Influence de l'épaisseur des couches sur le spectre de réflectivité d'un miroir de Bragg AlN/$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ (N_b=10; n_1=2,10; n_2=2,40; n_c=2,60; n_s=2,10) ; la variation d'épaisseur Δd est de 5% ; (a) les deux couches subissent la même variation d'épaisseur ; (b) seule une des couches subit une modification d'épaisseur.

♦ si l'erreur sur les épaisseurs des couches Δ*d* est identique pour la couche 1 et la couche 2, soit : $d'_i=d_i+\Delta d$, il y aura un décalage global de la stop band, qui sera centrée sur la longueur d'onde λ telle que : $n_1 d'_1=n_2 d'_2=\lambda/4$.

Si Δ*d* est positif (augmentation d'épaisseur), la stop band se décalera vers les grandes longueurs d'onde. Inversement, si Δ*d* est négatif (diminution d'épaisseur), la stop band se décalera vers les basses longueurs d'onde. Mais dans les deux cas, il n'y aura pas de perte en réflectivité maximale (figure 1.13 *(a)*).

♦ si maintenant l'une des couches n'a pas l'épaisseur requise, alors l'accord de phase à l'intérieur des couches ne se fera plus à chaque interface mais avec une période plus grande, telle que : $n_1 d'_1 = n_2 d_2 = \lambda/4$. Si l'erreur sur l'épaisseur est faible par rapport au nombre total de couches, on ne verra qu'un léger décalage de la stop band ; par contre, si l'erreur est plus importante, alors on aura une perte de réflectivité maximum, voir déformation de la stop band (figure 1.13 *(b)*).

3.3 Les microcavités à miroirs de Bragg

3.3.1 Principe

Les microcavités à miroirs de Bragg sont des structures de type Fabry-Pérot, les miroirs métalliques étant remplacés par des miroirs de Bragg. Ce sont des "micro" cavités car l'épaisseur de la cavité est de l'ordre de la longueur d'onde, plus précisément un multiple de $\lambda_c/2$ (expression (1.45)) où λ_c est la longueur d'onde de résonance de la cavité. La structure-type d'une microcavité à miroirs de Bragg est schématisée sur la figure 1.14.

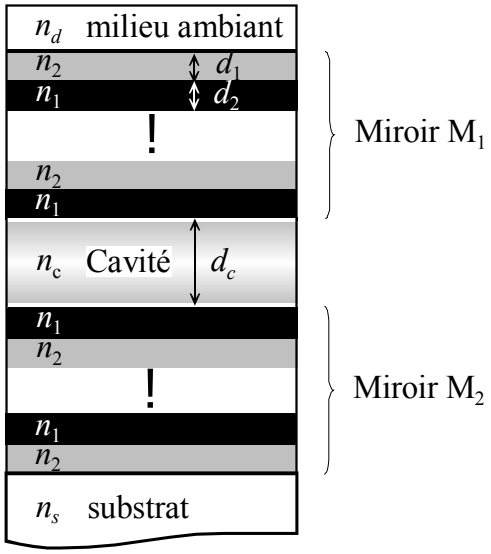


figure 1.14 : Schéma de principe d'une microcavité à miroirs de Bragg ; n_1 et n_2 sont les indices des couches constituant les miroirs de Bragg ($n_1<n_2$), n_d est l'indice du milieu extérieur et n_s l'indice du substrat.

L'épaisseur des miroirs de Bragg doit être adaptée à celle de la cavité d_c : ainsi, la longueur d'onde de résonance des miroirs λ_0 doit être choisie de manière à être très proche de la longueur d'onde de résonance de la cavité λ_c. En particulier, il est plus commode de définir les épaisseurs des miroirs de Bragg à partir de la longueur d'onde de résonance de la cavité,

λ_c. Par la suite, sauf précision particulière, on supposera toujours : $\lambda_c=\lambda_0$, qui sera la longueur d'onde de résonance de la structure. Les épaisseurs respectives d_1, d_2 et d_c des miroirs de Bragg M_1 et M_2 et de la cavité sont donc données par les formules suivantes (équations (1.45) et (1.54)), sous incidence normale :

$$\begin{aligned} d_c &= m\frac{\lambda_0}{2n_c} \\ n_1 d_1 &= n_2 d_2 = \frac{\lambda_0}{4} \end{aligned} \tag{1.59}$$

où λ_0 est la longueur d'onde de résonance de la structure et m le nombre de demi-longueurs d'onde contenues dans la cavité.

3.3.2 Définitions et propriétés

Une microcavité à miroirs de Bragg peut être traitée comme une cavité Fabry-Pérot, à condition de tenir compte de la pénétration du champ dans les miroirs, ainsi, l'épaisseur de la cavité d_c doit être remplacée par une longueur effective de cavité égale à [4,77] :

$$L_{eff} = d_c + L_{DBRs} \tag{1.60}$$

où L_{DBRs} est la longueur de pénétration dans les miroirs telle que : $L_{DBRs}=2\,L_{DBR}$ avec L_{DBR} définie par l'équation (1.57) et d_c l'épaisseur physique de la cavité.

Si l'énergie de résonance de la cavité E_c est différente de l'énergie de résonance des miroirs de Bragg E_0, alors l'énergie de résonance de la structure totale E_s sera donnée par la formule suivante [78] :

$$E_s = \frac{d_c E_c + L_{DBRs} E_0}{L_{eff}} \tag{1.61}$$

Dans la plupart des cas, L_{DBRs} est plus grand que d_c, ainsi, l'énergie de résonance E_s dépend faiblement de l'épaisseur de la cavité d_c, alors qu'elle est très sensible aux épaisseurs des couches constituant les miroirs de Bragg.

La différence essentielle entre le spectre de réflectivité présenté sur la figure 1.15 *(a)* et un spectre de miroir de Bragg est la présence d'un mode de cavité discret à l'énergie de résonance E_0. Pour expliquer la présence de ce mode entre les miroirs de Bragg, nous pourrions considérer la cavité comme étant une perturbation de la périodicité des couches formant les miroirs, nous pouvons faire une analogie entre cette perturbation et les défauts

dans une maille cristalline [72]. Ces défauts introduisent des niveaux dans la bande interdite des semi-conducteurs. De la même manière, la présence de la cavité va introduire un "niveau" dans la stop band des miroirs de Bragg, c'est à dire une zone spectrale où la réflectivité chute. En choisissant de manière adéquate la longueur de la cavité, on peut placer ce "niveau d'impureté" au centre de la stop band. Ce "niveau" sera appelé le mode de cavité.

Le mode de cavité a une largeur spectrale finie car les miroirs de Bragg ne sont pas des miroirs parfaits et le photon de cavité a une probabilité non nulle de pouvoir "s'échapper" vers l'extérieur. Cette largeur à mi-hauteur sous incidence normale est reliée à la réflectivité des miroirs de Bragg par les formules suivantes [78,79] :

- dans le cas où les deux miroirs ont une réflectivité identique R :

$$\Gamma_c = \frac{\hbar c}{n_c e L_{eff}} \frac{1-R}{2} \tag{1.62}$$

- dans le cas d'une cavité asymétrique, où les coefficients de réflexion des miroirs inférieur et supérieur sont respectivement notés R_{inf} et R_{sup} :

$$\Gamma_c = \frac{\hbar c}{n_c e L_{eff}} \frac{1-\sqrt{R_{inf} R_{sup}}}{2} \tag{1.63}$$

La figure 1.15 montre un calcul de réflectivité d'une microcavité de GaN, d'indice n_c=2,60, les miroir haut et bas contenant respectivement 10 et 15 paires d'AlN et d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$, d'indices n_1=2,10 et n_2=2,40, le substrat est supposé semi-infini d'indice n_s=2,60.

Le spectre en trait pointillés sur la figure 1.15 *(a)* correspond au calcul relatif au miroir haut de cette structure. La largeur de la stop band est indiquée par la flèche sur la figure et d'après l'expression (1.56), a pour valeur : Δ_{SB}=297 meV.

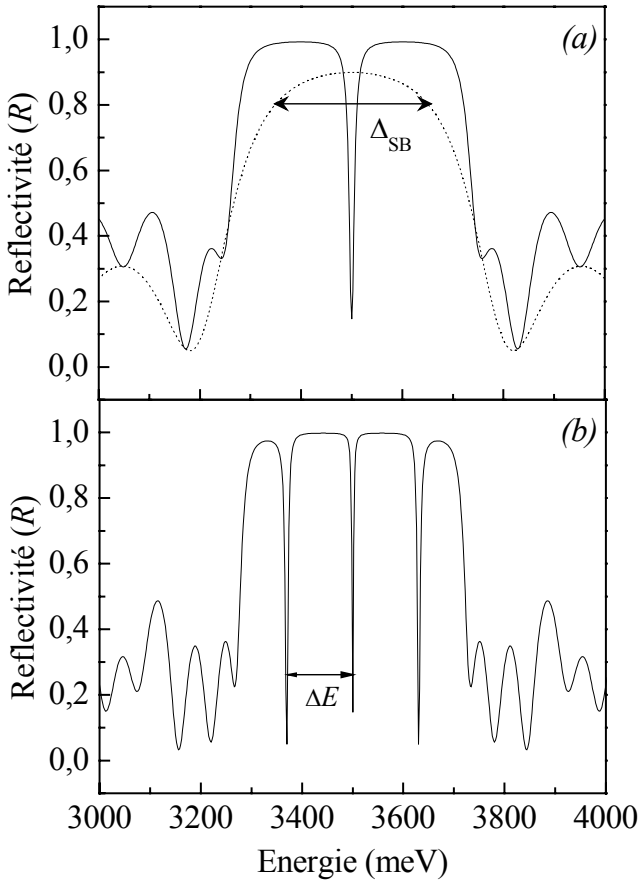


figure 1.15 : Calcul de la réflectivité d'une microcavité massive de GaN à miroirs de Bragg $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$; $N_{b1}=10$; $N_{b2}=15,5$; $n_c=2,60$; $n_1=2,10$; $n_2=2,40$; $n_s=2,60$ et $n_d=1,00$. (a) épaisseur optique de la cavité : $\lambda_0/2$ ainsi, $\Delta E>\Delta_{SB}/2$; (b) épaisseur optique de la cavité : $20\lambda_0/2$ ainsi, $\Delta E<\Delta_{SB}/2$.

En choisissant une longueur de cavité suffisamment faible, l'intervalle spectral libre en énergie ΔE entre deux modes est alors plus grand que la largeur de la stop band Δ_{SB}. Sur la figure 1.15 *(a)*, la cavité a une épaisseur optique de $\lambda_0/2$ soit une épaisseur physique de 68,1 nm ; cette épaisseur conduit à un intervalle spectral libre de ΔE=197 meV ; donc $\Delta E>\Delta_{SB}/2$, ainsi, il n'apparaît qu'un seul mode dans la cavité. Par contre, dans le cas contraire, on peut voir apparaître plusieurs modes ; sur la figure 1.15 *(b)*, la cavité a cette fois-ci une longueur optique de $20\lambda_0/2$, soit une épaisseur de 1362,4 nm, qui conduit à ΔE=95 meV ; dans ce cas, $\Delta E<\Delta_{SB}/2$, ainsi, il apparaît plusieurs modes sur le spectre de réflectivité. Le nombre de modes peut être calculé par : $N_{b\ modes}=\text{int}(\Delta_{SB}/\Delta E)$; ainsi, $N_{b\ modes}=3$ dans notre exemple.

La figure 1.16 montre l'allure du module au carré du champ électromagnétique dans la microcavité. Nous voyons que le champ est maximum dans la cavité ; l'amplitude oscille

ensuite avec une enveloppe décroissante dans les miroirs de Bragg ; la longueur effective de cavité L_{eff} vaut 508 nm dans le cas de la structure considérée et est reportée sur la figure.

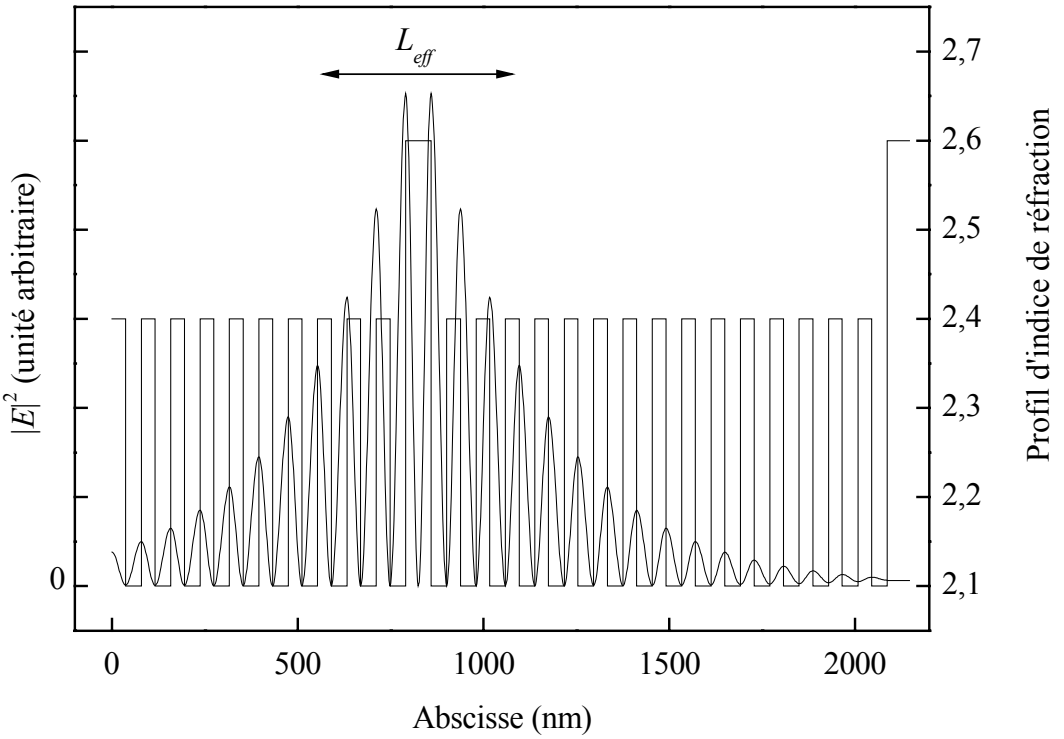


figure 1.16 : Distribution du champ électromagnétique dans une microcavité de GaN d'épaisseur optique $\lambda_0/2$ à miroirs de Bragg $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ dans la direction de propagation z (direction perpendiculaire au plan des couches) ainsi que le profil d'indice à l'intérieur de la structure ; N_{b1}=10 ; N_{b2}=15,5 ; n_c=2,60 ; n_1=2,10 ; n_2=2,40 ; n_s=2,60 et n_d=1,00.

3.3.3 Relation de dispersion du photon

- **Cas du massif**

Dans le cas d'un milieu infini, sans courant, ni charge et non magnétique, les équations de Maxwell s'écrivent :

$$\begin{aligned} \overrightarrow{rot}\vec{H} &= \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} & div\vec{B} &= 0 \\ \overrightarrow{rot}\vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} & div\vec{D} &= 0 \end{aligned} \qquad (1.64)$$

Les équations (1.64) permettent d'écrire la relation suivante : $\vec{k} \wedge \left(\vec{k} \wedge \vec{E}\right) = -\frac{\omega^2}{c^2}\vec{D}$ (1.65)

Pour une onde longitudinale, $\vec{k} \wedge \vec{E} = \vec{0}$, d'où $\vec{D} = \vec{0}$, or : $\vec{D} = \varepsilon \vec{E}$ et $\varepsilon = 0$ (1.66)

Pour une onde transverse, $\vec{k}.\vec{E} = 0$, d'où : $\vec{D} = \frac{c^2 k^2}{\omega^2} \vec{E}$ et $\varepsilon = \frac{c^2 k^2}{\omega^2}$ (1.67)

La relation de dispersion du photon s'écrit donc : $E(k) = \frac{\hbar c}{n} k$ (1.68)

- **Cas des microcavités**

Un photon de cavité est un photon d'énergie E_0, c'est-à-dire un photon résonant avec le mode de cavité. Son vecteur d'onde $\vec{k}$ est défini par ses composantes k_z et $k_{//}$. La composante k_z (perpendiculaire au plan des couches) est discrétisée par la cavité. En effet, on a :

$$E_0 = \frac{hc}{\lambda_0} = \frac{\hbar c}{n_c} k_z \tag{1.69}$$

où λ_0 est la longueur d'onde de résonance **en incidence normale** et n_c l'indice de réfraction du milieu.

soit : $k_z = \frac{2\pi n_c}{\lambda_0} = m \frac{\pi}{d_c}$ (1.70)

d'après l'expression (1.59).

En revanche, la composante dans le plan des couches $k_{//}$ peut prendre des valeurs quelconques, et l'on dit alors que les photons sont "confinés" suivant la direction z et "libres" dans le plan des couches.

Ainsi, le vecteur d'onde $\vec{k}$ s'écrit sous la forme :

$$\left|\vec{k}\right| = \sqrt{k_{//}^2 + \left(\frac{2\pi n_c}{\lambda_0}\right)^2} \tag{1.71}$$

On peut donc écrire une relation de dispersion pour la microcavité ; l'énergie du mode de cavité en fonction du vecteur d'onde dans le plan intracavité a pour expression :

$$E(k_{//}) = \frac{\hbar c}{n_c} k = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_{//}^2 + \left(\frac{2\pi n_c}{\lambda_0}\right)^2} \tag{1.72}$$

d'après les expressions (1.68) et (1.71). Comme nous le verrons dans le chapitre 4, l'intérêt de cette dispersion en angle de l'énergie du photon de cavité sera d'étudier les microcavités à

partir d'expériences résolues en angle, qui permettront d'accorder le mode de cavité à l'énergie de l'exciton considérée.

4 Les polaritons de cavité

4.1 Définitions

4.1.1 Polariton excitonique

Dans les matériaux massifs, lorsqu'un exciton est créé, il peut se coupler à un photon incident par l'interaction entre le champ électromagnétique du rayonnement et le champ de polarisation excitonique. L'exciton peut être considéré comme un oscillateur caractérisé par son énergie E_{exc} et son vecteur d'onde $\vec{k}_{exc}$, il en va de même pour le photon, qui possède une énergie E_{ph} et un vecteur d'onde $\vec{k}_{ph}$. Ces deux oscillateurs pourront se coupler si $\vec{k}_{exc} = \vec{k}_{ph}$; les modes propres d'un tel système correspondent alors à des états "de mélange" ou "mixtes". Ce système équivaut donc au couplage de deux oscillateurs harmoniques : l'un matériel - l'exciton - et l'autre électromagnétique - le photon -, d'où la notion de "polariton excitonique". Les vecteurs d'onde décrivant l'exciton et le photon étant tridimensionnels, la notion de "polariton 3D" est également utilisée.

4.1.2 Interaction exciton-photon dans un puits quantique

Dans un puits quantique, l'exciton est confiné suivant l'axe de croissance et son mouvement est libre dans le plan des couches ; son vecteur d'onde est donc bidimensionnel et l'exciton est dit "2D". Du point de vue de la symétrie, le confinement 2D brise l'invariance par translation du matériau selon l'axe de croissance alors que le champ électromagnétique, lui, reste tridimensionnel (photon "3D"). Par conséquent, un exciton de vecteur d'onde dans le plan des couches $K_{//}$ peut se coupler avec tout photon de même vecteur d'onde $k_{//}$ dans le plan mais de vecteur d'onde k_z quelconque. Ainsi, l'exciton peut donc interagir avec un continuum de modes électromagnétiques.

La condition d'interaction exciton-photon dans un puits quantique peut s'écrire [59] :

$$K_{//}=k_{//} \tag{1.73}$$

où $K_{//}$ et $k_{//}$ sont respectivement les vecteurs d'onde dans le plan des couches de l'exciton et du photon.

L'absorption ou l'émission d'un photon par l'exciton conserve l'énergie. En tenant compte de la condition (1.73), on peut écrire la relation de dispersion de l'exciton *hh* dans le puits :

$$E_{hh} + \frac{\hbar^2 K_{//}^2}{2M_{//hh}} = \frac{\hbar c}{n} k = \frac{\hbar c}{n} \sqrt{K_{//}^2 + k_z^2} \tag{1.74}$$

où $\hbar ck/n$ est l'énergie d'un photon de vecteur d'onde $\vec{k}$ se propageant dans le matériau d'indice n qui compose le puits.

4.1.3 Polariton de cavité

Maintenant, le puits quantique est inséré à l'intérieur d'une microcavité à miroirs de Bragg contenant un seul mode. Le mode du champ est discrétisé dans la direction de croissance. Ce mode a pour vecteur d'onde : $\vec{k}_{ph} = \left(k_{//}^{ph}, k_z^{ph}\right)$ (1.75)

où $k_{//}^{ph}$ est quelconque et k_z^{ph} est fixé par l'expression (1.70).

Un exciton confiné dans le puits quantique se couplera à ce mode s'il possède le même vecteur d'onde dans le plan $k_{//}$. Sous certaines conditions, ce couplage pourra donner lieu à deux états non dégénérés de polaritons. Ces états sont appelés "polaritons de cavité" ou également "polariton 2D".

4.2 Relation de dispersion du polariton de cavité

Dans cette partie, nous nous intéressons à une microcavité contenant un puits quantique. Nous allons étudier la relation de dispersion du polariton de cavité à partir du modèle quantique à deux niveaux [59,72,80].

Dans ce modèle à deux niveaux, on considère l'interaction entre le photon discret de la cavité et le niveau fondamental de l'exciton lourd. Dans le cas d'une microcavité non-parfaite, les niveaux en interaction sont élargis à cause de leurs interactions respectives avec des centres diffuseurs (pour les excitons) ou avec l'extérieur (pour les photons). On supposera néanmoins que les diffusions des excitons et la fuite vers l'extérieur des photons introduisent un élargissement des niveaux, mais n'affectent pas leur interaction. On se trouve dans le cas d'un modèle à deux oscillateurs amortis couplés. L'avantage de ce modèle est d'obtenir des expressions analytiques simples des énergies de polaritons.

On appelle $|C_{k//}\rangle$ (resp. $|X_{k//}\rangle$) l'état représentant un photon de cavité de vecteur d'onde $\vec{k}_{//}$ (resp. l'état représentant un exciton de vecteur d'onde $\vec{k}_{//}$). On introduit les énergies complexes : $E_{exc}(k_{//})-j\,\Gamma_{exc}$ et $E_{ph}(k_{//})-j\,\Gamma_{ph}$ [81], où $E_{exc}(k_{//})$ et $E_{ph}(k_{//})$ sont définies respectivement par les expressions (1.23) et (1.72) et Γ_{exc} et Γ_{ph} sont les amortissements de l'exciton et du photon dans la cavité. En régime linéaire, le système (photon+exciton) en interaction peut être modélisé par l'hamiltonien suivant, représenté dans la base des états non perturbés $|C_{k//}\rangle$ et $|X_{k//}\rangle$ [8,56]:

$$H_{k_{//}} = \begin{pmatrix} E_{ph}(k_{//}) - j\,\Gamma_{ph} & V(k_{//}) \\ V(k_{//}) & E_{exc}(k_{//}) - j\,\Gamma_{exc} \end{pmatrix} \tag{1.76}$$

où $V(k_{//})$ est le terme de couplage entre le photon de cavité et l'exciton, qui sera considéré constant, c'est-à-dire indépendant de $k_{//}$ (l'expression explicite de V sera donnée dans le paragraphe suivant).

Les énergies E des états propres du système (photon+exciton) vérifient alors :

$$\left(E - E_{ph}(k_{//}) + j\,\Gamma_{ph}\right)\left(E - E_{exc}(k_{//}) + j\,\Gamma_{exc}\right) = V^2(k_{//}) \tag{1.77}$$

Il vient :

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

Ainsi, les modes propres du système $|+\rangle$ et $|-\rangle$, les polaritons de cavité, ont des énergies dont les expressions sont les suivantes (les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont des combinaisons linéaires des états $|C_{k//}\rangle$ et $|X_{k//}\rangle$) :

$$E_{\pm}(k_{//}) = E_m(k_{//}) - j\,\Gamma_m \pm \sqrt{V^2 + \frac{1}{4}\left(-\delta(k_{//}) - j\Delta\right)^2} \tag{1.78}$$

où :
$$E_m(k_{//}) = \frac{E_{exc}(k_{//}) + E_{ph}(k_{//})}{2} \qquad \Gamma_m = \frac{\Gamma_{exc} + \Gamma_{ph}}{2}$$
$$\delta(k_{//}) = E_{ph}(k_{//}) - E_{exc}(k_{//}) \qquad \Delta = \Gamma_{exc} - \Gamma_{ph} \tag{1.79}$$

La partie réelle de l'expression (1.78) donne les énergies des modes propres, et la partie imaginaire, la largeur des modes.

Considérons maintenant le cas de la résonance entre l'exciton et le mode de cavité (E_{exc}=E_{ph}). L'équation (1.78) se simplifie :

$$E_{\pm}(k_{//}) = E_m(k_{//}) - j\,\Gamma_m \pm \sqrt{V^2 - \frac{1}{4}\Delta^2} \tag{1.80}$$

et le terme sous la racine peut prendre des valeurs positives ou négatives :

♦ Si $V^2<\Delta^2/4$, l'équation (1.80) admet deux solutions complexes dont les parties réelles sont identiques, mais dont les parties imaginaires sont distinctes. Les deux modes propres ont donc même énergie, décrite par la partie réelle des solutions, mais avec des largeurs différentes, liées à la partie imaginaire. Ainsi, on n'observe pas de dédoublement de Rabi, c'est ce qu'on appelle le régime de couplage faible.

♦ Si $V^2>\Delta^2/4$, les deux solutions ont cette fois-ci des énergies distinctes. Les modes propres du système (exciton+photon), lorsque E_{exc}=E_{ph}, sont alors des modes mixtes exciton-photon, appelés polaritons. Les deux valeurs d'énergies correspondent aux énergies du polariton haut E_+ et du polariton bas E_- : Dans ce cas, on parle de régime de couplage fort.

Les notions de couplage faible et de couplage fort peuvent être également interprétées à partir d'une image "classique" qui consiste à considérer une cavité contenant un puits quantique dans lequel un exciton va disparaître en émettant un photon. A partir de là, deux cas se présentent : le photon s'échappe de la cavité - on se trouve dans le régime de couplage faible - (figure 1.17 *(a)*) ou bien il est réabsorbé rapidement par le puits quantique - régime de couplage fort - (figure 1.17 *(b)*). Dans le régime de "couplage fort", l'énergie du système oscille entre celle de l'exciton et celle du photon tellement rapidement que la lumière n'a pas le temps de s'échapper de la cavité par les miroirs. Ainsi, dans ce régime, il est impossible de savoir si l'énergie est stockée sous forme de matière (excitons) ou sous forme de lumière (photons).

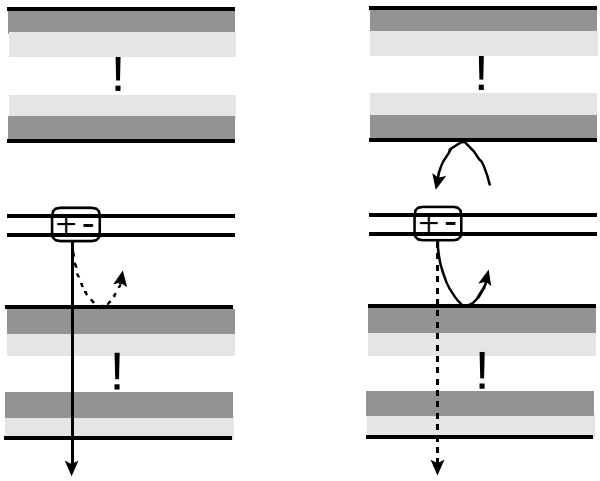


figure 1.17 : L'exciton se "désintègre" en émettant un photon. (a) le photon s'échappe de la cavité avant de pourvoir être réabsorbé : "couplage faible". (b) le photon est réabsorbé avant de sortir de la cavité : "couplage fort".

Considérons maintenant la situation de couplage fort. Nous avons effectué le calcul des courbes de dispersion dans le cas où nous supposons les élargissements nuls (Γ_{exc}=0 et Γ_{ph}=0) :

$$E_{\pm}(k_{//}) = E_m(k_{//}) \pm \sqrt{V^2 + \frac{1}{4}\delta(k_{//})^2} \tag{1.81}$$

$$\text{où : } E_m(k_{//}) = \frac{E_{exc}(k_{//}) + E_{ph}(k_{//})}{2} \text{ et } \delta(k_{//}) = E_{ph}(k_{//}) - E_{exc}(k_{//}) \tag{1.82}$$

Les courbes de dispersion du polariton à l'intérieur d'une microcavité sont représentées sur la figure 1.18 pour trois valeurs de désaccord différentes. Le désaccord $\delta(k_{//}=0)$ est défini à $k_{//}$=0 par : $\delta(k_{//}=0)=E_{ph}(0)-E_{exc}(0)$.

Les paramètres que nous avons utilisés dans les calculs sont les suivants : n_c=2,60, M=1,2 m_0 et V^2=1500 meV^2. Les niveaux d'énergie présentent un anticroisement caractéristique du couplage fort. En effet, lorsque le désaccord varie, il y a levée de dégénérescence autour de la résonance. Pour $\delta(k_{//}=0)=0$, l'anticroisement se produit en $k_{//}$=0 ; pour $\delta(k_{//}=0)<0$, il se produit à un vecteur d'onde positif, et la dispersion du polariton de basse énergie est plus creusée autour de $k_{//}$=0 ; enfin, pour $\delta(k_{//}=0)>0$, l'écart des énergies est plus grand.

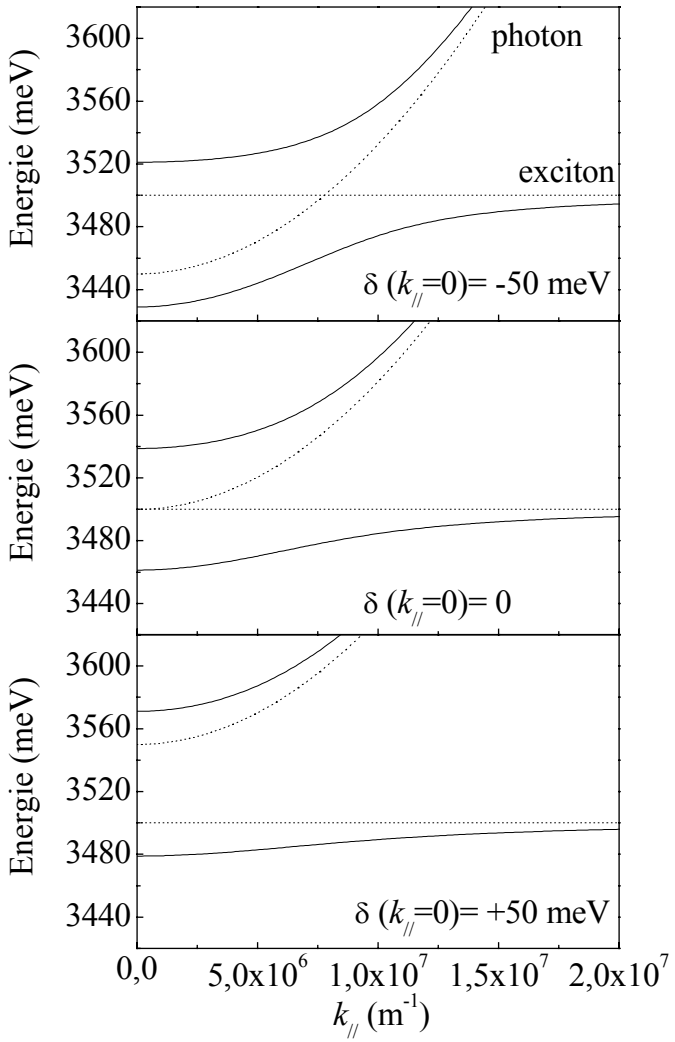


figure 1.18 : Courbes de dispersion des polaritons déduites du modèle quantique à deux niveaux pour trois désaccords différents : $\delta(k_{//}=0)=-50$ meV, $\delta(k_{//}=0)=0$ meV et $\delta(k_{//}=0)=+50$ meV ; les traits pointillés représentent les courbes de dispersion de l'exciton et du photon non couplés.

4.3 Dédoublement de Rabi

4.3.1 Définition

La figure 1.19 représente la variation des énergies des états polaritoniques en fonction du désaccord δ entre les énergies de l'exciton et du photon.

Lorsque δ=0, les deux pics ne se confondent pas en un seul mais sont dédoublés ("dédoublement de Rabi") : les deux courbes en trait plein présentent un "anticroisement". Pour δ>>0, le polariton haut tend vers le mode de cavité et le polariton bas vers le mode d'exciton. Pour δ<<0, le polariton haut tend vers l'état excitonique et le polariton bas vers le

mode de cavité. Ainsi, lorsqu'on s'éloigne de la résonance, les deux modes de polaritons tendent vers les modes de cavité et d'exciton découplés.

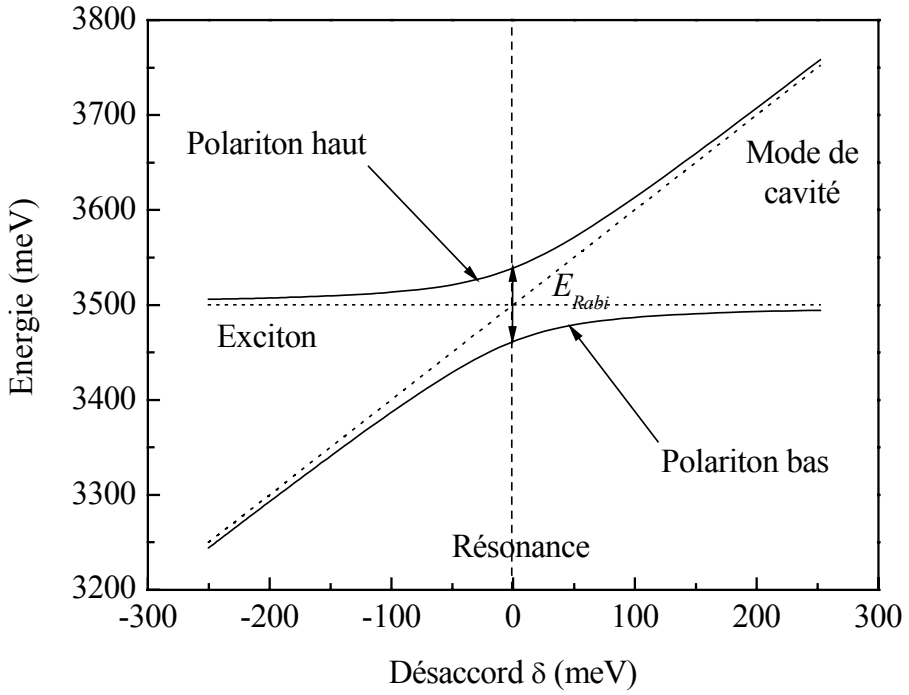


figure 1.19 : Variation de l'énergie des états de polaritons en fonction du désaccord exciton-photon défini par $\delta = E_{ph} - E_{exc}$. *En pointillés, est représentée la variation de l'énergie des modes non couplés.*

L'écart entre les deux modes de polaritons est minimal à la résonance ($E_{exc}=E_{ph}$) :

$$E_+ - E_- = E_{Rabi} = \hbar\Omega_{Rabi} \tag{1.83}$$

où Ω_{Rabi} est la pulsation de Rabi. Cette séparation est nommée "dédoublement de Rabi" ("Rabi splitting" en anglais).

4.3.2 Expressions du dédoublement de Rabi

- **Cas d'une microcavité à puits quantique**

D'après les expressions (1.78) et (1.83), le dédoublement de Rabi s'écrit :

$$\hbar\Omega_{Rabi} = E_+ - E_- = 2\sqrt{V^2 - \frac{1}{4}\Delta^2} \tag{1.84}$$

où $\Delta=\Gamma_{exc}-\Gamma_{ph}$ et V est le terme de couplage.

Dans la limite où le coefficient de réflexion des miroirs (R) tend vers 1, la constante de couplage V peut être reliée à la force d'oscillateur f_{osc}/S par la relation suivante [4,78] :

$$V \approx \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m_0\varepsilon_0 n_c^2 L_{eff}} \frac{f_{osc}}{S}} \tag{1.85}$$

V s'exprime également en fonction du paramètre B :

$$V \approx \sqrt{\frac{L_{QW}}{2n_c^2 L_{eff}} B} \tag{1.86}$$

où V et B sont exprimés en eV, L_{QW} et L_{eff} en m et f_{osc}/S en m^{-2}.

Le dédoublement de Rabi s'écrit, dans le cas où $\Delta=\Gamma_{exc}-\Gamma_{ph}=0$:

$$\hbar\Omega_{Rabi} \approx \sqrt{\frac{2\hbar^2}{m_0\varepsilon_0 n_c^2 L_{eff}} \frac{f_{osc}}{S}} \approx \sqrt{\frac{2L_{QW}}{n_c^2 L_{eff}} B} \tag{1.87}$$

Dans le cas où il y a N_{QW} puits quantiques dans la cavité, on remplace f_{osc} par $N_{QW}\times f_{osc}$ [4] :

$$\hbar\Omega_{Rabi} \approx \sqrt{\frac{2\hbar^2 N_{QW}}{m_0\varepsilon_0 n_c^2 L_{eff}} \frac{f_{osc}}{S}} \approx \sqrt{\frac{2L_{QW}N_{QW}}{n_c^2 L_{eff}} B} \tag{1.88}$$

- **Cas d'une microcavité massive**

Dans le cas d'une microcavité massive, la constante de couplage s'écrit [82,83] :

$$V = \sqrt{\frac{d}{2\varepsilon_b L_{eff}} B} \tag{1.89}$$

Le dédoublement de Rabi s'écrit alors, dans le cas où $\Gamma_{exc}-\Gamma_{ph}=0$:

$$\hbar\Omega_{Rabi} = 2\sqrt{\frac{Bd}{2\varepsilon_b L_{eff}}} \tag{1.90}$$

où d est l'épaisseur de la cavité et L_{eff} est la longueur effective de cavité donnée par l'expression (1.60) et B le paramètre lié à la force d'oscillateur.

4.4 Conditions d'observation du régime de couplage fort

Les grandeurs qui entrent en ligne de compte dans le régime de couplage fort sont les suivantes :

♦ la force d'oscillateur f_{osc} de l'exciton et son élargissement spectral.

♦ la finesse de la cavité, c'est-à-dire l'élargissement spectral du mode photonique (Γ_c), et donc la réflectivité des miroirs R, mais aussi la longueur de pénétration dans les miroirs L_{DBRs}, qui donne lieu à la longueur effective de la cavité L_{eff}. En effet, Γ_c est défini par la relation (1.62) : $\Gamma_c = \frac{\hbar c}{n_c e L_{eff}} \frac{1-R}{2}$.

♦ le facteur de couplage, qui est proportionnel à $\sqrt{f_{osc}/L_{eff}}$ et qui est à l'origine des oscillations entre les états de polaritons.

Ainsi, pour observer le dédoublement de Rabi, il faudra que l'énergie de Rabi soit plus grande que les largeurs des modes découplés. Ceci implique :

♦ une force d'oscillateur d'exciton la plus grande possible.

♦ une longueur de pénétration dans les miroirs faible.

♦ des élargissements de photon et d'exciton les plus faibles possibles et les plus proches possibles. En effet, comme le montre l'expression (1.80), c'est le terme $\Delta=\Gamma_{exc}-\Gamma_{ph}$ qui compense le terme de couplage V.

Conclusion du chapitre

Au travers de ce chapitre, les notions générales nécessaires à la compréhension du sujet de cette étude ont été présentées. Dans un premier temps, un rappel succinct a été effectué sur les propriétés du nitrure de gallium. Ensuite, l'étude du couplage lumière-matière se scinde en trois parties. La première concerne les propriétés de la matière, en particulier les excitons, ainsi que le formalisme de l'oscillateur harmonique qui permet de les modéliser. Nous avons également explicité la force d'oscillateur, caractérisant l'exciton, et la relation qui la relie au paramètre de notre modèle B a été établie. Les puits quantiques, qui permettent de confiner spatialement les excitons, ont ensuite été introduits. Puis, nous nous sommes tournés vers les propriétés de la lumière : les photons. Pour cela, les cavités Pérot-Fabry, les miroirs de Bragg et les cavités à miroirs de Bragg, qui permettent de confiner spatialement les photons, ont été définis tour à tour. La troisième partie concerne le couplage lumière-matière proprement dit qui s'effectue par le biais des excitons et des photons. Il peut se réaliser sous deux régimes : le

régime de couplage faible et celui de couplage fort. Les polaritons de cavité sont les aboutissants du régime de couplage fort, qui est caractérisé par le dédoublement de Rabi.

Dans le deuxième chapitre, nous allons décrire les techniques expérimentales que nous avons utilisées ainsi que les modèles théoriques permettant de rendre compte des spectres obtenus.

Chapitre 2

Les dispositifs expérimentaux et la modélisation de la réponse optique d'une structure multicouche

Lorsqu'on envoie de la lumière sur un échantillon, celui-ci peut la réfléchir, l'absorber, la transmettre ou la diffuser ; la lumière absorbée peut être restituée en émettant des photons (désexcitation radiative) ou des phonons (désexcitation non-radiative) ; les phonons sont des quanta d'énergie de vibration élastique par analogie au photon qui décrit le quantum d'énergie lumineuse. Dans les approches suivantes, les phénomènes de diffusion de la lumière seront négligés.

Le Laboratoire dispose de différentes techniques spectroscopiques permettant une analyse complète de ces phénomènes ; elles sont indiquées sur la figure 2.0.

Les spectromètres de réflectivité, de photoréflectivité, de photoluminescence sous incidence normale, ainsi que le spectromètre d'absorption optique détectée thermiquement et le banc d'ellipsométrie étaient déjà présents au laboratoire auparavant. C'est au cours de ma thèse qu'a été conçu et mis au point le système expérimental de réflectivité et de photoluminescence résolu en angle afin d'étudier les microcavités nitrurées.

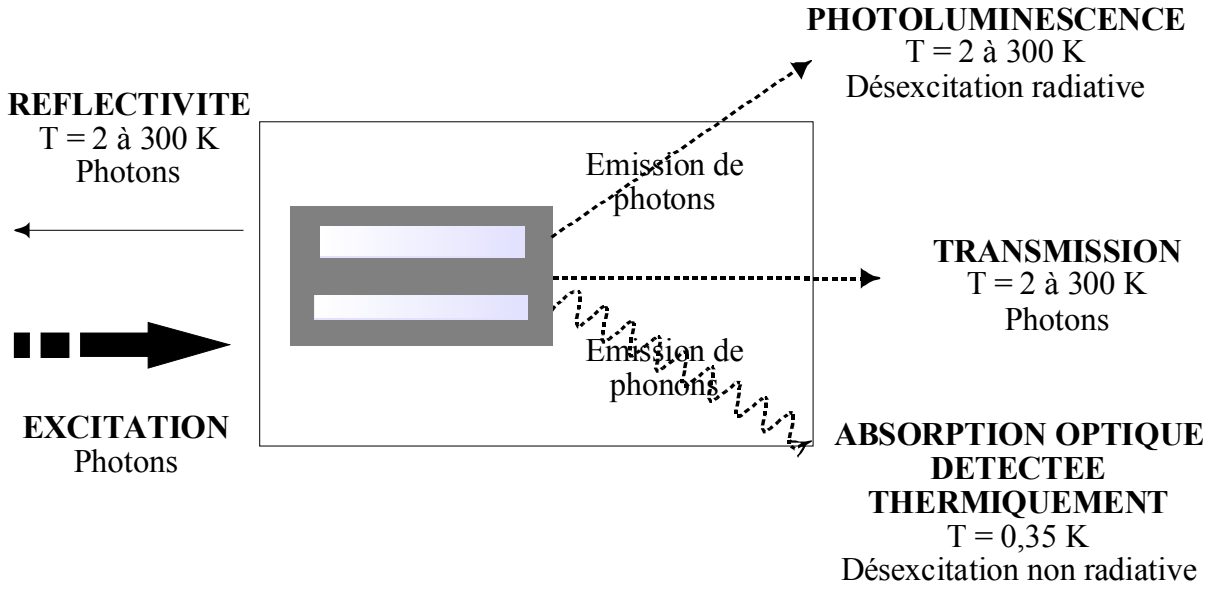


figure 2.0 : Techniques spectroscopiques.

La première partie de ce chapitre décrit les principes et les dispositifs expérimentaux relatifs aux techniques spectroscopiques que nous avons utilisées. Les photons réfléchis par l'échantillon sont détectés grâce à un spectromètre de réflectivité [84] dont le fonctionnement général est indiqué dans le paragraphe 1.1. Une technique similaire consiste à étudier la réflectivité résolue en angle ; on peut envoyer, par cette méthode, le faisceau incident sur l'échantillon avec un angle variable de 3° à 85°. Nous pouvons ainsi étudier les propriétés des matériaux lorsque l'onde incidente est polarisée. Cette expérience est décrite dans le paragraphe 1.2. La photoluminescence consiste à détecter les photons émis lors de la désexcitation radiative [85]. Elle fournit, par exemple, des informations sur la valeur du gap (énergie de bande interdite) du matériau, sur la présence d'impuretés et est décrite dans le paragraphe 1.3. De même que pour les expériences de réflectivité, il est possible d'étudier l'émission de photoluminescence en fonction de l'angle d'émission. Ce spectromètre est décrit dans le paragraphe 1.4. Les recombinaisons non radiatives, impliquant une émission de phonons, sont révélées par absorption optique détectée thermiquement [86]. La photoréflectivité est une expérience qui permet d'étudier, en particulier, les propriétés optiques de puits quantiques. Elle est basée sur la modulation de la constante diélectrique du matériau étudié. Elle est décrite dans le paragraphe 1.5 [87]. La mesure de l'indice de réfraction d'un matériau s'effectue grâce à l'ellipsométrie ; cette expérience consiste à déterminer l'état de polarisation d'une onde plane monochromatique initialement polarisée

linéairement après sa réflexion sur l'échantillon [88]. Cette technique est exposée dans le paragraphe 1.6.

La seconde partie de ce chapitre traite de l'aspect théorique concernant ces techniques spectroscopiques ; nous décrivons les modèles qui nous ont permis d'interpréter les spectres expérimentaux et d'extraire, à partir de leur analyse, les propriétés optiques des structures étudiées.

1 Techniques expérimentales

1.1 Réflectivité

1.1.1 Définition et principe

La réflectivité est l'aptitude d'un milieu matériel à réfléchir l'énergie d'un rayonnement incident suivant les lois de la réflexion spéculaire.

Le spectromètre de réflectivité examine donc l'intensité lumineuse réfléchie par l'échantillon : $R=|r|^2$ en fonction de la longueur d'onde incidente. L'étude de la réflectivité s'avère être l'une des techniques de spectroscopie optique les plus sensibles du point de vue de l'interaction photon-exciton que ce soit dans les semi-conducteurs massifs ou dans les hétérostructures.

1.1.2 Dispositif expérimental

Le schéma synoptique du dispositif expérimental est indiqué sur la figure 2.1. La source lumineuse est une lampe halogène, émettant dans l'intervalle spectral 0,3-2,5 ∴m ; elle est placée dans le plan focal d'une lentille. L'échantillon reçoit les rayons lumineux sous incidence normale, grâce à un miroir orienté à 45° par rapport à la direction incidente.

La composante réfléchie du signal est focalisée sur la fente d'entrée du monochromateur par l'intermédiaire d'une lentille de distance focale égale à 25 cm ; la distance à laquelle se trouve cette lentille du monochromateur et de l'échantillon a été choisie de manière à obtenir un grossissement égal à 1. Le monochromateur Jobin-Yvon HR-640 assure le balayage en longueur d'onde grâce à un moteur pas à pas, commandé par un micro-ordinateur, qui permet la rotation d'une plate-forme sur laquelle est fixé le réseau. Le réseau utilisé est un réseau holographique de 2400 traits/mm, blasé à 500 nm. Un photomultiplicateur, placé à la sortie du monochromateur, détecte l'intensité lumineuse réfléchie. Le signal est ensuite traité par un

amplificateur à détection synchrone, qui le transmet à un ordinateur sous forme numérique. Le modulateur, placé sur la trajectoire des rayons avant l'impact sur l'échantillon, "hache" le faisceau incident et fournit le signal de référence à la détection synchrone. L'ordinateur gère la vitesse et les limites du balayage en longueur d'onde du monochromateur.

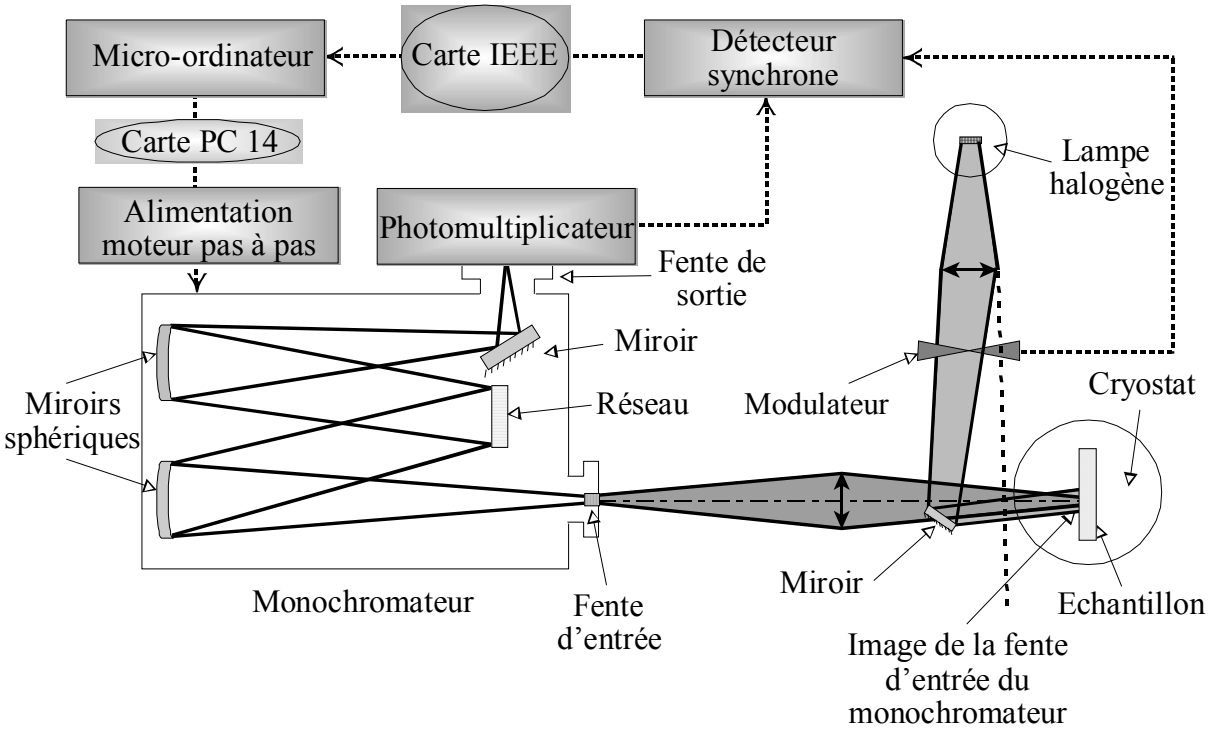


figure 2.1 : Schéma du spectromètre de réflectivité.

L'échantillon est placé dans l'enceinte d'un cryostat qui permet d'effectuer des expériences à des températures pouvant varier de 4 K à 300 K. Le cryostat a subi une légère rotation de manière à renvoyer les réflexions parasites frappant les hublots en dehors de la fente d'entrée du monochromateur. Le cryostat est à circulation d'hélium, il permet un refroidissement de l'échantillon par convection. Finalement, le spectromètre est étalonné en longueur d'onde en substituant la source de lumière blanche par une lampe étalon à vapeur de mercure.

1.2 Réflectivité résolue en angle

1.2.1 Principe

Son principe est identique à celui de la réflectivité sous incidence normale, à savoir qu'on étudie l'intensité lumineuse recueillie après réflexion sur l'échantillon. L'angle d'incidence ayant maintenant une direction non normale, la lumière possède une polarisation

quelconque et la direction du champ électrique varie de manière aléatoire au cours du temps. Ainsi, l'onde incidente doit être préalablement polarisée de manière à connaître l'état de polarisation de la lumière à chaque instant lors des expériences.

Nous étudierons la polarisation transverse magnétique (notée *TM*), configuration dans laquelle le champ électrique est parallèle au plan d'incidence (on parle d'onde *p* ou //), puis la polarisation transverse électrique (*TE*), où le champ électrique est perpendiculaire au plan d'incidence (onde *s* ou ⊥).

1.2.2 Dispositif expérimental

Le schéma synoptique de ce spectromètre est présenté sur la figure 2.2.

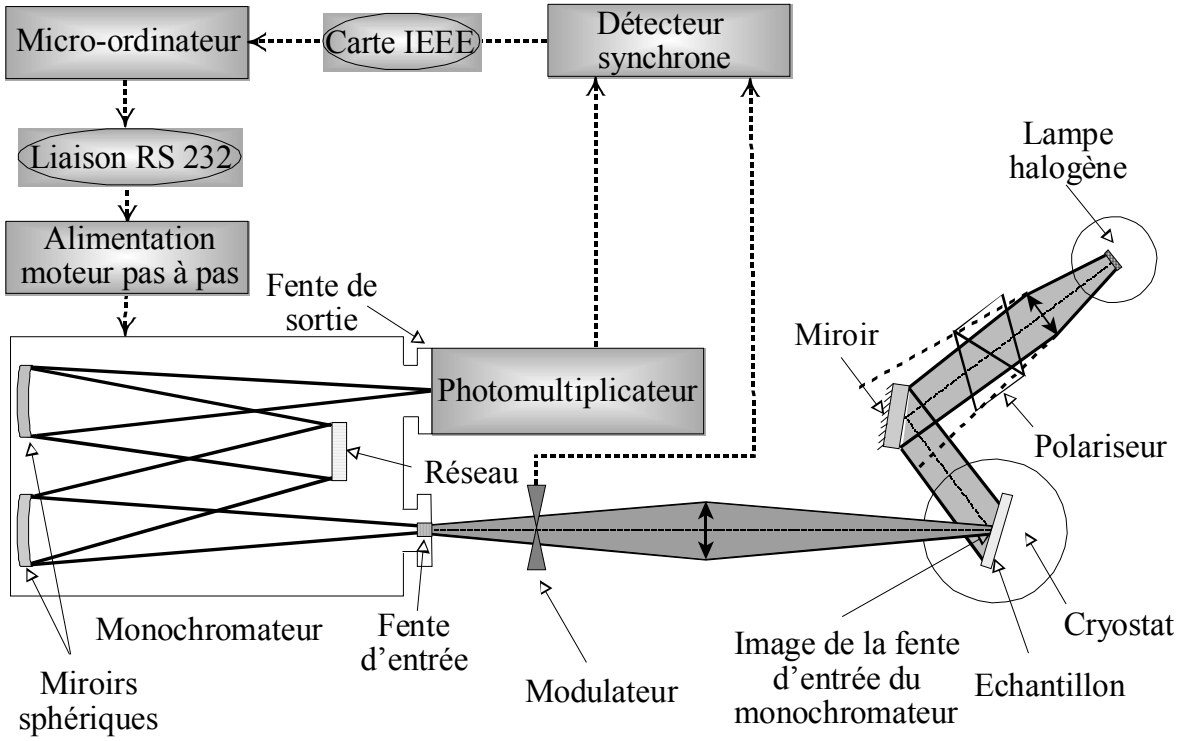


figure 2.2 : Schéma du spectromètre de réflectivité résolue en angle.

La source lumineuse est une lampe halogène, identique à celle utilisée lors des expériences de réflectivité sous incidence normale ; elle est placée dans le plan focal d'une lentille. Les rayons traversent ensuite un polariseur puis viennent frapper un miroir orienté à 45° par rapport à la direction incidente. Les rayons incidents vont ainsi frapper l'échantillon sous un angle α puis les rayons réfléchis sont focalisés sur la fente d'entrée du monochromateur Jobin-Yvon HR-640 par le biais d'une lentille de distance focale égale à 25 cm (obtenant ainsi un grossissement égal à 1). L'intensité lumineuse réfléchie est ensuite

détectée par un photomultiplicateur, puis transmise à un amplificateur à détection synchrone dont le signal de référence est issu du modulateur.

Le cryostat dans lequel est placé l'échantillon, ici, est un cryostat à bain d'hélium ; il est monté sur un bâti permettant sa rotation. Il est muni de hublots circulaires en quartz permettant ainsi l'entrée et la sortie des rayons lumineux sous une incidence quelconque.

L'ensemble (lampe+lentille+polariseur+miroir) est monté sur un banc optique mobile, qui a le même axe de rotation que le cryostat. Ainsi, pratiquement, on part d'une configuration telle que l'angle d'incidence soit égal à α_1, puis on tourne le cryostat de manière à obtenir un angle d'incidence α_2, ainsi l'échantillon a tourné entre ces deux positions de $\Delta\alpha = \alpha_2 - \alpha_1$. On tourne le banc mobile de manière à obtenir le maximum de signal réfléchi, c'est à dire d'un angle $2\Delta\alpha$ (voir figure 2.3) :

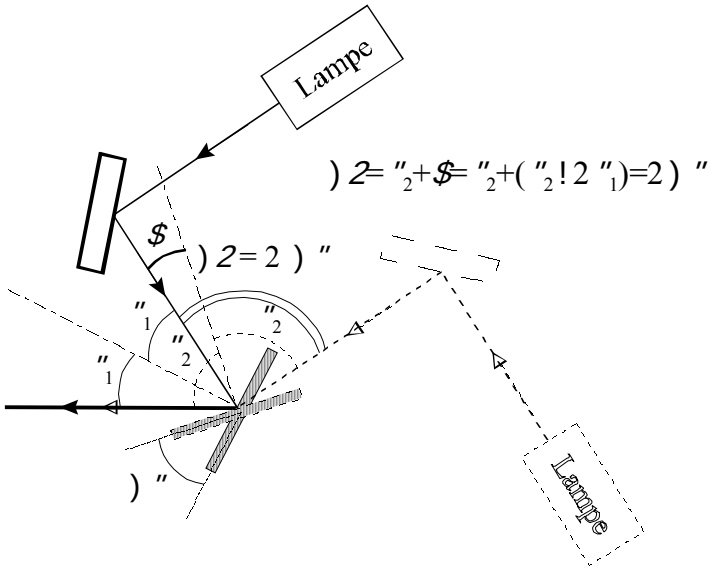


figure 2.3 : Schéma de principe du spectromètre.

1.3 Photoluminescence

1.3.1 Principe

La photoluminescence consiste en une émission de lumière qui est consécutive à une excitation optique et dont la longueur d'onde est supérieure à la longueur d'onde d'excitation.

La spectroscopie de photoluminescence est une méthode qui permet d'analyser les photons émis par un système préalablement excité avec une source lumineuse. Son principe est le suivant : on envoie un faisceau laser dont l'énergie d'excitation est supérieure à l'énergie de bande interdite, le matériau est donc optiquement excité. Le retour à l'équilibre

intervient sous la forme d'un processus de relaxation par émissions radiatives de photons et/ou par émissions non-radiatives de phonons. La photoluminescence consiste à analyser les photons émis pendant la désexcitation radiative ; elle renseigne donc sur les propriétés intrinsèques et extrinsèques du matériau. La détection des désexcitations radiatives - intrinsèques (recombinaisons bande à bande ou annihilation des excitons libres) ou extrinsèques (impliquant des niveaux d'impuretés) - offre de nombreux renseignements sur la nature de l'échantillon, par exemple, sur l'énergie de bande interdite, les niveaux d'impuretés, les mécanismes de recombinaison ou la qualité du matériau.

1.3.2 Les processus mis en jeu dans la photoluminescence

Les processus qui conduisent à la photoluminescence sont schématisés sur la figure 2.4, puis sont sommairement décrits.

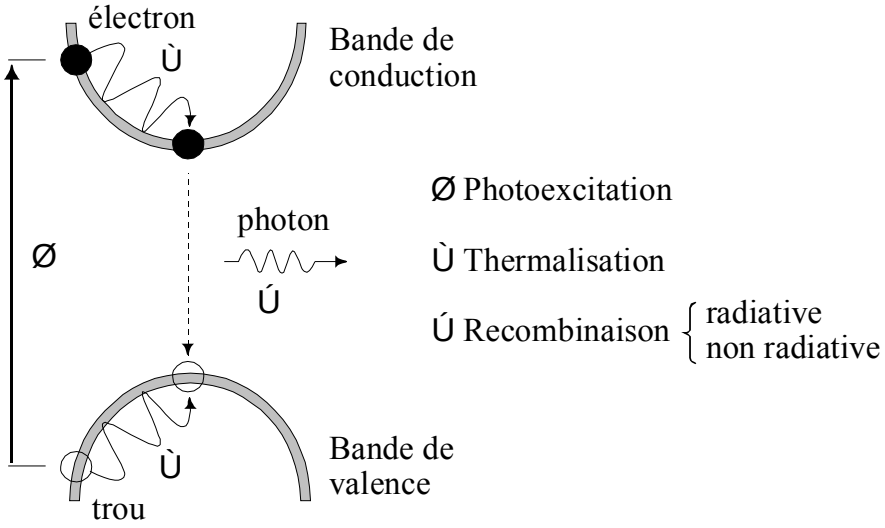


figure 2.4 : Principe de recombinaison des paires électron-trou photo-créées.

❶ Photoexcitation : Un photon d'énergie supérieure à l'énergie de bande interdite est absorbé par le semi-conducteur. Un électron de la bande de valence est excité et passe dans la bande de conduction ; une paire électron-trou est ainsi formée.

❷ Thermalisation : L'électron et le trou cèdent très rapidement (10^{-13} s) une partie de leur énergie en excès au système sous forme de phonons. L'électron se dirige vers le bas de la bande de conduction et le trou vers le haut de la bande de valence. A basse température, ces porteurs, de charge opposée, s'associent pour former des excitons ou se piègent sur des états associés aux impuretés.

❸ Recombinaisons non radiatives : les défauts peuvent intervenir indirectement sur la photoluminescence en constituant des centres de recombinaison non radiatifs (dislocations, défauts de surface, centres profonds, …). Le retour à l'équilibre s'effectue alors par une émission multiphonon à partir de ces défauts. Ce processus de recombinaison est à l'origine d'une diminution du rendement de la photoluminescence.

Recombinaisons radiatives : Les différents processus de recombinaison radiative des porteurs excités sont illustrés sur la figure 2.5.

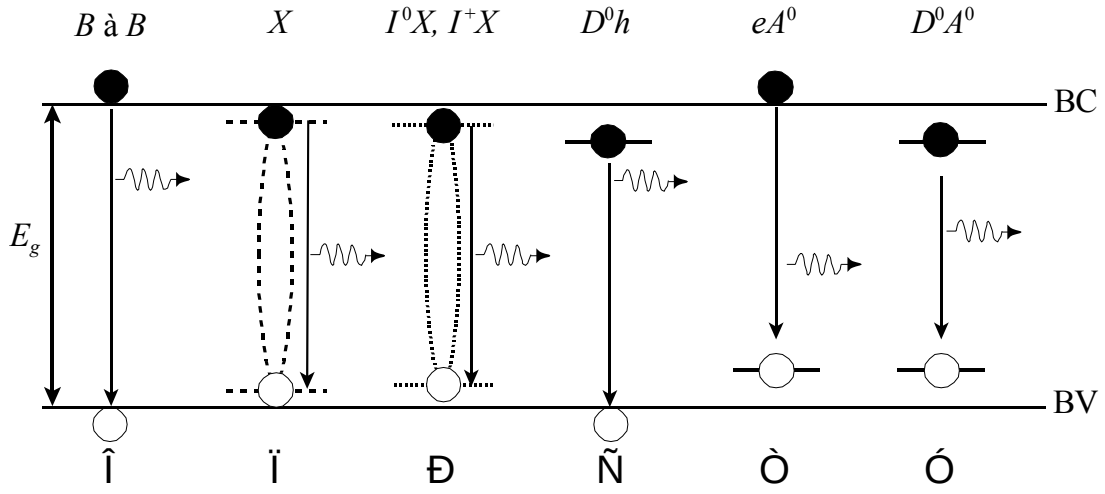


figure 2.5 : Processus de recombinaisons radiatives dans un semi-conducteur à bande interdite directe : ① bande à bande, ② excitons libres, ③ exciton lié à une impureté neutre ou ionisée, ④ transition bande-donneur neutre, ⑤ transition bande-accepteur neutre et ⑥ donneur-accepteur. BV (BC) représente la bande de valence (de conduction).

Ces recombinaisons radiatives s'accompagnent d'émission de photons, dont les énergies sont caractéristiques des niveaux mis en jeux [89] :

① Les recombinaisons radiatives bande à bande (*B* à *B*) ont lieu entre le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction. Dans les matériaux à bande interdite directe, l'intensité lumineuse émise suit la relation :

$$I(E_{ph}) \propto E_{ph}^2 \sqrt{E_{ph} - E_g}\, \exp\left(-\frac{E_{ph} - E_g}{k_B.T}\right) \qquad (2.1)$$

où E_{ph} est l'énergie des photons émis, E_g l'énergie de bande interdite du matériau, k_B la constante de Boltzmann et T la température.

② Les recombinaisons des excitons libres (X) donnent lieu à un pic de luminescence à l'énergie :

$$E_{ph}=E_g-E_n \tag{2.2}$$

où E_n est l'énergie d'ionisation (ou de liaison) de l'exciton (état fondamental n=1) et E_g est l'énergie de bande interdite du matériau.

③ Les excitons liés sont des complexes formés par un exciton et une impureté (I^0X ou I^+X). L'exciton peut se lier à un donneur ou à un accepteur, neutre ou ionisé. L'énergie des photons émis lors de la recombinaison radiative des excitons liés est :

$$E_{ph} = E_g - E_n - E_{loc}^X \tag{2.3}$$

où E_{loc}^X est l'énergie de localisation de l'exciton sur l'impureté.

④ La recombinaison bande-donneur neutre s'effectue entre un donneur neutre et un trou libre de la bande de valence (D^0h). L'énergie des photons émis est approximativement égale à :

$$h\nu \approx E_g-E_D \tag{2.4}$$

où E_D est l'énergie d'ionisation du donneur.

⑤ La transition bande-accepteur neutre s'effectue entre un électron libre de la bande de conduction et un accepteur neutre (eA^0). L'énergie des photons émis vaut environ :

$$h\nu \approx E_g-E_A \tag{2.5}$$

où E_A est l'énergie d'ionisation de l'accepteur.

⑥ La recombinaison donneur-accepteur s'effectue entre un électron piégé sur un donneur et un trou localisé sur un accepteur. Après recombinaison, les deux impuretés sont ionisées et se retrouvent en interaction coulombienne. L'énergie du photon émis lors d'une recombinaison donneur-accepteur (D^0A^0) est donc :

$$h\nu = E_g - E_D - E_A + \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r R} \tag{2.6}$$

où e est la charge élémentaire de l'électron et R est la distance entre le donneur et l'accepteur concernés.

1.3.3 Dispositif expérimental

La disposition des divers éléments formant le spectromètre est représentée sur le schéma de la figure 2.6.

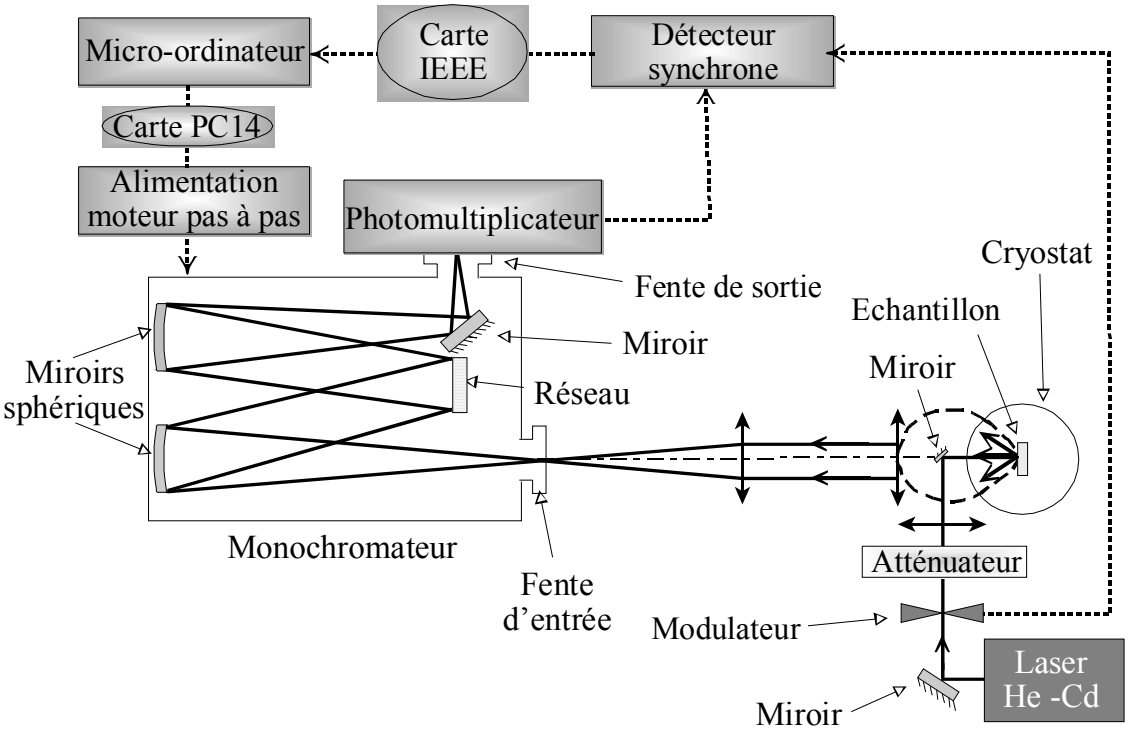


figure 2.6 : Schéma synoptique du spectromètre de photoluminescence.

La source lumineuse utilisée est un laser Hélium-Cadmium (He-Cd), émettant une raie à 325 nm ; l'énergie correspondante est supérieure à l'énergie de bande interdite du nitrure de gallium, qui est le matériau actif des structures que nous allons étudier par la suite. L'intensité du laser est modulée afin de permettre une détection synchrone. Le faisceau, focalisé par une lentille, arrive sous une incidence normale à la surface de l'échantillon après avoir subi deux réflexions sur des miroirs plans. Un atténuateur peut être placé sur le trajet du laser afin d'effectuer des mesures en fonction de la puissance d'excitation. La photoluminescence émise par l'échantillon est ensuite collectée par une lentille de distance focale égale à 10 cm, puis envoyée sur la fente d'entrée du monochromateur, du même type que celui utilisé en réflectivité, par le biais d'une deuxième lentille, de distance focale égale à 25 cm. A la sortie du monochromateur, le signal optique est détecté par un photomultiplicateur.

Le système cryogénique est le même que celui utilisé lors des expériences de réflectivité.

1.4 Photoluminescence résolue en angle

1.4.1 Principe

Le principe général de la luminescence résolue en angle est identique à celui exposé dans le paragraphe précédent, excepté le fait qu'on récolte la photoluminescence émise par l'échantillon à différents angles.

1.4.2 Dispositif expérimental

Le schéma de l'expérience de photoluminescence résolue en angle est présenté sur la figure 2.7. Sur ce schéma, nous présentons l'expérience de photoluminescence selon deux vues différentes permettant une meilleure compréhension de l'installation : une vue de dessus et une vue latérale. Le système de détection n'est pas représenté car il est identique à celui des expériences décrites précédemment.

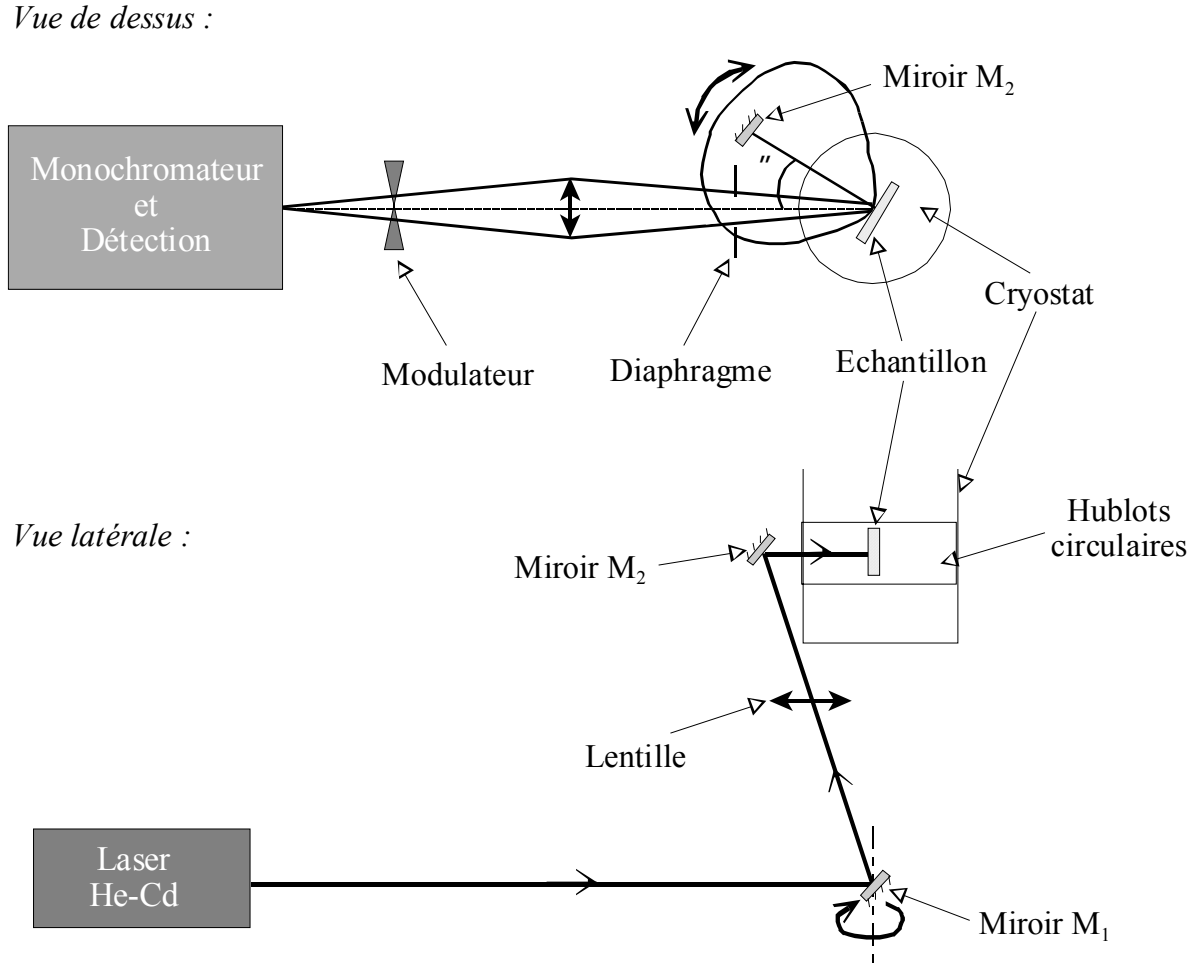


figure 2.7 : Schéma du spectromètre de photoluminescence résolue en angle.

La source lumineuse utilisée est un laser Hélium-Cadmium (He-Cd), émettant une raie à 325 nm. Le signal est modulé en amplitude afin de permettre une détection synchrone. Le faisceau laser est dévié par un premier miroir, noté M_1. Puis, il est focalisé sur l'échantillon par une lentille convergente et par un miroir M_2. Il éclaire ainsi l'échantillon sous incidence normale.

Le système cryogénique de cette expérience est le même que celui utilisé lors des expériences de réflectivité résolue en angle, c'est-à-dire un cryostat à bain d'hélium monté sur un bâti permettant sa rotation ; ainsi, la partie "détection" de cette expérience est fixe. L'angle d'émission de la photoluminescence est défini directement à partir de l'angle de rotation du cryostat, c'est-à-dire de l'échantillon. Le support du miroir de renvoi M_2 est solidaire du cryostat et reste dans la même position par rapport à l'échantillon tout au long de l'expérience. Par contre, le miroir M_1 lui est orientable dans deux directions ce qui permet d'envoyer le faisceau laser sur le miroir M_2 quelque soit la position du cryostat.

La photoluminescence émise par l'échantillon est ensuite collectée par une lentille de distance focale égale à 25 cm (pour obtenir un grossissement égal à 1 comme dans les expériences de réflectivité), puis envoyée sur la fente d'entrée du monochromateur. Sur la trajectoire de sortie de la luminescence, on place un diaphragme de manière à réduire l'ouverture angulaire de détection. A la sortie du monochromateur, le signal optique est détecté par un photomultiplicateur. Le système de détection restant fixe, nous réglons le maximum de luminescence à l'aide du miroir M_1. Ainsi, nous sommes assurés de toujours examiner le même endroit de l'échantillon. Pour un diaphragme de 1 cm de diamètre, la résolution angulaire qu'il est possible d'atteindre est de 1,4°.

1.5 Photoréflectivité

1.5.1 Principe

La photoréflectivité est basée sur la modulation de la constante diélectrique du matériau. Les modifications de cette constante se répercutant sur le coefficient de réflexion, cette technique consiste donc à mesurer la variation relative du coefficient de réflectivité. Pour cela, on utilise un faisceau laser modulé qui va générer des paires électrons-trous dans le matériau créant ainsi un champ électrique modifiant les propriétés diélectriques de celui-ci [87].

1.5.2 Dispositif expérimental

Le schéma synoptique du spectromètre de photoréflectivité est présenté sur la figure 2.8.

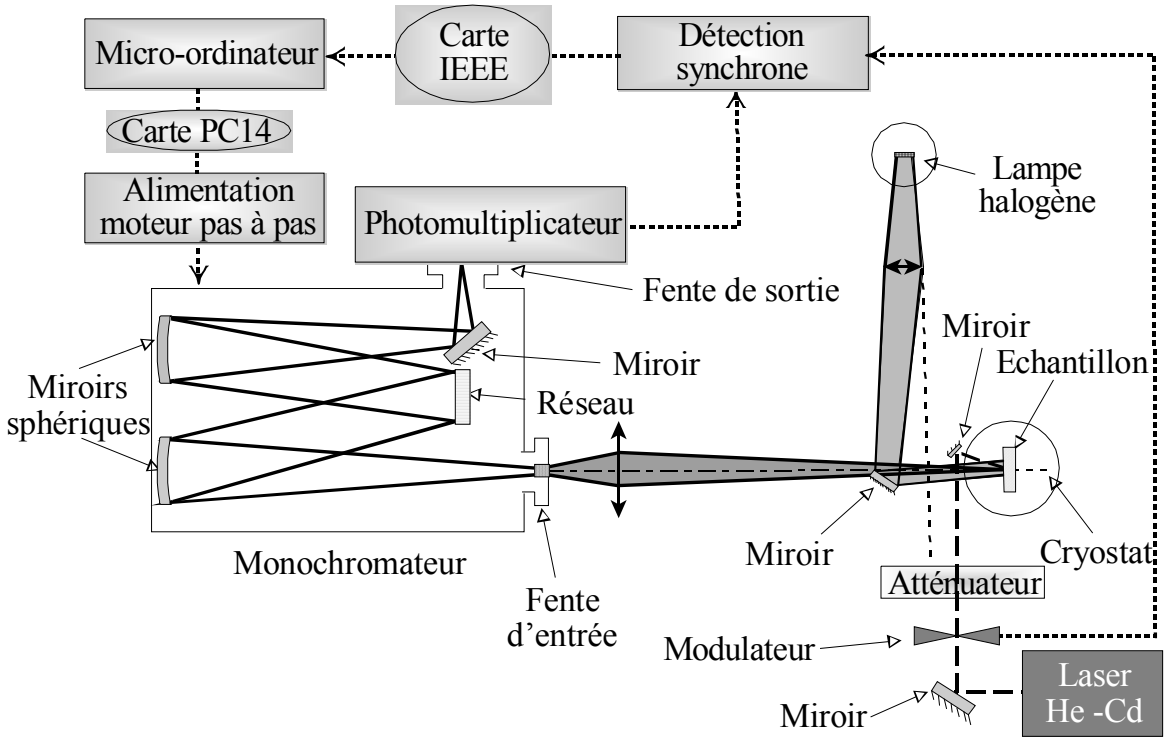


figure 2.8 : Schéma du spectromètre de photoréflectivité.

Cette technique combine les dispositifs expérimentaux de réflectivité et de photoluminescence. La source sonde est la lampe halogène utilisée dans les expériences de réflectivité ; la source pompe est le laser He-Cd utilisé pour l'étude de la photoluminescence. Afin de diminuer les résidus de photoluminescence dans les spectres, la lentille de collecte située entre l'échantillon et le monochromateur est placée de manière à réduire au maximum la photoluminescence collectée.

On effectue une détection synchrone de la partie modulée de R (ΔR) à la fréquence de modulation du laser. L'acquisition de la composante continue se fait grâce à un photomultiplicateur. Le spectre de photoréflectivité est obtenu en faisant le rapport $\Delta R/R$.

1.6 Ellipsométrie

1.6.1 Principe

L'ellipsométrie est une méthode d'analyse optique basée sur le changement de polarisation de la lumière après réflexion en incidence oblique sur un échantillon (figure 2.9).

Après réflexion, la polarisation de l'onde lumineuse initialement rectiligne devient elliptique. L'ellipsométrie analyse cette ellipse par l'intermédiaire du rapport ρ des coefficients de réflexions *TE* et *TM*. La variation de la polarisation dépend des propriétés optiques de l'échantillon dans le domaine limité par la profondeur de pénétration de la lumière. De cette technique, on peut déduire des épaisseurs de films et leur fonction diélectrique.

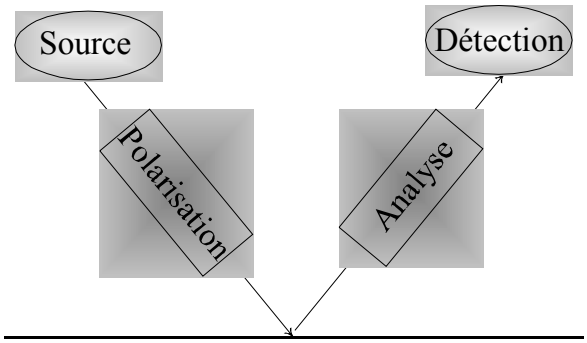


figure 2.9 : Principe de l'ellipsométrie.

1.6.2 Dispositif expérimental

L'ellipsométre, dont nous disposons, est un ellipsométre à analyseur tournant, construit au laboratoire [90], dont la structure générale est représentée sur la figure 2.10. Son inconvénient majeur est sa grande sensibilité à la lumière ambiante, ainsi, l'acquisition des mesures s'effectue dans une pièce obscure, commandée à distance par un micro-ordinateur.

La source lumineuse monochromatique est produite grâce à l'association d'une lampe à arc Xénon et d'un monochromateur à double réseau de type Jobin-Yvon H10 VIS qui permet l'élimination d'une grande partie de la lumière parasite ; cette source autorise le balayage en longueur d'onde de la gamme 200-800 nm. Une pompe permet l'extraction de l'ozone produit ainsi que l'évacuation de la chaleur. A certaines longueurs d'onde, des ordres de diffraction se superposent ; pour pallier à cette difficulté expérimentale, on utilise une fenêtre en BK7 qui élimine les longueurs d'onde supérieures à 400 nm.

A sa sortie du monochromateur, d'un diaphragme et d'une lentille, le faisceau -parallèle et monochromatique -, traverse un polariseur à prismes de Glan en calcite. Ce dernier sélectionne une onde dont le champ électrique associé oscille dans une direction particulière. L'échantillon est maintenu vertical sur son support par aspiration.

Après sa réflexion sur l'échantillon, le faisceau va traverser l'analyseur, qui est un polariseur du même type que le premier, et qui en tournant va moduler l'intensité du signal ; un obturateur est placé à la suite, de manière à pouvoir mesurer le bruit de fond après chaque

acquisition. Un photomultiplicateur recueille ensuite le signal lumineux qu'il convertit en signal électrique. Le signal est finalement échantillonné par l'intermédiaire d'une roue codeuse, montée sur l'analyseur, et d'une carte d'acquisition.

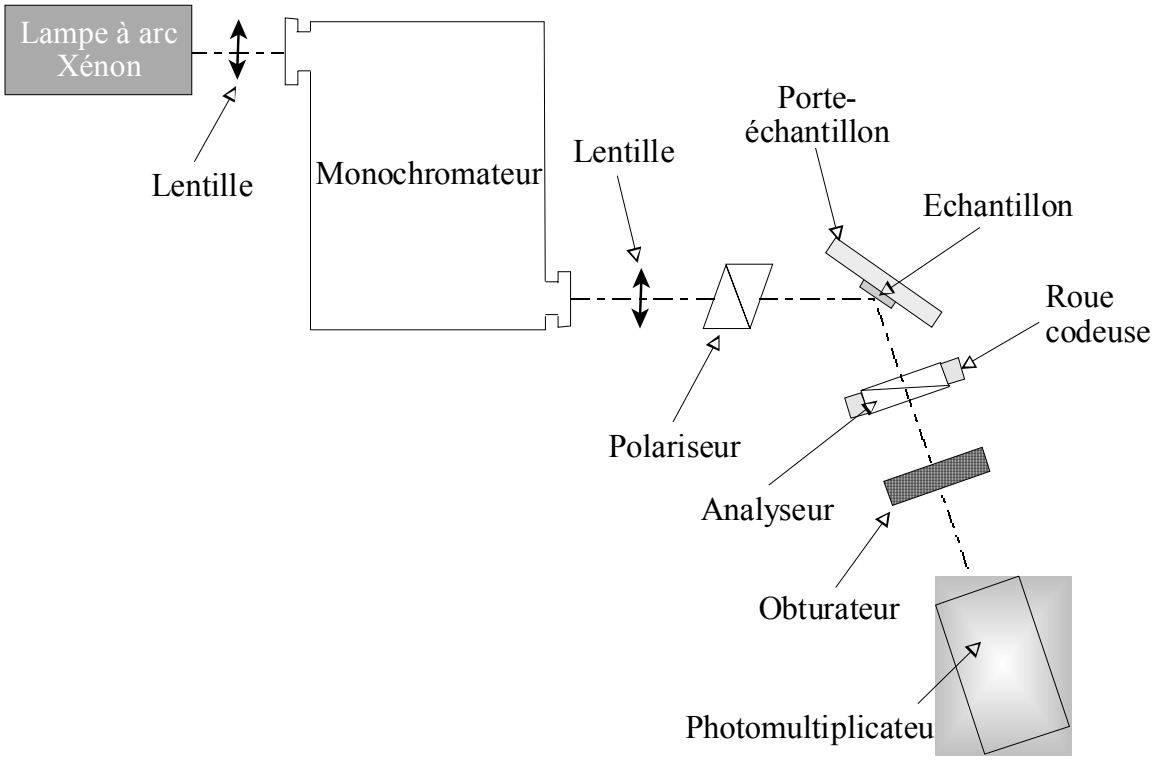


figure 2.10 : Schéma de l'ellipsométre.

L'association de tous les éléments aboutit à un domaine spectral accessible qui s'étend de 280 à 700 nm.

La mesure des grandeurs ellipsométriques relatives à un échantillon ne constitue pas en soi une caractérisation, les données brutes n'informent pas en effet directement sur les fonctions diélectriques et la structure de l'échantillon sondé. L'ellipsométrie étant une méthode indirecte, on effectue, lors d'une première étape, des mesures que l'on relie ensuite par des équations aux caractéristiques de l'échantillon. Une description sommaire de la méthode utilisée sera effectuée dans la deuxième partie de ce chapitre.

2 Approches théoriques

2.1 Modélisation de la réflectivité

2.1.1 Les coefficients de Fresnel complexes

Les coefficients de réflexion et transmission en amplitude d'une couche mince sont donnés par les rapports : $r=E_r/E_i$ et $t=E_t/E_i$, où E_i, E_r et E_t sont respectivement les amplitudes des champs incident, réfléchi et transmis et dont l'expression est de la forme : $\vec{E} = \vec{E}_0 \exp[j(\omega t - \vec{k}.\vec{r})]$.

Pour aboutir à ces coefficients, on utilise les conditions de continuité à la traversée d'une interface, dans le cas où il n'y a pas de charge libre, ni de courant. Ainsi, on écrit la continuité des composantes tangentielles du champ électrique $\vec{E}$ et du champ magnétique $\vec{H}$; ceci se traduit par les équations :

$$\begin{cases} \vec{E}_{//1} = \vec{E}_{//0} \\ \vec{H}_{//1} - \vec{H}_{//0} = \vec{0} \end{cases} \tag{2.7}$$

On exprime le champ magnétique en fonction du champ électrique, pour cela, on part des équations de Maxwell [91] :

$$\begin{cases} div\vec{E} = 0 \\ div\vec{B} = 0 \\ \overrightarrow{rot}\vec{E} = -\partial\vec{B}/\partial t \\ \overrightarrow{rot}\vec{B} = -\mu_0\varepsilon_0\varepsilon_r\partial\vec{E}/\partial t = (1/v^2)\partial\vec{E}/\partial t \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} \vec{k}.\vec{E} = 0 \\ \vec{k}.\vec{B} = 0 \\ j.\vec{k}\wedge\vec{E} = j\omega\vec{B} \\ -j.\vec{k}\wedge\vec{B} = j\omega\vec{E}/v^2 \end{cases} \tag{2.8}$$

En combinant les équations, on obtient :

$$\vec{E} = \frac{v^2}{\omega}\left(\frac{\vec{k}\wedge\vec{E}}{\omega}\right)\wedge\vec{k} = \frac{k^2v^2}{\omega^2}\vec{E} \Rightarrow k = \omega/v \tag{2.9}$$

L'expression du champ $\vec{H}$ est donc :

$$\vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu_0} = \frac{\vec{k}\wedge\vec{E}}{\mu_0\omega} \Rightarrow H = \frac{kE}{\mu_0\omega} = \frac{E}{\mu_0 v} = \frac{N}{\mu_0 c}E \tag{2.10}$$

où N est l'indice complexe du milieu.

Finalement, on obtient la relation entre E et H :

$$H = \frac{N}{\mu_0 c} E \tag{2.11}$$

Nous allons formuler les coefficients de réflexion et transmission d'une couche mince dans le cas général d'une incidence quelconque ; ainsi, nous les exprimerons dans le cas de la polarisation *TE* (transverse électrique), où le champ $\vec{E}$ est perpendiculaire au plan d'incidence et dans le cas de la polarisation *TM* (transverse magnétique), où il est parallèle.

- **Cas d'une polarisation *TE***

On considère une onde plane polarisée rectilignement qui tombe sur une surface séparant deux milieux notés (0) et (1). La figure 2.11 indique les directions des champs $\vec{E}$ et $\vec{H}$ et du vecteur d'onde.

On s'intéresse plus particulièrement aux composantes tangentielles des champs, c'est-à-dire aux composantes selon *x* et *y*. Les champs électriques incident, réfléchi et transmis ont pour seule composante non nulle celle suivant *x* :

$$\begin{cases} E_{ix} = E_i \exp[j(\omega t - \vec{k}_i.\vec{r})] \\ E_{rx} = E_r \exp[j(\omega t - \vec{k}_r.\vec{r})] = rE_i \exp[j(\omega t - \vec{k}_r.\vec{r})] \\ E_{tx} = E_t \exp[j(\omega t - \vec{k}_t.\vec{r})] = tE_i \exp[j(\omega t - \vec{k}_t.\vec{r})] \end{cases} \tag{2.12}$$

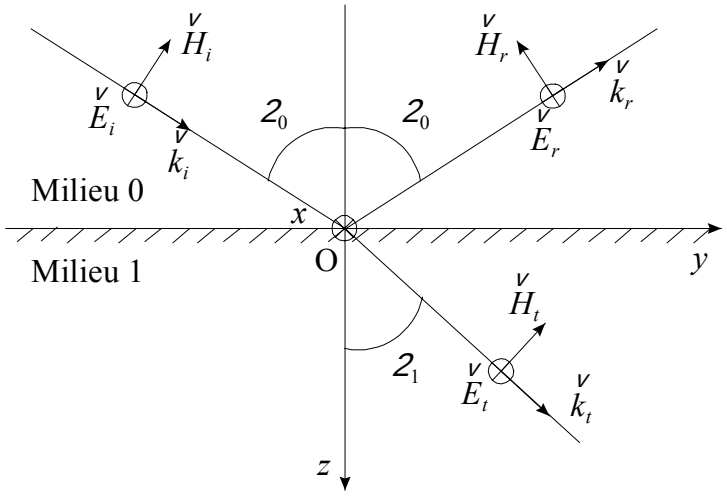


figure 2.11 : Direction de $\vec{E}$, $\vec{H}$ et $\vec{k}$ dans le cas d'une polarisation TE.

Les vecteurs d'onde s'écrivent : $\begin{cases} \vec{k}_i = 0.\vec{e}_x + k_i \sin\theta_0.\vec{e}_y + k_i \cos\theta_0.\vec{e}_z \\ \vec{k}_r = 0.\vec{e}_x + k_r \sin\theta_0.\vec{e}_y - k_r \cos\theta_0.\vec{e}_z \\ \vec{k}_t = 0.\vec{e}_x + k_t \sin\theta_1.\vec{e}_y + k_t \cos\theta_1.\vec{e}_z \end{cases}$ (2.13)

où $\vec{e}_x, \vec{e}_y$ et $\vec{e}_z$ sont respectivement les vecteurs unitaires suivant les axes *x*, *y* et *z*.

Les conditions de continuité sont valables sur toute l'interface, en particulier au point O tel que : *y*=0 et *z*=0. La condition de continuité sur le champ électrique au point O s'écrit : $E_{ix} + E_{rx} = E_{tx}$, soit :

$$1+r=t \tag{2.14}$$

La condition de continuité sur $\vec{H}$ au point O s'écrit : $H_{iy} - H_{ry} = H_{ty}$, soit :

$$N_0 \cos\theta_0 - N_0 r \cos\theta_0 = N_1 t \cos\theta_1 \tag{2.15}$$

En résolvant le système constitué des deux équations (2.14) et (2.15), on obtient les coefficients de Fresnel dans le cas de la polarisation *TE* :

$$\begin{aligned} r &= \frac{N_0 \cos\theta_0 - N_1 \cos\theta_1}{N_0 \cos\theta_0 + N_1 \cos\theta_1} \\ t &= \frac{2N_0 \cos\theta_0}{N_0 \cos\theta_0 + N_1 \cos\theta_1} \end{aligned} \tag{2.16}$$

- **Cas d'une polarisation *TM***

La figure 2.12 indique les directions des champs $\vec{E}$ et $\vec{H}$ et du vecteur d'onde.

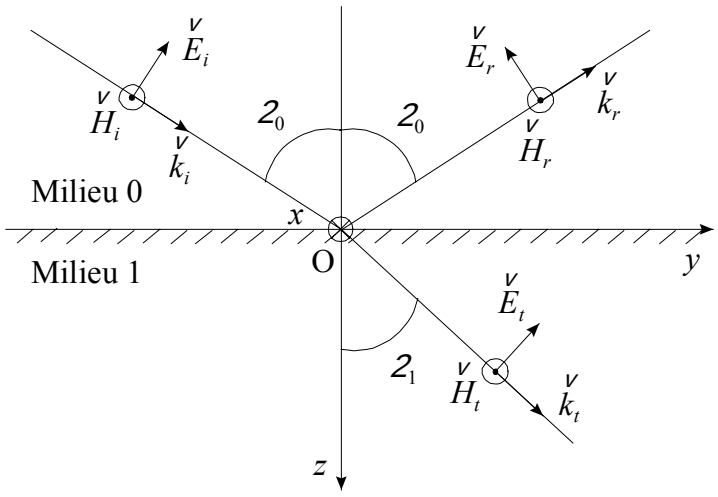


figure 2.12 : Direction de $\vec{E}$, $\vec{H}$ et $\vec{k}$ dans le cas d'une polarisation TM.

La condition de continuité sur $\vec{E}$ au point O s'écrit : $E_{iy} - E_{ry} = E_{ty}$, soit :

$$E_i \cos\theta_0 - r E_i \cos\theta_0 = t E_i \cos\theta_1 \tag{2.17}$$

La condition de continuité sur $\overrightarrow{H}$ au point O s'écrit : $-H_{ix} - H_{rx} = -H_{tx}$, soit :

$$N_0 E_i + N_0 r E_i = N_1 t E_i \tag{2.18}$$

En résolvant le système constitué des deux équations (2.17) et (2.18), on obtient les coefficients de Fresnel dans le cas de la polarisation *TM* :

$$\begin{aligned} r &= \frac{N_1 \cos\theta_0 - N_0 \cos\theta_1}{N_1 \cos\theta_0 + N_0 \cos\theta_1} \\ t &= \frac{2N_0 \cos\theta_0}{N_1 \cos\theta_0 + N_0 \cos\theta_1} \end{aligned} \tag{2.19}$$

2.1.2 Modélisation matricielle des systèmes multicouches

Dans le cas plus complexe de structures multicouches, nous avons utilisé la méthode de R. M. A. Azzam et N. M. Bashara [92] qui consiste à représenter chaque couche par une matrice couche et chaque interface par une matrice interface. Cette méthode est basée sur le fait que les équations qui gouvernent la propagation de la lumière sont linéaires et que la continuité de la composante tangentielle des champs à travers une interface entre deux milieux isotropes peut se traduire par une matrice 2×2.

Nous considérons une structure constituée de m couches parallèles insérées entre deux milieux semi-infinis : le milieu ambiant (noté (0)) et le substrat (noté (*m*+1)). Le schéma de la structure est indiqué sur la figure 2.13. L'axe *z* est orienté selon l'axe de croissance des couches. Tous les milieux sont supposés linéaires, homogènes et isotropes. Nous notons N_j l'indice de réfraction complexe de la $j^{\text{ème}}$ couche et d_j son épaisseur.
Le champ total dans la couche *j* résulte de deux ondes planes :

une onde plane se dirigeant vers l'avant (vers les *z* positifs), notée (+).

une onde plane se dirigeant vers l'arrière (vers les *z* négatifs), notée (−).

Nous notons $E^+(z)$ et $E^-(z)$ les amplitudes complexes des ondes planes se dirigeant respectivement vers l'avant et vers l'arrière, à un plan donné d'abscisse *z*. Le champ total en *z* peut être décrit par un vecteur à deux composantes :

$$E(z) = \begin{bmatrix} E^+(z) \\ E^-(z) \end{bmatrix} \tag{2.20}$$

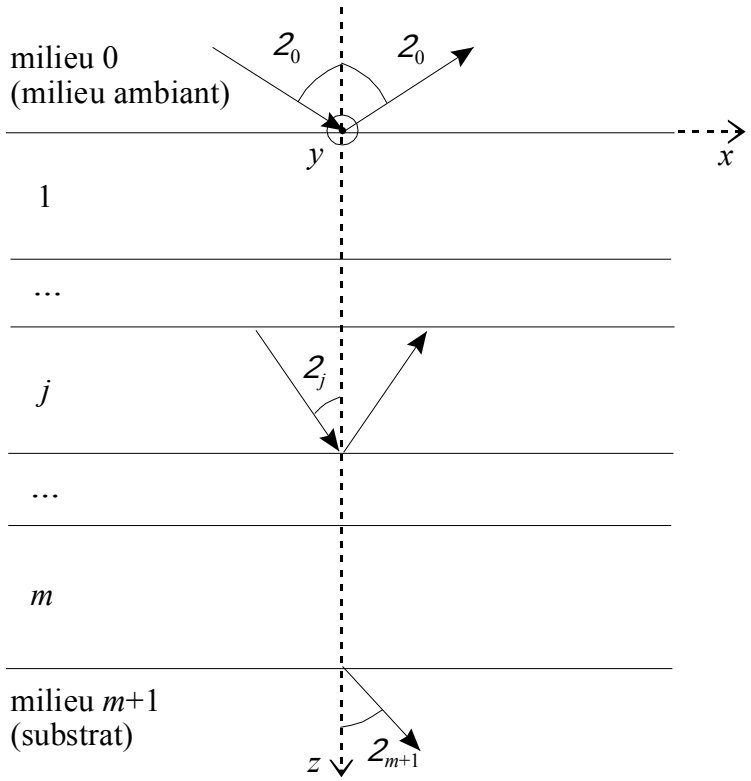


figure 2.13 : Schéma de la structure.

On peut relier le champ en un plan définit par l'abscisse *z*' à celui d'abscisse *z*" par le biais d'une matrice 2×2 notée $\mathbb{S}$:

$$\begin{bmatrix} E^+(z') \\ E^-(z') \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{bmatrix} . \begin{bmatrix} E^+(z'') \\ E^-(z'') \end{bmatrix} \text{ ou encore : } \mathbb{E}(z') = \mathbb{S}.\mathbb{E}(z''). \qquad (2.21)$$

où $\mathbb{S}$ est le produit des matrices dites "interface", notée $\mathbb{I}$, et "couche", notée $\mathbb{L}$, décrivant l'ensemble des couches de la structure.

Soit z_j l'abscisse définissant l'interface entre les milieux (j–1) et j, la matrice interface $\mathbb{I}_{(j-1)j}$ est définie par la relation suivante : $\mathbb{E}(z_j - \varepsilon) = \mathbb{I}_{(j-1)j}.\mathbb{E}(z_j + \varepsilon)$, où ε est un infiniment petit. La matrice couche $\mathbb{L}_j$, qui traduit la propagation du champ électromagnétique à l'intérieur de la couche j, est décrite par : $\mathbb{E}(z_j + \varepsilon) = \mathbb{L}_j.\mathbb{E}(z_j + d_j - \varepsilon)$, où d_j est l'épaisseur de la couche j.

- **Calcul de la matrice interface**

La matrice interface $\mathbb{I}$ relie les champs dans les milieux *a* et *b* :

$$\begin{bmatrix} E_a^+ \\ E_a^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_{11} & I_{12} \\ I_{21} & I_{22} \end{bmatrix} . \begin{bmatrix} E_b^+ \\ E_b^- \end{bmatrix} \tag{2.22}$$

Sur la figure 2.14, nous rappelons les notations utilisées :



figure 2.14 : Réflexion et transmission d'une onde plane à l'interface séparant deux milieux. (a) l'onde vient du milieu a ; (b) l'onde vient du milieu b.

Dans le cas de la figure 2.14 *(a)*, les amplitudes complexes des ondes planes réfléchies et transmises dans les deux milieux sont :

$$\begin{cases} E_b^+ = t_{ab}\, E_a^+ \\ E_a^- = r_{ab}\, E_a^+ \\ E_b^- = 0 \end{cases} \tag{2.23}$$

où r_{ab} et t_{ab} sont les coefficients de réflexion et transmission de Fresnel de l'interface séparant les milieux *a* et *b*. En identifiant les termes des équations (2.22) et (2.23), nous obtenons :

$$\begin{cases} I_{11} = 1/t_{ab} \\ I_{21} = r_{ab}/t_{ab} \end{cases} \tag{2.24}$$

Dans le cas de la figure 2.14 *(b)*, les amplitudes complexes des ondes planes réfléchies et transmises dans les deux milieux sont :

$$\begin{cases} E_b^+ = r_{ba}\, E_b^- \\ E_a^- = t_{ba}\, E_b^- \\ E_a^+ = 0 \end{cases} \tag{2.25}$$

En remplaçant I_{11} et I_{21} par leur valeur et en identifiant les termes des équations (2.22) et (2.25), on obtient :

$$\begin{cases} I_{12} = -r_{ba} / t_{ab} \\ I_{22} = (t_{ab}\, r_{ab} - r_{ab}\, r_{ba}) / t_{ab} \end{cases} \tag{2.26}$$

Finalement, en utilisant les relations entre les différents coefficients de Fresnel : $r_{ba} = -r_{ab}$ et $t_{ba} = (1 - r_{ab}^2) / t_{ab}$, on obtient pour la matrice interface la forme suivante :

$$\mathbb{I}_{ab} = \begin{pmatrix} \dfrac{1}{t_{ab}} & \dfrac{r_{ab}}{t_{ab}} \\ \dfrac{r_{ab}}{t_{ab}} & \dfrac{1}{t_{ab}} \end{pmatrix} \tag{2.27}$$

Les coefficients r_{ab} et t_{ab} sont calculés à partir des indices complexes des deux milieux et de l'angle d'incidence local. La généralisation de la loi de Snell-Descartes : $N_0 \sin\theta_0 = \ldots = N_j \sin\theta_j = \ldots = N_{m+1} \sin\theta_{m+1}$, permet de s'affranchir de la connaissance de l'angle d'incidence local ; il suffit donc de connaître l'angle d'incidence initial et les indices complexes des différents milieux pour calculer les coefficients de Fresnel.

- **Calcul de la matrice couche**

On considère une couche homogène d'indice de réfraction N et d'épaisseur d ; l'indice 0 concerne le début de la couche, l'indice d concerne la fin.

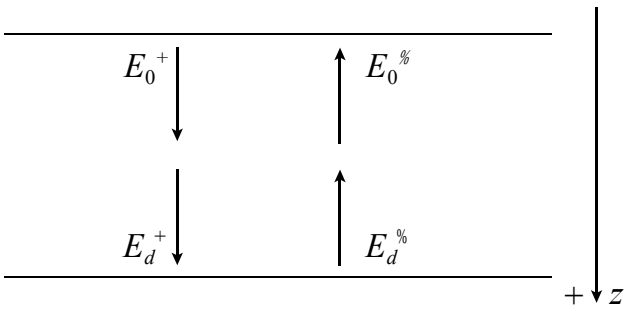


figure 2.15 : Définition des champs dans une couche.

On peut relier les champs au début et à la fin de la couche, définis sur la figure 2.15, par la relation :

$$\begin{bmatrix} E_0^+ \\ E_0^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} e^{j\beta} & 0 \\ 0 & e^{-j\beta} \end{bmatrix} . \begin{bmatrix} E_d^+ \\ E_d^- \end{bmatrix} \tag{2.28}$$

où β est le déphasage introduit par la couche.

Le champ électrique est de la forme : $E = E_m \exp[j(\omega t - \vec{k}.\vec{r})]$, où le terme : $\exp(-j\vec{k}.\vec{r})$ est le terme relatif au déphasage. Sur la figure 2.16, nous schématisons la traversée de la couche par une onde plane.

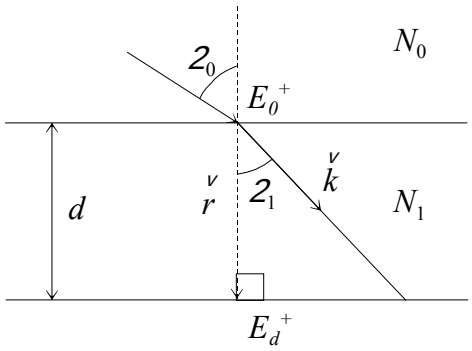


figure 2.16 : Onde plane traversant une couche d'indice N_1 et d'épaisseur d.

Le déphasage est donné par la relation : $\beta = \vec{k}.\vec{r}$, où $\vec{r}$ est le vecteur reliant E_0^+ et E_d^+, ou E_d^- et E_0^-. Cette relation devient : $\beta = \vec{k}.\vec{r} = kd\cos\theta_1$.

soit : $\beta = \dfrac{2\pi}{\lambda} N_1 d\cos\theta_1$ (2.29)

La matrice couche peut donc être écrite sous la forme :

$$\mathbb{L} = \begin{bmatrix} e^{j\beta} & 0 \\ 0 & e^{-j\beta} \end{bmatrix} \quad (2.30)$$

- **Calcul des coefficients de Fresnel**

La matrice $\mathbb{S}$, caractéristique de la structure globale, est obtenue en multipliant toutes les matrices $\mathbb{I}$ et $\mathbb{L}$ des différentes couches : $\mathbb{S} = \mathbb{I}_{01}.\mathbb{L}_1.\mathbb{I}_{12}.\mathbb{L}_2 \ldots \mathbb{I}_{(j-1)j}.\mathbb{L}_j \ldots \mathbb{L}_m.\mathbb{I}_{m(m+1)}$ (2.31)

Cette matrice relie les champs électriques dans le milieu ambiant et dans le substrat :

$$\begin{bmatrix} E_a^+ \\ E_a^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{bmatrix} . \begin{bmatrix} E_s^+ \\ 0 \end{bmatrix} \Rightarrow \begin{cases} E_a^+ = S_{11} E_s^+ \\ E_a^- = S_{21} E_s^+ \end{cases} \quad (2.32)$$

Les indices *a* et *s* correspondent au milieu ambiant *a* et au substrat semi-infini *s*.

On obtient les coefficients de réflexion et transmission en amplitude :

$$r = \frac{E_a^-}{E_a^+} = \frac{S_{21}}{S_{11}}$$
$$t = \frac{E_s^+}{E_a^+} = \frac{1}{S_{11}} \tag{2.33}$$

et en intensité :

$$R = r\,r^* = |r|^2 = \left|\frac{S_{21}}{S_{11}}\right|^2$$
$$T = \frac{N_{m+1}}{N_0} t\,t^* = \frac{N_{m+1}}{N_0}|t|^2 = \frac{N_{m+1}}{N_0}\left|\frac{1}{S_{11}}\right|^2 \tag{2.34}$$

2.2 Modélisation de la photoluminescence

2.2.1 Principe de la modélisation

Dans cette partie, est décrit le modèle utilisé pour ajuster les spectres de photoluminescence de microcavité en régime de couplage faible.

On considère une couche active à l'intérieur d'une structure multicouche. Chaque point de cette couche est considéré comme une source lumineuse ponctuelle qui émet de la lumière incohérente dans toutes les directions. Lors des expériences de photoluminescence, le signal est collecté suivant une direction perpendiculaire à la surface de l'échantillon, donc on ne considèrera que deux directions d'émission de lumière pour chaque point considéré, une vers l'avant et une vers l'arrière de l'échantillon.

La figure 2.17 schématise le principe du calcul de l'émission d'une source située en un point M, d'abscisse *z*. L'émission est décomposée en deux parties : l'émission initiale dirigée vers le haut dont l'intensité résultante sera notée I_h (figure 2.17 *(a)*) et celle vers le bas qui aura pour intensité résultante I_b (figure 2.17 *(b)*). Ainsi, le calcul débutera par le cas d'une seule source au point M, puis le résultat sera généralisé dans le cas d'une couche active, d'épaisseur *d* [93-95].

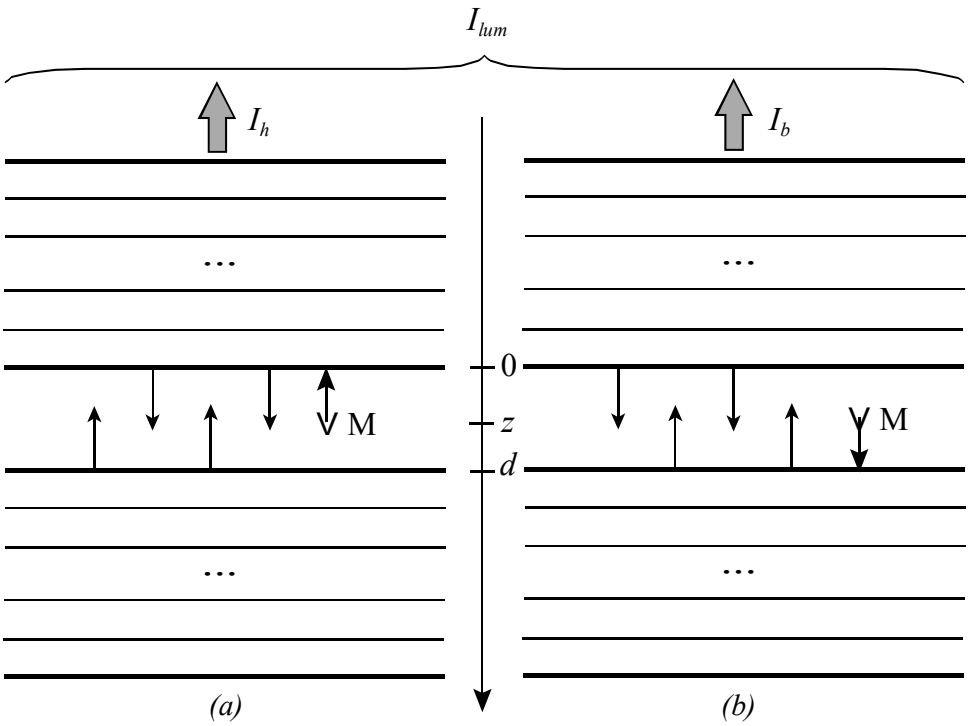


figure 2.17 : Représentation schématique de l'émission d'une source en un point M, décomposée en deux parties : (a) la source émet initialement vers haut, (b) la source émet initialement vers le bas.

2.2.2 Description de la modélisation

Le calcul tient compte de la propagation des ondes dans la couche active ainsi que dans toutes les autres couches de la structure, et également des phénomènes d'interférences qui en résultent. Il prend également en compte l'absorption dans toutes les couches.

L'expression de l'intensité I_h est la suivante : $I_h(z)=A_h(z)A_h(z)^*$, où $A_h(z)$ est l'amplitude complexe de l'onde initialement émise vers le haut de la structure, et a pour expression :

$$A_h(z)=\frac{t_h \exp\left(-j\frac{2\pi n}{\lambda}z\right)\exp\left(-\frac{\alpha}{2}z\right)}{1-r_b r_h \exp\left(-j\frac{4\pi nd}{\lambda}\right)\exp(-\alpha d)} \tag{2.35}$$

L'expression de l'intensité I_b est : $I_b(z)=A_b(z)A_b(z)^*$, où $A_b(z)$ est l'amplitude complexe de l'onde initialement émise vers le haut de la structure, et a pour expression :

$$A_b(z) = \frac{t_h\, r_b \exp\left(-j\frac{2\pi n}{\lambda}(2d-z)\right)\exp\left(-\frac{\alpha}{2}(2d-z)\right)}{1 - r_b\, r_h \exp\left(-j\frac{4\pi nd}{\lambda}\right)\exp(-\alpha d)} \tag{2.36}$$

où $A_h(z)$ et $A_b(z)$ sont fonctions des paramètres suivants : α qui est le coefficient d'absorption dans la couche active, d l'épaisseur de la couche active, n l'indice de la couche active, qui varie en fonction de l'énergie, λ la longueur d'onde de la lumière incidente dans le vide et r_h, t_h, r_b, t_b les coefficients de réflexion et transmission en amplitude des hétérostructures "haute" (indicée h) et "basse" (indicée b), calculés à partir du formalisme matriciel décrit dans le modèle de réflectivité et des équations (2.33).

Il faut maintenant calculer l'émission de la couche active entière.

Dans un premier temps, il faut considérer la distribution des photo-porteurs. En effet, lorsqu'un échantillon est éclairé par un laser, dont l'énergie d'émission est supérieure à l'énergie de bande interdite du matériau, il ne luminesce pas sur toute sa profondeur. La distribution des photo-porteurs (Δn) est classiquement décrite par l'équation de continuité suivante [96] :

$$D\frac{d^2\Delta n}{dz^2} - \frac{\Delta n}{\tau} + g = 0 \tag{2.37}$$

où D est le coefficient de diffusion des porteurs photocréés, τ est le taux de recombinaison des porteurs et g est le taux de génération des paires électrons-trous.

Si l'on néglige le phénomène de diffusion [97], la densité de photo-porteurs est alors proportionnelle à la quantité : $\alpha_{exc}\exp(-\alpha_{exc}\, z)$, où α_{exc} est la valeur de l'absorption de la couche active à l'énergie du laser.

Les expressions des intensités $I_h(z)$ et $I_b(z)$ deviennent ainsi :

$$\begin{cases} I'_h(z) = I_h(z)\alpha_{exc}\exp(-\alpha_{exc}z) \\ I'_b(z) = I_b(z)\alpha_{exc}\exp(-\alpha_{exc}z) \end{cases} \tag{2.38}$$

Pour obtenir l'émission globale de la couche active, on intègre sur toute l'épaisseur :

$$I_{FI} = \int_0^d (I'_b(z) + I'_h(z)).dz \tag{2.39}$$

Finalement pour obtenir l'intensité de photoluminescence, on multiplie l'intensité I_{FI} par une lorentzienne centrée sur l'énergie d'émission de la couche active [98] :

$$I_{PL} = I_{FI} \frac{2A}{\pi} \frac{w}{4(E - E_{exc})^2 + w^2} \tag{2.40}$$

où A est un coefficient de normalisation, w est la largeur à mi-hauteur de la lorentzienne et E_{exc} est l'énergie d'émission de la couche active.

Ainsi, lors de l'étude de la photoluminescence d'une microcavité, dans le cas du régime de couplage faible, les spectres expérimentaux pourront être simulés grâce à ce modèle et la largeur à mi-hauteur de l'émission de la couche active pourra, en particulier, être estimée.

2.3 Modélisation de la photoréflectivité

Notre but ici n'est pas d'ajuster les spectres de photoréflectivité sur une grande gamme d'énergie, mais seulement au voisinage des transitions excitoniques. On utilise donc un modèle qui permet d'extraire la position en énergie ainsi que l'élargissement de la transition excitonique étudiée ; on peut exprimer la variation de la réflectivité au voisinage d'un point critique par l'expression suivante [99] :

$$\frac{\Delta R}{R} = \mathrm{Re}\left\{ \frac{C e^{j\theta}}{\left[(E - E_{cp}) + j\Gamma \right]^n} \right\} \tag{2.41}$$

où E est l'énergie des photons incidents, E_{cp} est l'énergie du point critique considéré, Γ est un paramètre d'élargissement, θ est un terme de phase et n est un paramètre dépendant de la nature du point critique.

On pose : $x=E-E_{cp}$.

On a : $|(x+j.\Gamma)^n|^2=|(x+j\,\Gamma)^2|^n=(x^2+\Gamma^2)^n$

d'où : $$\frac{1}{(x+j\Gamma)^n} = \frac{(x-j\Gamma)^n}{(x+j\Gamma)^n (x-j\Gamma)^n} = \frac{(x-j\Gamma)^n}{\left|(x+j\Gamma)^n\right|^2} = \frac{(x-j\Gamma)^n}{(x^2+\Gamma^2)^n} \tag{2.42}$$

La relation précédente s'écrit donc sous la forme :

$$\frac{\Delta R}{R} = \mathrm{Re}\left\{ C e^{j\theta} \frac{(x-j\Gamma)^n}{(x^2+\Gamma^2)^n} \right\} \tag{2.43}$$

En notant : Ψ=Arg($x-j\,\Gamma$), c'est-à-dire si x>0 : Ψ=Arctan($-\Gamma/x$) et si x<0 :

Ψ= Arctan($\Gamma/|x|$)+π.

D'où : $(x-j\,\Gamma)=|x-j\,\Gamma|e^{j\Psi}=(x^2+\Gamma^2)^{1/2}e^{j\Psi}$

et de la même manière : $(x-j\,\Gamma)^n=(x^2+\Gamma^2)^{n/2}\,e^{jn\Psi}$

$$\frac{\Delta R}{R}=\mathrm{Re}\left\{Ce^{i\theta}\,\frac{(x^2+\Gamma^2)^{n/2}}{(x^2+\Gamma^2)^n}e^{jn\psi}\right\}=\mathrm{Re}\left\{Ce^{i(\theta+n\psi)}\,\frac{1}{(x^2+\Gamma^2)^{n/2}}\right\} \tag{2.44}$$

Soit : $$\frac{\Delta R}{R}=\frac{C\cos(\theta+n\psi)}{(x^2+\Gamma^2)^{n/2}} \tag{2.45}$$

Ainsi, il y a 4 paramètres à ajuster par transition : x, C, θ, Γ. Dans le cas de l'étude de puits quantiques, n est pris égal à 3 [100], l'expression utilisée est finalement :

$$\frac{\Delta R}{R}=\frac{C\cos(\theta+3\psi)}{(x^2+\Gamma^2)^{3/2}} \tag{2.46}$$

2.4 Modélisation de l'ellipsométrie

2.4.1 Formalisme matriciel d'Abelès

Pour effectuer les modélisations des spectres d'ellipsométrie, le modèle décrit par F. Abelès a été choisi depuis plusieurs années au laboratoire [101]. Comme pour la description du formalisme décrit par R. M. A Azzam et N. M. Bashara [92], on considère une structure stratifiée de m couches parallèles entre le milieu ambiant (couche indicée 0) et le substrat (indicée m+1) mais chaque couche est représentée par une seule matrice, ce qui simplifie la procédure d'exploitation des données présentée au paragraphe 2.4.3.

Quand une onde incidente polarisée rectilignement arrive sur l'échantillon avec une polarisation *TE* ou *TM*, toutes les ondes se propageant dans le milieu stratifié, ont la même polarisation. On note $E^+(z_i)$ et $E^-(z_i)$ les amplitudes complexes des ondes respectivement entrantes et sortantes dans un plan donné z_i parallèle au plan des couches.

En développant les équations de propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu linéaire, homogène et isotrope : $\overrightarrow{rot}\vec{E}=-\mu_0\,\partial\vec{H}/\partial t$ et $\overrightarrow{rot}\vec{H}=\varepsilon_0\varepsilon_r\,\partial\vec{E}/\partial t$, F. Abelès a montré que les composantes du champ électrique $\vec{E}$ et de l'excitation magnétique $\vec{H}$ dans le milieu vérifient les équations suivantes [88] :

Dans le cas d'une polarisation *TE* :

$$\begin{cases} E_x = U(z)\exp\left[j\left(\omega t - \dfrac{\omega}{c} N_0 \sin\theta_0 \, y \right) \right] \\ E_y = 0 \\ E_z = 0 \end{cases} \qquad \begin{cases} H_x = 0 \\ H_y = V(z)\exp\left[j\left(\omega t - \dfrac{\omega}{c} N_0 \sin\theta_0 \, y \right) \right] \\ H_z = W(z)\exp\left[j\left(\omega t - \dfrac{\omega}{c} N_0 \sin\theta_0 \, y \right) \right] \end{cases} \quad (2.47)$$

avec $U(z)$, $V(z)$ et $W(z)$ des fonctions de la profondeur z telles que :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial U(z)}{\partial z} = -j\dfrac{\omega}{c}\mu_0 V(z) \\ \dfrac{\partial V(z)}{\partial z} = -j\dfrac{\omega}{c}\left(\varepsilon_0\varepsilon_r - \dfrac{N_0 \sin^2\theta_0}{\mu_0} \right) U(z) \\ W(z) = -\dfrac{N_0 \sin^2\theta_0}{\mu_0} U(z) \end{cases} \quad (2.48)$$

Dans le cas d'une polarisation *TM* :

$$\begin{cases} E_x = 0 \\ E_y = -V(z)\exp\left[j\left(\omega t - \dfrac{\omega}{c} N_0 \sin\theta_0 \, y \right) \right] \\ E_z = -W(z)\exp\left[j\left(\omega t - \dfrac{\omega}{c} N_0 \sin\theta_0 \, y \right) \right] \end{cases} \qquad \begin{cases} H_x = U(z)\exp\left[j\left(\omega t - \dfrac{\omega}{c} N_0 \sin\theta_0 \, y \right) \right] \\ H_y = 0 \\ H_z = 0 \end{cases} \quad (2.49)$$

avec $U(z)$, $V(z)$ et $W(z)$ vérifiant les équations différentielles suivantes :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial U(z)}{\partial z} = -j\dfrac{\omega}{c}\varepsilon_0\varepsilon_r V(z) \\ \dfrac{\partial V(z)}{\partial z} = -j\dfrac{\omega}{c}\left(\mu_0 - \dfrac{N_0 \sin^2\theta_0}{\varepsilon_0\varepsilon_r}\right)U(z) \\ W(z) = -\dfrac{N_0 \sin^2\theta_0}{\varepsilon_0\varepsilon_r}U(z) \end{cases} \tag{2.50}$$

En considérant deux plans particuliers z_i et z_{i+1} correspondant aux deux extrémités d'une couche homogène d'épaisseur d_i, les équations différentielles des systèmes (2.48) et (2.50) permettent d'exprimer une matrice de passage reliant les composantes $U(z)$ et $V(z)$ aux deux interfaces :

$$\begin{bmatrix} U(z_i) \\ V(z_i) \end{bmatrix} = \mathbb{M}(z_i+1).\begin{bmatrix} U(z_{i+1}) \\ V(z_{i+1}) \end{bmatrix} \text{ avec : } \mathbb{M}(z_i+1) = \begin{bmatrix} \cos(k_i d_i) & j\dfrac{1}{Y_i}\sin(k_i d_i) \\ j\,Y_i \sin(k_i d_i) & \cos(k_i d_i) \end{bmatrix}$$

avec :

$$\text{pour l'onde } TE : \; Y_i = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}N_i \cos\theta_i = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\sqrt{N_i^2 - N_0^2 \sin^2\theta_0} \tag{2.51}$$

$$\text{pour l'onde } TM : \; Y_i = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}\frac{\cos\theta_i}{N_i} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}\frac{\sqrt{N_i^2 - N_0^2 \sin^2\theta_0}}{N_i^2} \tag{2.52}$$

Les composantes $U(z)$ et $V(z)$ à la surface de la structure notées $U(z_0)$et $V(z_0)$ peuvent être reliées aux composantes à la surface du substrat $U(z_m)$ et $V(z_m)$ par le produit des m matrices $\mathbb{M}_i$ représentative de l'ensemble des couches (i) constituant l'échantillon :

$$\begin{bmatrix} U(z_0) \\ V(z_0) \end{bmatrix} = \mathbb{M}_1.\mathbb{M}_2.\ldots.\mathbb{M}_i.\ldots.\mathbb{M}_m.\begin{bmatrix} U(z_m) \\ V(z_m) \end{bmatrix} \tag{2.53}$$

Les composantes $U(z_0)$ et $V(z_0)$ résultent de la superposition des champs incidents et réfléchi $E^+(z_0)$ et $E^-(z_0)$. Ainsi, en considérant la continuité des composantes tangentielles des champs et les équations différentielles reliant $U(z)$ à $V(z)$, il vient :

$$\begin{cases} U(z_0) = E^+(z_0) + E^-(z_0) \\ V(z_0) = Y_0\left(E^+(z_0) - E^-(z_0)\right) \end{cases} \tag{2.54}$$

Dans le substrat, où il n'y a pas de champ réfléchi :

$$\begin{cases} U(z_m) = E^+(z_m) \\ V(z_m) = Y_{m+1} E^+(z_m) \end{cases} \tag{2.55}$$

Puisque l'ellipsométrie ne s'intéresse qu'à des rapports de champs, $U(z_m)$ est normalisé à 1 par la suite.

A partir de la forme matricielle (2.53) et des équations (2.54) et (2.55), on peut calculer les champs réfléchis et incidents par un produit matriciel de la forme :

$$\begin{bmatrix} E^-(z_0) \\ E^+(z_0) \end{bmatrix} = \mathcal{M}_a . \mathcal{M}_1 . \mathcal{M}_2 ..... \mathcal{M}_i ..... \mathcal{M}_m . \begin{bmatrix} 1 \\ Y_{m+1} \end{bmatrix} \tag{2.56}$$

avec : $\mathcal{M}_a = \begin{bmatrix} 1/2 & -1/(2Y_0) \\ 1/2 & 1/(2Y_0) \end{bmatrix}$ et $\mathcal{M}_i = \begin{bmatrix} \cos(k_i d_i) & j\dfrac{1}{Y_i}\sin(k_i d_i) \\ j Y_i \sin(k_i d_i) & \cos(k_i d_i) \end{bmatrix}$

On aboutit finalement aux coefficients de Fresnel en amplitude pour les deux polarisations *TE* et *TM* :

$$r_{TE\ (TM)} = \frac{E^-(z_0)}{E^+(z_0)} \qquad\qquad t_{TE\ (TM)} = \frac{E^+(z_m)}{E^+(z_0)} \tag{2.57}$$

Comme nous l'avons vérifié, le calcul des coefficients de Fresnel par la méthode d'Abelès et celle d'Azzam et Bashara conduisent exactement aux mêmes résultats. Ces deux formalismes sont proches mais le formalisme d'Abelès se démarque de celui d'Azzam et Bashara par la possibilité de calculer plus facilement les dérivées des différents paramètres entrant dans le calcul [88]. Ceci pourrait être intéressant dans la perspective d'effectuer un programme permettant de simuler les spectres de photoréflectivité relatifs à une microcavité, de manière en extraire les paramètres excitoniques importants : l'énergie, l'élargissement mais surtout la force d'oscillateur de la transition.

2.4.2 Mesures ellipsométriques

L'ellipsométrie par réflexion conduit à la détermination du rapport ρ des coefficients de Fresnel : $\rho = \dfrac{r_{TM}}{r_{TE}}$ (2.58)

Pour exprimer ρ en fonction des grandeurs mesurées qui sont les angles ellipsométriques notés Ψ et Δ, on l'écrit sous la forme :

$$\rho = \tan\psi\, e^{j\Delta} \text{ avec : } \tan\psi = \frac{|r_{TM}|}{|r_{TE}|} \text{ et : } \Delta = \delta r_{TM} - \delta r_{TE} \tag{2.59}$$

Les coefficients r_{TE} et r_{TM} dépendent de la nature et de la structure de l'échantillon étudié. La mesure de ρ permet donc de remonter à ces propriétés, par exemple les épaisseurs des couches et/ou les fonctions diélectriques.

A partir des expressions du champ électrique d'une onde monochromatique dans le cas des polarisations *TE* et *TM*, on peut exprimer l'amplitude du champ transmis à travers l'analyseur :

$$E_T = R_{TM} \cos P \cos(A+\theta)\, e^{j(\omega t - \vec{k}_{TM}\cdot\vec{r})} + R_{TE} \sin P \sin(A+\theta)\, e^{j(\omega t - \vec{k}_{TE}\cdot\vec{r})} \tag{2.60}$$

avec A et P les angles de l'analyseur et du polariseur par rapport au plan d'incidence, et θ la position de l'analyseur par rapport au plan d'incidence à l'origine des phases définie par la roue codeuse (voir figure 2.10 et paragraphe 1.6).

L'intensité détectée est proportionnelle au produit $E_T.E_T^*$; après développement, on obtient :

$$I(t) = I_0 + I_1 \cos(2A+2\theta) + I_2 \sin(2A+2\theta)$$

$$I(t) = I_0[1 + \alpha\cos(2A+2\theta) + \beta\sin(2A+2\theta)] \tag{2.61}$$

avec :

$$\begin{cases} I_0 = |r_{TE}|^2 \left(\tan^2\psi\cos^2 P + \sin^2 P\right) \\ \alpha = \dfrac{I_1}{I_0} = \dfrac{\tan^2\psi\cos^2 P - \sin^2 P}{\tan^2\psi\cos^2 P + \sin^2 P} \\ \beta = \dfrac{I_2}{I_0} = \dfrac{2\tan\psi\cos P\sin P\cos\Delta}{\tan^2\psi\cos^2 P + \sin^2 P} \\ A = \Omega t \end{cases} \tag{2.62}$$

où Ω est la pulsation de l'analyseur.

L'inversion des expressions précédentes permet d'exprimer les grandeurs ellipsométriques $\tan\Psi$ et $\cos\Delta$ en fonction des coefficients α et β :

$$\begin{aligned} \tan\psi &= |\tan P|\sqrt{\frac{1+\alpha}{1-\alpha}} = \frac{|r_{TM}|}{|r_{TE}|} \\ \cos\Delta &= \frac{\beta}{\sqrt{1-\alpha^2}} = \arg\left(\frac{r_{TM}}{r_{TE}}\right) \end{aligned} \tag{2.63}$$

Les coefficients α et β sont obtenus à partir du calcul de I_0, I_1 et I_2 par les expressions suivantes :

$$\begin{cases} I_0 = \dfrac{1}{T}\displaystyle\int_0^T I(t).dt \\ I_1 = \dfrac{1}{T}\displaystyle\int_0^T I(t)\cos(2A).dt \\ I_2 = \dfrac{1}{T}\displaystyle\int_0^T I(t)\sin(2A).dt \end{cases} \tag{2.64}$$

avec : $T=2\pi/\Omega$.

2.4.3 Exploitation des mesures ellipsométriques

Les paramètres que nous voulons déterminer lors d'expériences d'ellipsométrie sont l'épaisseur *d* et l'indice complexe *N* de la couche à étudier. Une expérience permet la détermination des deux paramètres ellipsométriques : $\tan\Psi$ et $\cos\Delta$, donc nous ne pouvons déterminer que deux paramètres inconnus ; ainsi, dans le cas de l'étude d'une couche transparente, on pourra déduire l'épaisseur *d* et l'indice réel *n* de la couche ; par contre, si la couche est absorbante, la partie imaginaire *K* de l'indice est également à déterminer ; il est donc nécessaire de connaître auparavant une des trois inconnues. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre suivant, lors de l'analyse concrète des structures étudiées.

Pour aboutir à l'épaisseur et à l'indice de la couche, il faut relier les mesures ellipsométriques aux caractéristiques de l'échantillon par des équations ; ces équations non linéaires nécessitent une résolution numérique. Lorsque le nombre d'inconnues est supérieur à un, des méthodes unidimensionnelles, telles que la méthode de la sécante ou la dichotomie [102], peuvent être généralisées mais la procédure converge lentement et le choix des hypothèses initiales permettant une convergence vers les solutions devient critique [103]. Une solution à ce problème est de diminuer la dimension des systèmes : c'est la procédure de minimisation. La technique consiste à minimiser une fonction d'erreur notée χ^2, qui représente l'écart quadratique entre une modélisation et les données expérimentales. Les

valeurs des paramètres inconnus, aux incertitudes près, s'obtiennent en déterminant les valeurs des paramètres du modèle qui minimisent χ^2 [104,105].

Considérons le modèle suivant à ajuster aux mesures : $y=y(x,\vec{a})$, avec x : un ensemble de variables indépendantes connues et $\vec{a}$: un vecteur dont les composantes q_i sont les valeurs des P paramètres inconnus (indices, épaisseurs, …).

La fonction d'erreur χ^2 s'exprime :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{n} \left(\frac{y_i - y(x_i, \vec{a})}{\sigma_i} \right)^2 \tag{2.65}$$

où σ_i est l'écart-type sur la mesure de y_i et n le nombre de points expérimentaux. L'algorithme de minimisation a pour fonction de faire varier les composantes du vecteur $\vec{a}$ dans le sens qui réduit χ^2.

Finalement, cette procédure adaptée à l'ellipsométrie conduit à l'utilisation d'une fonction test (appelée fonction de mérite) :

$$FM = \frac{1}{2n-P-1} \sum_{i=1}^{n} \left[\left(\frac{\tan\psi_i^{\exp} - \tan\psi_i^{calc}}{\sigma_{\tan\psi,i}} \right)^2 + \left(\frac{\cos\Delta_i^{\exp} - \cos\Delta_i^{calc}}{\sigma_{\cos\Delta,i}} \right)^2 \right] \tag{2.66}$$

avec : $\tan\psi_i^{\exp}$, $\cos\Delta_i^{\exp}$: grandeurs ellipsométriques mesurées, $\tan\psi_i^{calc}$, $\cos\Delta_i^{calc}$: grandeurs ellipsométriques calculées et $\sigma_{\tan\psi,i}$, $\sigma_{\cos\Delta,i}$: déviations standards sur $\tan\Psi$ et $\cos\Delta$.

Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons passé en revue l'ensemble des techniques spectroscopiques que nous avons utilisé pour caractériser tous les échantillons que nous décrirons par la suite : la réflectivité sous incidence normale et résolue en angle, la photoluminescence sous incidence normale et résolue en angle, l'ellipsométrie et la photoréflectivité. Nous avons ensuite détaillé les modèles théoriques correspondant à chacune de ces techniques. A partir de l'ajustement des spectres expérimentaux, nous pourrons ainsi extraire les propriétés particulières relatives à chaque structure et à chaque expérience.

Ainsi, nous allons exposer dans les deux chapitres qui suivent l'ensemble des résultats que nous avons obtenu à partir de ces expériences.

Chapitre 3

Indices de réfraction et miroirs de Bragg à base de nitrures

Les substrats de GaN de grande taille n'existant pas, les microcavités étudiées ont été élaborées par hétéroépitaxie sur substrat silicium. Pour réduire les effets des contraintes thermiques et celles dues aux différences de paramètre de maille des différents matériaux, plusieurs couches-tampon ont été déposées avant la croissance de la microcavité proprement dite. Etant donnée la complexité de cet empilement, la connaissance des indices de réfraction d'AlN, de GaN et de leur alliage AlGaN s'est avérée indispensable pour l'optimisation de ces structures. De nombreux travaux ont déjà porté sur la détermination des indices de réfraction des nitrures à température ambiante [106-124], mais à notre connaissance, peu d'entre eux se rapportent à des hétérostructures élaborées sur substrat de silicium [123,124]. De plus, la détermination des indices est souvent limitée au domaine spectral [400-450;800] nm - correspondant à une gamme d'énergie de [1550;2750-3100] meV - [112-122] alors que notre cas, l'étude des microcavités à base de GaN porte sur une zone comprise entre 3000 et 4000 meV. De plus, notre étude nous a également permis de déterminer les indices de réfraction à une température de 5 K, température à laquelle seront effectuées les expériences de réflectivité et de photoluminescence sur les microcavités.

Le second point important à discuter avant la conception de microcavités est l'élaboration de miroirs de Bragg à base de nitrures. Une des difficultés essentielles inhérente

aux nitrures est le faible saut d'indice entre AlN et GaN, et *a fortiori* leur alliage AlGaN. Ainsi, pour obtenir des coefficients de réflexion relativement élevés, il faut un nombre conséquent de paires. De plus, les paramètres de maille d'AlN et de GaN étant très différents, les couches déposées sont contraintes, et lorsque le nombre de paires est important, il y a apparition et propagation de cracks (fissures). Dans la littérature, nous avons recensé des miroirs de Bragg AlN/GaN pouvant atteindre des réflectivités de 90 à 99% avec 15 à 25,5 paires AlN/GaN [125-127] ; ceux conçus à partir d'$Al_xGa_{1-x}N$ et de GaN avoisinent les 96% pour 37 paires $Al_{0,15}Ga_{0,85}N$/GaN ou encore 35 paires $Al_{0,34}Ga_{0,66}N$/GaN et peuvent atteindre 99% pour 60 paires $Al_{0,25}Ga_{0,75}N$/GaN ou $Al_{0,20}Ga_{0,80}N$/GaN [128-132]. Ces deux types de miroirs (AlN/GaN et AlGaN/GaN) sont conçus pour des applications dans le visible ou le proche ultraviolet impliquant des diodes et des cavités laser verticales à émission par la surface (VCSEL : Vertical Cavity Surface Emitting Laser); ils ne sont pas compatibles avec des dispositifs fonctionnant dans l'ultra-violet puisque GaN absorbe au-dessus de 3400 meV à température ambiante. Un tel système empêche donc l'utilisation de GaN comme matériau actif d'une microcavité à cause de l'absorption de la lumière par les miroirs dans la région d'émission de la zone active de GaN. Or, dans notre cas, GaN est la matière active de nos dispositifs, ainsi, afin de minimiser l'absorption, nous pouvons remplacer le système $Al_xGa_{1-x}N$/GaN par des alternances $Al_xGa_{1-x}N$/AlN [133-135]. A. Bhattacharyva a reporté la croissance de deux miroirs $Al_{0,43}Ga_{0,77}N$/AlN contenant 29,5 paires ayant une réflectivité de l'ordre de 99% et une stop band de 195 meV de large centrée sur 3190 et 3480 meV [136].

1 Détermination des indices de réfraction des nitrures

1.1 Description des échantillons

Les échantillons que nous avons étudiés ont été fournis par le CRHEA de Valbonne (Centre de Recherche sur l'Hétéroépitaxie et ses Applications). Ils ont tous été élaborés en utilisant des couches-tampon sur substrat de silicium [38].

La figure 3.1 indique les caractéristiques de chaque échantillon : leur dénomination, que nous utiliserons par la suite, l'épaisseur ainsi que le pourcentage d'aluminium de la couche étudiée et la structure des couches-tampon.

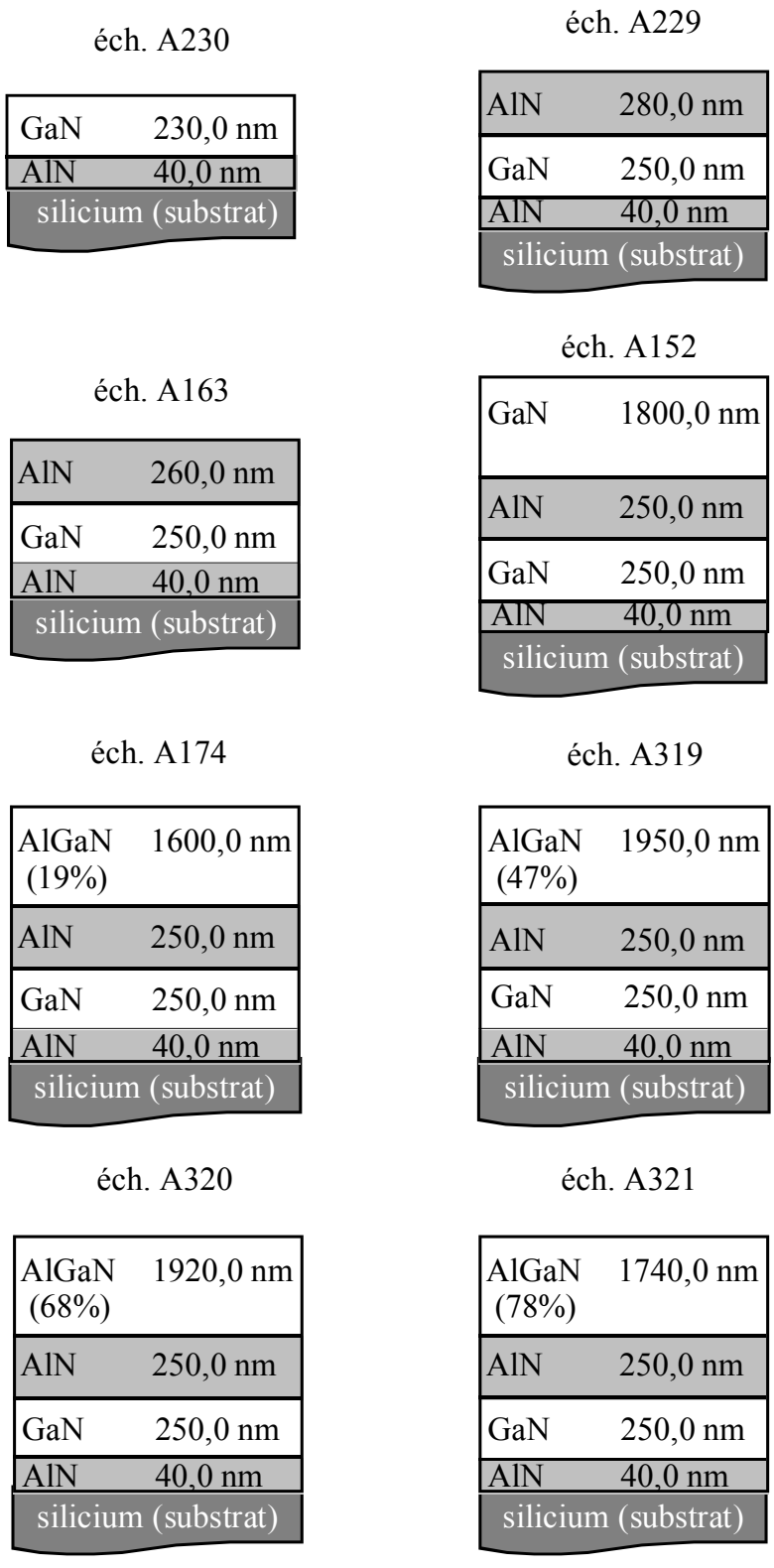


figure 3.1 : Caractéristiques des échantillons étudiés ; les structures sont élaborées sur substrat de silicium.

Les épaisseurs de chaque couche ont été déterminées lors de la croissance par réflectivité laser "in-situ" (λ=670 nm) et vérifiées a posteriori par microscopie électronique à

balayage (MEB). Les concentrations en aluminium des couches d'$Al_xGa_{1-x}N$ ont été déduites à partir d'une spectroscopie de rayons-*X* (EDX : "energy dispersive *X*-ray spectroscopy") avec une erreur de ± 1%. Des expériences de photoluminescence effectuées à une température de 13 K confirment ces valeurs [137].

1.2 Analyse des spectres expérimentaux

1.2.1 Principe de l'analyse des spectres expérimentaux

Les indices de réfraction ont été déterminés à partir d'expériences d'ellipsométrie à une température de 300K combinées à des expériences de réflectivité à 300 K et à 5 K. Les spectres sont enregistrés sur une gamme allant de 300 nm jusqu'à 580 nm (correspondant à des énergies allant de 2130 à 4130 meV). Les expériences de réflectivité nous permettent de confirmer les résultats obtenus par ellipsométrie étant donné la structure complexe des échantillons que nous étudions (présence de couches-tampon).

- **Analyse des spectres d'ellipsométrie**

Une expérience d'ellipsométrie permet la mesure des deux paramètres ellipsométriques : $\tan\Psi$ et $\cos\Delta$, soit donc la détermination de deux paramètres inconnus de la structure étudiée. Ainsi, pour les alliages qui sont transparents (K=0) dans la gamme d'énergie que nous étudions, les spectres d'ellipsométrie sont ajustés point par point, permettant de déterminer l'épaisseur moyenne $\overline{d}$ de la couche d'alliage et la partie réelle de l'indice (n) à chaque énergie.

Ceci n'est possible que si les seules inconnues du modèle sont les caractéristiques de l'alliage et donc si celles du substrat et des couches-tampon sont déjà connues. L'étude préliminaire des indices d'AlN et de GaN constituant les couches-tampon, nous a semblé nécessaire et est détaillée dans le paragraphe 1.3.1.

Les couches correspondant à x=0 et x=0,19 ne sont pas totalement transparentes, elles sont donc traitées en deux étapes. Dans la région spectrale de transparence de l'alliage, l'épaisseur moyenne $\overline{d}$ et la partie réelle de l'indice (n) sont déterminées comme précédemment à chaque énergie. Par contre, dans la zone absorbante, un modèle à deux phases (air/AlGaN) est utilisé de manière à extraire les valeurs de n et de K à chaque énergie,

puisque l'épaisseur des couches d'alliage $\overline{d}$ excède la profondeur de pénétration de la lumière (environ 100 nm dans cette région du spectre).

- **Spectres de réflectivité**

Pour les échantillons totalement transparents dans la gamme d'étude, nous avons ajusté les données obtenues d'ellipsométrie, par la méthode des moindres carrés, à une loi de Sellmeier du type [138] :

$$n = \sqrt{a + \frac{b\lambda^2}{\lambda^2 - c^2}} \tag{3.1}$$

où *a*, *b* et *c* sont trois paramètres ajustables. Pour les autres, nous avons lissé numériquement les données. Les indices ainsi obtenus seront appelés par la suite : indices "minimisés".

Ensuite, ces indices "minimisés" nous ont servi de point de départ pour ajuster également les franges d'interférences présentes dans les spectres de réflectivité des échantillons. Les indices ainsi obtenus sont désormais appelés : indices "corrigés".

Finalement, nous avons recalculé les ajustements des spectres d'ellipsométrie en utilisant les indices corrigés et nous les avons comparés aux spectres expérimentaux dans le but de vérifier la cohérence des résultats.

La nécessité de cette procédure en boucle vient des hypothèses que nous avons du faire pour modéliser la structure complexe de l'échantillon.

1.2.2 Hypothèses effectuées dans le modèle d'ellipsométrie

Dans les modèles permettant d'ajuster les spectres ellipsométriques, des paramètres additionnels peuvent être ajoutés de manière à tenir compte, par exemple, des couches de surface supplémentaires, d'une variation latérale ou en profondeur d'épaisseur ou bien encore d'une anisotropie optique [114,139]. Une telle méthode a déjà été utilisée précédemment au laboratoire pour caractériser des couches de GaN sur un substrat de saphir dont la structure était une seule couche sur un substrat [114]. Dans notre cas, les échantillons sont constitués de quatre couches sur un substrat. Le risque d'obtenir plusieurs minima de la fonction d'erreur χ^2 (équation (2.65)) augmente avec la complexité du modèle et le nombre de paramètres inconnus, en particulier dans la zone transparente où la lumière pénètre l'ensemble des couches de la structure. Ainsi, nous avons discuté de la nécessité ou non d'ajouter d'autres paramètres ajustables dans notre modèle.

Le paramètre ellipsométrique Ψ n'est pas très sensible à la présence de fines couches de surface ou à des rugosités de surface [110]. Or, $\tan\Psi$ a également un poids quatre fois plus important que $\cos\Delta$ dans la fonction de mérite (*FM*), dont l'expression est donnée par l'expression (2.66). Ainsi, nous n'avons pas ajouté de telles couches de surface dans notre modèle.

Le faisceau incident scrute une surface de 3×3 mm^2 de l'échantillon ; ainsi, les valeurs de $\tan\Psi$ et $\cos\Delta$ enregistrées sont moyennées sur une zone sur laquelle l'épaisseur peut varier légèrement. Ainsi, il est possible d'obtenir une différence d'amplitude entre les spectres calculés et expérimentaux, les spectres calculés ayant une amplitude d'oscillations plus grandes.

L'homogénéité d'épaisseur de la couche d'alliage $Al_xGa_{1-x}N$ a été contrôlée strictement tout au long de la croissance, ainsi, nous avons négligé l'influence d'une inhomogénéité en profondeur.

Nous pouvons donner une estimation de l'influence de l'anisotropie de l'indice de réfraction en calculant : $\rho=R_p/R_s$; dans ce rapport, on utilise l'indice ordinaire pour le calcul de R_s (correspondant à un champ électrique perpendiculaire à l'axe optique de l'échantillon) et l'indice extraordinaire pour R_p (car le champ électrique de l'onde *p* a une projection selon l'axe optique). L'indice "exact" à utiliser pour le calcul de R_p devrait être une combinaison des indices ordinaire et extraordinaire, qui dépend de l'angle d'incidence. Notre calcul exagère donc l'effet de l'anisotropie sur $\rho=\tan\Psi e^{i\Delta}$ mais il ne nous conduit qu'à des variations engendrées par la prise en compte ou non de l'anisotropie qui sont du même ordre de grandeur que les incertitudes expérimentales dues aux mesures ; cet effet n'est donc pas considéré.

1.3 Résultats et discussions

Dans la région transparente de GaN, les franges d'interférences présentes dans les spectres d'ellipsométrie et de réflectivité proviennent de la structure entière des échantillons (figure 3.3) ; ainsi, l'analyse de ces spectres s'avère complexe. L'étude préliminaire des indices d'AlN et de GaN, constituants des couches-tampon, nous a semblé nécessaire.

1.3.1 Détermination des indices d'AlN et de GaN à T=300 K

Nous avons étudié dans un premier temps les échantillons numérotés A163, A229, A230 et A152 relatifs à l'étude des indices et épaisseurs des couches-tampon d'AlN et de

GaN. L'indice du substrat de silicium provient de la référence [140]. Concernant l'indice d'AlN, transparent dans la gamme [2130;4130] meV, l'indice réel suit une loi de Sellmeier définie par l'expression (3.1) et telle que a=1,00, b=3,12 et c=138 nm. Concernant GaN, nous avons utilisé la procédure détaillée dans le paragraphe 1.2.1 et nous avons déterminé les indices minimisé et lissé qui sont présentés sur la figure 3.2.

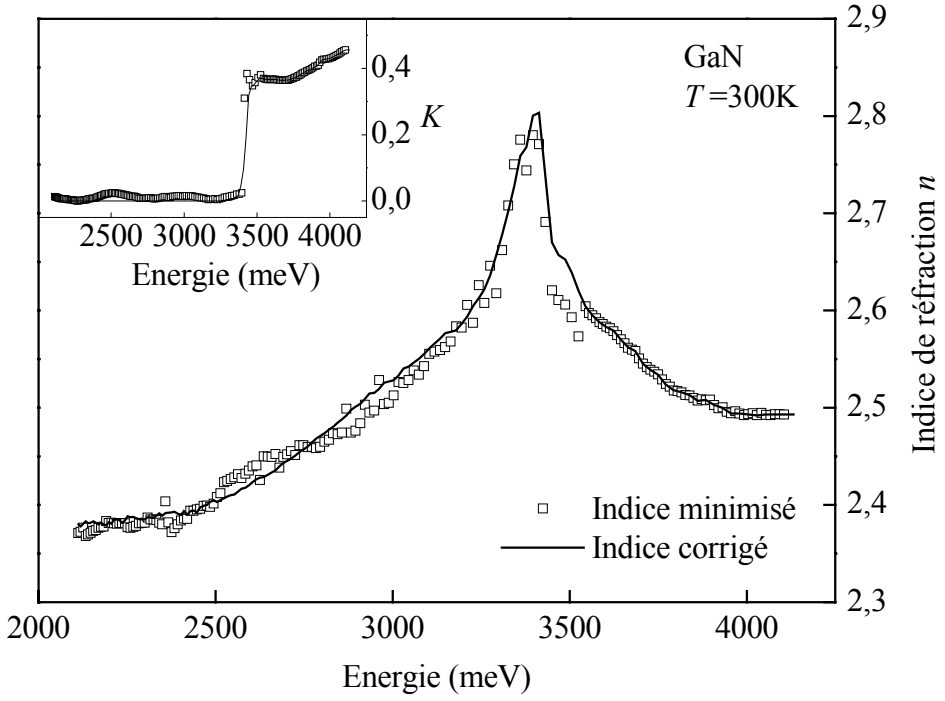


figure 3.2 : Indice minimisé (symbole carré ouvert) et indice corrigé (trait plein) de GaN à une température de 300 K. L'insert correspond au coefficient d'extinction K.

La figure 3.3 présente les spectres expérimentaux (traits pleins) et calculés (traits pointillés) issus des expériences d'ellipsométrie et de réflectivité effectuées sur les quatre échantillons permettant l'étude des indices d'AlN et de GaN (nommés A152, A163, A229 et A230). Les caractéristiques des échantillons sont indiquées dans la figure 3.1.

L'indice de GaN utilisé dans les calculs d'ellipsométrie et de réflectivité est l'indice corrigé et celui d'AlN est issu de la Loi de Sellmeier (expression (3.1)) avec a=1, b=3,12 et c=138 nm. Nous obtenons un bon accord expérience-calcul sur l'ensemble des échantillons et sur les deux expériences. Les valeurs des épaisseurs calculées sont les suivantes : éch. A152 : $\overline{d}$ =1,8 µm ; éch. A163 : $\overline{d}$ =250 nm ; éch. A229 : $\overline{d}$ =250 nm ; éch. A230 : $\overline{d}$ =245 nm. Ces épaisseurs sont proches de celles mesurées (figure 3.1), ce qui montre l'adéquation de notre modèle aux échantillons étudiés.

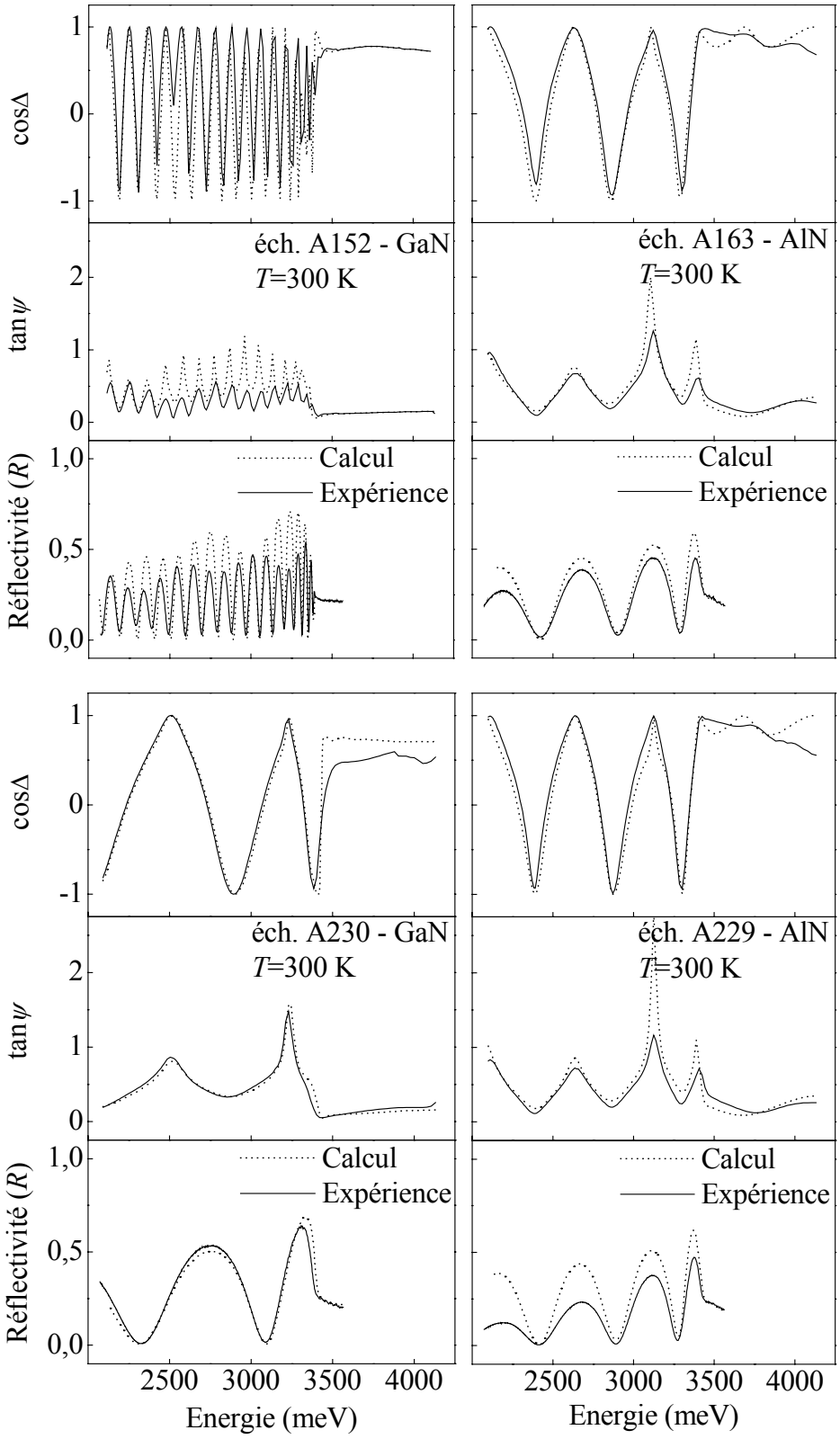


figure 3.3 : Spectres des paramètres ellipsométriques tan Ψ et cosΔ ainsi que celui de réflectivité sous incidence normale des échantillons A152, A163, A229 et A230, conduisant à la détermination des indices d'AlN et de GaN.

Nous avons calculé la valeur absolue Δ_n de l'écart moyen entre les indices corrigé et minimisé :

$$\Delta_n = \left|\overline{\Delta n}\right| = \left|\frac{\sum_{i=1}^{N}\left(n^i_{minimisé} - n^i_{corrigé}\right)}{N}\right| \tag{3.2}$$

où N est le nombre total de points. Cet écart permet de donner une incertitude sur les indices corrigés. Pour l'indice de GaN, nous trouvons : Δ_n=0,0087.

1.3.2 Détermination des indices d'AlGaN à T=300 K

Les indices minimisés et corrigés des alliages $Al_xGa_{1-x}N$ (x=0,19; 0,47; 0,68 et 0,78) sont présentés sur la figure 3.4. Les symboles ouverts de forme carrée correspondent à l'indice minimisé et le trait plein à l'indice corrigé. L'insert correspond au coefficient d'extinction K d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$.

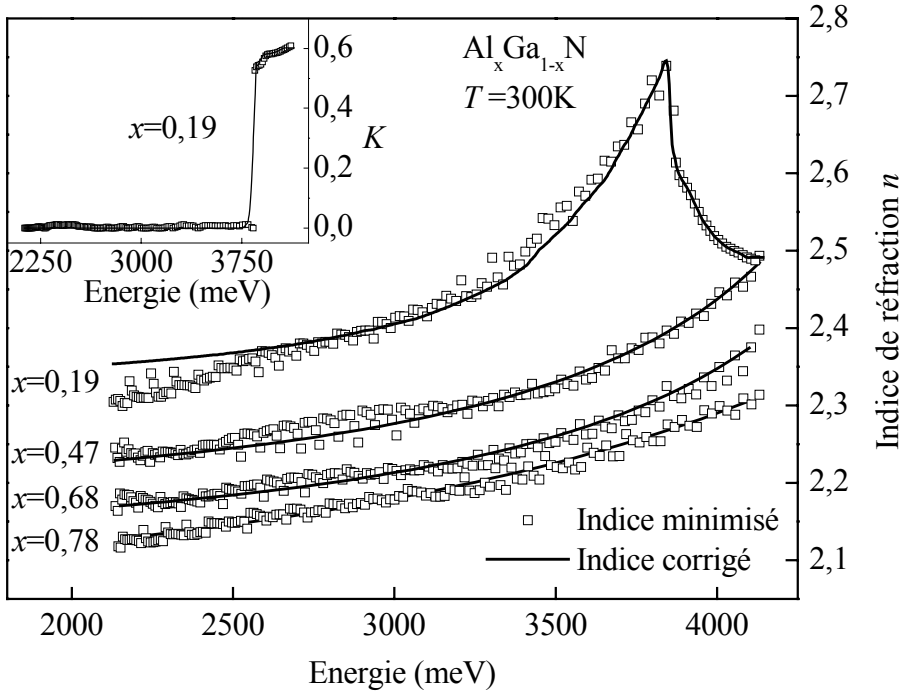


figure 3.4 : Indice minimisé (symbole ouvert carré) et indice corrigé (trait plein) d'$Al_xGa_{1-x}N$ pour x=0,78, x=0,68, x=0,47 et x= 0,19. L'insert correspond au coefficient d'extinction K pour x=0,19.

Les valeurs absolues Δ_n des écarts moyens entre indices corrigé et minimisé, définies par l'expression (3.2), sont indiquées dans le tableau 1.1.

$Al_xGa_{1-x}N$	Δ_n
x=0,19	0,0167
x=0,47	0,0089
x=0,68	0,0068
x=0,78	0,0058

tableau 1.1 : Ecart moyen $\overline{\Delta n}$ entre indices minimisé et corrigé pour les alliages $Al_xGa_{1-x}N$.

Les spectres de réflectivité de ces alliages, enregistrés à T=300 K, sont comparés sur la figure 3.5 aux spectres calculés utilisant les indices corrigés. Les spectres expérimentaux sont en trait plein et ceux calculés avec les indices corrigés en traits pointillés.

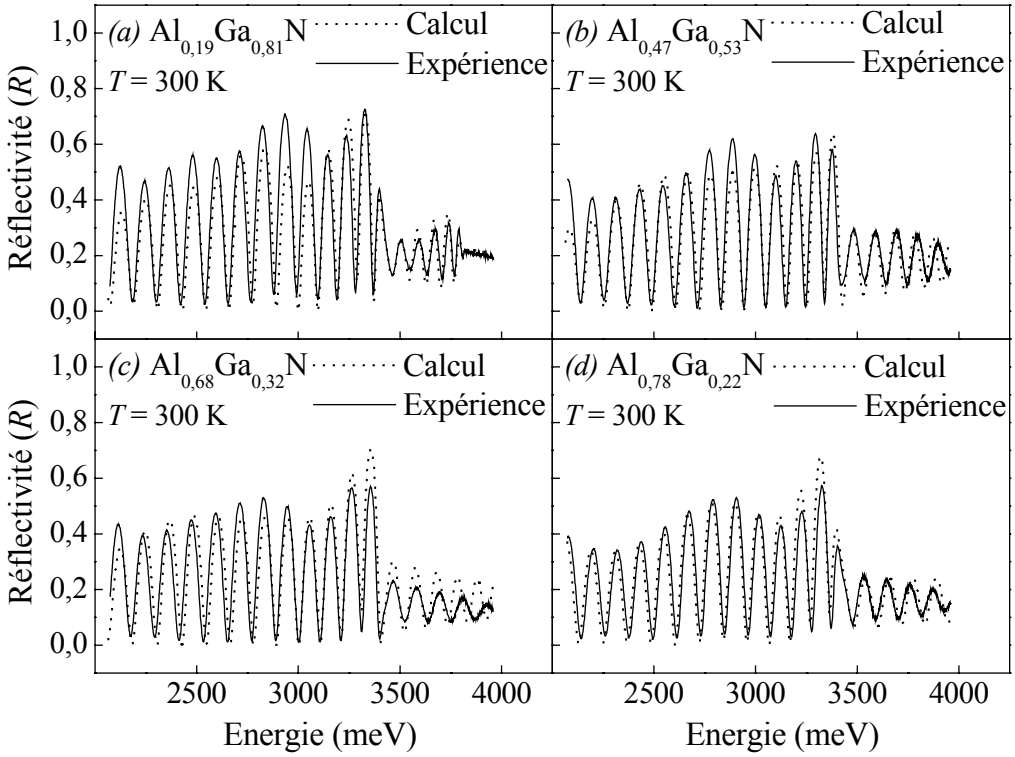


figure 3.5 : Spectres de réflectivité à température ambiante (trait plein) comparés aux calculs correspondants (traits pointillés), utilisant les indices corrigés, relatifs aux alliages $Al_xGa_{1-x}N$ pour: (a) x=0,19; (b) x=0,47; (c) x=0,68 et (d) x=0,78.

La figure 3.6 présente l'évolution, à température ambiante, des paramètres ellipsométriques $\tan\Psi$ et $\cos\Delta$ en fonction de l'énergie (trait plein) pour tous les échantillons. Les spectres issus des calculs et utilisant les indices corrigés sont en traits pointillés.

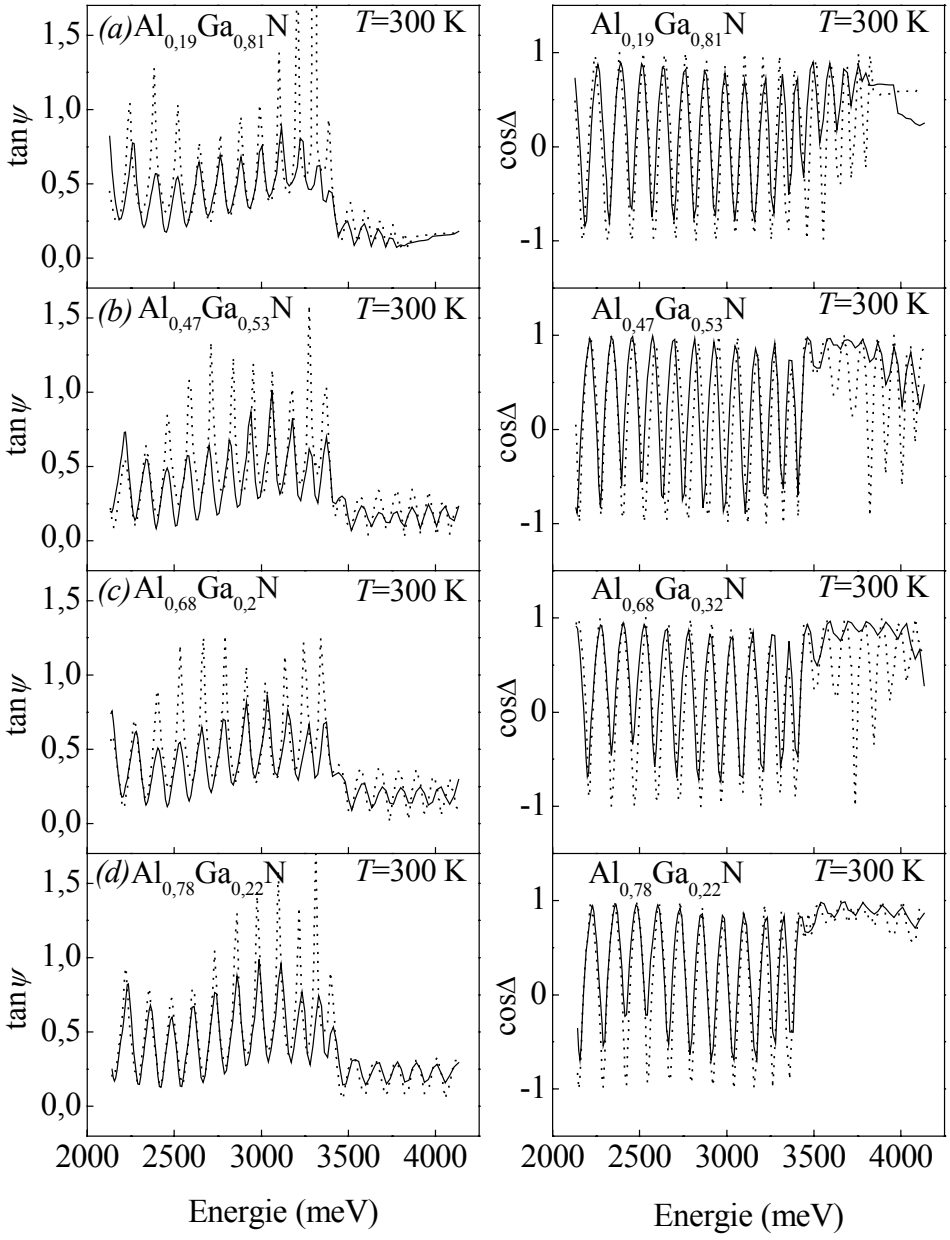


figure 3.6 : Spectres d'ellipsométrie de $\tan\Psi$ (gauche) et $\cos\Delta$ (droite) à température ambiante (trait plein) comparés aux calculs correspondants utilisant les indices corrigés (traits pointillés), relatifs aux alliages $Al_xGa_{1-x}N$ pour : (a) x=0,19; (b) x=0,47; (c) x=0,68 et (d) x=0,78.

Les épaisseurs des couches d'AlGaN déterminées à partir des ajustements des spectres expérimentaux sont : pour x=0,19, $\overline{d}$=1,6 μm, pour x=0,47, $\overline{d}$=1,9 μm, pour x=0,68,

$\overline{d}$ =1,86 μm et pour x=0,78, $\overline{d}$ =1,72 μm. Ces épaisseurs sont proches de celles qui figurent sur la figure 3.1.

Les figures 3.5 et 3.6 montrent que les calculs effectués avec les indices corrigés sont en bon accord avec les expériences autant au niveau de la réflectivité que de l'ellipsométrie.

1.3.3 Bilan et discussions des indices de réfraction à T=300 K

Les indices de réfraction de tous les échantillons, déterminés à température ambiante, sont résumés sur la figure 3.7 dans la gamme d'énergie de 2130 à 4130 meV (c'est-à-dire sur une gamme de longueur d'onde 300-580 nm) [141]. Nous observons l'augmentation attendue de l'indice lorsque l'énergie des photons avoisine le gap et également la diminution globale des indices lorsque la composition en aluminium augmente. Sur les courbes relatives aux indices de GaN et d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$, on distingue clairement un pic qui a pour origine les transitions entre le minimum de la bande de conduction et les extrema en $\vec{k} = \vec{0}$ de la bande de valence. Nous voyons également sur les courbes relatives aux coefficients d'extinction de GaN et d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ la translation du gap en fonction de la composition en aluminium.

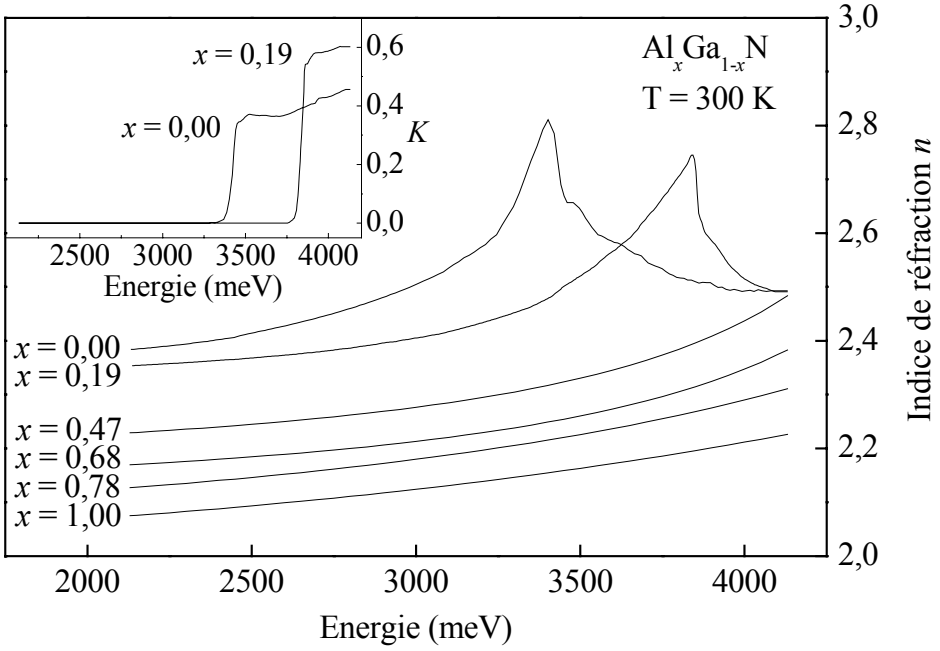


figure 3.7 : Evolution de l'indice de réfraction (n) à 300K en fonction de l'énergie pour les compositions d'$Al_xGa_{1-x}N$ suivantes : x=0; 0,19; 0,47; 0,68; 0,78 et 1. L'insert correspond au coefficient d'extinction de GaN et d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$.

La partie réelle de l'indice peut être représentée, dans la région de transparence de l'alliage par une loi de Sellmeier (expression (3.1)) dont les paramètres *a*, *b* et *c* sont listés

dans le tableau 1.2, où figure également le domaine de validité de cette loi pour chacun des alliages.

Composition en Al (x) d'$Al_xGa_{1-x}N$	a	b	c (nm)	Domaine de validité (meV)	Domaine de validité (nm)
0,00	5,15	0,35	339,8	[2130;3300]	[375;580]
0,19	4,98	0,39	297,7	[2130;3715]	[333;580]
0,47	4,20	0,63	247,5	[2130;4130]	[300;580]
0,68	3,95	0,63	239,3	[2130;4130]	[300;580]
0,78	2,67	1,67	183,7	[2130;4130]	[300;580]
1,00	1,00	3,12	138,0	[2130;4130]	[300;580]

tableau 1.2 : Paramètres a, b et c de la loi de Sellmeier à 300K permettant d'ajuster les indices de réfraction (n) des alliages dans leur zone de transparence respective, qui est indiquée dans la dernière colonne.

- **Comparaisons avec les valeurs publiées précédemment**

Il existe des variations significatives dans les données publiées des indices de réfraction des alliages $Al_xGa_{1-x}N$. Nous avons comparé nos résultats avec ceux issus de plusieurs publications [109-116] pour des compositions en aluminium variant de 0 à 1. La figure 3.8 présente la comparaison entre les indices de réfraction déterminés dans ce travail (en traits pleins et pointillés) et les valeurs publiées : la figure 3.8 *(a)* montre les données pour x=1 (AlN) et x avoisinant 0,47 ; la figure 3.8 *(b)* pour x proche de 0,19 et 0,78 et la figure 3.8 *(c)* pour x=0 (GaN) et x proche de 0,68.

Pour des compositions en aluminium importantes (x>0,65), les valeurs mesurées dans ce travail sont similaires à celles reportées dans les publications.

Pour x proche de 0,47 ou de 0,19, il y a quelques divergences, ce qui n'est pas totalement surprenant puisque la référence [142] a reporté 20 publications sur l'alliage $Al_xGa_{1-x}N$ pour x proche de 0,50 ; il ressort de cette étude que la valeur du gap s'étend sur 1 eV à cause des différentes qualités d'échantillons et/ou des différentes contraintes dans les couches, les contraintes translatant et rendant plus larges les transitions optiques et les imperfections

structurales élargissant le front d'absorption. Mais les divergences reportées sont principalement dues aux incertitudes sur la détermination de la composition d'aluminium de l'alliage. Un autre phénomène qui peut expliquer les variations des valeurs des indices de réfraction est la mise en ordre chimique des atomes de gallium et d'aluminium dans les alliages $Al_xGa_{1-x}N$, qui dépend des conditions de croissance, en particulier des vitesses et des températures de croissance [143-147].

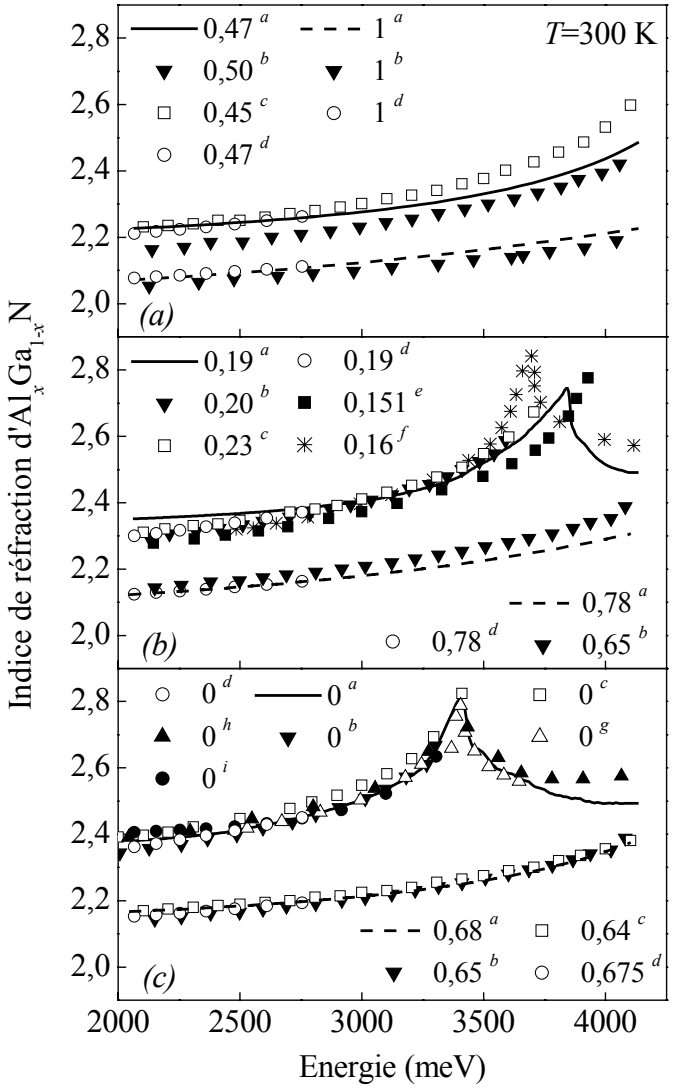


figure 3.8 : Comparaison des indices de réfraction (n) d'$Al_xGa_{1-x}N$: (a) pour x proche de 0,47 et x=1 ; (b) x voisin de 0,19 et x proche de 0,78 ;(c) x=0 et x proche de 0,68. Les valeurs sont issues des références suivantes : [a] ce travail, [b] réf. [112], [c] réf. [115], [d] réf. [116], [e] réf. [110], [f] réf. [111], [g] réf. [114], [h] réf. [109], [i] réf. [113].

Concernant l'indice de réfraction de GaN, les données sont globalement cohérentes, excepté une légère différence entre GaN épitaxié sur silicium (trait plein) et sur saphir

(triangle vers le haut ouvert) pour les énergies proches du gap. La différence est en grande partie due aux différents effets des contraintes imposées par les couches-tampon et le substrat sur la couche de GaN [148-150].

Pour toutes les compositions étudiées, nos valeurs d'indices de réfraction sont en bon accord avec les données des indices ordinaires rapportées par Ü. Özgür [116] dans la gamme 2130-3100 meV (400-580 nm), ce qui justifie *a posteriori* le choix de ne pas tenir compte de l'influence de l'anisotropie.

Il faut ajouter également que suivant la technique de mesure employée, la précision sur la composition en aluminium d'$Al_xGa_{1-x}N$ est très variable [151]. De plus, les couches ont été déposées en utilisant des techniques et des conditions de croissance différentes : épitaxie sous jets moléculaires (EJM) [112,114,116] et épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (EPVOM) [109-111,113,115]. L'homogénéité de composition, les contraintes thermiques dues aux températures de croissance ou les contraintes imposées par les couches-tampon varient également en fonction de la technique de croissance utilisée. L'incertitude sur la détermination de x et les différentes contraintes peuvent induire également une translation des transitions, entraînant une variation des indices de réfraction.

1.3.4 Indices de réfraction à T=5 K

Nous avons effectué des expériences de réflectivité à basse température (T=5 K) sur tous les échantillons ; les spectres expérimentaux (trait plein) ainsi que les calculs (traits pointillés) sont présentés sur la figure 3.9 pour les échantillons A152 *(a)*, A163 *(b)*, A229 *(c)* et A230 *(d)* relatifs aux indices de GaN et d'AlN.

La figure 3.10 présente les spectres expérimentaux (trait plein) et calculés (traits pointillés) pour les alliages $Al_xGa_{1-x}N$ pour x=0,19 *(a)*, 0,47 *(b)*, 0,68 *(c)* et 0,78 *(d)*.

L'effet principal observé sur les spectres est le déplacement en énergie de la zone des oscillations ce qui correspond à une translation du front d'absorption ; nous avons donc introduit des paramètres d'ajustement identiques à ceux utilisés pour simuler les spectres de réflectivité à 300K, l'unique paramètre ajustable étant la valeur de l'indice de réfraction à 5 K. L'indice à 5 K est obtenu en translatant en énergie l'indice à 300 K de manière à ajuster le mieux possible les franges d'interférences des spectres. Les indices de réfraction à T=5 K sont présentés sur la figure 3.11, l'insert correspondant aux coefficients d'extinction de GaN et d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ [152].

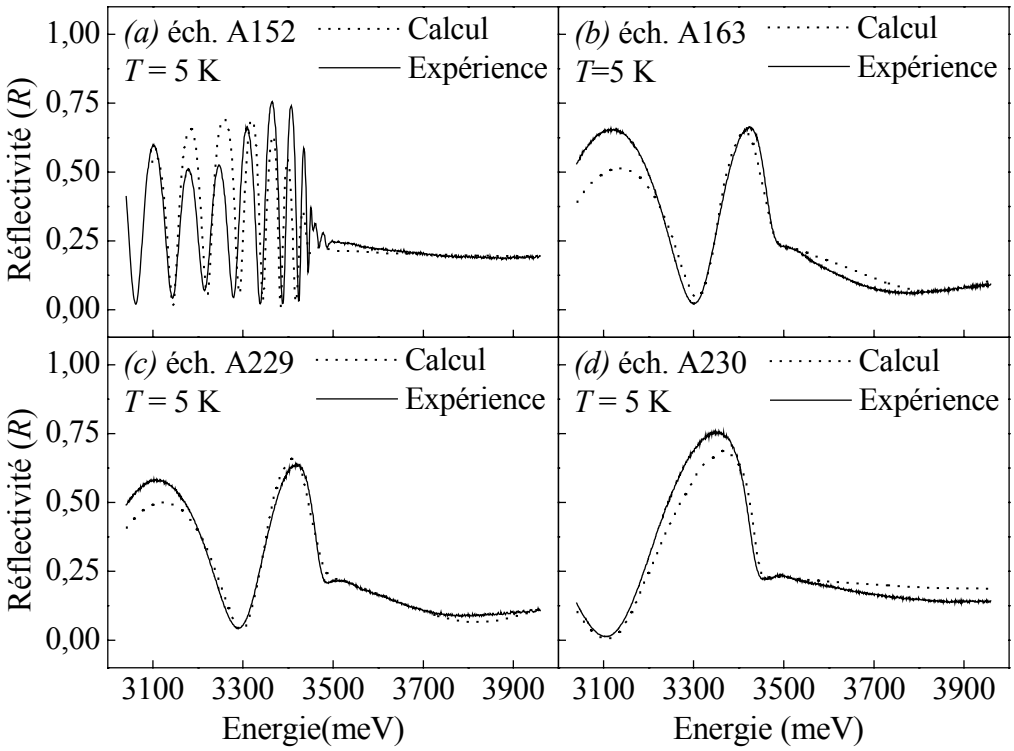


figure 3.9 : Spectres de réflectivité à T=5 K (trait plein) comparés aux calculs (traits pointillés) pour les échantillons A152 (a), A163 (b), A229 (c) et A230 (d) relatifs aux indices de GaN et d'AlN.

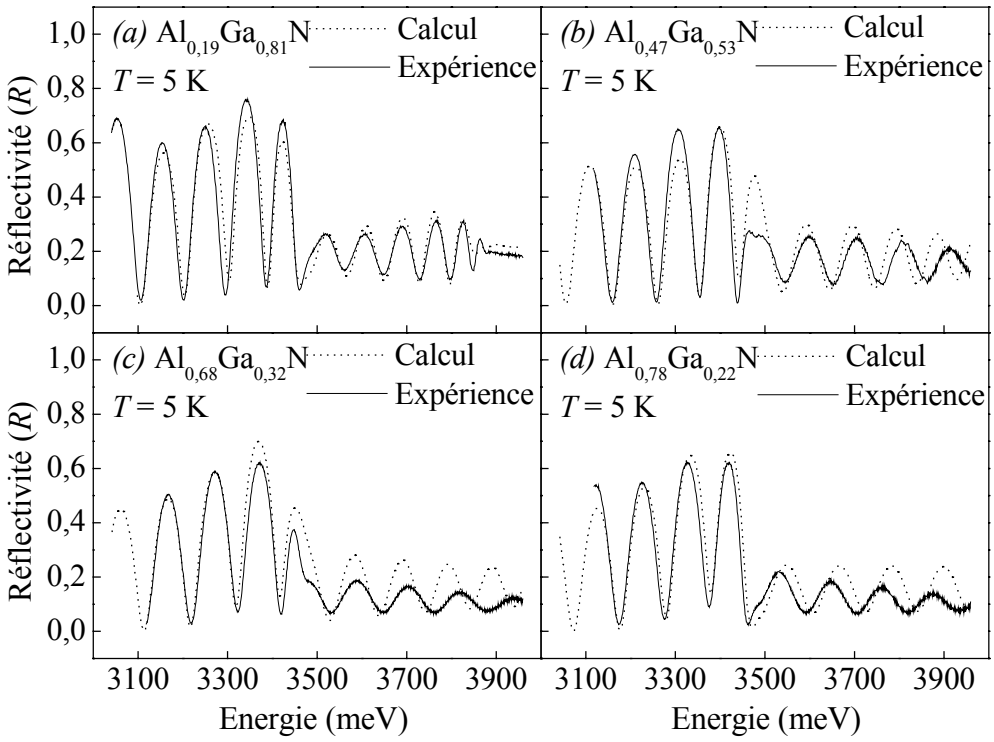


figure 3.10 : Spectres de réflectivité à T=5 K (trait plein) comparés aux calculs (traits pointillés) pour les alliages $Al_xGa_{1-x}N$ avec : x=0,19 (a), 0,47 (b), 0,68 (c) et 0,78 (d).

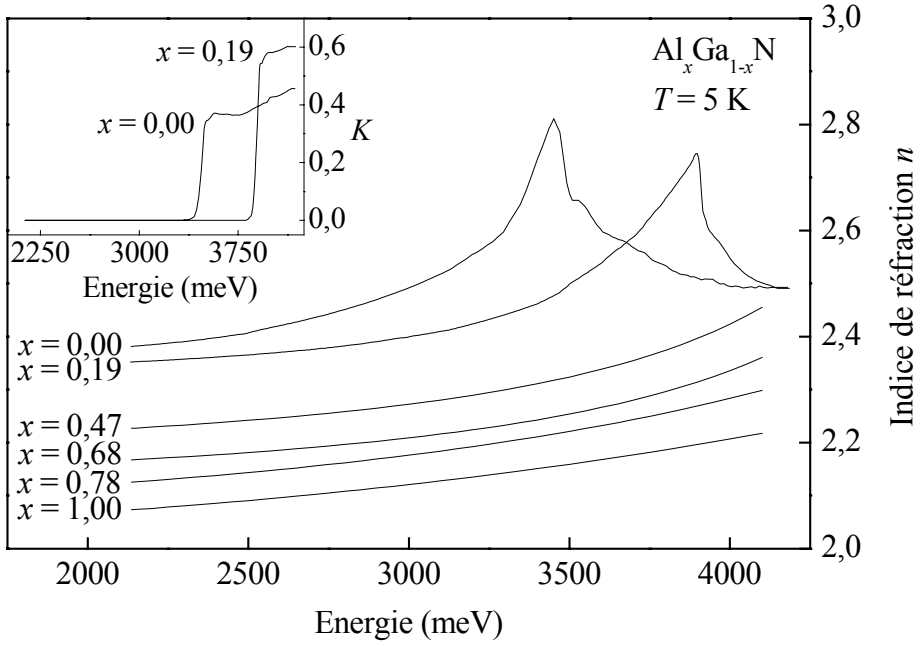


figure 3.11 : Indices de réfraction (n) d'$Al_xGa_{1-x}N$ à 5K pour x=0, 0,19, 0,47, 0,68, 0,78 et 1. L'insert correspond aux coefficients d'extinction de GaN et d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$.

De la même manière qu'à une température de 300 K, les indices peuvent être décrits par une loi de Sellmeier (expression (3.1)) dont les paramètres *a*, *b* et *c* sont indiqués dans le tableau 1.3.

Composition en Al (*x*) d'$Al_xGa_{1-x}N$	*a*	*b*	*c* (nm)	Domaine de validité (meV)	Domaine de validité (nm)
0,00	5,59	0,191	344,0	[2130;3362]	[368;580]
0,19	4,65	0,550	286,6	[2130;3783]	[328;580]
0,47	4,20	0,624	245,4	[2130;4130]	[300;580]
0,68	3,95	0,623	237,3	[2130;4130]	[300;580]
0,78	2,69	1,646	182,8	[2130;4130]	[300;580]
1,00	1,06	3,055	138,0	[2130;4130]	[300;580]

tableau 1.3 : Paramètres a, b et c de la loi de Sellmeier à 5K permettant d'ajuster les indices de réfraction (n) des alliages dans leur zone de transparence respective, qui est indiquée dans la dernière colonne.

Les indices de réfraction d'AlN, de GaN et d'AlGaN ont été déterminés à température ambiante et à une température de 5K ; nous allons maintenant utiliser ces résultats dans l'étude de trois miroirs de Bragg à base de nitrures.

2 Miroirs de Bragg à base de nitrures

2.1 Description des échantillons

2.1.1 Croissance des échantillons [St Nectaire, JJAP Franck]

Les miroirs de Bragg ont été également élaborés au Centre de Recherche sur l'Hétéroépitaxie et ses Applications (CRHEA) de Valbonne [38]. La croissance a été effectuée par épitaxie sous jets moléculaires en utilisant des sources élémentaires d'aluminium et de gallium et NH_3 comme précurseur de l'azote [152]. Les structures sont élaborées sur substrat silicium Si(111) sur des échantillons d'une taille de 2 pouces. Les conditions de croissance sont soigneusement ajustées de manière à éviter la formation des alliages Si_xN_y et Al-Si [36,40,152]. La croissance débute par une couche-tampon d'AlN d'environ 400 Å déposée à 920°C. Puis, afin de compenser les contraintes et de réduire la densité de dislocations, un "tampon" constitué d'une couche de GaN et d'une couche d'AlN est élaboré, juste avant la croissance d'une couche épaisse de GaN de 0,5 μm [40]. Vient ensuite la croissance proprement dite des miroirs de Bragg. Les couches sont déposées à 830°C avec une vitesse de croissance avoisinant 0,1 μm/h et 0,5 μm/h respectivement pour AlN et $Al_xGa_{1-x}N$ [154]. Les paramètres de croissance, tels que les vitesses de croissance ou la composition d'Al dans les couches d'AlGaN, sont ajustés en utilisant la réflectivité laser *in situ* (λ=670 nm).

La composition en aluminium est mesurée à partir d'expériences de rétrodiffusion Rutherford (Rutherford Back Scattering : RBS) [155] et confirmée par des expériences de photoluminescence à basse température [137]. La caractérisation structurale des échantillons est effectuée par RBS et par microscopie électronique à transmission (MET).

Du fait de l'inhomogénéité des flux de gallium et d'aluminium lors de la croissance des structures, les épaisseurs et les concentrations des couches peuvent varier le long du rayon de l'échantillon. Nous pouvons estimer que les épaisseurs peuvent varier de ± 7% et les concentrations de ± 3% du centre vers le bord de l'échantillon.

Nous avons étudié trois échantillons dont les structures sont décrites ci-après sous forme de schémas.

2.1.2 L'échantillon A172

La structure de l'échantillon numéroté A172 est indiquée sur la figure 3.12 ; le miroir de Bragg est constitué de 12,5 alternances AlN/GaN.

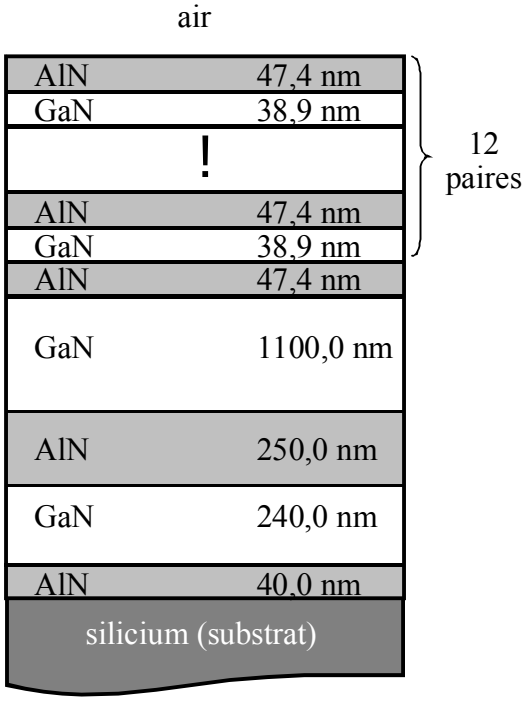


figure 3.12 : Structure de l'échantillon A172.

Notre objectif étant d'utiliser les miroirs de Bragg pour la conception de microcavités dont le milieu actif est GaN, pour les échantillons suivants, GaN, qui était le matériau d'indice haut du miroir A172, a été remplacé par de l'AlGaN.

2.1.3 L'échantillon A178

L'échantillon A178 est représenté sur la figure 3.13. Le miroir de Bragg contient 10 paires $Al_xGa_{1-x}N$/AlN.

Des expériences de RBS ont été réalisées au CRHEA de Valbonne permettant de déterminer une composition en aluminium x de l'alliage de $23 \pm 3\%$ et des épaisseurs des couches d'AlN et d'$Al_{0,23}Ga_{0,77}N$ respectivement de 38,5 nm et 33,5 nm [154]. La concentration en aluminium a été confirmée par des expériences de photoluminescence à basse température.

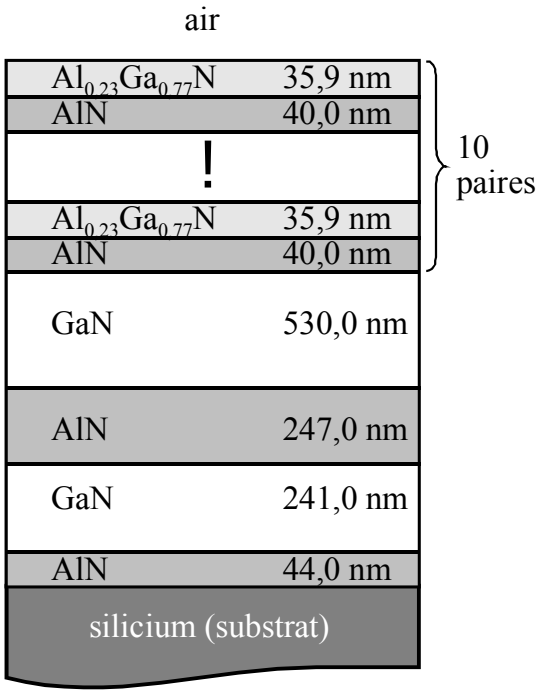


figure 3.13 : Structure de l'échantillon A178.

La figure 3.14 présente une image de MET relative à l'échantillon A178. Les épaisseurs mesurées sont 39,2 nm pour AlN et 34,2 nm pour $Al_{0,23}Ga_{0,77}N$; elles sont très proches de celles attendues (40,0 nm pour AlN et 35,9 nm pour $Al_{0,23}Ga_{0,77}N$).

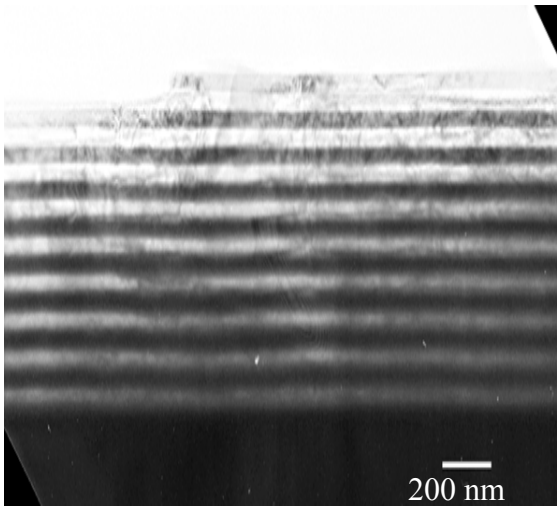


figure 3.14 : Image de microscopie électronique à transmission (MET) de l'échantillon A178, contenant 10 paires AlN/$Al_{0,23}Ga_{0,77}N$.

La figure 3.15 présente une image en coupe de microscopie électronique à balayage (MEB) du miroir. Les alternances entre les couches d'AlN et d'AlGaN sont bien définies. Sur la partie droite de la photo, nous pouvons apercevoir un crack (petite dépression à la surface). A partir d'images MEB recueillies sur la surface, il a été déterminé une distance entre cracks

de quelques micromètres (CRHEA) ; ils se sont formés à l'interface entre la première couche d'AlN et la couche épaisse de GaN au-dessus du substrat.

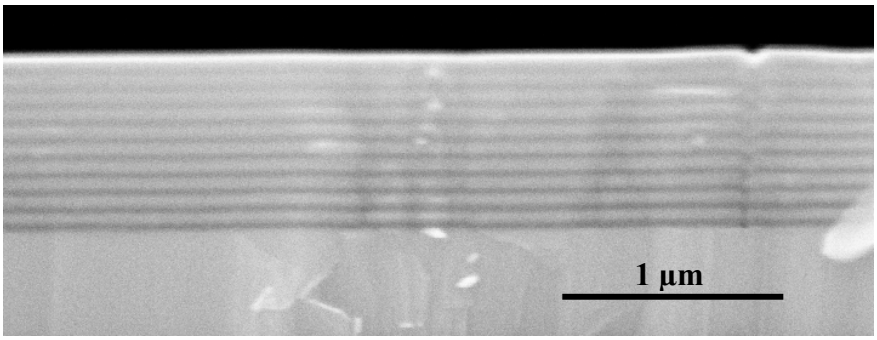


figure 3.15 : Image de microscopie électronique à balayage (MEB) de l'échantillon A178, contenant 10 paires AlN/$Al_{0,23}Ga_{0,77}N$.

2.1.4 L'échantillon A285

La figure 3.16 présente la structure de l'échantillon A285. Le miroir de Bragg est constitué de 15 alternances $Al_xGa_{1-x}N$/AlN.

Les expériences de RBS effectuées au CRHEA sur cet échantillon fournissent une composition en aluminium de l'alliage de x=23 ± 3% ainsi que des épaisseurs de 31,5 nm pour $Al_{0,23}Ga_{0,77}N$et 41,0 nm pour AlN.

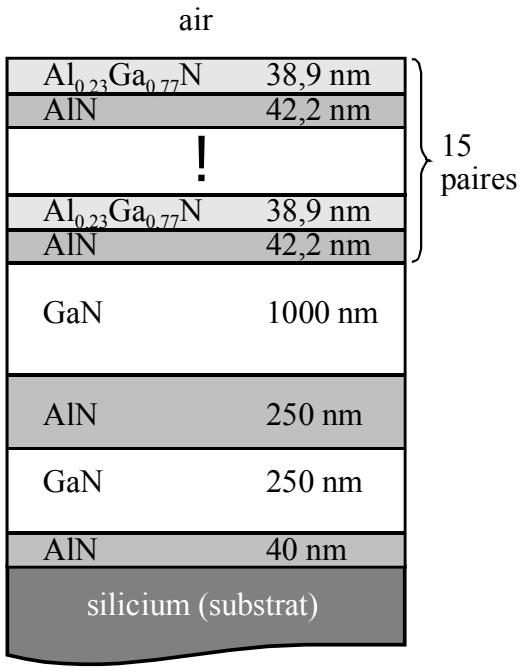


figure 3.16 : Structure de l'échantillon A285.

La figure 3.17 montre une image de microscopie électronique à balayage relative à l'échantillon A285. Sur cette image, nous distinguons clairement les couches constituant le miroir ainsi que l'ensemble des couches-tampon.

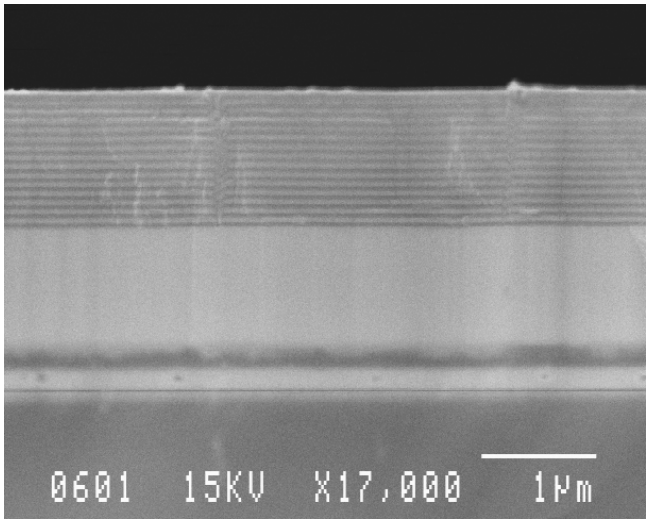


figure 3.17 : Image de microscopie électronique à balayage de l'échantillon A285, contenant 15 paires $AlN/Al_{0,23}Ga_{0,77}N$.

2.2 Expériences de réflectivité et modélisations

Nous avons effectué des expériences de réflectivité sous incidence normale sur les trois échantillons présentés dans la partie 2.1. Le spectromètre utilisé est décrit dans le chapitre 2. Afin de s'affranchir de la réponse de l'appareillage (lampe, spectromètre et détecteur), le spectre expérimental est calibré à l'aide du spectre du miroir de renvoi utilisé lors des expériences.

Nous avons modélisé ces spectres de réflectivité en utilisant la méthode des matrices de transfert d'Azzam et Bashara [92], décrite dans le chapitre 2. Dans ces calculs, l'ensemble des couches constituant la structure de l'échantillon est pris en compte : air, miroir, couches-tampon et substrat, considéré comme semi-infini. Dans le formalisme, chaque couche et chaque interface sont représentées par une matrice ; les propriétés optiques de la structure, telles que la réflectivité totale, sont déterminées à partir de la multiplication de toutes ces matrices. Les épaisseurs des couches du miroir (d_1 et d_2) sont calculées grâce à l'expression (1.54) : $d_1=\lambda_0/(4n_1)$ et $d_2=\lambda_0/(4n_2)$, où λ_0 est la longueur d'onde à laquelle est centré le miroir et n_1 et n_2 les indices des couches pour cette longueur d'onde. Nous avons utilisé les indices de GaN et d'AlN obtenus dans la partie 1 de ce chapitre ; nous prenons donc en compte l'absorption de GaN. Pour ce qui est des alliages $Al_xGa_{1-x}N$, nous avons ajusté les lois d'indice

que nous avions à notre disposition en fonction de la composition en aluminium de la couche, à savoir, en fonction de la position de l'énergie de bande interdite du matériau. Concernant le substrat de silicium, les données proviennent des références [140].

2.2.1 Echantillon A172

La figure 3.18 montre le spectre de réflectivité expérimental (trait plein) enregistré à une température de 300 K relatif à l'échantillon A172 qui contient 12,5 paires AlN/GaN.

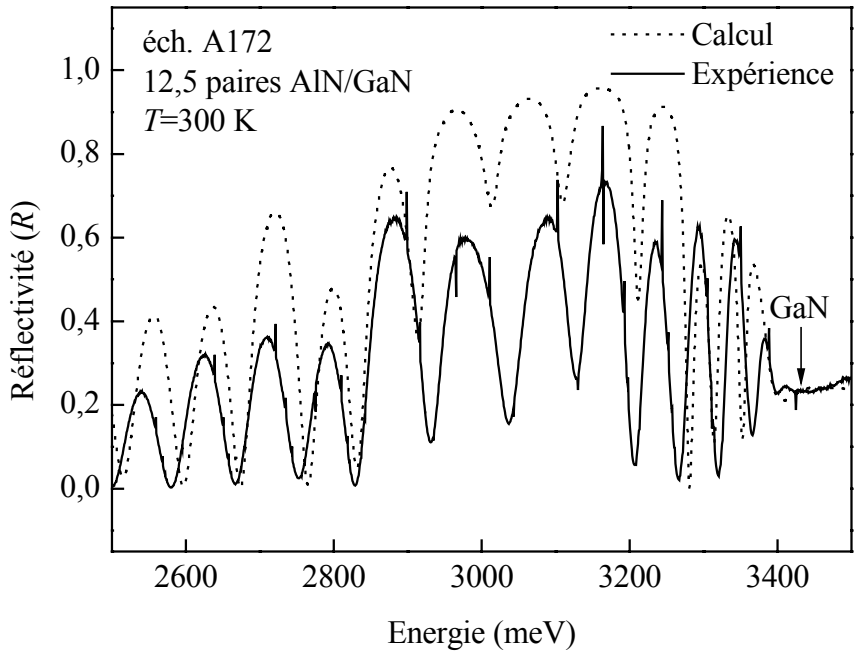


figure 3.18 : Spectres de réflectivité expérimental (trait plein) et théorique (traits pointillés) à température ambiante de l'échantillon A172, constitué d'un miroir de Bragg contenant 12,5 paires AlN/GaN.

Le spectre présente des oscillations qui correspondent à des interférences provenant des différentes couches de l'échantillon. La stop band du miroir n'est pas très bien définie à cause de ces oscillations. Au-dessus de 3400 meV, le nitrure de gallium absorbe et les oscillations disparaissent. Le spectre expérimental a été normalisé par rapport au spectre théorique, en traits pointillés, dans la région d'absorption de GaN indiquée par la flèche sur la figure. Nous obtenons un accord raisonnable entre calcul et expérience sur l'ensemble du domaine étudié, en particulier, la période des oscillations présentes dans le spectre est ajustée correctement. Les épaisseurs que nous avons utilisées dans le calcul sont 38,7 nm pour GaN (au lieu des 38,9 nm visés) et 47,2 nm pour AlN (au lieu de 47,4 nm). Ces variations entrent largement dans les barres d'erreur sur les épaisseurs (± 7%).

2.2.2 Echantillon A178

Les spectres expérimental (trait plein) et calculé (traits en petits points) de réflectivité à 300 K relatifs à l'échantillon A178, constitué d'un miroir de Bragg contenant 10 paires $AlN/Al_{0,23}Ga_{0,77}N$ sont représentés sur la figure 3.19. Comme sur la figure 3.18, des oscillations apparaissent sous 3400 meV, et disparaissent au-dessus du gap du nitrure de gallium (indiqué par la flèche de gauche sur la figure). Sur ce spectre, la stop band du miroir est clairement définie ; elle est centrée sur 3650 meV et sa largeur avoisine 380 meV. Nous distinguons également le début de l'absorption d'$Al_{0,23}Ga_{0,77}N$ qui se situe à 3955 meV (flèche de droite sur la figure). A partir d'une courbe d'étalonnage établie par M. Leroux [137], nous pouvons déduire la composition en aluminium de l'alliage, qui est ici égale à 22,5%.

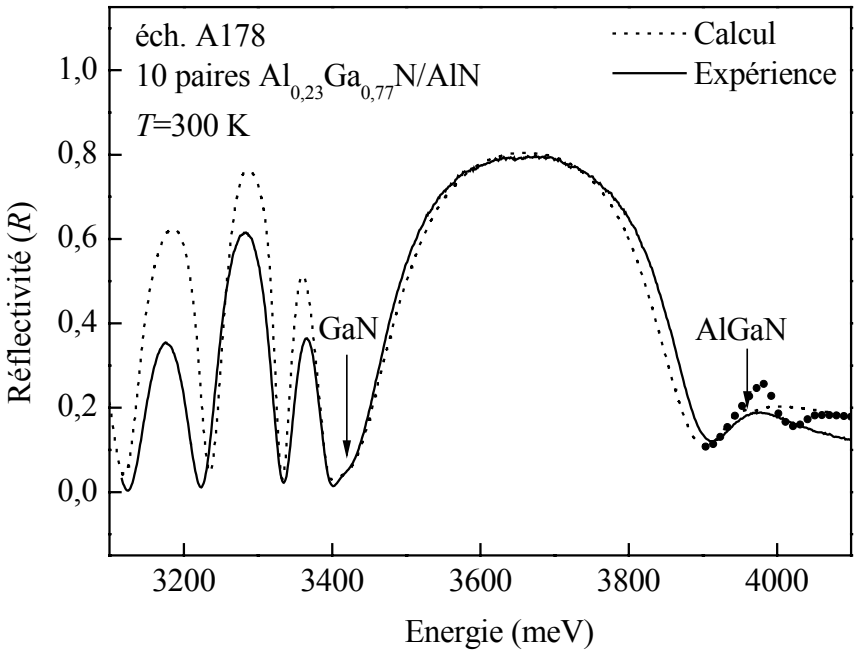


figure 3.19 : Spectres de réflectivité expérimental (—) et théorique (·····) à température ambiante de l'échantillon A178, constitué d'un miroir de Bragg contenant 10 paires $AlN/Al_{0,23}Ga_{0,77}N$. La portion de courbe représentée par des symboles (•) correspond à une translation de +50 meV de l'absorption théorique d'AlGaN par rapport à la position indiquée par la flèche (voir texte).

Un très bon accord théorie-expérience est obtenu, autant au niveau de la largeur de la stop band que de la réflectivité du miroir ou également au niveau des oscillations sous l'absorption de GaN. Nous avons utilisé des épaisseurs de 34,8 nm pour les couches d'$Al_{0,23}Ga_{0,77}N$ et de 39,3 nm pour les couches d'AlN (ce qui correspond à des modifications

d'épaisseurs de moins de 3% par rapport aux épaisseurs attendues). Concernant l'indice d'$Al_{0,23}Ga_{0,77}N$, cette composition d'alliage n'a pas été déterminée par ellipsométrie ; de plus, nous pouvons observer en comparant les figures 3.7 et 3.19 que les énergies auxquelles $Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ et $Al_{0,23}Ga_{0,77}N$ absorbent sont éloignées : 3815 meV pour $Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ et 3955 meV pour $Al_{0,23}Ga_{0,77}N$; nous ne pouvons donc pas effectuer une extrapolation , car au voisinage du gap, la valeur de l'indice varie rapidement. Nous avons donc commencé par l'ajustement de l'absorption d'AlGaN ; pour cela, nous avons utilisé le coefficient d'extinction *K* d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ translaté de 140 meV, valeur qui permet d'ajuster au mieux le spectre expérimental dans la zone avoisinant l'absorption d'AlGaN. Sur la figure 3.19, la portion de courbe représentée par des symboles (•) présente le calcul dans le cas où l'absorption d'AlGaN est translaté de +50 meV afin de montrer la pertinence de notre choix quant à la position de l'absorption. La partie réelle de l'indice qui nous a permis de rendre compte au mieux de l'amplitude et de la largeur de la stop band expérimental présente la même forme que celle d' $Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ avec une amplitude légèrement différente, la position du maximum étant décalée en énergie de la même quantité que l'absorption. Finalement, l'indice obtenu est en bon accord avec ceux déterminés par ellipsométrie. Comme l'énergie de bande interdite de l'alliage se situe dans l'intervalle sondé ([3100-4100] meV), il n'est pas possible d'utiliser pour décrire la partie réelle de l'indice une loi de Sellmeier, qui n'est applicable que loin du gap.

Le spectre expérimental a été normalisé à partir de la réflectivité d'un miroir étalonné ; nous avons obtenu *R*=78% pour une énergie *E*=3650 meV. Le calcul donne à cette même énergie : *R*=79%. Ainsi, il apparaît une très bonne cohérence entre l'expérience et la simulation.

2.2.3 Echantillon A285

- **Réflectivité à 300 K**

La figure 3.20 montre le spectre de réflectivité expérimental (trait plein) enregistré à une température de 300 K relatif à l'échantillon A285, contenant 15 paires $Al_{0,23}Ga_{0,77}N$/AlN. La stop band est centrée sur une énergie avoisinant 3480 meV et sa largeur est d'environ 300 meV. Les flèches indiquent sur la figure les absorptions de GaN et d'AlGaN.

La simulation reproduit correctement les principales caractéristiques du spectre expérimental : les oscillations sous le gap de GaN, la réflectivité et la largeur de la stop band. Les épaisseurs utilisées sont 37,8 nm et 40,9 nm respectivement pour les couches d'AlGaN et

d'AlN, ce qui correspond à un écart inférieur à 3% par rapport aux épaisseurs attendues. L'absorption d'AlGaN se situe à 3965 meV, ce qui correspond à une concentration d'environ 23% ; nous avons donc utilisé la loi d'indice relatif à l'alliage de l'échantillon A178 que nous avons légèrement modifiée suivant une procédure de modélisation identique à celle décrite pour l'échantillon précédent. La valeur maximale de la réflectivité expérimentale est R=86% (mesurée au CRHEA à partir d'un miroir étalonné). La réflectivité calculée, vaut quant à elle, à la même énergie R=87% ; cette dernière valeur correspond au meilleur ajustement de la simulation à l'expérience que nous avons pu obtenir.

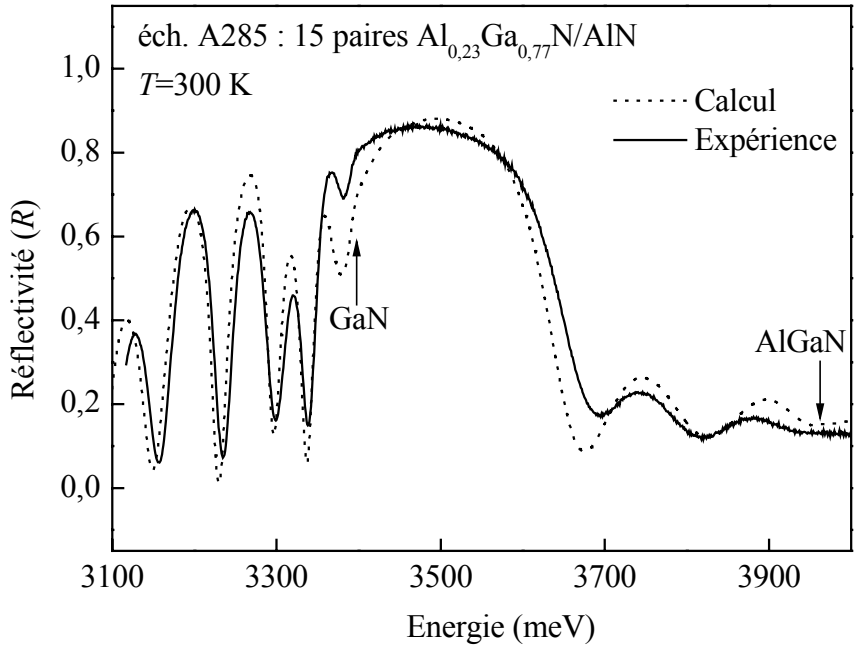


figure 3.20 : Spectres de réflectivité expérimental (trait plein) et théorique (traits pointillés) à température ambiante de l'échantillon A285, constitué d'un miroir de Bragg contenant 15 paires $AlN/Al_{0,23}Ga_{0,77}N$.

- **Réflectivité à 5 K**

Les épaisseurs des miroirs avaient été préalablement choisies de manière à ce que le miroir soit opérationnel à une température de 5 K. Nous avons donc effectué des expériences de réflectivité sous incidence normale à une température de 5 K. La figure 3.21 présente en trait plein, le spectre expérimental et en traits pointillés, le spectre calculé.

Les indices à 5 K de GaN et AlN sont ceux déterminés précédemment. Concernant l'alliage, l'indice est obtenu par le même procédé que dans la partie 1 de ce chapitre, à savoir par translation en énergie de l'indice. La valeur de cette translation correspond à la différence

d'énergie entre le gap à 300 K et le gap à 5 K ; la variation est de 50 meV. Nous observons un bon accord expérience-théorie.

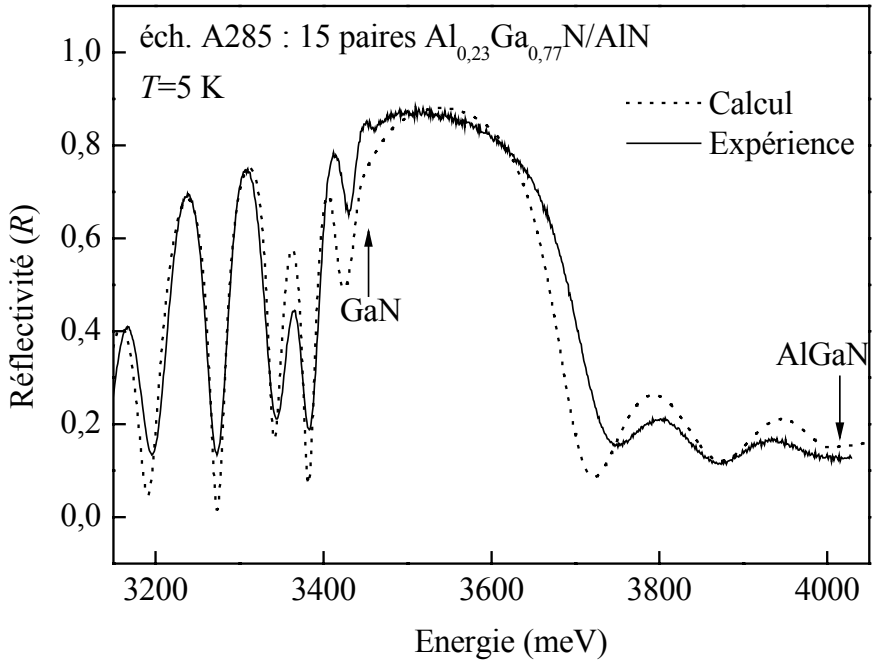


figure 3.21 : Spectres de réflectivité expérimental (trait plein) et théorique (traits pointillés) à une température de 5 K de l'échantillon A285, constitué d'un miroir de Bragg contenant 15 paires AlN/$Al_{0,23}Ga_{0,77}N$.

2.3 Discussion

Notre objectif étant d'étudier le couplage lumière-matière dans des microcavités, la couche active de GaN qui sera déposée juste au-dessus du miroir de Bragg doit être de très bonne qualité. Or, sur l'échantillon A285 contenant 15 paires $Al_{0,23}Ga_{0,77}N$/AlN, nous avons observé par la suite une délamination, c'est-à-dire que plusieurs couches du miroir se sont décollées à partir de la surface de l'échantillon. Ceci nous montre que, pour obtenir un miroir de bonne qualité, le nombre de bicouches ne doit pas être trop important.

Nous avons effectué le calcul du coefficient de réflexion de 15 paires $Al_{0,23}Ga_{0,77}N$/AlN pour une structure identique à celle de l'échantillon A285 (figure 3.16). La figure 3.22 indique la réflectivité maximale du miroir calculée en fonction du nombre de paires AlN/AlGaN. Nous remarquons qu'avec 30 bicouches, nous obtenons une réflectivité de 98% ; ainsi, pour passer d'une réflectivité de 86% à 98%, il faut doubler le nombre de bicouches et ainsi détériorer les couches du miroir. Ce calcul nous permet de comprendre la difficulté future au niveau de la conception des microcavités. En effet, il faudra trouver un compromis entre une

réflectivité importante et un nombre de paires pas trop conséquent de manière à satisfaire d'une part les conditions d'obtention du couplage fort et d'autre part les conditions liées à la croissance des couches du miroir mais surtout de la couche active de GaN.

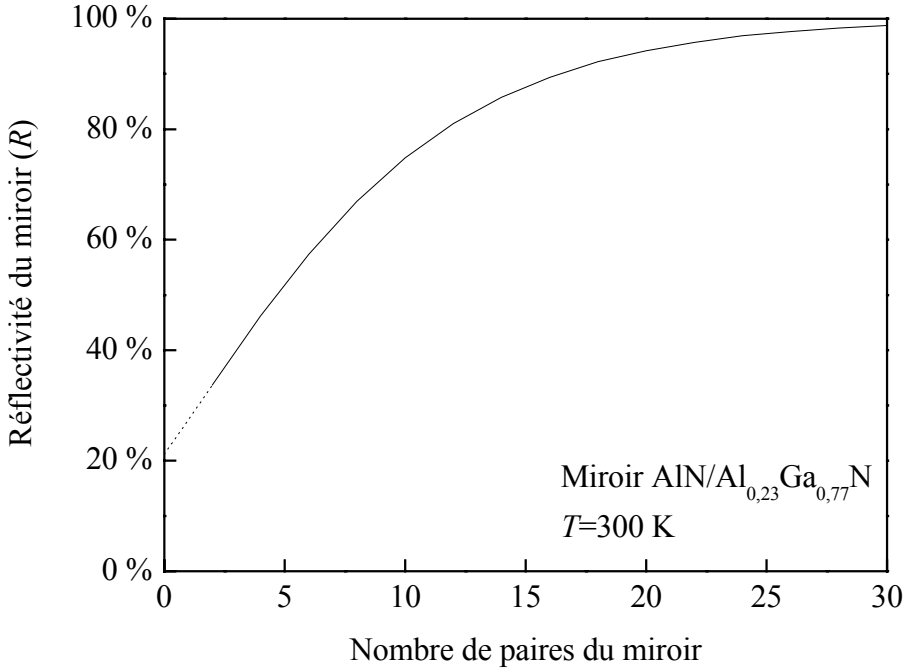


figure 3.22 : Calcul de la réflectivité maximale du miroir en fonction du nombre de paires ; la structure étudiée est identique à celle de l'échantillon A285, schématisée sur la figure 3.16.

Conclusion du chapitre

Dans un premier temps, nous avons déterminé les indices d'AlN, de GaN et de leur alliage $Al_xGa_{1-x}N$ pour x=0,19, 0,47, 0,68 et 0,78 à température ambiante ainsi qu'à 5 K. Les échantillons ont été élaborés sur substrat silicium et les couches à étudier ont été déposées au-dessus de plusieurs couches-tampon. Etant donnée la complexité de l'empilement ainsi obtenu, nous avons combiné des expériences d'ellipsométrie à des expériences de réflectivité à 300 K et à 5 K de manière à confirmer les valeurs mesurées. Nous avons ensuite comparé nos valeurs à celles précédemment publiées et globalement, nous obtenons un bon accord.

Dans un deuxième temps, nous avons étudié trois miroirs de Bragg élaborés sur substrat silicium par épitaxie sous jets moléculaires. Le premier est constitué de 12,5 paires AlN/GaN ; les deux autres sont constitués de 10 et 15 paires $AlN/Al_xGa_{1-x}N$ (x~23%) et fonctionnent dans l'ultra-violet ; GaN est remplacé par AlGaN de manière à pouvoir utiliser ces miroirs dans des microcavités à miroirs de Bragg dont la couche active est GaN. Nous

avons effectué les modélisations de la réflectivité des miroirs en utilisant les indices d'AlN et de GaN déterminés dans la première partie de ce chapitre. Dans chaque cas, nous obtenons un bon accord expérience-théorie qui confirme la validité des valeurs que nous avons obtenues. Concernant l'indice d'AlGaN, nous avons établi de nouvelles lois d'indice pour l'alliage, car nous ne pouvions pas le déduire directement de l'indice d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ étant donné la grande variation de l'allure de l'indice proche du gap. Nous obtenons un coefficient de réflexion supérieur à 85% pour le miroir contenant 15 paires $AlN/Al_{0,23}Ga_{0,77}N$; pour obtenir un coefficient de réflexion de 98%, il faut doubler le nombre de paires. Or, un nombre important de bicouches conduit à l'élaboration de couches contraintes, entraînant une détérioration de la qualité des couches. Ainsi, lors de l'élaboration des microcavités, il faudra choisir un compromis entre un coefficient de réflexion suffisamment élevé et une qualité des couches suffisamment bonne.

Chapitre 4

Etude de microcavités à miroirs de Bragg à base de nitrures

Nous avons recensé dans la littérature plusieurs microcavités élaborées à partir de GaN [156-160], mais dans aucune d'entre elles, le couplage fort n'a été mis en évidence expérimentalement. Dans ce chapitre, nous allons présenter le cheminement suivi pour parvenir à l'observation expérimentale du régime de couplage fort dans une microcavité à base de nitrures.

Afin d'optimiser la structure des échantillons avant leur réalisation, diverses simulations ont été effectuées utilisant les indices de réfraction obtenus précédemment et s'inspirant des résultats relatifs aux miroirs de Bragg décrits dans le chapitre 3. Concernant les miroirs de Bragg, les simulations ont permis de trouver un compromis entre un nombre de paires adéquat à l'obtention d'une qualité des couches satisfaisante et un coefficient de réflexion suffisant pour espérer observer le régime de couplage fort dans les microcavités. A partir de ces calculs, nous avons imaginé différentes structures et finalement trois d'entre elles ont été retenues ; elles ont été élaborées au CRHEA par épitaxie sous jets moléculaires. Ces structures sont des microcavités massives : le mode de cavité est résonant avec les excitons du matériau massif (GaN), constituant la cavité [161,162]. En accordant soigneusement le mode Fabry-Pérot aux transitions excitoniques, un dédoublement de Rabi aussi grand - voire plus grand - que dans le cas de microcavités à puits quantiques est prédit car l'épaisseur "utile" est

plus importante (la zone d'interaction entre les photons et les excitons est plus grande que dans le cas de microcavités à puits quantiques) [163,164].

Nous allons étudier ces trois structures par spectroscopie optique et ensuite comparer les résultats expérimentaux aux simulations théoriques. Ainsi, il sera possible d'extraire les paramètres essentiels tels que l'énergie de résonance et la largeur de raie du ou des exciton(s), et dans le cas du régime de couplage fort, l'énergie de couplage exciton-photon.

Avant l'étude proprement dite de ces trois structures, nous devons nous interroger sur trois aspects qui seront nécessaires pour la suite : tout d'abord, comment mettre en évidence expérimentalement le dédoublement de Rabi et quelles sont les techniques spectroscopiques utilisées ; quelle est l'importance du gradient d'épaisseur présent dans les échantillons et enfin quels sont les avantages d'effectuer des mesures angulaires sur les microcavités.

1 Avant de commencer …

1.1 Mise en évidence expérimentale du polariton

Diverses techniques sont utilisées pour appréhender le couplage fort dans les microcavités : la réflectivité, la transmission, l'absorption ou la photoluminescence. Dans notre cas, nous sommes limités à des expériences de réflectivité et de photoluminescence car l'ensemble des microcavités que nous étudierons ont été épitaxiées sur un substrat de silicium, qui est totalement absorbant dans le domaine du visible et de l'UV.

Pour savoir si une structure présente le régime de couplage fort, il convient d'ajuster l'énergie du mode de cavité à l'énergie des excitons. Ceci peut être obtenu en utilisant le gradient "naturel" de la structure du point de vue des épaisseurs ou bien en effectuant des expériences de réflectivité résolues en angle.

1.1.1 Expériences de réflectivité

Le spectre de réflectivité d'une microcavité est le moyen le plus direct d'obtenir des informations fondamentales sur la qualité de la structure (maximum de réflectivité, largeur du mode de cavité) et bien sûr sur le régime de couplage fort.

Si la structure présente un régime de couplage fort, alors les spectres auront une allure similaire à ceux indiqués sur la figure 4.1, provenant d'une microcavité à base de GaAs contenant quatre puits quantiques d'InGaAs [165].

Sur le premier spectre en bas, nous voyons le mode de cavité à basse énergie et un léger renflement correspondant au mode excitonique. A mesure que le mode de cavité se rapproche de l'énergie de l'exciton, son amplitude diminue au dépend de celle du mode excitonique qui augmente. La caractéristique du couplage fort est l'anticroisement entre ces deux modes, c'est-à-dire que lorsque l'énergie du mode de cavité coïncide avec celle de l'exciton - on est alors à la résonance -, les deux pics ne sont pas confondus mais il y a un dédoublement : le dédoublement de Rabi ou splitting de Rabi, qui correspond à l'écart minimal entre les deux modes. Puis, lorsque l'énergie du mode de cavité dépasse l'énergie de l'exciton, les deux modes s'éloignent à nouveau.

Lorsqu'on est loin de la résonance, les deux branches tendent vers les modes photonique et excitonique non couplés et étant donné que seul le mode de cavité est directement relié aux photons extérieurs, l'amplitude du mode excitonique devient très faible [77] (voir le premier et le dernier spectre de la figure 4.1).

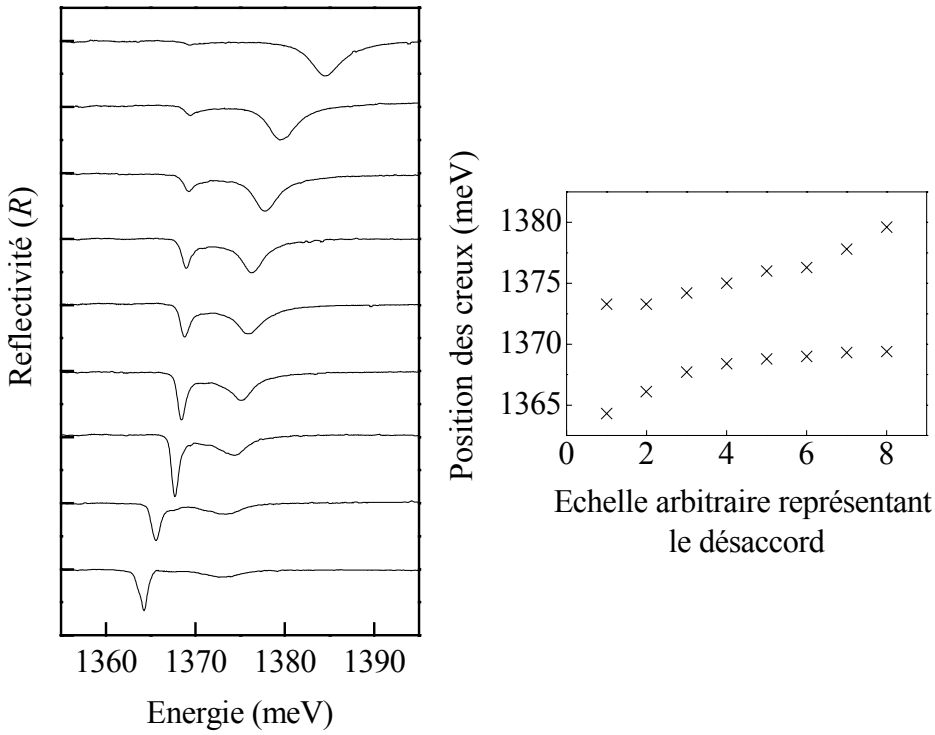


figure 4.1 : Spectres expérimentaux de réflectivité pour différentes positions sur l'échantillon relatifs à une microcavité à base de GaAs contenant quatre puits quantiques d'InGaAs élaborée au Laboratoire de Microélectronique et Microstructures de Bagneux [165].

Le régime de couplage fort est démontré sans aucune ambiguïté, lorsque l'on observe expérimentalement l'anticroisement entre les deux modes excitonique et photonique.

1.1.2 Expériences de photoluminescence

Sur les spectres de photoluminescence, la présence du régime de couplage fort se traduit, comme dans les expériences de réflectivité, par un anticroisement entre le mode de cavité et le mode excitonique. La figure 4.2 présente un exemple de spectres de photoluminescence typiques d'une microcavité à base de GaAs contenant un puits quantique d'InGaAs [80]. Nous pouvons identifier le mode de cavité par la forte dépendance de son énergie avec la position sur l'échantillon, contrairement à l'énergie du mode excitonique qui ne varie quasiment pas. Lorsque le désaccord entre les énergies des modes exciton et photon est important, les largeurs à mi-hauteur des raies polaritoniques tendent vers celles des modes non couplés, à savoir celle du mode de cavité pour la branche basse et celle de l'exciton pour la branche haute.

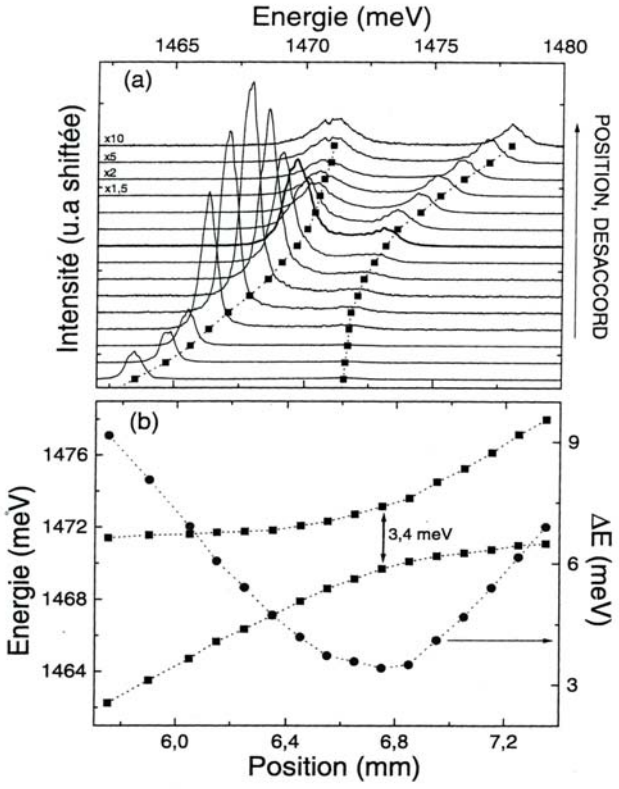


figure 4.2 : Spectres de photoluminescence pour différentes positions sur l'échantillon relatif à une microcavité à base de GaAs contenant un puits quantique d'InGaAs provenant de la référence [80].

La comparaison de l'amplitude des deux modes, excitonique et photonique, sur la figure, indique que le mode de type photon est plus luminescent que le mode de type exciton ; de

plus, sa luminescence atteint un maximum hors de la résonance. Intuitivement, nous nous serions attendus à ce que le maximum de photoluminescence se produise à la résonance et que la luminescence soit associée au mode de type exciton et non au mode de type photon. Le même phénomène a été préalablement observé par Stanley [6] à la fois sur les spectres de photoluminescence et d'absorption d'une microcavité contenant 6 puits quantiques d'InGaAs (figure 4.3 *(a)* et *(b)*). Ce comportement est une conséquence de l'absorption importante dans les microcavités : ce phénomène est appelé : "cavity pulling" [6,77]. Sur la figure 4.3 *(c)*, les coefficients d'absorption (*A*), de réflexion (*R*) et de transmission (*T*) d'une microcavité Fabry-Pérot symétrique, calculés par Stanley, sont tracés en fonction de l'absorption intracavité A_{int} (c'est-à-dire l'absorption lors d'un passage à l'intérieur de la cavité).

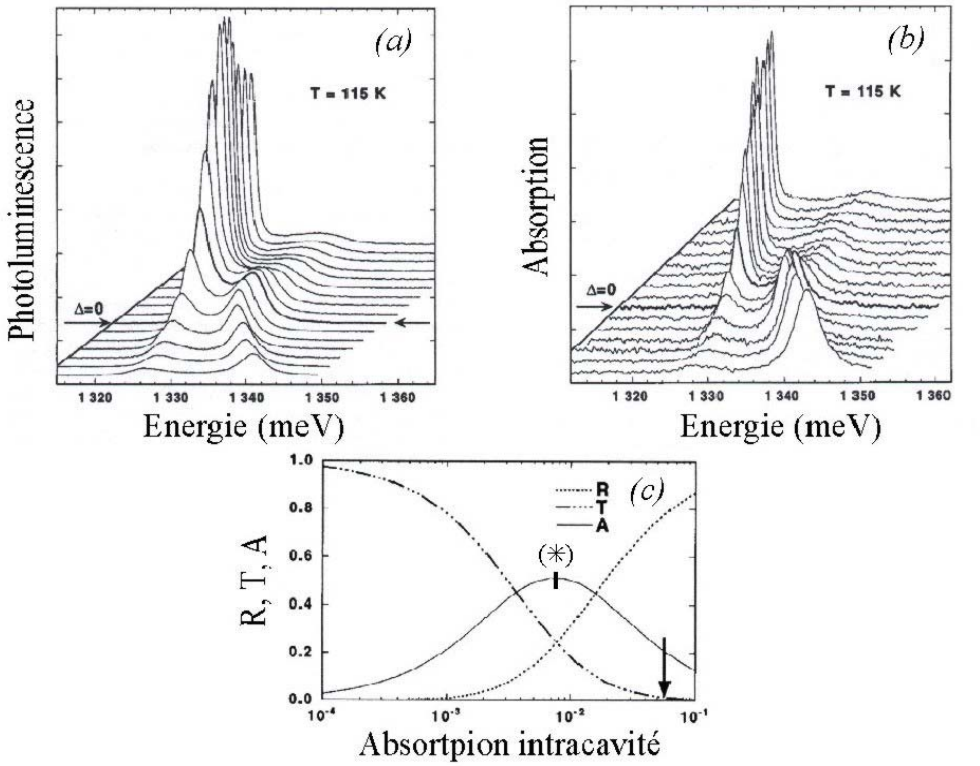


figure 4.3 : Spectres de photoluminescence (a) et d'absorption (b) pour différents désaccords exciton-photon relatifs à une microcavité contenant 6 puits quantiques d'InGaAs [6] ; les spectres ont été déplacés latéralement de manière à ce que la luminescence de l'exciton non perturbé (provenant de la luminescence sur la tranche) reste à la même énergie (1326 meV). (c) Coefficients de réflexion (R), de transmission (T) et d'absorption (A) calculés pour une microcavité Fabry-Pérot en fonction de l'absorption intracavité ; la flèche indique le maximum de l'absorption intracavité à la résonance correspondant à l'échantillon étudié au-dessus.

Lorsque l'absorption intracavité est nulle, la structure est un Fabry-Pérot idéal ayant une transmission de 1 et l'absorption de la cavité est nulle. A l'opposé, lorsque l'absorption

intracavité est très importante, le mode Fabry-Pérot ne peut pas se former, le coefficient de réflexion de la microcavité se réduit à celui du miroir haut et l'absorption de la cavité est gouvernée par le coefficient de transmission du miroir haut, qui est très faible. Dans une microcavité, l'émission étant directement reliée à l'absorption, l'émission de la cavité est également quasi-nulle. Entre ces deux extrêmes, il existe une condition pour laquelle l'absorption de la cavité est maximum, et donc l'émission également ((✳) sur la figure) ; cette condition est satisfaite lorsque, lors d'un aller-retour dans la cavité, un photon a la même probabilité d'être absorbé que de s'échapper de la cavité, soit lorsque la transmission du miroir haut ($\neq T$) est égale à l'absorption intracavité ; le couplage entre l'extérieur et l'intérieur de la cavité est ainsi optimal. Cette condition, valable également pour l'émission, est appelée condition d'adaptation d'impédance.

Dans le cas de l'échantillon examiné par Stanley, l'absorption intracavité à la résonance, indiquée par une flèche sur la figure, est supérieure à la transmission du miroir, ainsi la condition d'adaptation d'impédance n'est pas satisfaite à la résonance. En désaccordant le mode de cavité par rapport cette position, l'absorption intracavité baisse et tend à se rapprocher de la valeur nécessaire pour satisfaire la condition d'adaptation d'impédance, ainsi, l'absorption de la cavité augmente, entraînant également une augmentation de l'émission.

Ainsi, pour déterminer la position de la résonance en photoluminescence, il ne faut donc pas se fier à l'amplitude des modes mais à la séparation en énergie entre les deux modes, qui doit être minimale à la résonance.

1.2 Gradient d'épaisseur des microcavités

La création d'un gradient d'épaisseur sur les échantillons est mise à profit pour ajuster l'énergie du mode de cavité. Ainsi, lors de la fabrication des microcavités par épitaxie sous jets moléculaires, la rotation de l'échantillon est volontairement stoppée de manière à ce que les couches ne soient pas déposées uniformément sur l'ensemble de l'échantillon. La figure 4.4 représente le gradient d'épaisseur ainsi formé. Ce gradient est cependant suffisamment faible pour que, localement, la cavité puisse être considérée comme une cavité Fabry-Pérot à faces parallèles.

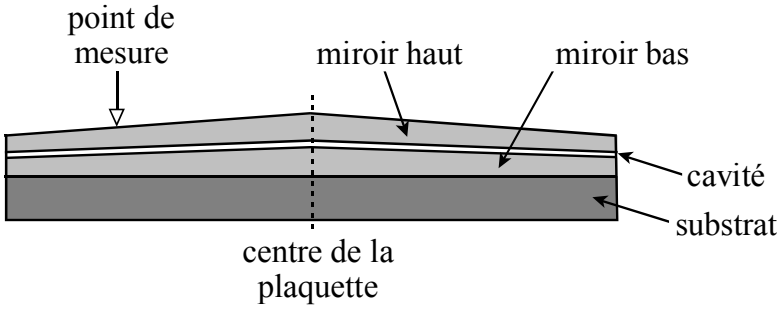


figure 4.4 : Schéma du gradient d'épaisseur le long de l'échantillon.

Pour différents points de mesure sur l'échantillon, les épaisseurs des couches étant différentes, les longueurs de résonance de cavité obtenues ne sont pas les mêmes. Concrètement, lorsqu'on se déplace du centre de la plaquette vers le bord, les épaisseurs des couches diminuent ; la longueur d'onde de résonance de la cavité qui est proportionnelle à ces épaisseurs diminue également.

Si les épaisseurs des couches sont initialement correctement choisies, il est possible en se déplaçant sur l'échantillon d'ajuster l'énergie de résonance de la cavité à l'énergie des transitions excitoniques de GaN, permettant ainsi d'étudier le couplage exciton-photon.

Tous les échantillons qui seront présentés par la suite présentent ce gradient d'épaisseur.

1.3 Influence des mesures angulaires sur la microcavité

Une réflectivité en fonction de l'angle d'incidence permet également de contrôler l'énergie du mode de cavité.

Nous avons vu dans le chapitre 1 que l'énergie d'un photon de cavité, ayant un vecteur d'onde k_z quantifié et un vecteur dans le plan $k_{//}$, s'écrit sous la forme (expression (1.72)) :

$$E(k_{//}) = E_0\left(1+\frac{\hbar^2 c^2 k_{//}^2}{E_0^2 n_c^2}\right)^{1/2} \qquad (4.1)$$

où n_c est l'indice de réfraction de la cavité et E_0 l'énergie du photon pour $k_{//}=0$: $E_0=hc/(n_cL_c)$ avec L_c l'épaisseur physique de la cavité.

La projection de k dans le plan de la microcavité s'écrit : $k_{//} = k\sin\theta_c = E(k_{//})\, n_c \sin\theta_c/(\hbar c)$ où θ_c est l'angle d'incidence interne ; en utilisant les lois de Snell-Descartes, $k_{//}$ peut être relié à l'angle d'incidence externe θ par la relation : $k_{//} = \frac{E(k_{//})}{\hbar c}\sin\theta$ (4.2)

Ainsi, en faisant varier l'angle d'incidence θ, on sélectionnera une valeur particulière de $k_{//}$. En éliminant $k_{//}$ des expressions (4.1) et (4.2), on peut relier directement l'énergie du mode de cavité à l'angle d'incidence :

$$E(\theta) = E_0 \left(1 - \frac{\sin^2 \theta}{n_c^2} \right)^{-1/2} \tag{4.3}$$

La dépendance du mode de cavité vis à vis de θ est très forte : par exemple, pour n_c=2,60 et E_0=3450 meV, l'énergie du mode de cavité pour θ=60° avoisine 3650 meV ; ainsi en faisant varier l'angle de 0° à 60°, le mode de cavité se déplace d'environ 200 meV.

Les états d'excitons étant indépendants de l'angle, le potentiel d'interaction exciton-cavité est également indépendant de l'angle [77]. Ainsi, comme dans le cas de la présence d'un gradient d'épaisseur, on pourra ajuster le mode de cavité de manière à faire coïncider son énergie avec celle des excitons de GaN pour étudier le couplage lumière-matière.

2 La microcavité A247

2.1 Description de l'échantillon

Dans le domaine spectral sur lequel nous travaillons, le silicium peut être utilisé comme miroir étant donnée la valeur de son indice de réfraction. Nous avons effectué des simulations de structures utilisant le silicium comme miroir bas et un miroir de Bragg AlN/$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ comme miroir haut de la microcavité. Mais ce type de structure n'est que théorique, car au niveau de la croissance des couches, il n'est pas possible de déposer directement une couche de GaN relativement mince et de bonne qualité directement sur le substrat de silicium. Ainsi, comme dans le cas des miroirs de Bragg décrits dans le chapitre 3, il est nécessaire d'intercaler entre GaN et le silicium plusieurs couches tampons. Ces couches-tampon faisant partie intégrante de la cavité, il faut modifier la structure de ces dernières de manière à optimiser la microcavité. Nous avons remplacé la couche tampon de GaN par de l'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$. Dans le premier chapitre, nous avons vu que l'épaisseur optique de la cavité doit être un multiple de la demi-longueur d'onde : $L_{opt}=m\lambda_0/2$ (expression (1.45)) ; cette condition est valable dans le cas de microcavités "classiques", c'est-à-dire contenant deux miroirs métalliques pour une microcavité Fabry-Pérot ou deux miroirs de Bragg pour une microcavité à miroirs de Bragg. Cette condition découle du fait que le champ

électromagnétique doit être maximum aux interfaces entre la cavité et les miroirs dans le cas de deux miroirs de Bragg et nul dans le cas de deux miroirs métalliques. Or, la structure décrite ici est *hybride* puisqu'elle est composée d'un miroir de Bragg et du substrat de silicium, considéré comme un miroir métallique. Ainsi, pour satisfaire les conditions requises sur le champ (maximum à l'interface miroir de Bragg/cavité et nul à l'interface cavité/silicium), l'épaisseur optique de la cavité doit être égale à : $L_{opt}=m\lambda/2+\lambda/4$. Ainsi, les épaisseurs des couches doivent être modifiées en conséquence, mais il faut également tenir compte des conditions liées à la croissance des couches, à savoir la nécessité d'avoir des épaisseurs proches de 40 nm pour la première couche d'AlN, de 250 nm pour la couche intermédiaire d'AlGaN et de 250 nm également pour la couche d'AlN du dessus [166]. Les épaisseurs optiques qui se rapprochent au mieux des épaisseurs demandées par la croissance et qui respectent les conditions liées au champ électromagnétique sont les suivantes : $\lambda/4$ pour AlN, $2\lambda-\lambda/4$ pour AlGaN et $2\lambda-\lambda/4$ pour AlN. Nous avons choisi une épaisseur optique de $\lambda/2$ pour la couche active de GaN ; la cavité a donc une épaisseur optique totale de : $4\lambda+\lambda/4$. La figure 4.5 représente l'allure du champ électromagnétique à l'intérieur de la cavité, montrant bien que le choix de ces épaisseurs satisfait les conditions sur le champ électromagnétique.

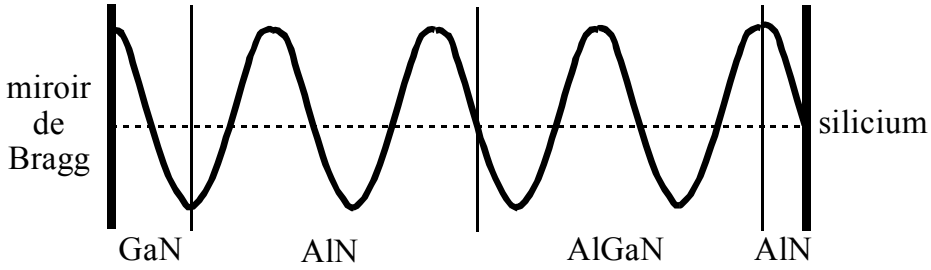


figure 4.5 : Allure du champ électromagnétique à l'intérieur de la cavité.

Finalement, la structure de la cavité A247 est celle schématisée sur la figure 4.6. Le miroir de Bragg utilisé comme miroir haut de la cavité est constitué de 12 paires $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$. Les épaisseurs indiquées sur la figure sont les épaisseurs visées au centre de la plaquette et calculées au préalable à partir des relations suivantes : $d=\lambda_0/(2n(\lambda_0))$ pour la couche active de GaN, $d=\lambda_0/(4n(\lambda_0))$ pour les couches d'AlN et d'AlGaN constituant le miroir et $d=(2\lambda_0-\lambda_0/4)/n(\lambda_0)$ pour les deux couches tampon d'AlN et d'AlGaN. La longueur d'onde de résonance visée pour la structure est 360,4 nm correspondant à une énergie de résonance d'environ 3440 meV.

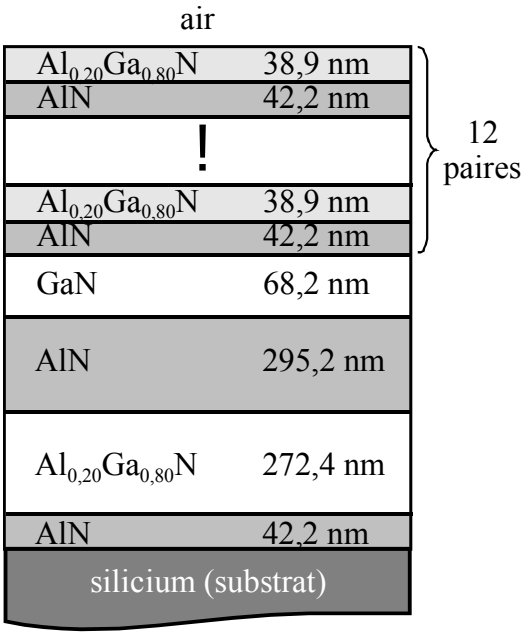


figure 4.6 : Structure de l'échantillon A247 : la microcavité massive de GaN a une épaisseur optique de λ/2 ; le miroir haut est constitué de 12 paires AlN/ $Al_{0,20}Ga_{0,80}N$; le substrat de silicium joue le rôle de miroir bas.

2.2 Elaboration de l'échantillon

L'échantillon a été élaboré par épitaxie sous jets moléculaires. La croissance de la première couche tampon d'AlN a été effectuée à 900°C, puis ensuite les deux couches d'AlGaN et d'AlN ont été déposées juste avant l'élaboration de la cavité de GaN à 800°C. La dernière étape de la croissance est le dépôt à 820°C du miroir de Bragg constitué de 12 alternances AlN/$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$. La vitesse de croissance avoisine 0,1 μm/h pour AlN et 0,5 μm/h pour $Al_{0,20}Ga_{0,80}N$.

La composition en aluminium d'$Al_xGa_{1-x}N$ est de 20 ± 3% ; elle a été déterminée par RBS et vérifiée par photoluminescence à basse température. Comme dans le cas des miroirs de Bragg, l'inhomogénéité des flux de gallium et d'aluminium lors de la croissance peut entraîner une variation des épaisseurs de ± 7% et une variation des concentrations de ± 3% le long du rayon de la plaquette.

Sur la figure 4.7, l'image de microscopie électronique à balayage (MEB) de l'échantillon montre clairement les alternances AlN/$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$; la cavité λ/2 de GaN, ainsi que les couches constituant le tampon sont clairement discernables.

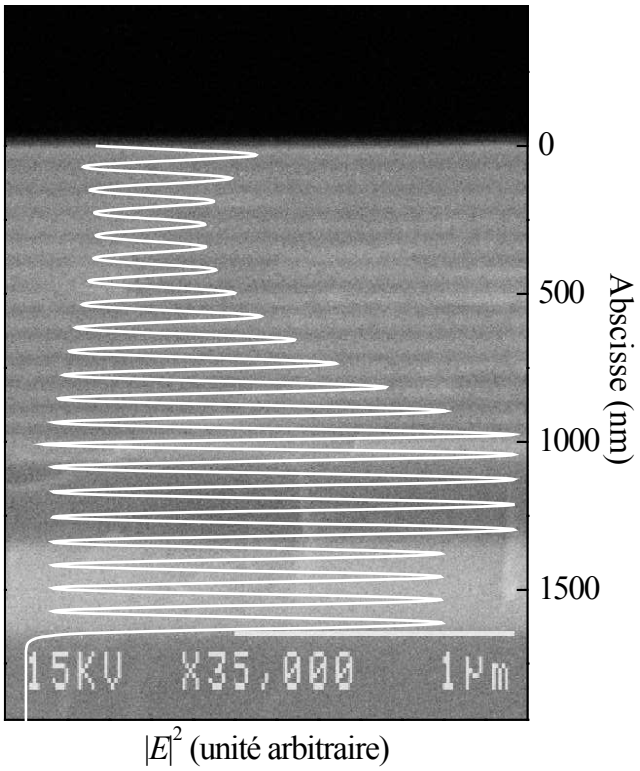


figure 4.7 : Image de microscopie électronique à balayage (MEB) de la cavité λ/2 de GaN (échantillon A247) superposée au module au carré du champ électromagnétique dans la structure calculé pour une énergie de 3445 meV.

Superposé à l'image, le module au carré du champ électromagnétique dans la structure est calculé pour une énergie de 3445 meV. Le calcul rend bien compte du confinement du champ à l'intérieur des couches qui constituent la cavité, de la décroissance du champ à l'intérieur du miroir de Bragg et de l'arrêt brutal de la propagation du champ à l'intérieur du miroir de silicium.

2.3 Caractérisation optique de la microcavité

Pour effectuer des expériences de réflectivité ou de photoluminescence résolue spatialement sur des microcavités, il faut pouvoir scruter l'ensemble du rayon-vecteur de l'échantillon. Les porte-échantillons situés à l'intérieur de nos cryostats peuvent accueillir des échantillons dont la largeur maximum est de 1 cm ; or, tous les échantillons que nous étudierons mesurent 2 pouces (1 pouce = 2,54 cm). Nous ne pouvons donc pas les introduire entièrement dans le cryostat, il faut au préalable les cliver. Ces échantillons sont d'abord coupés en quatre au CRHEA, puis nous en clivons un à nouveau de manière à obtenir des morceaux de dimensions compatibles à celles des porte-échantillons, comme l'illustre la

figure 4.8. Ainsi, en étudiant, par exemple, un à un les trois morceaux dessinés sur la figure, l'ensemble du rayon-vecteur de l'échantillon est étudié.

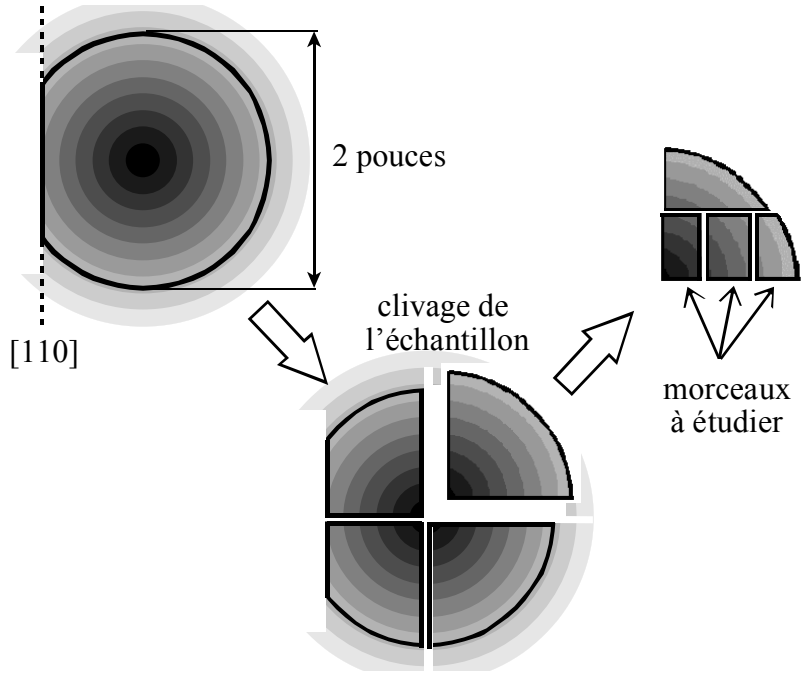


figure 4.8 : Représentation schématique de l'échantillon avant et après clivage ; les trois morceaux indiqués par les flèches sont les morceaux que nous étudierons par la suite.

2.3.1 Expériences de réflectivité à 5K

Nous avons effectué des expériences de réflectivité sous incidence normale à une température de 5K sur le morceau le plus proche du centre de l'échantillon. Le schéma du spectromètre de réflectivité est présenté dans le chapitre 2.

La figure 4.9 présente, en trait plein, le spectre expérimental et en traits en pointillés, le spectre calculé correspondant. Nous distinguons clairement la bande d'arrêt (ou stop band), le mode de cavité ainsi que l'absorption d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ au-dessus de 3915 meV.

Ce spectre est enregistré au centre de la plaquette ; le mode de cavité se situe à une énergie de 3447 meV et sa largeur à mi-hauteur est de 33 meV. L'énergie de résonance expérimentale de la cavité est très proche de la valeur théorique envisagée lors de la conception de la structure [167].

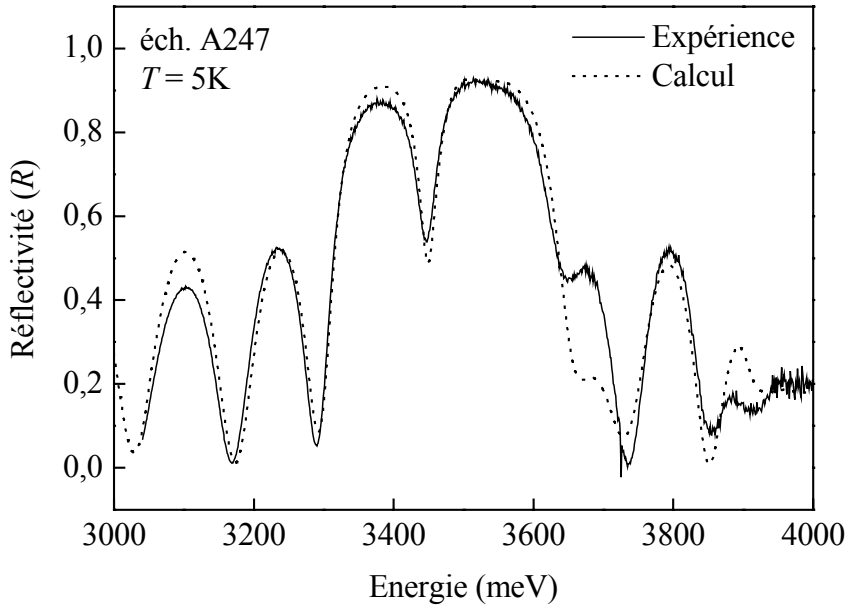


figure 4.9 : Spectre expérimental de réflectivité sous incidence normale à T=5K de la cavité λ/2 de GaN (trait plein) et spectre calculé (traits pointillés). Le spectre est enregistré au centre la plaquette.

Le spectre expérimental ne présente pas de signature décelable de la présence d'excitons, ainsi, dans la simulation, nous n'avons pas inclus d'oscillateur traduisant les excitons de GaN. Un très bon accord expérience-théorie est obtenu sur l'ensemble du domaine étudié. Les épaisseurs utilisées dans les calculs sont plus faibles que celles visées, au centre de la plaquette, lors de la croissance, l'écart étant inférieur à 2%. Les indices d'AlN et de GaN sont ceux déterminés à 5K dans le troisième chapitre. Concernant $Al_{0,20}Ga_{0,80}N$, son absorption à 5K débute à 3915 meV, à comparer à l'absorption d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ à 300K à 3815 meV ; en tenant compte de la variation du gap en fonction de la température, qui se traduit par une translation de 50 meV en énergie, l'absorption d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ a lieu à 300K au voisinage de 3865 meV, c'est-à-dire 50 meV en dessous de celle d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$. Ainsi, nous avons utilisé l'indice d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$ à 5K, déterminé par ellipsométrie, modifié légèrement afin de tenir compte de la différence de composition en aluminium. Dans le calcul, le substrat de silicium est supposé semi-infini.

Plusieurs spectres correspondant à différentes positions sur ce morceau de l'échantillon ont été enregistrés ; ces spectres sont présentés sur la figure 4.10 ; la position en mm de chaque spectre par rapport au centre de la plaquette est indiquée à droite sur la figure. La translation vers les hautes énergies du mode de cavité est clairement visible lorsque la zone

examinée se rapproche du bord de l'échantillon. Le premier spectre au bas de la figure est identique à celui de la figure 4.9.

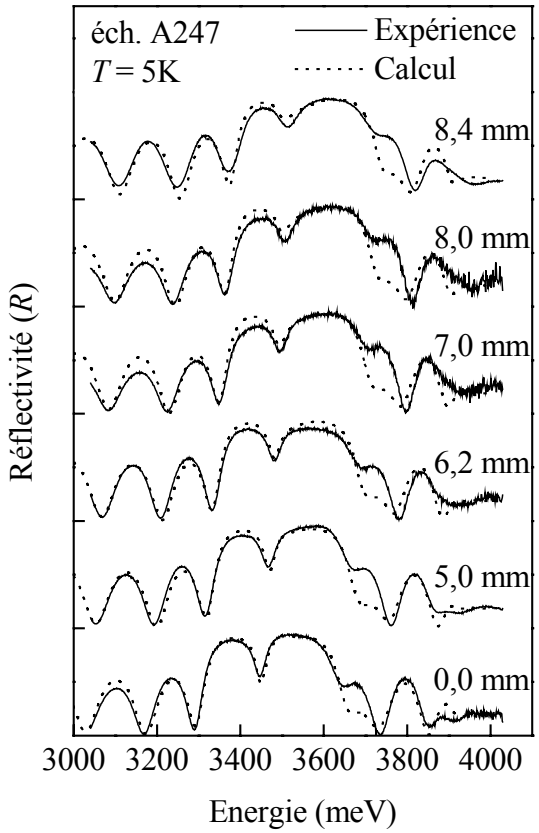


figure 4.10 : Spectres de réflectivité sous incidence normale à une température de 5K de la cavité λ/2 de GaN (échantillon A247) ; les spectres sont enregistrés le long d'un rayon de la plaquette, le spectre le plus bas correspondant au centre ; les traits pointillés correspondent aux calculs correspondants. La position de la mesure par rapport au centre de la plaquette est indiquée à droite de chaque spectre en mm.

Les courbes en traits pointillés correspondent aux spectres calculés ; les indices utilisés sont identiques à ceux utilisés pour l'ajustement du spectre de la figure 4.9 ; les épaisseurs sont également conservées, il n'y a qu'un seul paramètre ajustable : celui qui correspond au gradient d'épaisseur le long du rayon de l'échantillon. Il s'agit d'un facteur multiplicatif appliqué à l'ensemble des couches. Nous observons un bon accord expérience-théorie, en particulier, le décalage vers les hautes énergies du mode de cavité est bien reproduit.

La position en énergie du spectre le plus haut sur la figure n'est pas suffisamment haute par rapport à l'énergie attendue des transitions excitoniques (autour de 3500 meV) ; nous avons donc étudié les autres morceaux de l'échantillon. Les spectres enregistrés sur les différents morceaux formant le rayon-vecteur sont présentés sur la figure 4.11.

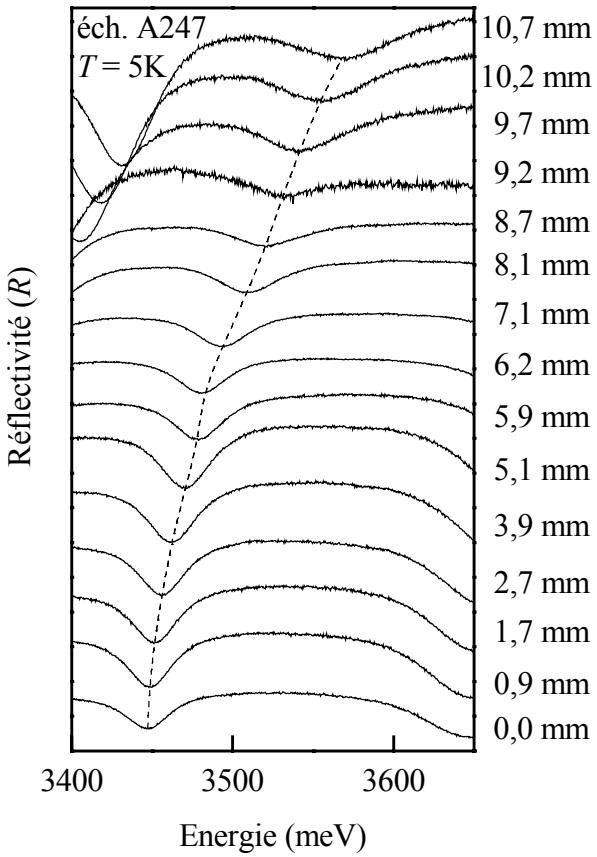


figure 4.11 : Spectres expérimentaux de réflectivité sous incidence normale à une température de 5K pour différentes positions sur le rayon de la plaquette ; les traits en pointillés suivent la translation du mode de cavité. La position de la mesure par rapport au centre de la plaquette est indiquée à droite de chaque spectre en mm.

Scruter l'ensemble du rayon de la plaquette a permis de déplacer le mode de cavité de 3445 meV jusqu'à 3570 meV. Aucune modification qui serait due aux transitions excitoniques n'apparaît sur les spectres ; le régime de couplage fort n'est donc pas mis en évidence en réflectivité résolue spatialement dans cette structure.

2.3.2 Réflectivité résolue en angle à 5K

Des expériences de réflectivité résolue en angle ont ensuite été effectuées sur la microcavité à une température de 5K pour un angle d'incidence variant de 3° à 40°. Le fonctionnement du spectromètre de réflectivité résolue en angle est expliqué dans le chapitre 2.

La figure 4.12 *(a)* présente les spectres de réflectivité correspondant à une polarisation de la lumière incidente transverse magnétique (*TM*).

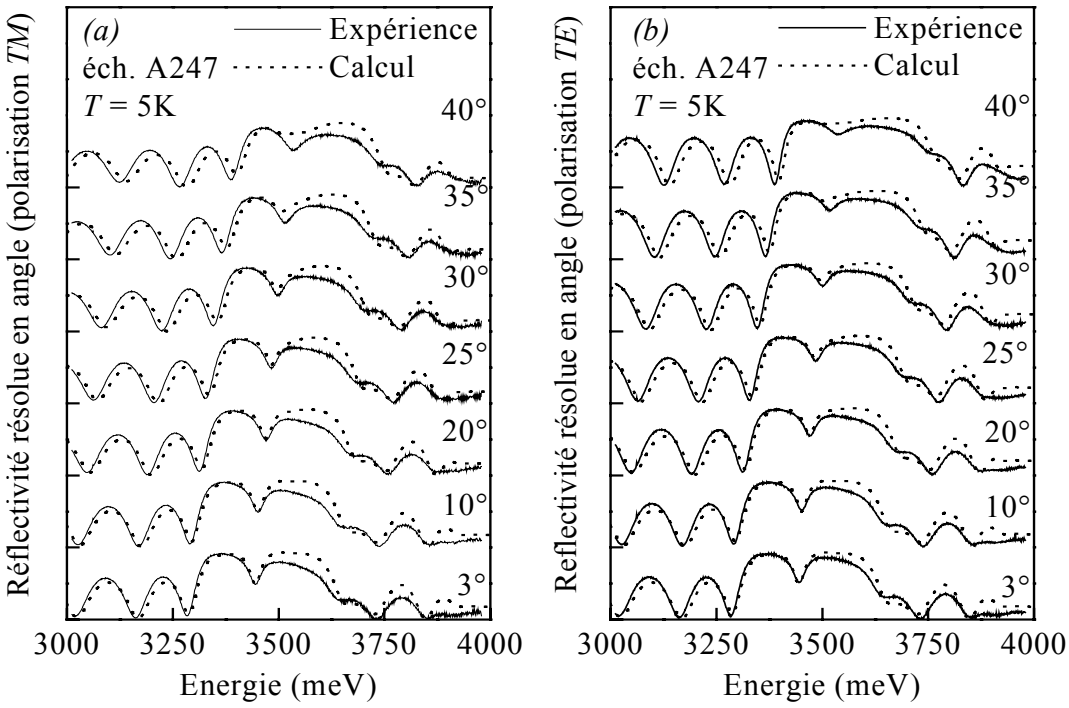


figure 4.12 : Spectres de réflectivité résolue en angle de la microcavité A247 à une température de 5K pour la polarisation TM (a) et pour la polarisation TE (b) ; les traits pointillés correspondent aux ajustements théoriques.

Les angles d'incidence successifs sont indiqués à droite de chaque spectre sur la figure. A mesure que l'angle d'incidence augmente, le mode de cavité se déplace vers les hautes énergies, s'élargit et diminue en amplitude. Concernant les simulations, nous avons tout d'abord ajusté le spectre calculé correspondant à un angle d'incidence de 3° ; les indices des couches utilisés sont identiques à ceux utilisés dans les calculs précédents, seule l'épaisseur des couches a été légèrement diminuée puisque par rapport au spectre de la figure 4.9, le mode de cavité se trouve à une énergie plus haute. Puis sans modifier les paramètres entrant dans le calcul, nous avons fait varier l'angle d'incidence pour obtenir l'ensemble des spectres en traits pointillés sur la figure. Un accord satisfaisant entre les spectres expérimentaux et théoriques est obtenu ; au-dessus de 30°, le mode de cavité calculé disparaît plus rapidement dans l'absorption de GaN. Les formalismes utilisés pour le calcul de la réflectivité de la microcavité dans le cas des deux polarisations *TE* et *TM* sont décrits dans le chapitre 2.

La figure 4.12 *(b)* présente les spectres correspondant à une polarisation de la lumière transverse électrique (*TE*), les traits pointillés correspondant aux spectres calculés. L'ensemble des paramètres relatifs aux simulations dans le cas d'une polarisation *TM* est conservé.

De la même manière que pour les expériences de réflectivité résolue spatialement, nous n'observons pas de traces visibles du régime de couplage fort quelque soit la polarisation.

2.3.3 Photoluminescence à 5K

Des expériences de photoluminescence ont ensuite été réalisées à une température de 5K sur la microcavité. Les spectres présentés sur la figure 4.13 ont été enregistrés pour différentes positions sur le rayon de la plaquette ; leurs positions respectives en mm par rapport au centre de la plaquette sont indiquées à gauche sur la figure. La courbe inférieure correspond à une position proche du centre de l'échantillon.

Lorsque la position du mode de cavité est à une énergie faible ou élevée, l'émission de photoluminescence est asymétrique parce que l'énergie du pic d'émission de GaN ne correspond pas à celle du mode de cavité. A la coïncidence entre les deux, le pic d'émission est symétrique et étroit et son intensité est maximum, puis, lorsque le mode de cavité dépasse l'énergie d'émission de GaN, l'émission redevient asymétrique. Ceci est davantage visible sur la figure 4.14, où sont portés en fonction de l'énergie, la largeur à mi-hauteur et l'intensité intégrée du pic de photoluminescence. Le minimum de la largeur à mi-hauteur correspond au maximum de l'intensité intégrée pour une énergie de 3507 meV. Ainsi, à cette énergie, le mode de cavité coïncide avec l'émission de GaN.

Les traits en pointillés sur la figure 4.13 correspondent aux ajustements des spectres expérimentaux utilisant le modèle développé dans le chapitre 2. Nous obtenons un bon accord expérience-simulation en considérant que l'émission de GaN se situe à une énergie de 3507 meV avec une largeur à mi-hauteur de 50 meV.

La largeur de l'émission de GaN avant le dépôt du miroir de Bragg du dessus a été mesurée au CRHEA et sa valeur est d'environ 28 meV au centre de l'échantillon. La valeur de 50 meV introduite dans les calculs peut s'expliquer par la prise en compte de deux phénomènes : (*i*) l'augmentation de l'élargissement due aux contraintes induites par le dépôt du miroir de Bragg sur l'ensemble de la structure et (*ii*) la variation de l'énergie d'émission de GaN le long du rayon de l'échantillon qui est due aux variations de contraintes.

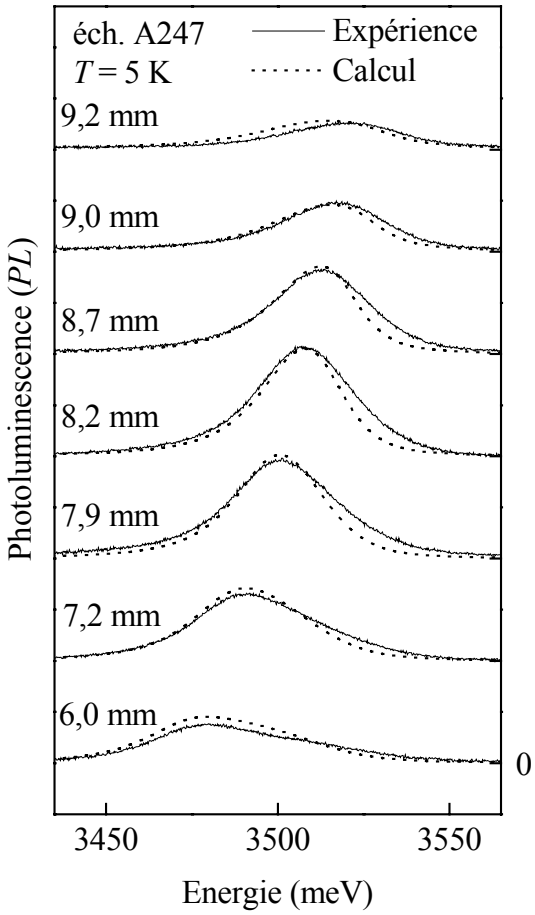


figure 4.13 : Spectres de photoluminescence à une température de 5K pour différentes positions sur l'échantillon. Les traits pointillés correspondent au calcul. Les positions des mesures par rapport au centre de la plaquette sont indiquées à gauche de chaque spectre en mm.

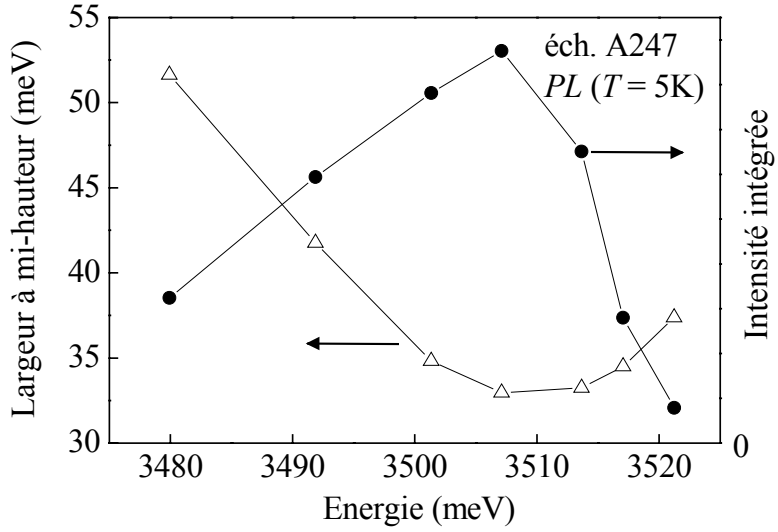


figure 4.14 : Largeur à mi-hauteur et intensité intégrée du pic de photoluminescence de la microcavité (éch. A247) portées en fonction de l'énergie ; le maximum de l'intensité intégrée correspond au minimum de la largeur à mi-hauteur pour une énergie de 3507 meV.

Les propriétés de photoluminescence et de réflectivité sous incidence normale ont été simultanément étudiées en enregistrant les deux types de spectres à la même position sur l'échantillon [167]. Les positions en énergie du pic de photoluminescence et du mode de cavité ont été extraites de ces expériences, et portées sur la même figure (figure 4.15). La correspondance entre les données de photoluminescence et de réflectivité montre clairement que la cavité contrôle l'émission de GaN.

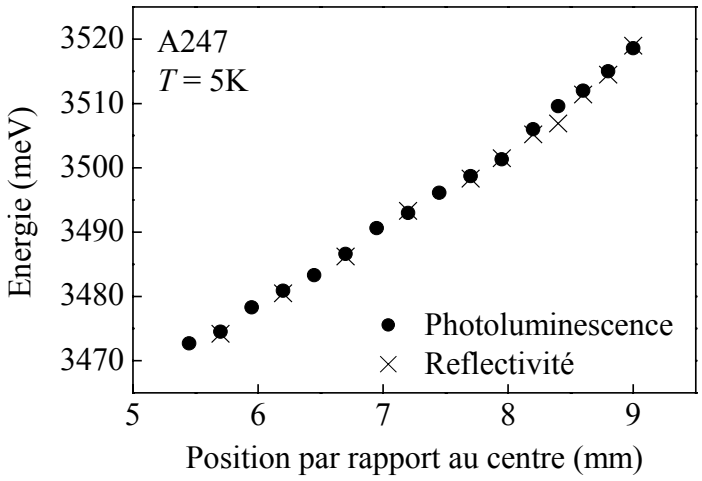


figure 4.15 : Variation de l'énergie du pic de photoluminescence et du mode de cavité le long du rayon de la plaquette (échantillon A247) ; l'émission de GaN est contrôlée par la cavité.

2.4 Discussion sur la microcavité A247

Le déplacement du mode de cavité est clairement observable dans les expériences de réflectivité résolue spatialement ainsi que dans celles en fonction de l'angle d'incidence. Les ajustements théoriques rendent bien compte des expériences tant au niveau de la position en énergie que de la largeur du mode de cavité. Cependant, aucun signe de présence du régime de couplage fort n'est visible.

Les expériences de photoluminescence, quant à elles, ont permis de déduire une largeur d'émission de GaN de 50 meV. Il semble que ce soit cette valeur élevée qui compromette l'observation du régime de couplage fort.

Bien que la qualité optique de la microcavité ne soit pas optimale, à savoir que le miroir haut a un coefficient de réflexion d'environ 80% et que le miroir de silicium réfléchit à environ 30% ces premiers résultats concernant une microcavité massive de GaN sont prometteurs ; nos objectifs sont maintenant d'une part, d'améliorer les propriétés optiques de la microcavité, à savoir la finesse du mode de cavité (la largeur à mi-hauteur du mode est de

33 meV) et d'autre part, de diminuer l'élargissement de l'émission de GaN (qui vaut 50 meV dans le cas de cette structure).

3 La microcavité A284

3.1 Description de l'échantillon

Dans cette structure, le miroir bas n'est plus le substrat de silicium ; il est remplacé par un miroir de Bragg AlN/$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ constitué de 15,5 alternances. La couche active de GaN a une épaisseur optique de 2λ. La structure de la cavité A284 est celle schématisée sur la figure 4.16.

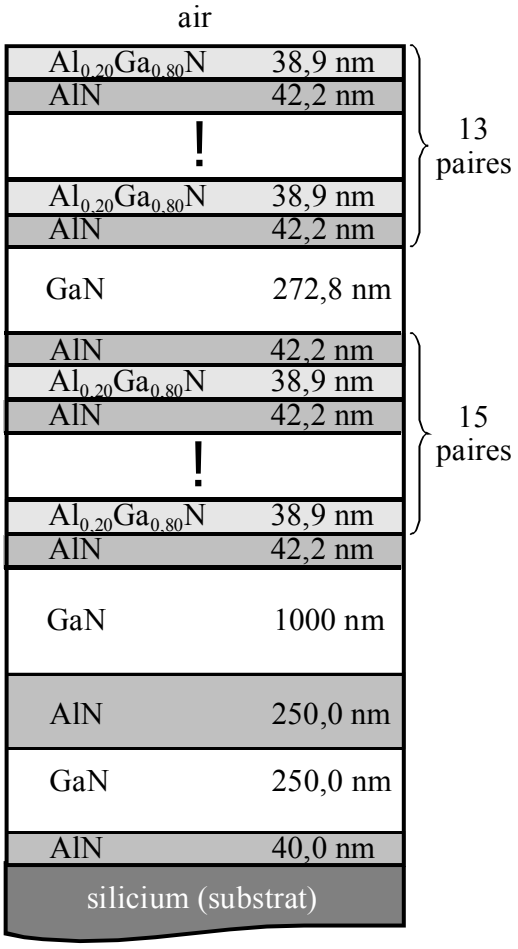


figure 4.16 : Structure de l'échantillon A284 : la microcavité massive de GaN a une épaisseur optique de 2λ ; les miroirs haut et bas sont constitués respectivement de 13 et 15,5 paires AlN/ $Al_{0,20}Ga_{0,80}N$.

Le miroir de Bragg utilisé comme miroir haut de la cavité est, quant à lui, constitué de 13 paires AlN/$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$. Une série de couches-tampon est déposée au-dessus du substrat.

Les épaisseurs indiquées sur la figure sont les épaisseurs visées au centre de la plaquette ; elles sont identiques à celles de la microcavité A247, l'énergie de résonance visée étant de 3440 meV.

3.2 Elaboration de l'échantillon

L'échantillon a été élaboré par épitaxie sous jets moléculaires dans les mêmes conditions que la microcavité A247. La composition en aluminium d'$Al_xGa_{1-x}N$, déterminée par RBS et vérifiée par photoluminescence à basse température, est de 20 ± 3%.

L'image de microscopie électronique à balayage (MEB) de l'échantillon de la figure 4.17 montre clairement la cavité 2λ de GaN encastrée entre les deux miroirs de Bragg $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$, ainsi que l'ensemble des couches-tampon. Le module au carré du champ électromagnétique dans la structure, calculée pour une énergie de 3445 meV, est superposé à l'image ; nous voyons clairement le confinement du champ à l'intérieur de la couche active de GaN ainsi que la pénétration du champ dans les miroirs.

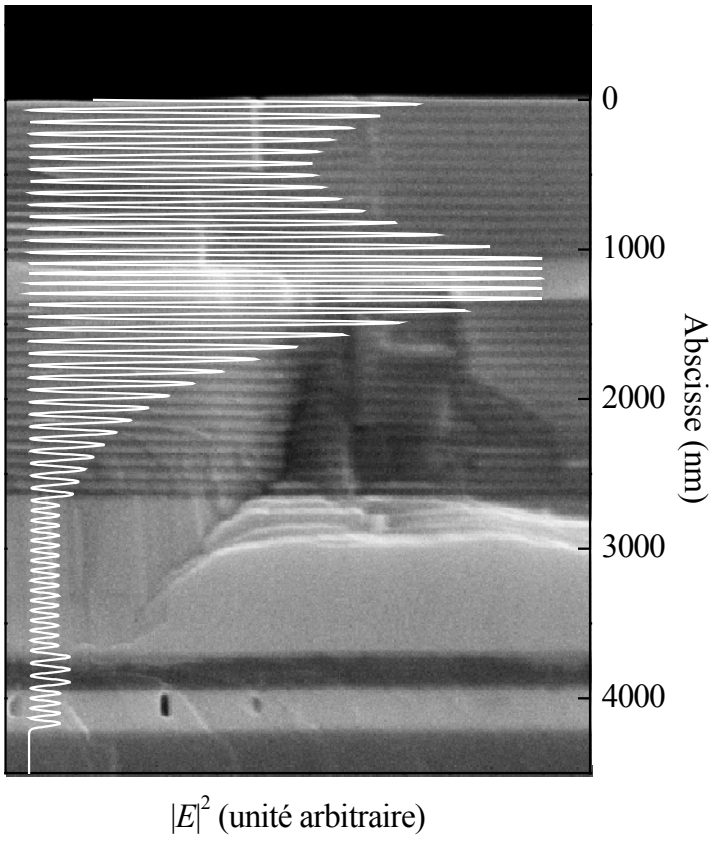


figure 4.17 : Image de microscopie électronique à balayage (MEB) de la cavité 2λ de GaN (échantillon A284) superposée au module au carré du champ électromagnétique dans la structure calculé pour une énergie de 3445 meV.

3.3 Caractérisation optique de la microcavité

3.3.1 Expériences de réflectivité à 5K

La figure 4.18 présente, en trait plein, le spectre expérimental et en traits pointillés, le spectre calculé correspondant. Nous distinguons clairement la stop band, le mode de cavité ainsi que l'absorption d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ qui se situe au-dessus de 3915 meV, tout comme dans la microcavité A247.

Le mode de cavité se situe à une énergie de 3462 meV et sa largeur à mi-hauteur est de 28 meV. Le spectre simulé est en bon accord avec le spectre expérimental. Les épaisseurs utilisées dans les calculs sont plus faibles que celles visées, au centre de la plaquette, lors de la croissance, l'écart étant de 2,7%. Cet écart est acceptable étant donné que ce spectre a été enregistré à 4,5 mm du centre de la plaquette. Les indices d'AlN, de GaN et d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ sont ceux utilisés pour les ajustements de la microcavité A247.

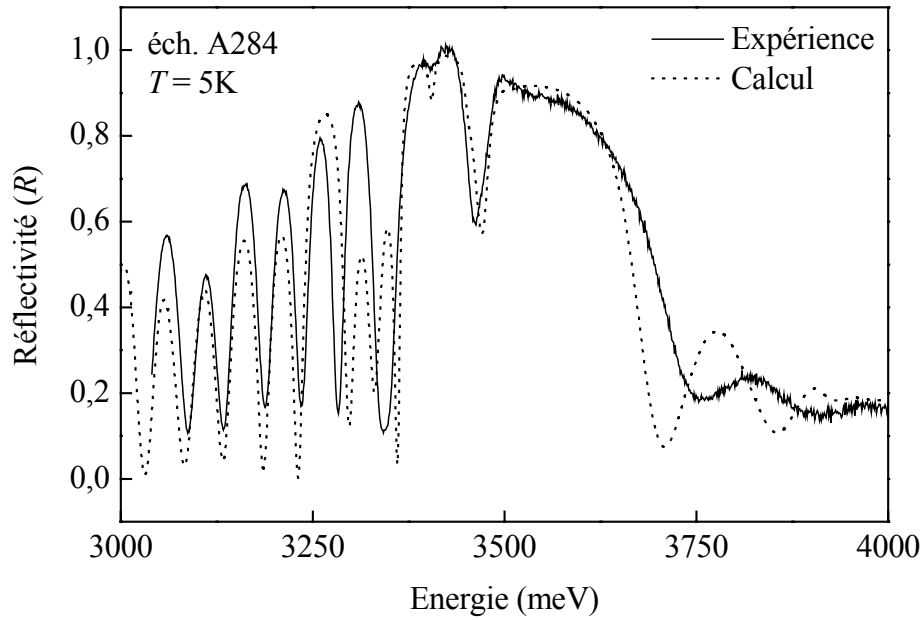


figure 4.18 : Spectre expérimental (trait plein) de réflectivité sous incidence normale à T=5K de la cavité 2λ de GaN (échantillon A284) constituée de 13 et 15,5 paires $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ comme miroir haut et bas et spectre calculé (traits pointillés). Le spectre est enregistré à 4,5 mm du centre de la plaquette.

La figure 4.19 présente des spectres correspondant à différentes positions sur l'échantillon. La translation vers les hautes énergies du mode de cavité est bien modélisée dans les spectres théoriques, en traits pointillés. Le premier spectre au bas de la figure est identique à celui de la figure 4.18.

Le mode de cavité se déplace moins rapidement que la stop band à mesure que l'on scrute les différentes positions sur le rayon de la plaquette. Il disparaît à haute énergie (spectre le plus haut sur la figure), ceci peut s'expliquer par le fait que les concentrations en aluminium varient le long de l'échantillon.

Comme dans le cas de la microcavité A247, les spectres de réflectivité résolue spatialement ne montrent aucun signe de présence du régime de couplage fort.

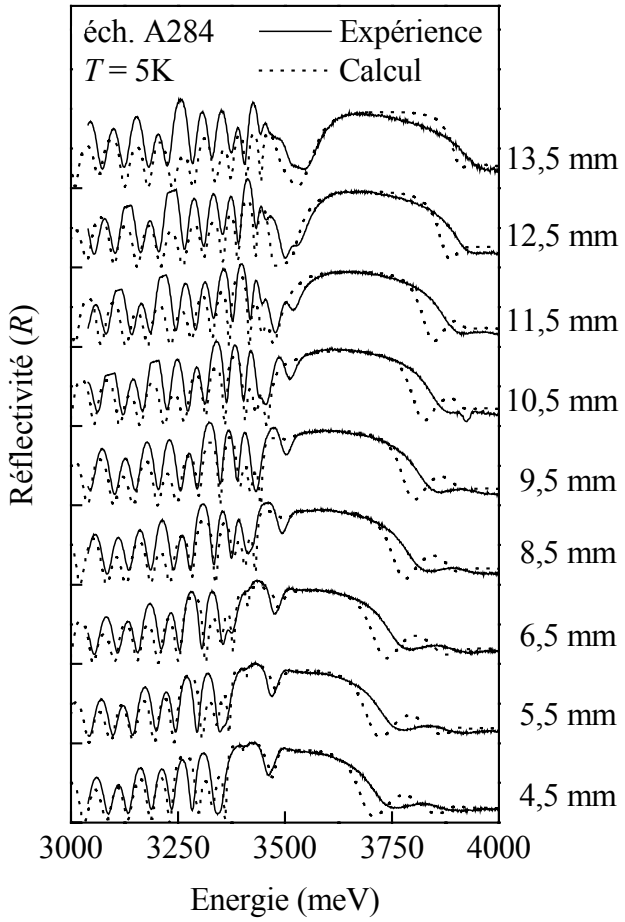


figure 4.19 : Spectres de réflectivité sous incidence normale à une température de 5K de la cavité 2λ de GaN (échantillon A284) constituée de 13 et 15,5 paires $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ comme miroir haut et bas ; les traits pointillés correspondent aux calculs correspondants. Les spectres sont enregistrés le long d'un rayon de la plaquette ; la position de la mesure par rapport au centre de la plaquette est indiquée à droite de chaque spectre en mm.

3.3.2 Réflectivité résolue en angle à 5K

Nous avons ensuite effectué des expériences de réflectivité résolue en angle sur la microcavité à une température de 5K pour un angle d'incidence variant de 3° jusqu'à 60°.

La figure 4.20 *(a)* présente les spectres de réflectivité correspondant à une polarisation de la lumière incidente *TM*. Les angles d'incidence successifs sont indiqués à droite de chaque spectre sur la figure. Le mode de cavité se déplace vers les hautes énergies jusqu'à disparaître comme dans les expériences de réflectivité résolue spatialement. Un accord satisfaisant entre les spectres expérimentaux et théoriques est obtenu.

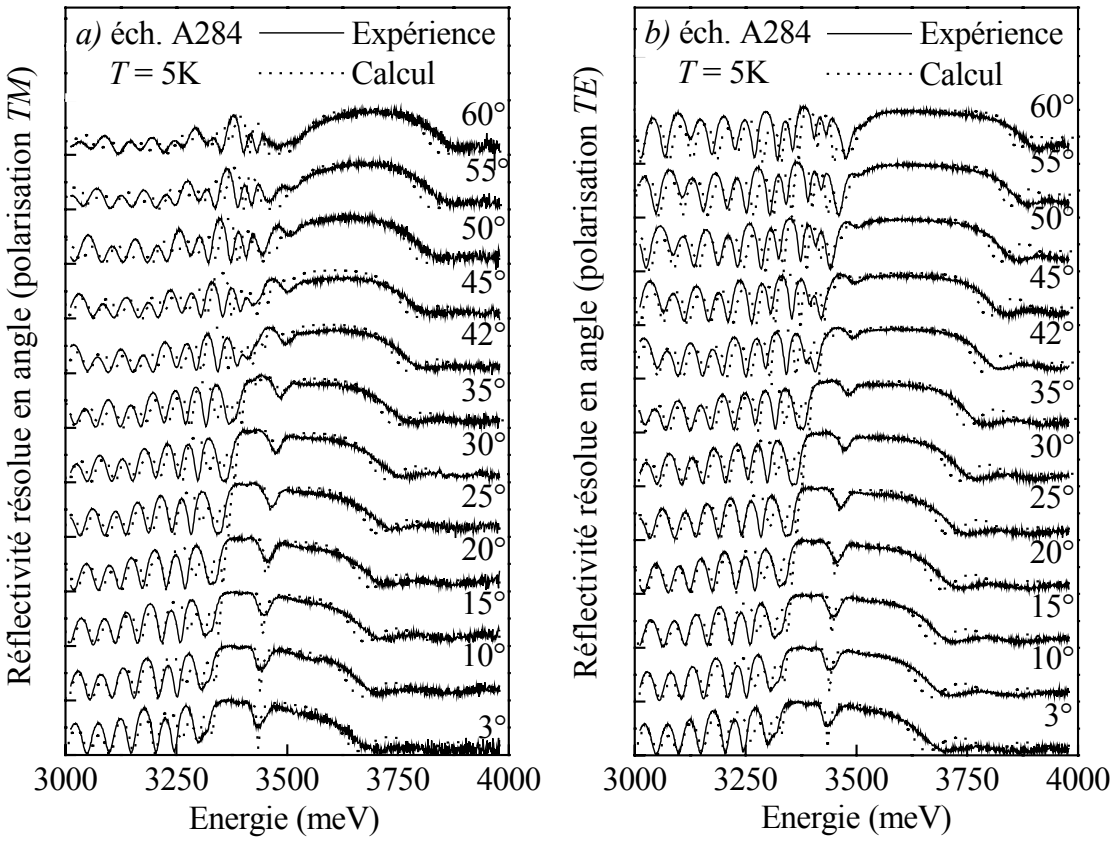


figure 4.20 : Spectres de réflectivité résolue en angle de la microcavité A284 à une température de 5K pour la polarisation TM (a) et pour la polarisation TE (b) ; les traits pointillés correspondent aux ajustements théoriques.

La figure 4.20 *(b)* présente les spectres correspondant à une polarisation de la lumière *TE*, les traits pointillés correspondants aux spectres calculés. Les spectres théoriques sont calculés avec les mêmes paramètres que dans le cas de la polarisation *TM*.

De la même manière que pour les expériences de réflectivité résolue spatialement, nous n'observons pas de traces visibles du régime de couplage fort quelque soit la polarisation.

3.3.3 Photoluminescence à 5K

Nous avons ensuite effectué des expériences de photoluminescence à une température de 5K sur la microcavité A284. Les spectres présentés sur la figure 4.21 ont été enregistrés

pour différentes positions sur le rayon de l'échantillon. La courbe en bas correspond à une position proche du centre de l'échantillon.

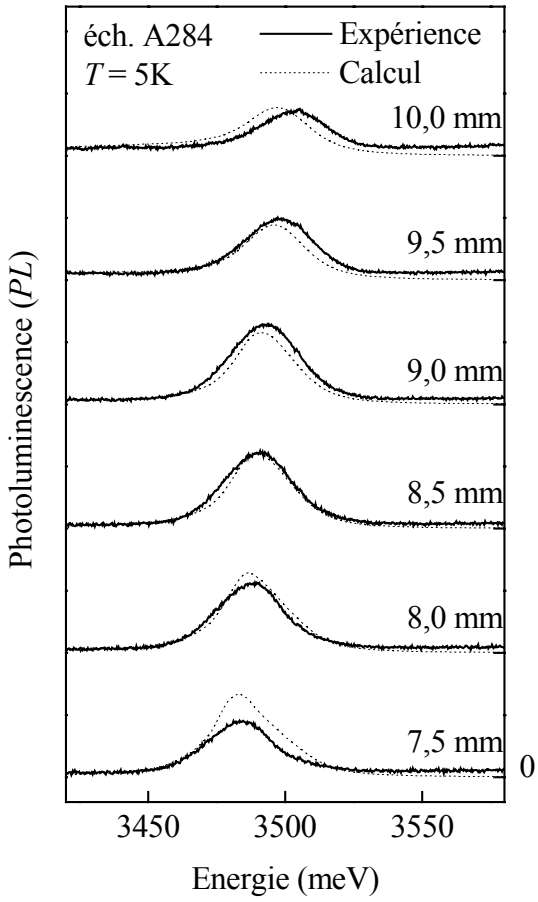


figure 4.21 : Spectres de photoluminescence à une température de 5K pour différentes positions sur l'échantillon. Les traits pointillés correspondent au calcul. Les positions respectives de chaque spectre par rapport au centre de la plaquette sont indiquées en mm à droite sur la figure.

Les mêmes tendances que pour les expériences de photoluminescence réalisées sur la microcavité A247 sont observées, à savoir que l'émission de photoluminescence est asymétrique lorsque l'énergie du mode de cavité est plus basse que celle de l'émission de GaN ; elle devient symétrique lorsque l'on a coïncidence entre les énergies du mode de cavité et l'émission de GaN et est à nouveau asymétrique lorsque les deux pics ne coïncident plus. La forme asymétrique de l'émission de la microcavité est moins prononcée que dans le cas de la microcavité A247 ; la raison peut être la plus faible valeur de l'élargissement de l'émission de GaN, estimée à 45 meV dans les calculs. Nous obtenons un accord satisfaisant entre les spectres expérimentaux et théoriques, en traits pointillés, en considérant que l'émission de GaN se situe à une énergie de 3500 meV avec une largeur à mi-hauteur de 45 meV.

3.4 Discussion sur la microcavité A284

Les résultats obtenus dans le cas de cette microcavité sont similaires à ceux énoncés pour la microcavité A247, les spectres de réflectivité ou de photoluminescence ayant les mêmes tendances. Cependant, le mode de cavité est plus étroit pour cette microcavité (largeur à mi-hauteur d'environ 30 meV), ce qui est normal étant donné la différence des coefficients de réflexion des miroirs bas utilisés dans les deux cas : miroir de silicium : R~30% et miroir de Bragg : R~90%. Ainsi, l'augmentation de la réflexion des miroirs a amélioré la finesse de la microcavité.

Mais, l'élargissement de l'émission de GaN reste encore trop important ; pour illustrer cela, nous avons effectué un calcul de réflectivité dans le cas d'une microcavité sur un substrat de GaN et constituée de 13 et 15,5 paires $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ formant respectivement les miroirs haut et bas de la cavité. Les excitons présents dans la couche massive de GaN sont représentés par un oscillateur de Lorentz. La constante diélectrique peut donc s'écrire sous la forme :

$$\varepsilon = \varepsilon_b + \frac{B}{E_0^2 - E^2 + j\hbar\Gamma E} \tag{4.4}$$

Sur la figure 4.22, trois valeurs différentes de l'élargissement $\hbar\Gamma$ sont considérées : pour $\hbar\Gamma$=10 meV, le régime de couplage fort est observé et le splitting de Rabi atteint une valeur de 44 meV, en accord avec les valeurs théoriques publiées précédemment [83]. Lorsque $\hbar\Gamma$ avoisine 30 meV, les deux pics commencent à disparaître et pour $\hbar\Gamma$=50 meV, le couplage n'est donc quasiment plus visible.

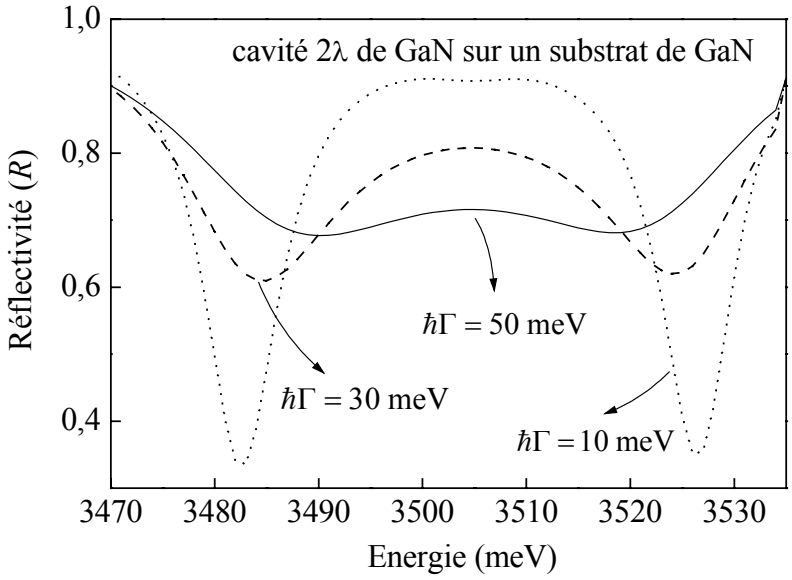


figure 4.22 : Spectres de réflectivité calculés d'une cavité 2λ de GaN pour trois différentes valeurs du paramètre d'élargissement ħΓ de la transition excitonique. Le régime de couplage fort est atteint pour une valeur n'excédant pas 30 meV.

Ainsi, en remplaçant le substrat de silicium par un miroir de Bragg, nous avons amélioré la réflectivité totale des miroirs et ainsi que la finesse du mode de cavité puisque la largeur à mi-hauteur du mode est dans le cas de cette structure inférieure à 30 meV ; mais par contre, nous n'avons pas suffisamment amélioré la qualité de la couche active de GaN, puisque l'élargissement estimé par le calcul est passé de 50 meV à 45 meV.

4 La microcavité A269

4.1 Description de l'échantillon

La microcavité A284 constituée de deux miroirs de Bragg à base de nitrures a permis d'améliorer la finesse du mode de cavité et l'élargissement de l'émission de GaN. Mais, ceci n'est pas suffisant pour espérer observer le régime de couplage fort. Nous avons donc conservé l'idée d'utiliser le miroir de silicium comme miroir bas de la cavité, mais pour cette structure, nous avons remplacé le miroir supérieur à base de nitrures par un miroir diélectrique composé de SiO_2 et Si_3N_4 Le schéma de la microcavité numérotée A269 est indiquée sur la figure 4.23. Le miroir diélectrique est composé de 4 paires SiO_2/Si_3N_4 d'épaisseur optique λ/4 ; les épaisseurs de ces couches ont été calculées de manière à ce que le miroir soit centré sur 3450 meV. La couche active de GaN a une épaisseur optique de λ/2. Les

épaisseurs des couches de GaN, d'AlN et d'AlGaN ont été calculées de manière à ce que l'énergie de résonance soit de 3440 meV, comme dans le cas des deux autres microcavités.

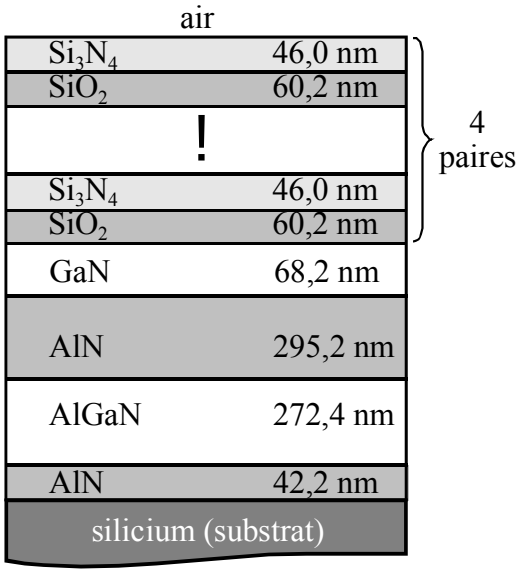


figure 4.23 : Structure de l'échantillon A269 : la cavité est formée de la couche active de GaN (λ/2) et des couches-tampon ; le miroir haut est constitué de 4 paires SiO_2/Si_3N_4 et le substrat de silicium joue le rôle du miroir bas.

La figure 4.24 présente le calcul du module au carré du champ électromagnétique à l'intérieur de la structure ainsi que le profil d'indice de réfraction. Le confinement du champ électromagnétique dans les couches formant la cavité est nettement visible, ainsi que l'effet du miroir de silicium. Par contre, l'allure de $|E|^2$ à l'intérieur du miroir supérieur n'est pas celle attendue, en effet, on observe bien une décroissance exponentielle dans le miroir, mais ensuite, $|E|^2$ augmente lorsqu'on s'approche de la surface de la structure. Ce phénomène était déjà visible sur les calculs du champ dans le cas des deux microcavités précédentes, mais il était moins marqué. Pour essayer de l'interpréter, nous avons, dans un premier temps, remplacé dans le calcul le miroir de silicium par un miroir d'aluminium, de réflectivité plus importante ; le calcul est reporté sur la figure 4.25 *(a)*, où $|E|^2$ a l'allure attendue. En fait, en substituant le silicium par de l'aluminium, la microcavité est équilibrée du point de vue des coefficients de réflexion. Nous avons ensuite calculé $|E|^2$ à l'intérieur du miroir diélectrique seul (figure 4.25 *(b)*). Etant donné que dans la microcavité A269, le miroir diélectrique réfléchit beaucoup plus que le miroir de silicium (85% pour le miroir diélectrique contre 30% pour le silicium), le champ électromagnétique total provient de la superposition du champ induit par la microcavité (figure 4.25 *(a)*) et celui induit par le miroir diélectrique (figure 4.25 *(b)*).

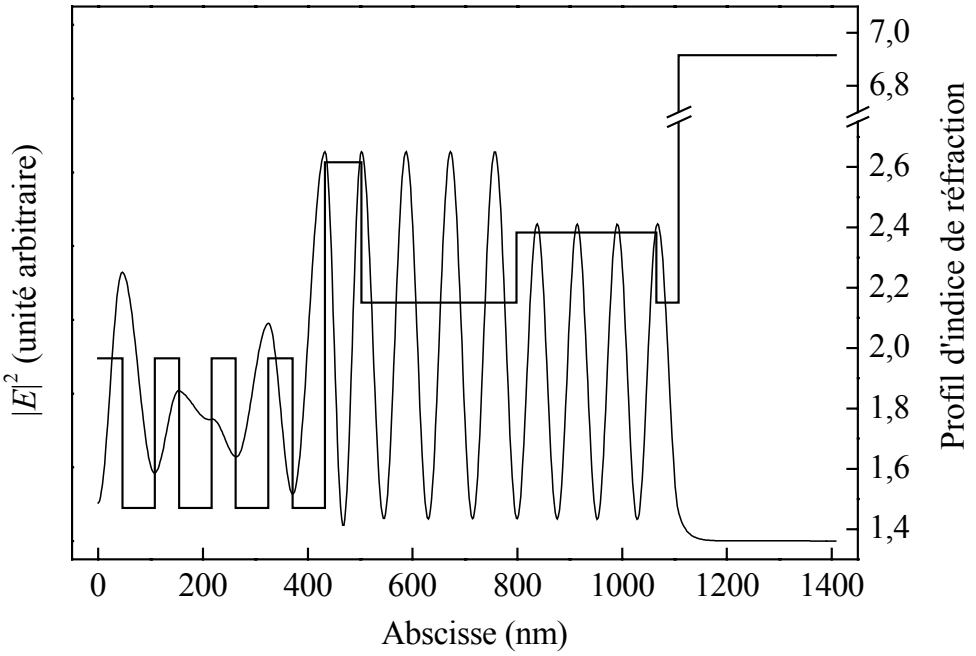


figure 4.24 : Module au carré du champ électromagnétique dans la structure calculé pour une énergie de 3400 meV et profil d'indice.

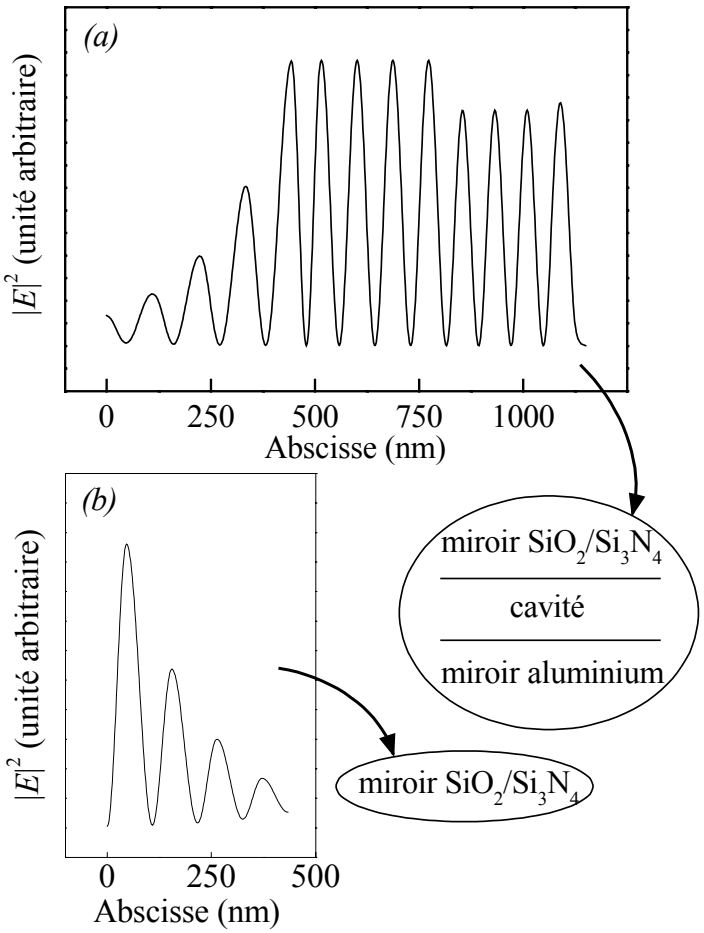


figure 4.25 : Module au carré du champ électromagnétique : (a) relatif à une structure du type de la microcavité A269, le miroir de silicium étant remplacé par de l'aluminium ; (b) relatif au miroir SiO_2/Si_3N_4.

L'ensemble de la structure excepté le miroir diélectrique a été élaboré par épitaxie sous jets moléculaires au CRHEA. Le miroir diélectrique a été déposé à l'Université de Sheffield [168].

4.2 Caractérisations optiques de la microcavité

4.2.1 Expériences de réflectivité à 5K

Nous avons effectué dans un premier temps des expériences de réflectivité sous incidence normale à *T*=5K sur l'échantillon. La figure 4.26 montre différents spectres obtenus en différents points de l'échantillon, leur position respective en mm par rapport au centre de la plaquette étant indiquée sur la figure. Sur le premier spectre en bas, le mode de cavité se situe à une énergie de 3320 meV et sa largeur à mi-hauteur est environ de 35 meV ; cette énergie est très loin de l'énergie de résonance attendue. En effet, les épaisseurs visées des couches du miroir AlN/AlGaN sont les mêmes que celles des deux microcavités précédentes (l'A247 et l'A284) pour lesquelles le mode de cavité se situait au centre de l'échantillon à une énergie proche de 3440 meV et les épaisseurs visées des couches de GaN, d'AlN et d'AlGaN constituant la cavité sont également les mêmes que dans le cas de l'A247. Ainsi, la différence entre la structure de l'A247 et celle-ci semble être le miroir haut de la microcavité.

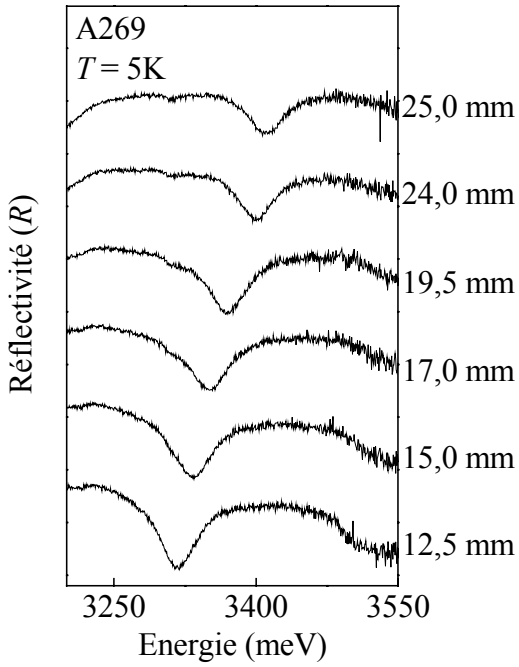


figure 4.26 : Spectre expérimental de réflectivité sous incidence normale à T=5K de la cavité λ/2 de GaN (échantillon A269). Les spectres ont été enregistrés en différents points sur l'échantillon. La position en mm par rapport au centre de la plaquette est indiquée à coté de chaque spectre.

La figure 4.27 *(a)* présente un spectre provenant d'un autre morceau de l'échantillon enregistré à l'Université de Sheffield et pour lequel la gamme d'énergie étudiée est plus large. Sur la figure 4.27 *(b)*, la réflectivité calculée du miroir diélectrique SiO_2/Si_3N_4 a été superposée au spectre expérimental de la microcavité. La largeur de la stop band de la microcavité est bien définie par rapport à celle de la stop band du miroir diélectrique, de plus, elle est centrée à l'énergie attendue théoriquement. Les trois pics présents sur le spectre et repérés par les flèches à des énergies de 3104 meV, 3356 meV et 3568 meV sont les trois modes de cavité et ils ne se situent pas aux énergies prévues théoriquement.

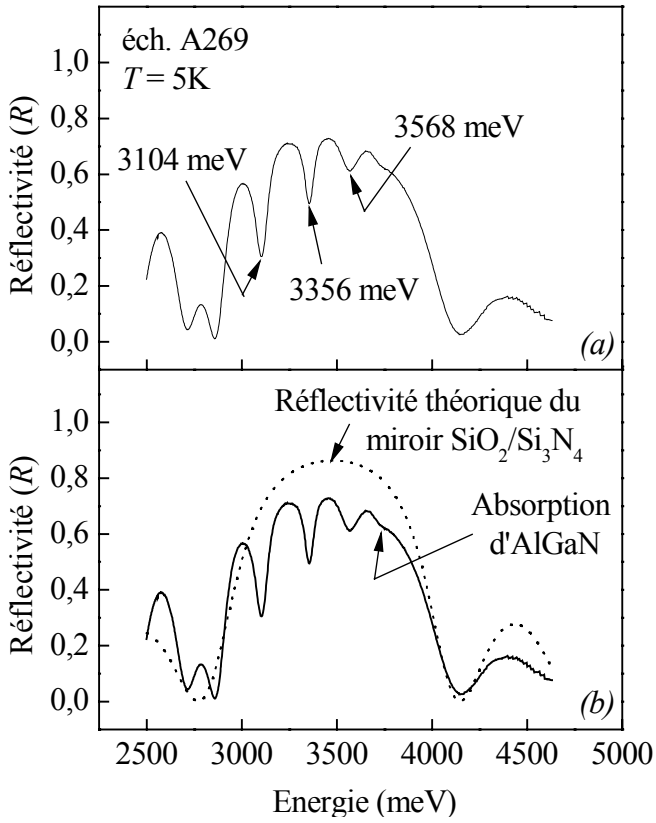


figure 4.27 : (a) Spectre de réflectivité sous incidence normale à 5K de la microcavité A269 effectué à l'Université de Sheffield ; (b) en traits pointillés, nous avons superposé la réflectivité théorique du miroir diélectrique.

Concernant les couches déposées à base de nitrures, le seul paramètre qui pourrait être responsable de cette différence d'énergie est la composition en aluminium de la couche d'AlGaN. Un morceau de l'échantillon avant le dépôt du miroir diélectrique a été conservé, ainsi des expériences de réflectivité et de photoluminescence ont pu être effectuées au CRHEA sur la demi-microcavité. Il en résulte que l'absorption à 5K de la couche d'AlGaN se situe autour de 3720 meV au centre de l'échantillon, au lieu de 3915 meV dans le cas des deux

microcavités précédentes. Ceci signifie donc que la composition de la couche d'AlGaN de l'A269 est différente de celle des deux autres échantillons. A partir de la courbe d'étalonnage établie par M. Leroux [137], la composition d'aluminium de la couche a été évaluée à 13%.

L'épaisseur de la couche d'AlGaN a été calculée avant la fabrication de la structure à partir de la formule suivante :

$$d=(2\lambda_0-\lambda_0/4)/n=7\lambda_0/(4n) \qquad (4.5)$$

avec : λ_0=360,4 nm et $n(\lambda_0)$=2,315, il vient donc : d=272,4 nm. Pour une énergie donnée, inférieure à l'énergie de bande interdite d'$Al_{0,13}Ga_{0,87}N$, l'indice de réfraction d'$Al_{0,13}Ga_{0,87}N$ est supérieur à celui d'$Al_{0,20}Ga_{0,80}N$. Si l'épaisseur de la couche d est égale à 272,4 nm, la longueur d'onde de résonance ($\lambda_0=4\,nd/7$) est donc plus grande que celle prévue par le calcul, donc le mode de cavité se trouve à une énergie plus basse.

Sur le spectre enregistré à 25 mm du centre de la plaquette - c'est-à-dire au bord -, le mode de cavité possède une énergie qui n'excède pas 3415 meV. Cette énergie n'est pas suffisamment élevée pour l'étude de l'interaction photon-exciton de GaN.

4.2.2 Réflectivité résolue en angle à 5K

La solution envisagée pour déplacer le mode de cavité au-dessus de 3415 meV est la réflectivité résolue en angle. La série de spectres présentée sur la figure 4.28 a été enregistrée en se plaçant proche du bord de la plaquette - à 24,5 mm du centre. Les expériences ont été effectuées à une température de 5K pour un angle d'incidence variant de 42° à 65°. La figure 4.28 *(a)* présente les spectres dans le cas de la polarisation *TM* et la figure 4.28*(b)* ceux relatif à la polarisation *TE*. Sur cette figure, nous apercevons la signature du régime de couplage fort, à savoir l'anticroisement entre le mode de cavité et les excitons de GaN.

Dans le cas de la polarisation *TM*, pour θ=42°, le mode de cavité se trouve à basse énergie, le pic correspondant aux excitons de GaN apparaît à plus haute énergie, mais avec une amplitude très faible et une largeur importante. A mesure que l'angle d'incidence augmente, l'énergie du mode de cavité se déplace vers les hautes énergies et l'amplitude du mode excitonique augmente. Entre 52° et 54°, la séparation en énergie entre les deux modes est minimale. Puis, pour des angles plus grands, les modes s'éloignent de plus en plus et le couplage disparaît progressivement ; le mode à plus haute énergie s'élargit à cause de l'absorption due au continuum d'états des excitons. Le fait que ce soit un continuum signifie qu'il ne change pas le splitting exciton-photon, mais qu'il modifie l'allure des raies [6].

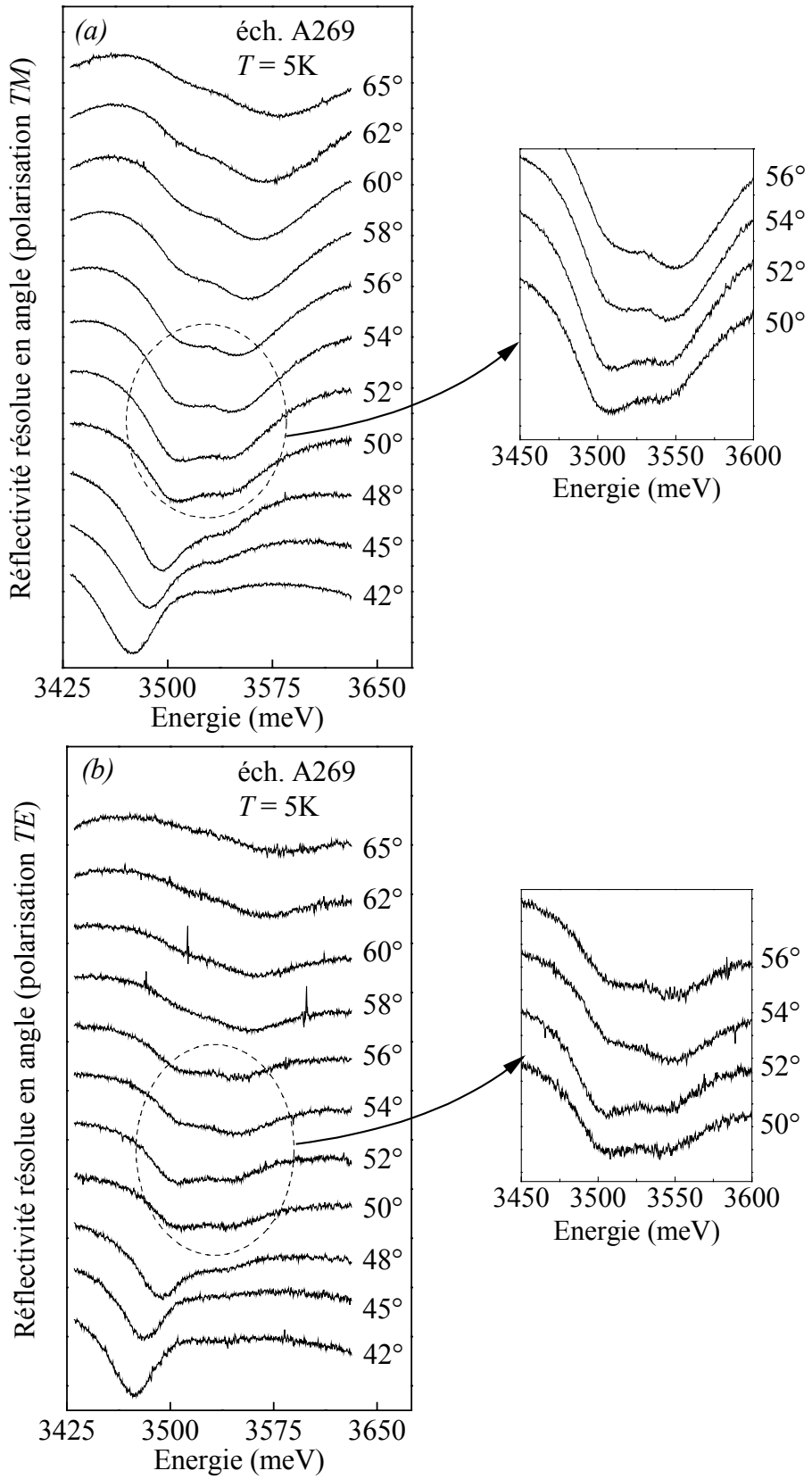


figure 4.28 : Spectres de réflectivité résolue en angle de la microcavité A269 à une température de 5K pour la polarisation TM (a) et pour la polarisation TE (b) ; les graphes de droite sont des zooms de l'anticroisement entre les deux modes, signature du régime de couplage fort. Les spectres ont été enregistrés en un point situé à 24,5 mm du centre de la plaquette.

Dans le cas de la polarisation *TE*, l'anticroisement s'effectue également entre 52° et 54° mais à un angle légèrement plus haut et le couplage est moins prononcé que dans le cas de la polarisation *TM* ; nous voyons également que dans le cas de cette polarisation l'intensité des pics est réduite par rapport à la polarisation *TM*. L'origine physique de cette diminution peut être comprise en effectuant un calcul analytique prenant en compte les multiples réflexions sur les miroirs de Bragg [169].

Sur la figure 4.29, les simulations (à droite) sont comparées aux spectres expérimentaux (à gauche) dans le cas des deux polarisations *TM (a)* et *TE (b)*. Dans nos calculs, les excitons de GaN sont modélisés par un oscillateur de Lorentz sans dispersion spatiale tel qu'il est décrit dans le chapitre 1. Seulement deux oscillateurs ont été introduits prenant en compte les excitons A et B et l'exciton C n'a pas été considéré car son énergie est plus élevée et sa force d'oscillateur plus faible [170]. Nous avons tenu compte du désordre qui élargit les raies excitoniques et l'avons traduit par un élargissement inhomogène ; la constante diélectrique du milieu prend ainsi la forme suivante :

$$\varepsilon_r(E) = \varepsilon_b + \underbrace{\int \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta_A} \frac{B}{x^2 - E^2 + j\hbar\Gamma_A E} e^{\frac{-(x-E_{exc0A})^2}{\Delta_A^2}} dx}_{\text{exciton A}} + \underbrace{\int \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta_B} \frac{B}{x^2 - E^2 + j\hbar\Gamma_B E} e^{\frac{-(x-E_{exc0B})^2}{\Delta_B^2}} dx}_{\text{exciton B}} \quad (4.6)$$

où E_{exc0} est l'énergie de la transition excitonique considérée (*A* ou *B*), *B* est le paramètre lié à la force d'oscillateur, $\hbar\Gamma$ représente l'élargissement homogène et Δ l'élargissement inhomogène de cette transition *A* ou *B*.

Dans les calculs, les paramètres utilisés pour la modélisation des excitons *A* et *B* sont résumés dans le tableau 4.1.

	exciton *A*	exciton *B*
E_{exc} (meV)	3525	3535
Δ (meV)	28	28
$\hbar\Gamma$ (meV)	0,1	0,1
B (meV^2)	40000	30000

tableau 4.1 : Paramètres utilisés pour la modélisation des excitons A et B ; E_{exc} est l'énergie de la transition, Δ l'élargissement inhomogène, $\hbar\Gamma$ l'élargissement homogène et B le paramètre lié à la force d'oscillateur.

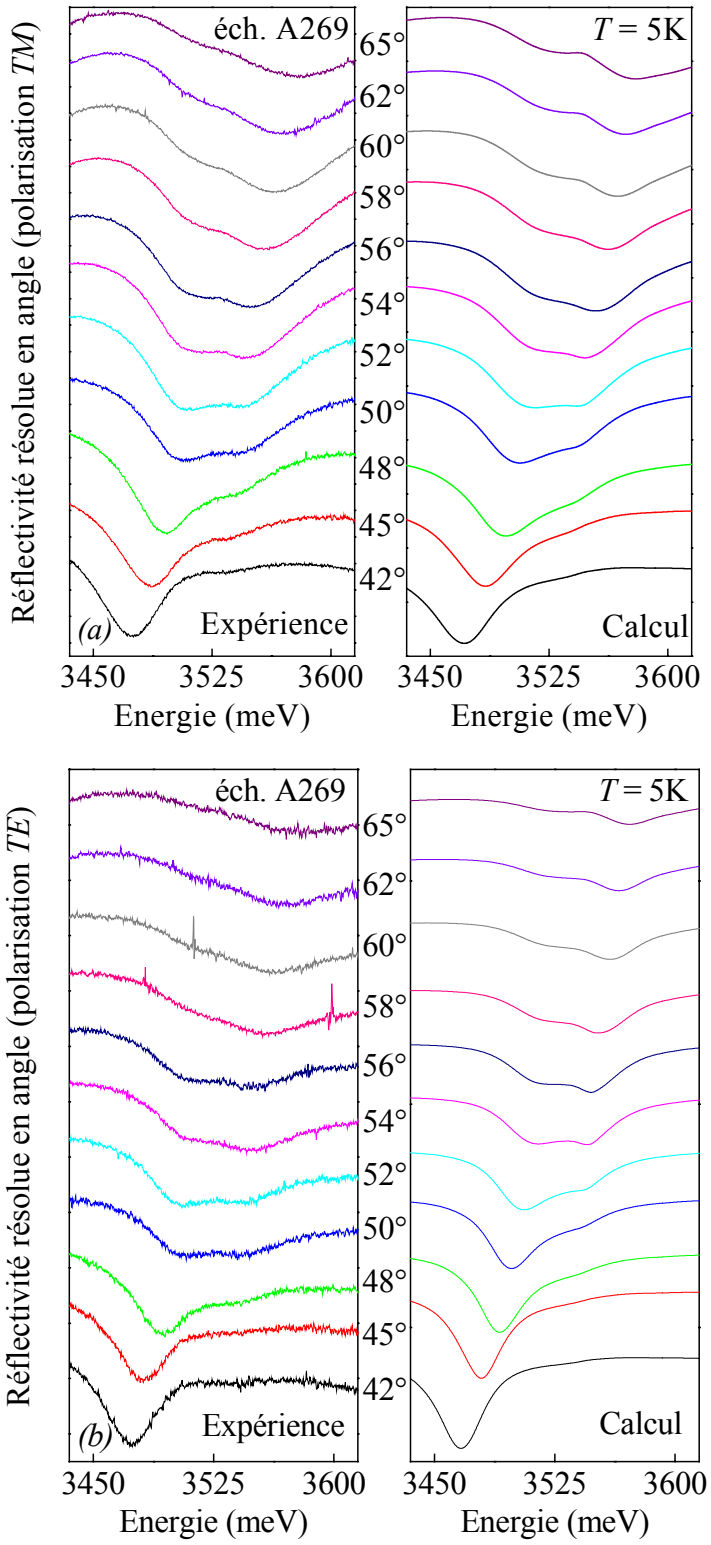


figure 4.29 : Spectres expérimentaux de réflectivité résolue en angle de la microcavité A269 (à gauche) comparés aux spectres théoriques (à droite) à T=5K pour la polarisation TM (a) et pour la polarisation TE (b) ; dans le calcul, les deux excitons A et B sont pris en compte avec E_{0A}=3525 meV, E_{0B}=3535 meV, $\hbar\Gamma_{A(B)}$= 0,1 meV et $\Delta_{A(B)}$=28 meV.

Les valeurs du paramètre *B* pour les deux excitons A et B sont en très bon accord avec les valeurs précédemment publiées [114]. Le paramètre d'élargissement Δ a pour valeur 28 meV pour les deux excitons, ce qui conduit à une largeur à mi-hauteur de la raie de 45 meV (équation (1.16)) pour chaque exciton. Les énergies des deux transitions ont été fixées à 3525 et 3535 meV afin de tenir compte au mieux des positions des deux modes ; ces valeurs sont relativement élevées du fait de la présence de contraintes sur la couche active de GaN engendrées par le miroir diélectrique et la couche épaisse d'AlN [171].

Les valeurs de l'indice d'AlN sont les mêmes que pour les précédentes microcavités et l'indice d'AlGaN est ajusté à partir de celui d'$Al_{0,19}Ga_{0,81}N$. Concernant les indices de SiO_2 et Si_3N_4, les indices sont issus de la littérature [140]. Concernant GaN, son indice tient compte d'une part, des excitons A et B présents dans la couche et d'autre part, de l'absorption bande à bande, en raccordant les deux contributions par un polynôme d'ordre 3 ; le détail de la procédure est fourni dans l'annexe B.

Les positions en énergies des creux présents sur les spectres de réflectivités sont reportées sur la figure 4.30 en fonction de l'angle d'incidence.

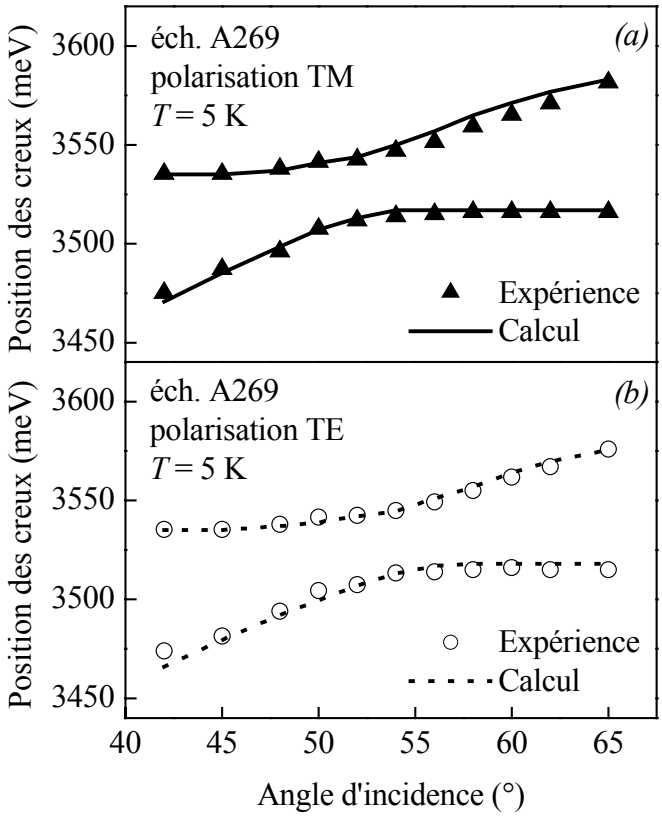


figure 4.30 : Position en énergie des deux creux de réflectivité en fonction de l'angle d'incidence mettant en évidence l'anticroisement entre les deux modes (a) dans le cas de la polarisation TM et (b) dans le cas de la polarisation TE ; les traits pointillés correspondent aux calculs.

Le déplacement du mode de cavité vers les hautes énergies est clairement visible ainsi que l'anticroisement entre le mode photonique et le mode excitonique. Pour un angle donné, dans le cas de la polarisation *TM*, le mode de cavité est observé à une énergie plus haute que pour la polarisation *TE*, la différence en énergie étant maximale pour θ=65° et valant 6 meV. Ceci s'explique par le fait que la différence de phase et la pénétration à l'intérieur du miroir diélectrique varient en fonction de la polarisation.

Concernant le splitting de Rabi, nous avons mesuré une valeur de 30,8 meV pour θ=52° dans le cas de la polarisation *TM* et une valeur de 31,1 meV pour θ=54° dans le cas de la polarisation *TE*. Finalement, compte tenu de l'élargissement spectral des signaux de réflectivité, une valeur de 31 ± 1 meV a été retenue quelque soit la polarisation.

4.2.3 Réflectivité résolue en angle à 77K et à 300K

Des expériences de réflectivité résolue en angle à 77K ont été également effectuées dans des conditions similaires et au même endroit sur l'échantillon. La figure 4.31 représente l'ensemble des spectres expérimentaux enregistrés dans le cas des deux polarisations *TM (a)* et *TE (b)*. Le couplage exciton-photon est clairement visible. L'anticroisement entre les deux branches excitonique et photonique s'effectue entre 50° et 52°.

Comme à une température de 5K, l'anticroisement est moins prononcé dans le cas de la polarisation *TE*.

Le dédoublement de Rabi atteint la même valeur qu'à une température de 5K et vaut 31 ± 1 meV quelque soit la polarisation.

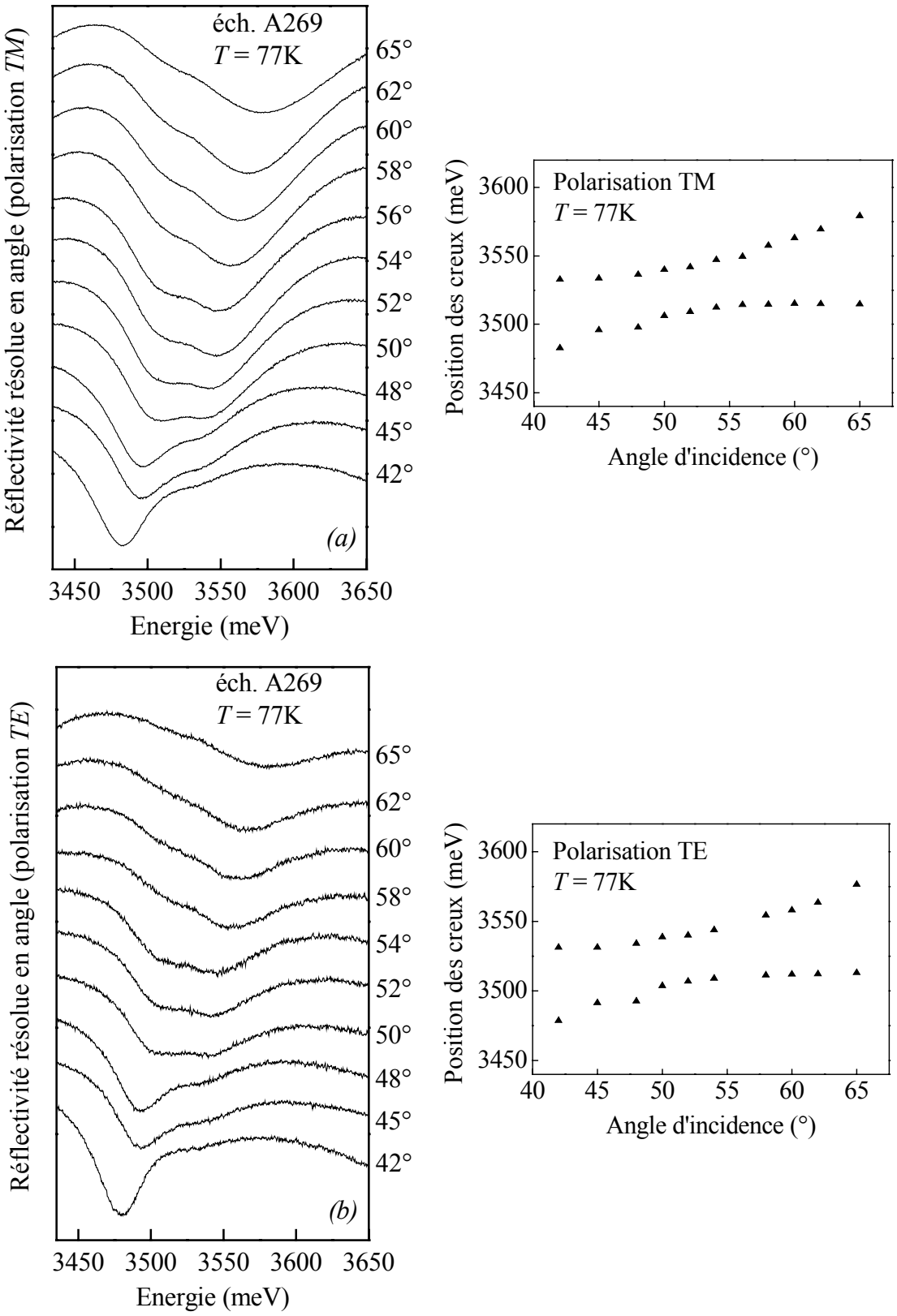


figure 4.31 : Spectres expérimentaux de réflectivité résolue en angle de la microcavité A269 à une température de 77K pour les polarisations TM (a) et TE (b) ainsi que les courbes représentant l'anticroisement en énergie entre les deux modes en fonction de l'angle d'incidence.

Sur la figure 4.32, les spectres relatifs à une température de 300K sont présentés dans le cas des polarisations *TM (a)* et *TE (b)*.

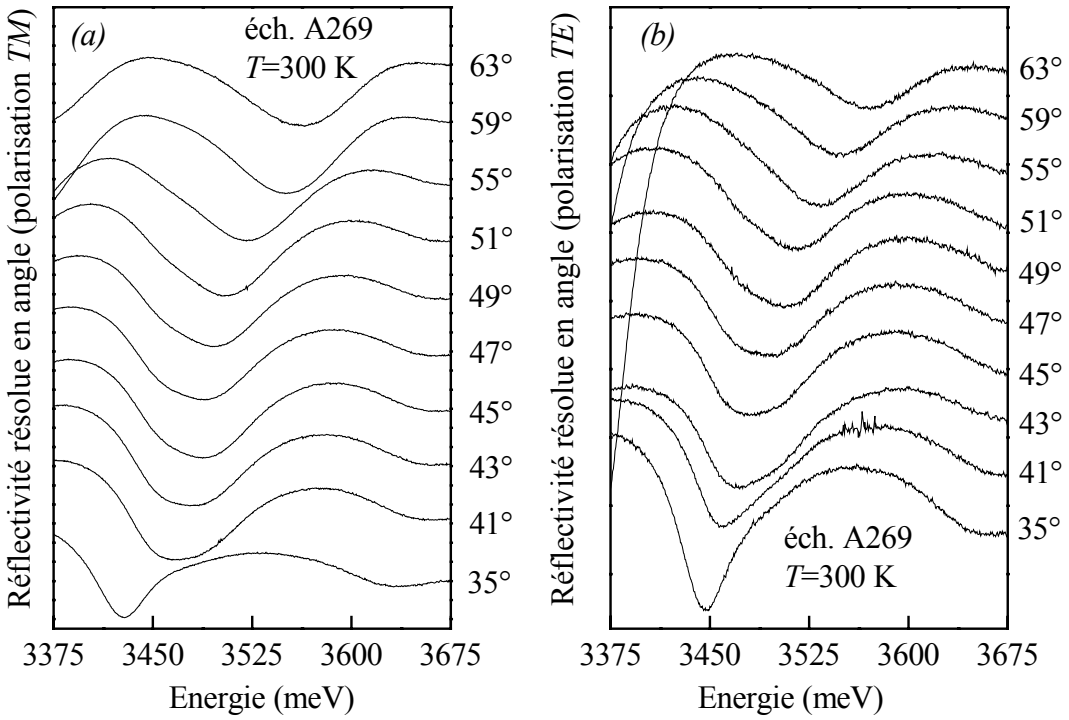


figure 4.32 : Spectres expérimentaux de réflectivité résolue en angle à une température de 300K de la microcavité A269 pour la polarisation TM (a) et pour la polarisation TE (b).

L'allure de ces spectres laisse présager la présence du régime de couplage faible : en effet, les deux caractéristiques exciton et photon ne sont pas discernables, par contre, le transfert du mode de cavité vers les hautes énergies est bien résolu ; pour θ=35°, le mode est symétrique, il devient asymétrique à partir de 41° jusqu'à environ 55° où il reprend une forme symétrique. Cette évolution du régime de couplage fort vers le régime de couplage faible est due à l'augmentation de la largeur excitonique avec la température [172,173] (agitation thermique : kT =26 meV à 300 K).

4.2.4 Photoluminescence à 5K

Nous avons effectué des expériences de photoluminescence résolue en angle avec le nouveau dispositif mis en place récemment au laboratoire. Le schéma du spectromètre ainsi que son principe de fonctionnement sont décrits dans le chapitre 2. La figure 4.33 présente l'ensemble des spectres expérimentaux enregistrés. Les expériences ont été réalisées à une température de 5K et les angles de détection sont indiqués à côté de chaque spectre sur la

figure. La représentation polaire de la figure 4.33 montre que le maximum de photoluminescence est atteint pour un angle d'environ 46°, avec une largeur à mi-hauteur de 27 meV.

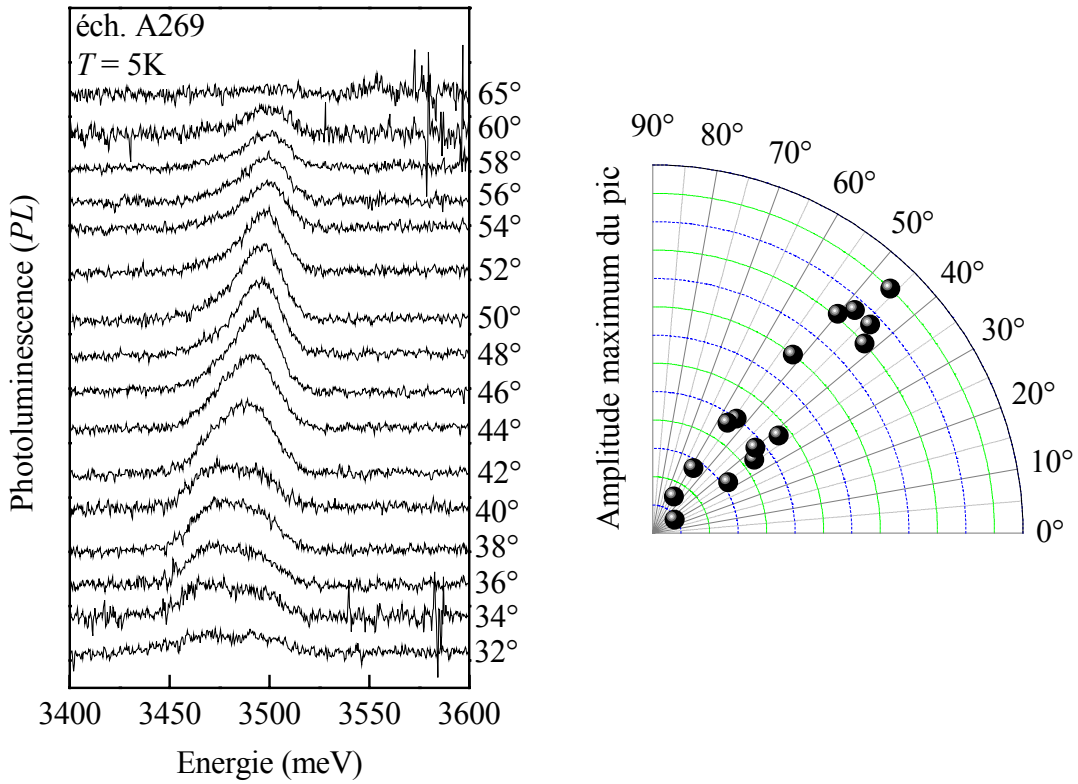


figure 4.33 : Spectres de photoluminescence à une température de 5K pour différents angles de détection ainsi que diagramme polaire de l'intensité maximum du pic.

Les spectres ne présentent qu'une seule raie dont l'intensité varie en fonction de l'angle de détection. Sur la figure 4.34, trois spectres de photoluminescence pour des angles de détection de 50°, 52° et 54° sont comparés à trois spectres de réflectivité correspondant aux mêmes angles d'incidence. La position en énergie du pic de photoluminescence est proche de celle de la branche basse en réflectivité. Or, en régime de couplage faible, à la position de résonance, le pic de luminescence de la structure doit se trouver à l'énergie correspondant aux transitions excitoniques hors couplage, c'est-à-dire autour de 3530 meV, ce qui n'est pas le cas sur les spectres présentés.

Ainsi, le pic de photoluminescence présent sur les spectres de la figure 4.33 peut être attribué à l'émission spontanée du polariton bas, dans le régime de couplage fort [174]. Nous ne percevons pas d'émission relative au polariton haut à une si basse température à cause des effets de thermalisation [6,9,15].

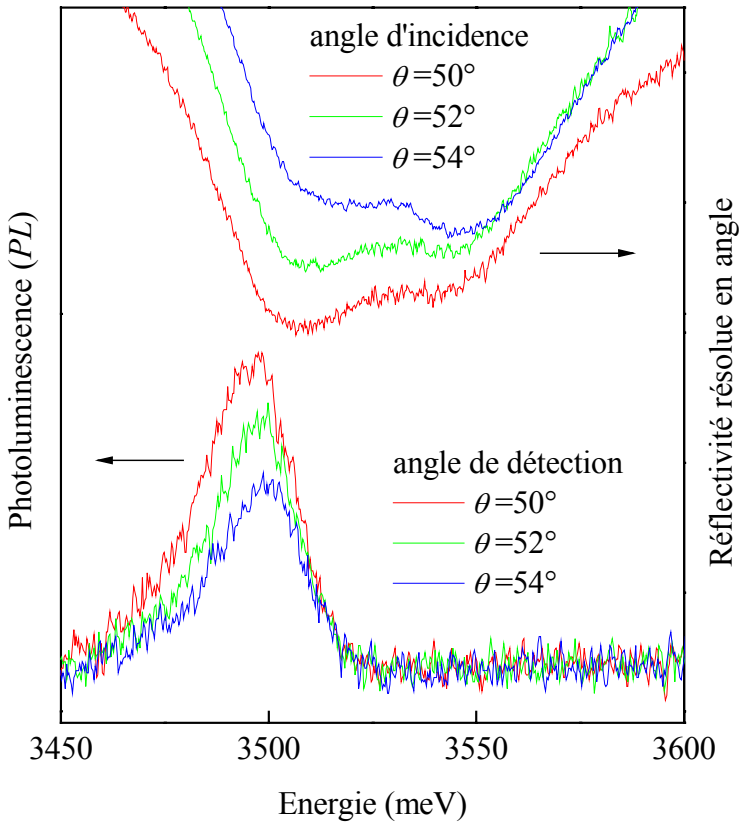


figure 4.34 : Spectres de photoluminescence à 5K pour des angles de détection de 50°, 52° et 54°, comparés aux spectres de réflectivité pour des angles d'incidence de 50°, 52° et 54° relatif à la microcavité A269.

L'utilisation d'expériences de photoluminescence pour déterminer une valeur du dédoublement de Rabi est ainsi limitée, puisque à basse température, la branche haute du polariton est souvent absente [15,72,174,175].

4.3 Discussion sur la microcavité A269

Le régime de couplage fort a donc été observé dans une microcavité à base de GaN lors d'expériences de réflectivité résolue en angle [176]. Ce couplage est nettement visible jusqu'à une température de 77K. Par contre, à une température de 300 K, nous le devinons à peine à cause de l'agitation thermique. Le fait d'avoir remplacé le miroir AlN/AlGaN de l'A247 par un miroir SiO_2/Si_3N_4 n'a pas considérablement modifié la largeur à mi-hauteur du mode de cavité (qui est de 35 meV dans cette structure), mais par contre, la couche active de GaN est de meilleure qualité puisque le régime de couplage fort est détecté. Les spectres de photoluminescence ne mettent pas en évidence l'anticroisement, puisque seul le polariton bas est observé.

Une des principales particularités de cette structure réside dans le fait que la qualité optique de la microcavité n'est pas optimale, à savoir que les miroirs haut et bas ont des coefficients de réflexion peu élevés (respectivement 30% et 85%), comparés aux valeurs recensées dans la littérature en ce qui concerne les microcavités à puits quantiques (par exemple [20,177]). Dans ces dernières, les transitions des puits sont très fines ; ainsi afin de rendre le couplage maximal, il faut que le mode de cavité soit également très fin, d'où la très haute réflectivité des miroirs de Bragg (> 99%). Dans le cas de la microcavité A269, les transitions excitoniques ont un élargissement plus important (45 meV) et donc une qualité optique maximale n'est pas indispensable pour observer le couplage fort. Par ailleurs, dans le cas d'une microcavité massive telle que l'A269, des coefficients de réflexion trop importants entraînent une diminution importante de l'amplitude des deux modes comme le montre la figure 4.35. Pour un coefficient de réflexion de 99,5%, l'amplitude des modes est tellement faible que nous pouvons considérer qu'ils ne sont plus décelables.

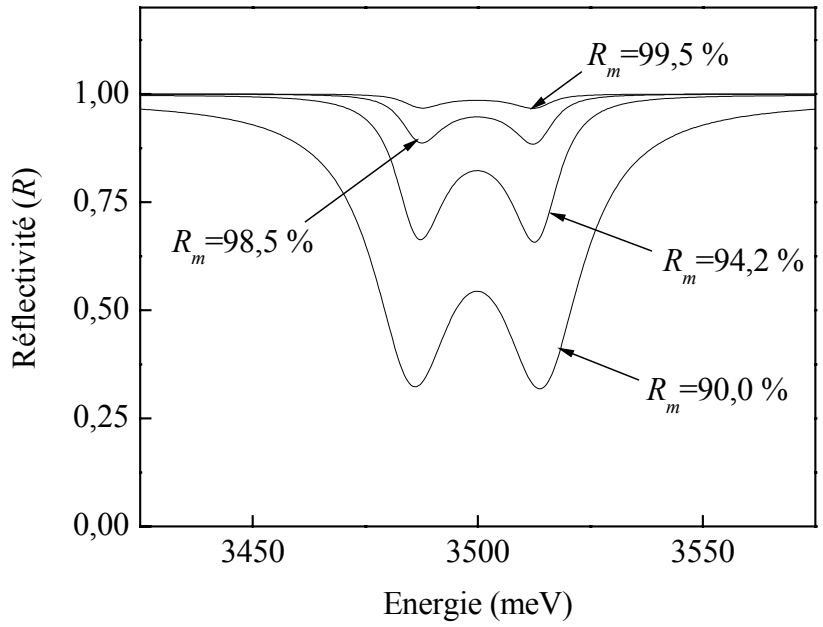


figure 4.35 : Réflectivité théorique d'une microcavité massive (λ/2) comprise entre deux miroirs de Bragg ayant le même coefficient de réflexion (R_m) ; les quatre spectres sont calculés pour différentes valeurs de R_m.

Ces premiers résultats sont très encourageants, mais les propriétés optiques de la microcavité doivent être encore améliorées et surtout la qualité de la couche active de GaN. Nous allons voir maintenant quelles sont les perspectives à court terme puis à moyen terme que nous pouvons envisager.

5 Perspectives

Le couplage fort exciton-photon a donc été observé expérimentalement dans une microcavité massive à base de GaN à des températures de 5K et 77 K ; l'objectif est maintenant de le conserver à température ambiante. Pour y parvenir, deux possibilités s'offrent à nous : la première consiste à augmenter le dédoublement de Rabi (grâce à l'utilisation de microcavités massives) et la seconde à diminuer l'élargissement de l'émission de GaN (microcavités à puits quantiques).

5.1 Augmentation de l'épaisseur de la couche active

Afin d'évaluer la valeur maximum du dédoublement de Rabi que nous pourrions atteindre dans une structure du type de la microcavité A269, plusieurs calculs ont été effectués à partir de la structure schématisée sur la figure 4.36; elle est identique à celle de l'A269, seule l'épaisseur de la couche active de GaN est modifiée.

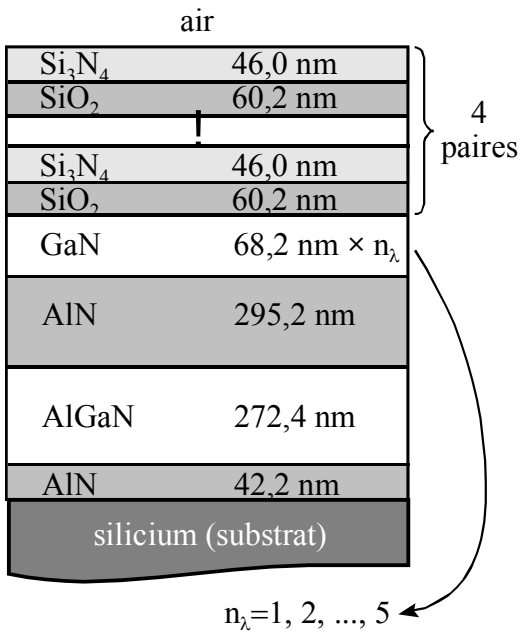


figure 4.36 : Structure utilisée pour effectuer les calculs relatifs au dédoublement de Rabi ; elle est identique à celle de la microcavité A269, excepté l'épaisseur de la couche active de GaN qui prendra successivement les valeurs : λ/2, λ, 3λ/2, 2λ et 5λ/2.

Les simulations de la réflectivité de cette structure ont été effectuées en fonction de l'angle d'incidence. Les deux excitons *A* et *B* sont modélisés par deux oscillateurs de Lorentz ayant une énergie de résonance respective de 3525meV et 3535 meV, un paramètre *B* lié à la

force d'oscillateur respectif de 40000 meV^2 et 30000 meV^2, un élargissement homogène $\hbar\Gamma$de 0,1 meV et un élargissement inhomogène Δ de 28 meV. A partir de ces calculs, le dédoublement de Rabi a été déterminé théoriquement pour les différentes épaisseurs de la couche active de GaN ; les résultats sont reportés sur le graphe de la figure 4.37.

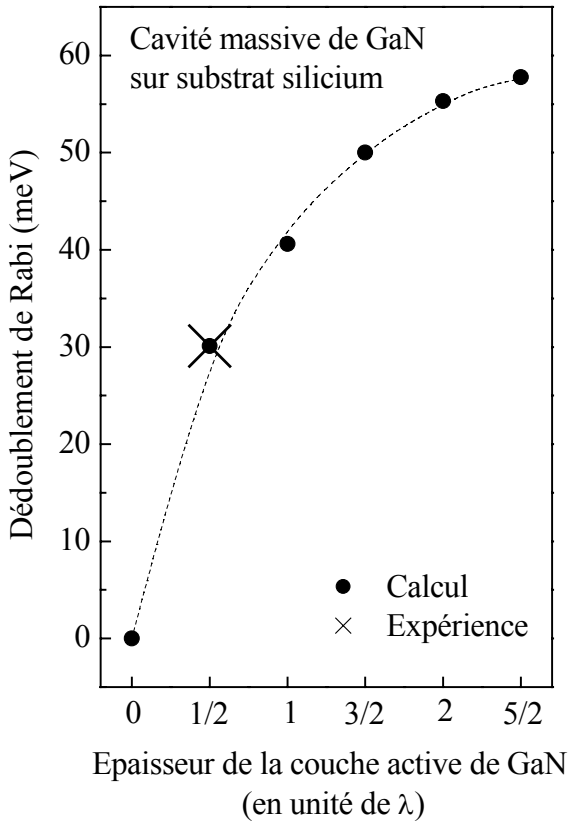


figure 4.37 : Evolution du dédoublement de Rabi en fonction de l'épaisseur de la couche active de GaN insérée dans une microcavité du type de l'A269 ; une valeur maximum de 60 meV est envisagée dans une telle structure ; le trait en pointillés est un guide pour les yeux.

Le dédoublement de Rabi augmente avec l'épaisseur de la couche active *d*. Ceci peut s'expliquer qualitativement à partir de la formule suivante [82] :

$$\hbar\Omega_{rabi} = 2\sqrt{\frac{B}{2\varepsilon_b}\frac{d}{L_{eff}}} \qquad (4.7)$$

Dans cette formule, E_{exc0} est l'énergie de résonance des excitons et *B* est le paramètre lié à la force d'oscillateur de l'exciton considéré. L_{eff} est la longueur effective de cavité telle que $L_{eff}=d_c+L_{DBRs}$ avec d_c : épaisseur physique de la cavité et L_{DBRs} : longueur de pénétration du champ électromagnétique dans les miroirs. Dans le cas d'une microcavité massive : $d=d_c$ et l'expression (4.7) peut alors s'écrire sous la forme :

$$\hbar\Omega_{rabi} = 2\sqrt{\frac{B}{2\varepsilon_b}\frac{1}{1+L_{DBRs}/d}} \tag{4.8}$$

Ainsi, une augmentation de l'épaisseur de la cavité entraîne une augmentation du rapport d/L_{eff} et du splitting de Rabi [163].

Ainsi, avec une structure de ce type, nous pouvons espérer obtenir un dédoublement de Rabi de 60 meV pour une épaisseur optique de la couche active de GaN de 5λ/2 ; une telle valeur permettrait l'observation du régime de couplage fort à température ambiante.

5.2 Microcavités à puits quantiques

La difficulté majeure lors de l'élaboration d'une microcavité massive à base de GaN est le contrôle de la qualité de la couche active de GaN. En effet, la largeur de l'émission de cette couche excède 40 à 45 meV et l'obtention du régime de couplage fort s'en trouve fortement compromis. Aussi, l'introduction de puits quantiques de GaN à l'intérieur de la microcavité pourrait diminuer l'élargissement de l'émission et augmenter la force d'oscillateur [178] sous certaines conditions : l'épaisseur des puits devra être soigneusement choisie de manière à ce que la largeur spectrale de l'émission soit la plus faible possible tout en minimisant l'effet du champ électrique. En effet, les structures hexagonales à puits quantiques AlGaN/GaN se distinguent des structures à symétrie cubique par la présence d'un champ électrique interne, induit par des phénomènes de piézoélectricité et de polarisation spontanée. L'effet de ce champ électrique varie énormément en fonction de l'épaisseur des puits et modifie les propriétés excitoniques des puits. Il affecte l'énergie des transitions et surtout le recouvrement des fonctions d'onde ; la force d'oscillateur des transitions excitoniques est donc considérablement réduite.

Aussi, dans l'optique d'étudier des microcavités à puits quantiques, nous avons caractérisé un échantillon contenant plusieurs puits quantiques ; à partir des résultats relatifs à cette structure, nous avons simulé deux types de microcavités à puits quantiques afin d'évaluer le splitting de Rabi envisageable dans une telle microcavité.

5.2.1 Etude de puits quantiques

Nous avons étudié un échantillon constitué de 6 puits quantiques dont la structure est détaillée sur la figure 4.38. Les puits quantiques de GaN ont une épaisseur de 3 nm et les barrières d'$Al_{0,11}Ga_{0,89}N$ 10 nm.

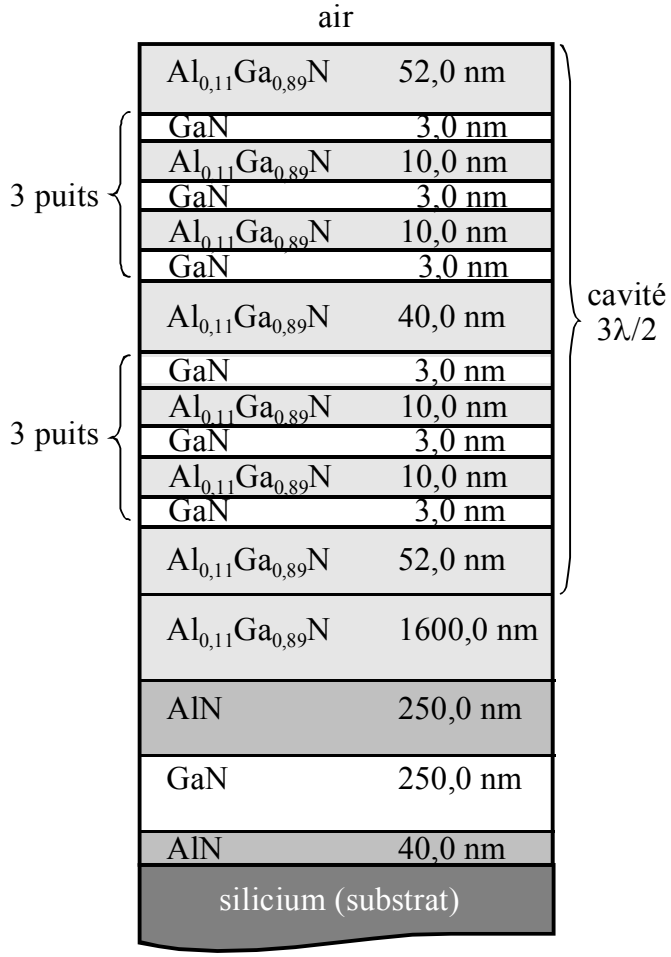


figure 4.38 : Schéma de l'échantillon A396 constitué de 6 puits quantiques de GaN d'épaisseur 3 nm.

Cette structure n'est pas régulière dans le sens où les distances entre les différents puits ne sont pas constantes. En fait, elle correspond à une cavité 3λ/2, dans laquelle sont insérés des puits quantiques qui sont placés aux ventres du champ électromagnétique comme le montre la figure 4.39.

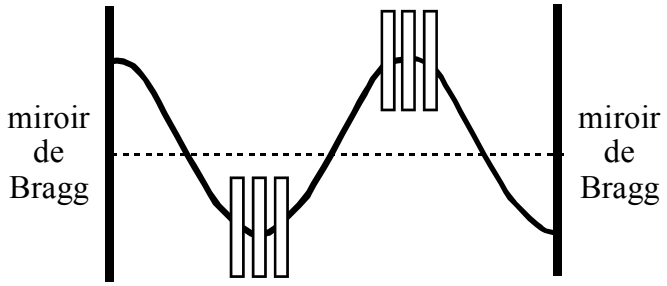


figure 4.39 : Profil du champ électromagnétique à l'intérieur d'une microcavité 3λ/2 entre deux miroirs de Bragg. Les puits quantiques sont placés aux ventres du champ électromagnétique.

Le but de cette étude est de déterminer l'énergie, l'élargissement et surtout la force d'oscillateur des transitions liées aux puits quantiques. Etant donnée la structure complexe de l'échantillon, des expériences de réflectivité ne sont pas suffisantes pour permettre la détermination de ces paramètres. En effet, sur la figure 4.40 *(a)*, le spectre expérimental de réflectivité obtenu à une température de 5K sous incidence normale ne permet pas d'identifier clairement la contribution des puits quantiques. Des expériences de photoréflectivité ont donc été effectuées de manière à repérer sans ambiguïté la position en énergie ainsi que la largeur spectrale des transitions ; la figure 4.40 *(b)* présente le spectre expérimental de photoréflectivité en trait plein. La contribution des puits quantiques est très aisément mise en évidence au centre de la figure.

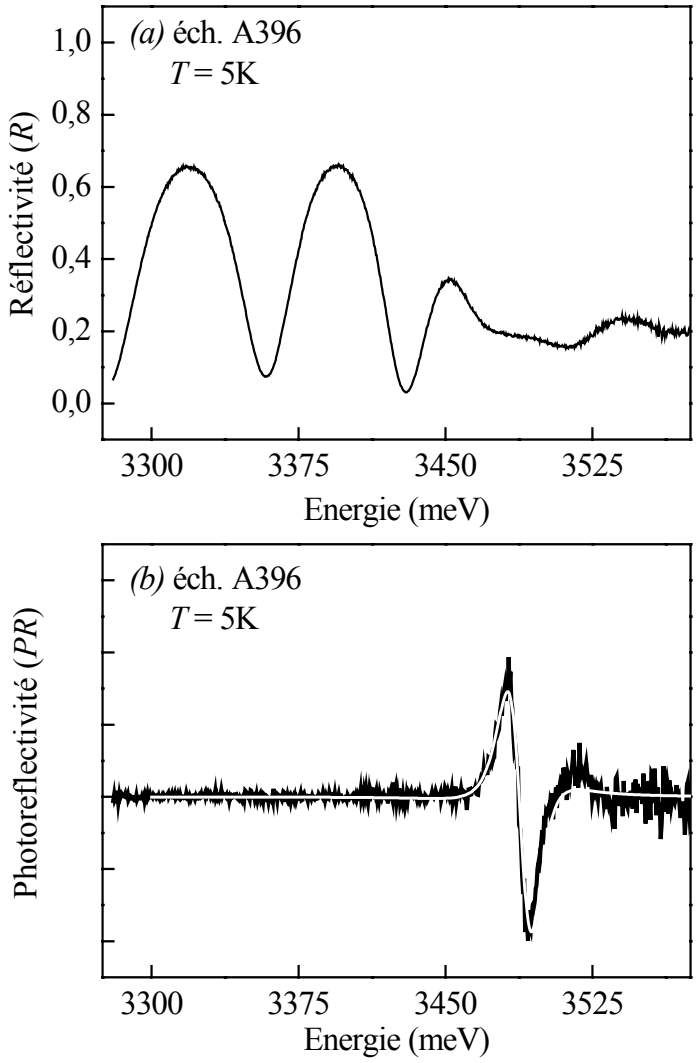


figure 4.40 : (a) Spectre expérimental de réflectivité sous incidence normale à une température de 5K de l'échantillon A396 contenant 6 puits quantiques. (b) En trait plein, spectre expérimental de photoréflectivité de l'échantillon A396 enregistré dans les mêmes condition et, en traits pointillés, l'ajustement théorique correspondant.

D'après le modèle décrit dans le chapitre 2, le signal des puits en photoréflectivité se traduit par l'expression suivante (expression (2.46)) :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{C\cos(\theta + 3\psi)}{(x^2 + \Gamma^2)^{3/2}} \tag{4.9}$$

où x est l'énergie de la transition étudiée, C et θ sont deux paramètres d'ajustement et Ψ=arg(x–j Γ) où Γ est l'élargissement de la transition. Sur la figure 4.40 *(b)*, l'ajustement du spectre expérimental à partir de cette expression est superposé au spectre expérimental en trait plein blanc. Les paramètres utilisés dans le calcul sont les suivants : x=3489 meV, C=6500, θ=19,35 et Γ=15 meV.

Le signal des puits quantiques se trouve donc à une énergie de 3489 meV ; il est maintenant possible d'étudier le spectre de réflectivité de la figure 4.40 *(a)* afin de déterminer la force d'oscillateur de la transition. Les puits quantiques sont modélisés en réflectivité par un oscillateur de Lorentz de la forme :

$$\varepsilon_r(E) = \varepsilon_b + \frac{B}{E_0^2 - E^2 + j\,\hbar\Gamma\,E} \tag{4.10}$$

avec E_0 l'énergie de la transition, B le paramètre lié à la force d'oscillateur et $\hbar\Gamma$ l'élargissement de la transition. La figure 4.41 reporte le spectre expérimental de réflectivité en trait plein et l'ajustement correspondant en traits pointillés.

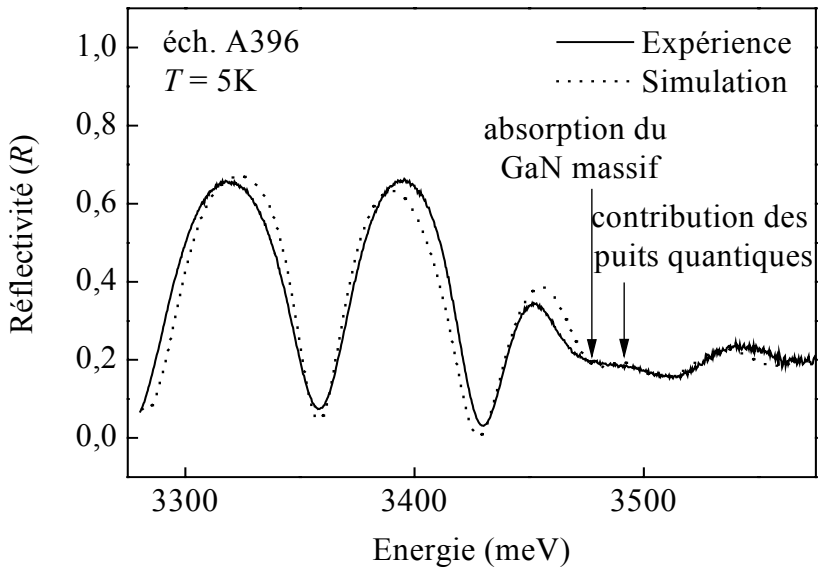


figure 4.41 : Spectre de réflectivité de l'échantillon A396, constitué de 6 puits quantiques de GaN (L_{QW}=3 nm). L'accord expérience-théorie est obtenu avec les paramètres suivants : E_0=3489 meV, B=50000 meV^2 et Γ=15 meV.

L'absorption bande à bande du GaN massif ainsi que la contribution des puits quantiques sont repérées par les flèches sur la figure. La valeur du paramètre *B* lié à la force d'oscillateur utilisée dans le calcul est : B=50000 ± 10000 meV^2, l'incertitude étant due au fait que la transition est très peu marquée sur le spectre.

A partir d'expériences combinées de réflectivité et de photoréflectivité, la transition relative à 6 puits quantiques de GaN de 3 nm a pu être clairement identifiée : elle se situe à une énergie de 3489 meV, sa largeur est de 15 meV et le paramètre *B* lié à la force d'oscillateur est de 50000 ± 10000 meV^2.

5.2.2 Simulation d'une microcavité à puits quantiques

Notre objectif est maintenant d'utiliser les résultats obtenus sur l'échantillon précédent de manière à estimer les valeurs du dédoublement de Rabi susceptibles d'être atteintes dans des microcavités à puits quantiques.

Pour cela, nous avons simulé une microcavité d'épaisseur optique 3λ/2 dans laquelle des puits quantiques de GaN d'épaisseur L_{QW}=3 nm ont été insérés ; les barrières d'$Al_{0,11}Ga_{0,89}N$ ont une épaisseur L_b=10 nm. Deux structures sont considérées : la première contient 6 puits quantiques et la seconde 8. Sur la figure 4.42, nous présentons les schémas de ces deux structures que nous noterons par la suite respectivement (1) et (2).

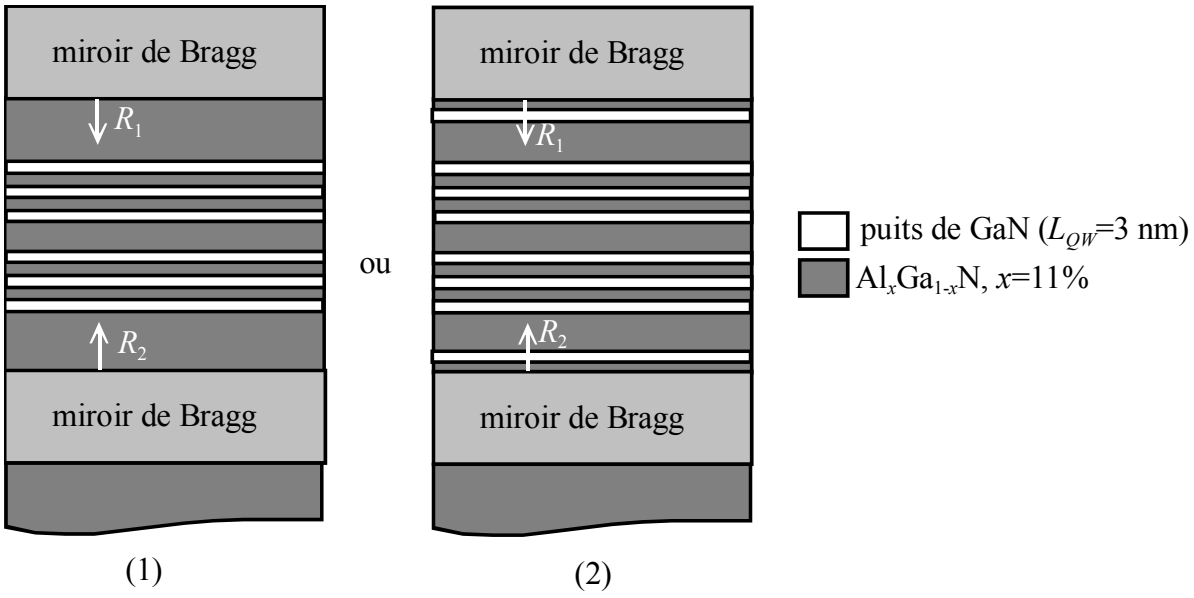


figure 4.42 : Structures de la microcavité 3λ/2 étudiée théoriquement : la structure (1) contient 6 puits quantiques de GaN d'épaisseur 3 nm et la structure (2) en contient 8.

Nous avons étudié la réflectivité théorique de ces deux microcavités en fonction du type de matériaux utilisés dans les miroirs de Bragg : $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ ou SiO_2/Si_3N_4.

- **Les miroirs de Bragg sont des paires $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$**

Les réflectivités théoriques des microcavités (1) et (2) ont été calculées à une température de 5K en fonction des coefficients de réflexion des miroirs de Bragg R_1 et R_2 (avec R_1=R_2) ; les résultats sont reportés sur la figure 4.43.

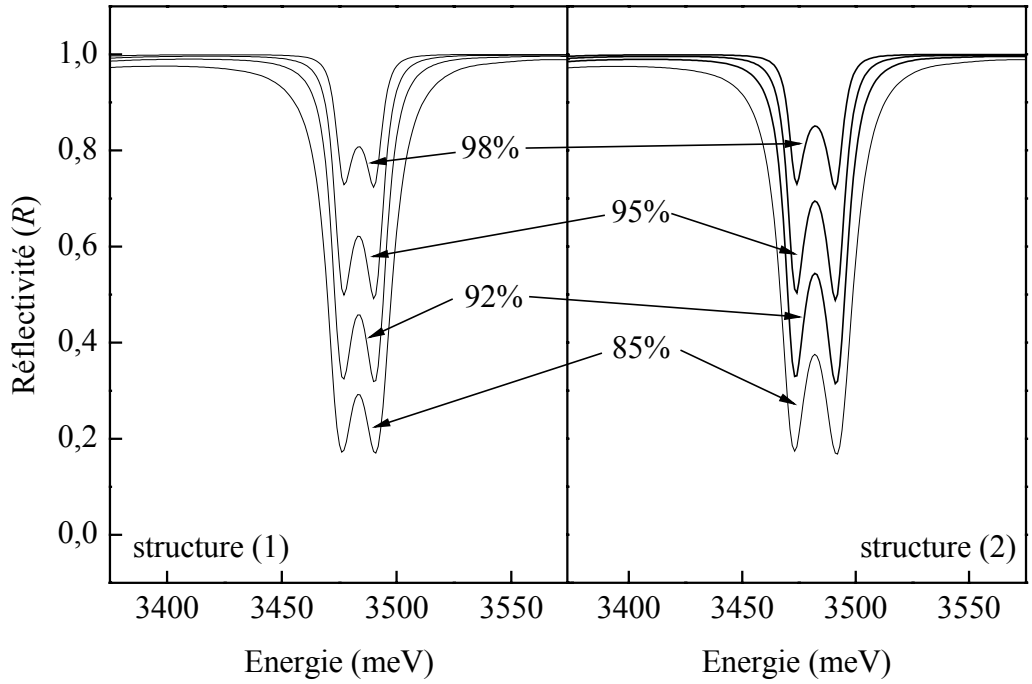


figure 4.43 : Calculs de la réflectivité des structures (1) et (2) en fonction des coefficients de réflectivité R_1 et R_2 des miroirs de Bragg $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ (R_1=R_2).

Les paramètres des puits sont identiques à ceux déterminés précédemment pour l'échantillon A396, à savoir : E_0=3489 meV, B=50000 meV^2 et $\hbar\Gamma$=15 meV.

A partir de ces spectres de réflectivité, nous avons déterminé les valeurs du dédoublement de Rabi correspondantes : elles sont indiquées dans le tableau 4.2. $\hbar\Omega_{Rabi}$ avoisine donc 13 meV pour la structure (1) contenant 6 puits quantiques et 18 meV pour la structure (2) contenant 8 puits pour un coefficient de réflexion supérieur à 85%.

$R_1=R_2$	85%	92%	95%	98%
(1) $\hbar\Omega_{Rabi}$ (meV)	13,5	13,5	13	13
(2) $\hbar\Omega_{Rabi}$ (meV)	18	18	17,5	17

tableau 4.2 : Valeurs du dédoublement de Rabi obtenues à partir des spectres de réflectivité de la figure 4.43 ; les miroirs de Bragg sont des miroirs $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$.

- **Les miroirs de Bragg sont des paires SiO_2/Si_3N_4**

Les miroirs de Bragg $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ sont maintenant remplacés par des miroirs SiO_2/Si_3N_4 ; les spectres de réflectivité calculés des deux microcavités (1) et (2) sont indiqués sur la figure 4.44 en fonction des coefficients de réflexion des miroirs de Bragg R_1 et R_2.

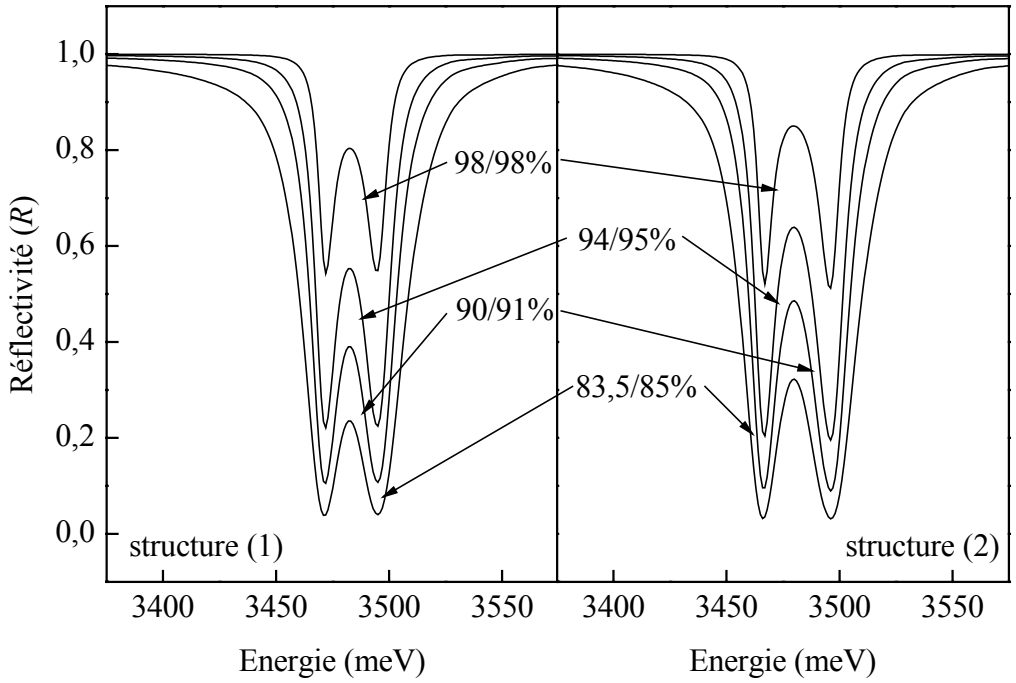


figure 4.44 : Calculs de la réflectivité des structures (1) et (2) en fonction des coefficients de réflexion R_1 et R_2 des miroirs de Bragg SiO_2/Si_3N_4 ($R_1 \approx R_2$).

Les valeurs du dédoublement de Rabi déterminées à partir de ces calculs sont indiquées dans le tableau 4.3. $\hbar\Omega_{Rabi}$ avoisine donc 23 meV pour la structure (1) contenant 6 puits quantiques et 29 meV pour la structure (2) contenant 8 puits pour un coefficient de réflexion supérieur à 85%.

R_1/R_2	83,5/85%	90/91%	94/95%	98/98%
(1) $\hbar\Omega_{Rabi}$ (meV)	23,5	23,5	23	22,5
(2) $\hbar\Omega_{Rabi}$ (meV)	29,5	29,5	29	28,5

tableau 4.3 : Valeurs du dédoublement de Rabi obtenues à partir des spectres de réflectivité de la figure 4.43 ; les miroirs de Bragg sont des miroirs SiO_2/Si_3N_4.

- **Discussion des résultats**

L'utilisation des miroirs diélectriques SiO_2/Si_3N_4 à la place des miroirs AlN/ $Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ permet d'augmenter la valeur du dédoublement de Rabi. Ceci s'explique à partir de la formule théorique suivante (expression (1.88)) :

$$\hbar\Omega_{Rabi} \approx \sqrt{\frac{2L_{QW}N_{QW}}{n_c^2 L_{eff}}B} \tag{4.11}$$

$\hbar\Omega_{Rabi}$ dépend de la longueur effective de cavité L_{eff} qui s'écrit : $L_{eff}=d_c+L_{DBRs}$ avec d_c l'épaisseur physique de la cavité et L_{DBRs} est longueur de pénétration du champ dans les miroirs définie par l'expression (1.57) :

$$L_{DBRs} = \frac{\lambda_0}{2}\frac{n_1 n_2}{n_a\left(n_2 - n_1\right)} \quad (n_1 < n_2) \tag{4.12}$$

La longueur de pénétration dans les miroirs SiO_2/Si_3N_4 étant plus petite que dans les miroirs $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$, le dédoublement de Rabi est donc plus grand et le couplage exciton-photon est ainsi plus prononcé c'est-à-dire que la séparation entre les deux modes est plus marquée.

Ainsi, en insérant 8 puits quantiques de 3 nm à l'intérieur d'une microcavité 3λ/2, nous pouvons espérer obtenir des valeurs de dédoublement de Rabi d'environ 30 meV en utilisant des miroirs diélectriques SiO_2/Si_3N_4. Cette valeur est du même ordre de grandeur que celle obtenue expérimentalement dans le cas de la microcavité A269, ainsi, quantitativement, le fait de remplacer la microcavité massive par une microcavité contenant 8 puits quantiques de GaN de 3 nm n'améliore pas la valeur du dédoublement de Rabi. Par contre, qualitativement, les deux modes excitonique et photonique sont beaucoup plus marqués et beaucoup plus profonds

grâce à la meilleure qualité optique de la microcavité et à l'élargissement plus faible des transitions des puits quantiques de GaN ; ainsi, avec une telle structure, il est possible d'envisager la conservation du régime de couplage fort à température ambiante.

Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons étudié par spectroscopie optique trois microcavités à base de GaN. Les spectres expérimentaux de réflectivité et de photoluminescence effectués sur les deux microcavités A247 et A284 ne révèlent pas la présence du régime de couplage fort. L'élargissement de l'émission de GaN avoisine, dans ces deux structures, 50 meV et la présence du régime de couplage faible est directement reliée à cette valeur élevée. Les expériences de réflectivité relatives à la troisième microcavité étudiée, l'A269, ont permis de tracer les courbes d'anticroisement des deux branches polaritoniques mettant en évidence sans ambiguïté la présence du régime de couplage fort dans cette structure pour des températures de 5K et de 77K. Par contre, à température ambiante, l'élargissement supplémentaire de l'émission de GaN due à l'agitation thermique rend les contributions excitonique et photonique non discernables sur les spectres de réflectivité.

Ce premier résultat est prometteur et ouvre la voie à d'autres investigations sur des structures à base de GaN, l'objectif étant désormais de conserver le régime de couplage fort à température ambiante.

Conclusion générale

L'objectif de ce travail était la recherche du couplage fort lumière-matière dans des microcavités à base de GaN. La difficulté essentielle dans le cas des nitrures réside dans la croissance des structures ; en effet, il n'existe pas de substrat en accord de maille avec GaN et la croissance ne peut s'effectuer que par hétéroépitaxie. De plus, le désaccord paramétrique entre GaN et AlN est important ; il en résulte donc des contraintes résiduelles dans les couches successivement élaborées, affectant ainsi leur qualité optique. Ce travail a donc été effectué en étroite collaboration avec l'équipe de croissance EJM du CRHEA afin de concevoir des structures possédant les conditions optiques requises et étant réalisables par épitaxie.

Le saut d'indice entre AlN et GaN étant faible, les miroirs de Bragg à base de ces matériaux possèdent une "stop band" peu large, cette dernière étant proportionnelle à Δn. Leur utilisation dans des microcavités impose donc de connaître relativement bien les valeurs des indices des matériaux utilisés de manière à ne pas commettre d'erreurs trop importantes sur la position et la largeur en énergie de la "stop band" lors des étapes de simulations. Les indices de réfraction d'AlN, de GaN et de l'alliage AlGaN, pour différentes compositions, ont ainsi été, au préalable, mesurés à 300K puis à 5K, température pour laquelle les structures seront opérationnelles.

L'autre conséquence relative au faible saut d'indice entre AlN, GaN et AlGaN est le nombre de paires requises, dans les miroirs de Bragg, pour obtenir un coefficient de réflexion important. Trois miroirs de Bragg ont été étudiés et un coefficient de réflexion de 85% a été obtenu à partir d'un miroir constitué de 15 paires $AlN/Al_{0,23}Ga_{0,77}N$. A partir des résultats

expérimentaux, des calculs de réflectivité ont été menés indiquant que pour obtenir un coefficient de réflexion de l'ordre de ceux utilisés dans des microcavités à base de GaAs (>98,5%), un nombre de paires conséquent (30 paires) est requis, influant considérablement sur la qualité de la couche massive de GaN. En effet, une délamination a été observée sur le miroir de 15 paires $AlN/Al_{0,23}Ga_{0,77}N$, indiquant un nombre limite de paires à ne pas dépasser.

Finalement, trois microcavités massives ont été élaborées sur substrat silicium au CRHEA de Valbonne et ont ensuite été caractérisées par spectroscopie optique.

L'originalité de la première, numérotée A247, réside dans l'utilisation du substrat de silicium en tant que miroir bas de la microcavité, le miroir haut étant constitué de 10 paires $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$. Les expériences de réflectivité et de photoluminescence que nous avons effectuées n'ont pas permis de démontrer la présence du régime de coupage fort. Ceci s'explique par la largeur spectrale importante du mode de cavité (33 meV) mais surtout par la qualité de l'émission de GaN (largeur de 50 meV).

La seconde structure, l'A284, est constituée d'une cavité massive de GaN d'épaisseur optique 2λ insérée entre deux miroirs de Bragg $AlN/Al_{0,20}Ga_{0,80}N$ contenant respectivement 13 et 15,5 paires pour les miroirs haut et bas. Cette structure a une meilleure qualité optique puisque les coefficients de réflexion des miroirs sont plus élevés mais la qualité de la couche de GaN n'est pas encore suffisante pour espérer observer le régime de couplage fort, son émission ayant un élargissement de 45 meV.

La troisième structure, l'A269, est constituée d'une couche active de GaN de $\lambda/2$, le miroir haut est un miroir diélectrique formé par 4 paires SiO_2/Si_3N_4 et le miroir bas est le substrat de silicium. Les expériences de réflectivité résolue en angle à 5K ont révélé la présence du régime de couplage fort : le dédoublement de Rabi a été estimé à 31 ± 1 meV quelque soit la polarisation. Les ajustements théoriques des spectres de réflectivité nous ont permis de déterminer les paramètres relatifs aux deux excitons A et B de GaN : leurs énergies respectives sont 3525meV et 3535 meV, les paramètres *B* liés à leur force d'oscillateur sont 40000 meV^2 et 30000 meV^2 et la largeur de chaque transition est de 45 meV. Des expériences de photoluminescence en fonction de l'angle d'émission ont ensuite été effectuées, mais seul le polariton bas est visible sur les spectres, la branche haute n'étant pas activée thermiquement. Les expériences de réflectivité ont ensuite été menées à 77K conduisant à un dédoublement de Rabi identique à celui obtenu à 5K. Par contre, à température ambiante,

nous ne pouvons pas conclure puisque l'agitation thermique induit un élargissement supplémentaire des modes, compromettant la distinction des deux pics.

Le régime de couplage fort n'est donc pas, pour l'instant, mis en évidence à température ambiante. Ainsi, dans la perspective de la fabrication de nouvelles structures permettant d'y parvenir, nous nous sommes ensuite intéressés à l'influence de l'épaisseur de la couche active de GaN sur le dédoublement de Rabi, dans le cas d'une structure du même type que celle de l'A269. Avec une épaisseur optique de $5\lambda/2$, un dédoublement de Rabi de 60 meV est envisagé théoriquement à une température de 5K. Cette large valeur permettrait ainsi, en dépit de l'élargissement supplémentaire dû à l'agitation thermique, d'observer le couplage fort à température ambiante.

Jusqu'à présent, nos recherches étaient orientées vers la conception de microcavités massives, leur intérêt par rapport aux microcavités à puits quantiques étant leur plus grande zone d'interaction entre les photons et les excitons qui induit une plus grande valeur du dédoublement de Rabi. Il est cependant possible d'envisager l'utilisation de microcavités à puits quantiques, leur avantage étant, dans le cas des nitrures, un élargissement plus faible de l'émission des puits par rapport à celle du GaN massif. Dans ce but, des calculs de réflectivité de microcavités à puits quantiques ont été menés et un dédoublement de Rabi de 29 meV dans le cas d'une microcavité contenant 8 puits quantiques de GaN insérée entre deux miroirs diélectriques SiO_2/Si_3N_4, a été obtenue. Cette valeur est de l'ordre de grandeur de celle déterminée dans le cas de la microcavité massive A269, mais à la vue des spectres théoriques, le couplage est beaucoup plus prononcé - du fait de la diminution importante de l'élargissement de l'émission - et peut ainsi peut-être subsister à température ambiante.

Ainsi, nous espérons que la réalisation de ces nouvelles microcavités (massives et à puits quantiques) permettra de mettre en évidence le régime de couplage fort à température ambiante.

Annexe A - Force d'oscillateur dans les puits quantiques

Dans cette annexe, nous fournissons les relations de passage entre les trois paramètres décrivant l'intensité de la transition excitonique dans les puits quantiques : la force d'oscillateur par unité de surface f_{osc}/S, le paramètre B issu du modèle de l'oscillateur harmonique et le paramètre Γ_0 défini à partir de la théorie semi-classique.

$$\begin{cases} B = \dfrac{\hbar^2}{m_0 \varepsilon_0 L_{QW}} f_{osc} \\ B = \dfrac{4 n_{cav} c \hbar}{e L_{QW}} \hbar\Gamma_0 \end{cases} \tag{A.1}$$

$$\begin{cases} \hbar\Gamma_0 = \dfrac{e L_{QW}}{4 n_{cav} c \hbar} B \\ \hbar\Gamma_0 = \dfrac{e\hbar}{4 n_{cav} m_0 c \varepsilon_0} f_{osc} \end{cases} \tag{A.2}$$

$$\begin{cases} \dfrac{f_{osc}}{S} = \dfrac{m_0 \varepsilon_0 L_{QW}}{\hbar^2} B \\ \dfrac{f_{osc}}{S} = \dfrac{4 n_{cav} m_0 c \varepsilon_0}{e\hbar} \hbar\Gamma_0 \end{cases} \tag{A.3}$$

Dans les expressions (A.1) à (A.3), B est exprimé en eV^2, f_{osc}/S en m^{-2}, $\hbar\Gamma_0$ en eV et L_{QW} en m.

En calculant les termes constants, nous obtenons :

$$\begin{cases} B = \dfrac{1,378.10^{-27}}{L_{QW}} \dfrac{f_{osc}}{S} \\ B = \dfrac{7,902.10^{-30} n_{cav}}{L_{QW}} \hbar\Gamma_0 \end{cases} \tag{A.4}$$

$$\begin{cases} \hbar\Gamma_0 = \dfrac{L_{QW}}{7,902.10^{-23} n_{cav}} B \\ \hbar\Gamma_0 = \dfrac{1,744.10^{-21}}{n_{cav}} \dfrac{f_{osc}}{S} \end{cases} \tag{A.5}$$

$$\begin{cases} \dfrac{f_{osc}}{S} = \dfrac{L_{QW}}{1,378.10^{-27}} B \\ \dfrac{f_{osc}}{S} = \dfrac{n_{cav}}{1,744.10^{-21}} \hbar\Gamma_0 \end{cases} \tag{A.6}$$

où B est exprimé en eV^2, f_{osc}/S en m^{-2}, $\hbar\Gamma_0$ en eV et L_{QW} en m.

Annexe B - Raccordement de la partie imaginaire de l'indice de GaN au voisinage du gap

La microcavité A269, dans laquelle le couplage exciton-photon a été observé, est constituée d'une couche active massive de GaN. La présence d'excitons dans la couche se traduit, dans les simulations, par l'insertion d'oscillateurs de Lorentz. Or, dans le cas d'un matériau massif, l'absorption bande à bande du matériau a également un effet non négligeable sur les spectres de réflectivité. Il faut ainsi, pour un meilleur ajustement de la simulation à l'expérience, en tenir compte également dans les calculs.

Dans le cas de cette microcavité, les deux excitons A et B sont considérés et la contribution relative aux excitons est introduite dans la constante diélectrique de GaN ε_r par l'expression suivante :

$$\varepsilon_r = \varepsilon_b + \underbrace{\int \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta_A} \frac{B_A}{x^2 - E^2 + j\hbar\Gamma_A E} e^{\frac{-(x-E_{exc0A})^2}{\Delta_A^2}} dx}_{\text{exciton A}} + \underbrace{\int \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta_B} \frac{B_B}{x^2 - E^2 + j\hbar\Gamma_B E} e^{\frac{-(x-E_{exc0B})^2}{\Delta_B^2}} dx}_{\text{exciton B}} \qquad \text{(B.1)}$$

avec : E_{exc0A}=3525 meV, E_{exc0B}=3535 meV, B_A=40000 meV^2, B_B=30000 meV^2, $\hbar\Gamma_{A,B}$=0,1 meV et $\Delta_{A,B}$=28 meV. L'indice de réfraction étant relié à la constante diélectrique par la relation : $N=(\varepsilon_r)^{1/2}=n-j\,K$, les valeurs de n et K obtenues à partir de cette expression

sont celles indiquées sur la figure B.1. Cette forme tient compte des contributions excitoniques mais ne fait pas intervenir l'absorption bande à bande.

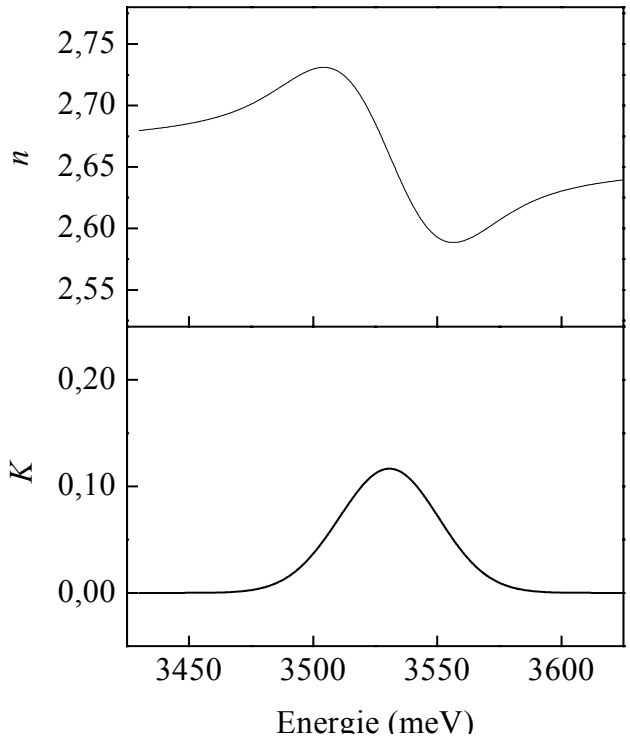


figure B.1 : Indice de réfraction n et coefficient d'extinction K calculés à partir de l'expression de la constante diélectrique incluant deux oscillateurs A et B.

Or, dans le chapitre 3, le coefficient d'extinction *K* de GaN a été déterminé à partir d'expériences d'ellipsométrie effectués à 300 K sur l'échantillon A152, pour lequel l'absorption bande à bande débute à environ 3400 meV. Nous avons donc envisagé d'effectuer un raccordement entre les valeurs de *K* calculées à partir du modèle de l'oscillateur de Lorentz et les valeurs issues des expériences d'ellipsométrie. Dans le cas de la microcavité A269, l'exciton A à 5 K se trouve à une énergie de 3525 meV, comme l'absorption bande à bande doit nécessairement se situer à plus haute énergie, les valeurs expérimentales du coefficient d'extinction *K* doivent donc être translatées. L'énergie de liaison de l'exciton A étant estimée à 25 meV [170,179-181], l'absorption bande à bande dans le cas de la microcavité A269 débutera à 3525+25=3550 meV. Ainsi, le coefficient d'extinction *K* est translaté de 150 meV par rapport à sa valeur déduite des expériences d'ellipsométrie à 300 K.

Le coefficient d'extinction *K* est déterminé en reliant, sur la figure B.2, la courbe en traits pointillés correspondant au coefficient d'extinction issu des expériences d'ellipsométrie translaté de 150 meV (notée y_{ellips}) avec la courbe en petits points correspondant au calcul à

partir de l'expression de la constante diélectrique incluant les deux oscillateurs A et B (notée y_{exc}).

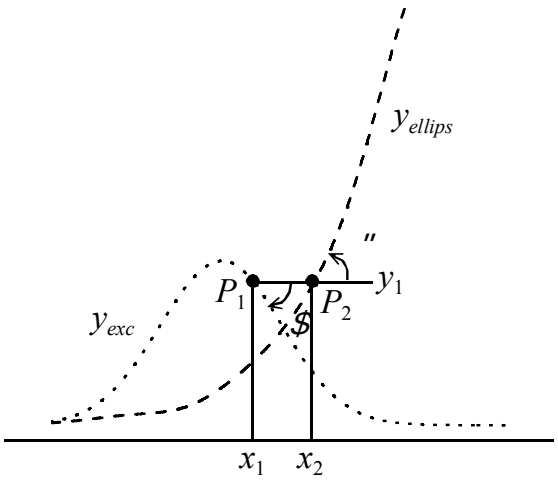


figure B.2 : Schéma définissant le raccord entre le coefficient d'extinction issu des expériences d'ellipsométrie y_{ellips} (traits pointillés) et celui calculé à partir du modèle de l'oscillateur de Lorentz y_{exc} (petits points) ; les deux angles α et β permettant de raccorder les deux courbes sont indiqués sur le schéma. P_1 et P_2 sont les deux points utilisés pour le raccord.

Les mesures ellipsométriques contiennent les contributions excitoniques à 300 K ; aussi, afin d'éliminer au mieux ces contributions, le raccordement entre les deux courbes s'effectue entre les deux points P_1 (x_1, y_1) et P_2 (x_2, y_2) tels que $x_1=E_{exc0B}$=3535 meV et $y_1=y_2$. Ainsi, en raccordant les deux courbes à une telle ordonnée, nous supprimons une grande partie des contributions excitoniques.

Le raccordement entre les deux courbes s'effectue grâce à un polynôme de degré 3 du type :

$$y=a\,x^3+b\,x^2+c\,x+d \tag{B.2}$$

avec :

$$\begin{aligned} a &= \frac{\tan\alpha+\tan\beta}{\left(x_2-x_1\right)^2}+\frac{2\left(y_{exc}(x_1)-y_{ellips}(x_2)\right)}{\left|x_2-x_1\right|^3} \\ b &= \frac{2\tan\alpha+\tan\beta}{\left|x_2-x_1\right|^3}+\frac{3\left(y_{exc}(x_1)-y_{ellips}(x_2)\right)}{\left|x_2-x_1\right|^3} \\ c &= \tan\alpha \\ d &= y_{ellips}(x_2) \end{aligned} \tag{B.3}$$

Les deux angles α et β sont indiqués sur la figure B.2.

Finalement, le coefficient d'extinction *K* utilisé dans les ajustements des spectres expérimentaux de la microcavité A269 est celui indiqué sur la figure B.3 en trait plein.

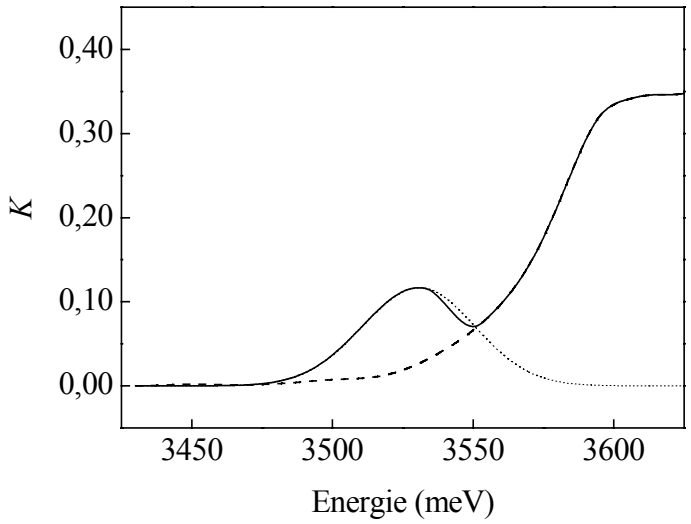


figure B.3 : Coefficient d'extinction K de GaN à une température de 5K ; en traits pointillés : déterminé par ellipsométrie et noté y_{ellips} ; en petits points : calculé à partir de l'expression de la constante diélectrique incluant les deux oscillateurs A et B et noté y_{exc} ; en trait plein : utilisé dans les ajustements des spectres.

La figure B.4 présente l'influence de la prise en compte de l'absorption bande à bande de GaN dans le calcul de la réflectivité de la microcavité A269. Le calcul utilisant uniquement le modèle de l'oscillateur de Lorentz, traduisant les deux excitons, est reporté en traits pointillés et celui utilisant le raccordement décrit dans cette annexe est en trait plein.

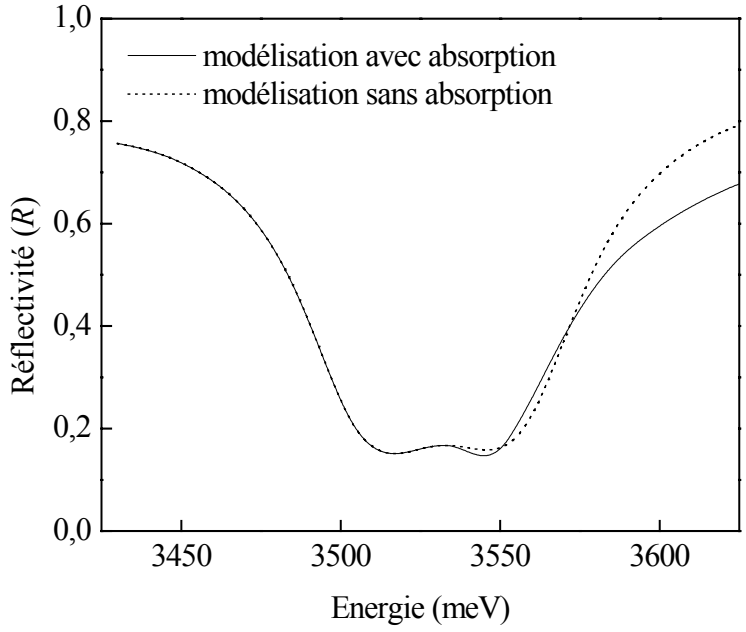


figure B.4 : Calcul de la réflectivité de la microcavité A269 pour un angle d'incidence de 52° dans le cas de la polarisation TM ; en trait plein, le modèle utilisé tient compte de l'absorption expérimentale et en traits pointillés, le modèle n'en tient pas compte.

Bibliographie

[1] A. Kavokin et B. Gil, *"GaN microcavities : Giant Rabi splitting and optical anisotropy", Appl. Phys. Lett.* **72,** 2880 (1998)

[2] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa et Y. Arakawa, *"Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semi-conductor quantum microcavity", Phys. Rev. Lett.* **69,** 3314 (1992)

[3] R. Houdre, C. Weisbuch, R. P. Stanley, U. Oesterle, P. Pelletini et M. Illegems, *"Measurement of cavity-polariton dispersion curve from angle-resolved photoluminescence experiments", Phys. Rev. Lett.* **73,** 2043 (1994)

[4] V. Savona, L. C. Andreani, P. Schwendimann et A. Quattropani, *"Quantum well excitons in semiconductor microcavities : unified treatment of weak and strong coupling regimes", Solid State Commun.* **93,** 733 (1995)

[5] R. Houdre, R. P. Stanley, et M. Ilegems, *"Vacuum-field Rabi splitting in the presence of inhomogeneous broadening: Resolution of a homogeneous linewidth in an inhomogeneously broadened system", Phys. Rev. A* **53,** 2711 (1996)

[6] R. P. Stanley, R. Houdre, C. Weisbuch, U. Oesterle et M. Ilegems, *"Cavity-polariton photoluminescence in semiconductor microcavities: Experimental evidence", Phys. Rev. B* **53,** 10995 (1996)

[7] F. Tassone, C. Piermarocchi, V. Savona, A. Quattropani and P. Schwendimann, *"Photoluminescence decay times in strong-coupling semiconductor microcavities"*, *Phys. Rev. B* **53,** R7642 (1996)

[8] B. Sermage, S. Long, I. Abram, J. Y. Marzin, J. Bloch, R. Planel et V. Thiery-Mieg, *"Time-resolved spontaneous emission of excitons in a microcavity : behaviour of the individual exciton-photon mixed states", Phys. Rev. B* **53,** 16516 (1996)

[9] R. P. Stanley, S. Pau, U. Oesterle, R. Houdre et M. Ilegems, *"Resonant photoluminescence of semiconductor microcavities : The role of acoustic phonons in polariton relaxation", Phys. Rev. B* **55,** R4867 (1997)

[10] F. Tassone, C. Piermarocchi, V. Savona, A. Quattropani et P. Schwendimann, *"Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons"*, *Phys. Rev. B* **56,** 7554 (1997)

[11] J. H. Dickerson, J. K. Son, E. E. Mendez et A. A. Allerman, *"Electric-field tuning of the Rabi splitting in a superlattice-embedded microcavity", Appl. Phys. Lett.* **81,** 803 (2002)

[12] J. H. Dickerson, E. E. Mendez et A. A. Allerman, *"Enhancement of Rabi splitting in microcavity with an embedded superlattice", Phys. Rev. B* **64,** 155302 (2001)

[13] P. G. Savvidis, J. J. Baumberg, R. M. Stevenson, M. Skolnick, D. M. Whittaker and J. S. Roberts, *"Angle-resonant stimulated polariton amplifier"*, *Phys. Rev. Lett.* **84,** 1547 (2000)

[14] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau et Y. Yamamoto, *"Nonequilibrium condensates and lasers without inversion: Exciton-polariton lasers", Phys. Rev. A* **53,** 4250 (1996)

[15] Le Si Dang, D. Heger, R. etre, F. Bœuf et R. Romestain, *"Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity"*, *Phys. Rev. Lett.* **81,** 3920 (1998)

[16] H. Deng, G. Weihs, C. Santori, J. Bloch et Y. Yamamoto, *"Condensation of semiconductor microcavity exciton polaritons"*, *Science* **298,** 199 (2002)

[17] A. Kavokin, G. Malpuech et F. Laussy, *"Polariton laser and polariton superfluidity in microcavities", Phys. Lett. A* **306,** 187 (2003) ; G. Malpuech, A. Kavokin, A. Di Carlo et J. J. Baumberg, *"Polariton lasing by exciton-electron scattering in semiconductor microcavities", Phys. Rev. B* **65,** 153310 (2002)

[18] G. Malpuech, A. Di Carlo, A. Kavokin, J. J. Baumberg, M. Zamfirescu et P. Lugli, *"Room temperature polariton lasers based on GaN microcavities"*, *Appl. Phys. Lett*. **81,** 412 (2002)

[19] Y. Yamamoto, *"Half matter, half light-amplifier", Science* **405,** 629 (2000)

[20] A. Pawlis, A. Khartchenko, O. Husberg, D.J. As, K. Lischka et D. Schikora, *"Large room temperature Rabi-splitting in a ZnSe/ZnCdSe semiconductor microcavity structure ", Solid State Commun.* **123,** 235 (2002)

[21] A. Pawlis, A. Khartchenko, O. Husberg, D.J. As, K. Lischka et D. Schikora, *"Large room temperature Rabi-splitting in II-VI microcavity quantum structures", Microelectronics Journal* **34,** 439 (2003)

[22] N. Antoine-Vincent, F. Natali, P. Disseix, M. Mihailovic, A. Vasson, J. Leymarie, F. Semond, M. Leroux, et J. Massies, *"Modelling end spectroscopy of GaN microcavities"*, *Phys. Stat. Sol. A* **190,** 187 (2002)

[23] S. Strite et H. Morkoc, *"GaN, AlN and InN : A review", J. Vac. Sci. Technol. B* **10,** 1237 (1992)

[24] J. H. Edgar, *"Prospects for device implementation of wide band gap semiconductors"*, *J. Mater. Res.* **7,** 235 (1992)

[25] J. W. Orton et C. T. Foxon, *"Group III nitride semiconductors for short wavelength light-emitting devices", Rep. Prog. Phys*. **61,** 1 (1998)

[26] S. J. Pearton, F. Ren, A.P. Zhang, K.P. Lee, *"Fabrication and performance of GaN electronic devices", Mater. Sci. Eng. B* **R30,** 55 (2000)

[27] S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa et S.-I. Nagahama, *"High-brightness InGaN blue, green and yellow light-emitting diodes with quantum well structures", Jpn. J. Appl. Phys*. **34,** L797 (1995)

[28] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano et K. Chocho, *"InGaN/GaN/AlGaN-based laser diodes with modulation-doped strained-layer superlattices grown on epitaxially laterally overgrown GaN substrate"*, *Appl. Phys. Lett.* **72,** 211 (1998)

[29] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano et T. Mukai, *"Violet InGaN/GaN/AlGaN-based laser diodes operable at 50°C with a fundamental transversal mode"*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38,** L226 (1999)

[30] S. Nakamura et G. Fasol, *"The Blue Laser Diode"*, Springer, Berlin (1997)

[31] S. Nakamura, *"Group III Nitrides Semiconductors Compounds"* edité par B. Gil , Oxford Science publications (1998)

[32] Y.-M. Le Vaillant, *Etude corrélative entre la structure physique et les propriétés optiques d'hétéroépitaxies GaN/AlN/saphir*, Thèse de doctorat, Montpellier (1999)

[33] documentation électronique, *"Interaction lumière-matière - Les microcavités à base de semi-conducteurs : couplage fort matière-rayonnement"*, lien www.spm.cnrs-dir.fr/quoi/ publications /imagephys97/74-80.pdf

[34] A. Kavokin, G. Malpuech et B. Gil, *"Semiconductor microcavities : towards polariton lasers"*, *MRS Internet. J. Nitride Semicond. Res.* **8,** 3 (2003)

[35] H. Benisty et C. Weisbuch, *"Les nouveaux concepts de matériaux émetteurs de lumière"*, *Lettre SPM* **32,** 14 (1998)

[36] E. Rosencher et B. Vinter, *"Optoélectronique"*, Masson, Paris (1998)

[37] F. Natali, *Elaboration et application d'hétérostructures (Al,Ga)N/GaN épitaxiées par jets moléculaires sur Si(111)*, Thèse de doctorat, Nice (2003)

[38] F. Bechstedt, U. Grossner et J. Furthmüller, *"Dynamics and polarization of III-nitride lattices : A first-principles study"*, *Phys. Rev. B* **62,** 8003 (2000)

[39] A. Watanabe, T. Takeuchi, K. Hirosawa, H. Amano, K. Hiramatsu et I. Akasaki, *"The growth of single crystaline GaN on a Si substrate using AlN as an intermediate layer", J. Cryst. Growth* **128,** 391 (1993)

[40] S. A. Nikishin, N. N. Faleev, V. G. Antipov, S. Francoeur, L. Grave de Peralta, G. A. Seryogin, H. Temkin, T. I. Prokofyeva, M. Holtz et S. N. G. Chu, *"High quality GaN grown on Si(111) by gas source MBE with ammonia"*, *Appl. Phys. Lett.* **75,** 2073 (1999)

[41] F. Semond, B. Damilano, S. Vézian, N. Grandjean, M. Leroux et J. Massies, *"GaN grown on Si(111) substrate : from two-dimensional growth to quanutm well assessment"*, *Appl. Phys. Lett.* **75,** 82 (1999)

[42] M.-A. Sanchez-Garcia, E. Calleja, F. J. Sanchez, F. Calle, E. Monroy, D. Basak, E. Munoz, C. Villar, A. Sanz-Hervas, M. Aguliar, J. J. Serano et J. M. Blanco, *"Growth optimization and doping with Si and Be og high qulity GaN on Si(111) by molecular beam epitaxy"*, *J. Electron. Mater.* **27,** 276 (1998)

[43] G. Popovici, H. Morkoç et S. N. Mohammad, *"Deposition and properties of group III nitride by molecular beam epitaxy" dans "Group III Nitrides Semiconductors Compounds"* edité par B. Gil, Oxford Science publications (1998)

[44] F. Semond, Y. Cordier, N. Grandjean, F. Natali, B. Damilano, S. Vézian et J. Massies, *"Molecular beam epitaxy of group III-nitrides on silicon substrates : growth, properties and device applications"*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **188,** 501 (2001)

[45] N. Grandjean et J. Massies, "*GaN and AlGaN molecular beam epitaxy monitored by reflection high-energy electron diffraction"*, *Appl. Phys. Lett.* **71,** 1816 (1997)

[46] N. Grandjean et J. Massies, *"GaN/AlGaN quantum wells grown by molecular beam epitaxy with thickness control at the monolayer scale"*, *Appl. Phys. Lett.* **73,** 1260 (1998)

[47] S. L. Chuang, *"Physics of Optoelectronics Devices"*, Wiley, New York (1995)

[48] E. O. Kane, *"Band structure of indium antimonide"*, *J. Phys. Chem. Solids* **1,** 249 (1957)

[49] G. L. Bir et E. G. Pikus, *"Symmetry and Strain-induced effects in semiconductor"*, Wiley, New York (1974)

[50] G. E. Pikus et G. L. Bir, *Sov. Phys. Solid State* **1,** 136 (1959)

[51] M. Leroux, dans *"Matériaux semi-conducteurs III-V, II-VI et nitrures pour l'optoélectronique"*, Hermes Science Publications, Paris, Chapitre 5 (2003)

[52] B. Gil, O. Briot et R.-L. Aulombard, *"Valence-band physics and the optical propeties of GaN epilayers grown onto sapphire with wurtzite symmetry"*, *Phys. Rev. B* **52,** R17028 (1995)

[53] R. J. Elliott, *"Intensity of optical absorption by excitons"*, *Phys. Rev.* **108,** 1384 (1957)

[54] R. Knox, *"Theory of excitons"*, Academic, New York (1963)

[55] J.-P. Perez, R. Carles et R. Fleckinger, *"Electromagnétisme : fondements et applications"*, Masson, Paris (2001)

[56] S. Pau, G. Björk, J. Jacobson, H. Cao et Y. Yamamoto, *"Microcavity exciton polaritons splitting in the linear regime"*, *Phys. Rev. B* **51,** 14437 (1995)

[57] L. C. Andreani, G. Panzarini, A.V. Kavokin et M. R. Vladimirova, *"Effect of inhomogeneous broadening on optical properties of excitons in quantum wells"*, *Phys. Rev. B* **57,** 4670 (1998)

[58] L. C. Andreani, *"Optical transitions, excitons and polaritons in bulk and low-dimensional semiconductor structures" dans "Confined electrons and photons"* edité par E. Burstein and C. Weisbuch, Plenum Press, New York (1995)

[59] J. Wainstain, *Relaxation de polaritons dans une microcavité de semi-conducteurs*, Thèse de doctorat, Paris (1997)

[60] A. Huynh, *Dynamique cohérente des polaritons de microcavité de semiconducteurs*, Thèse de doctorat, Paris (2002)

[61] L. C. Andreani, *"Accurate theory of excitons in GaAs/GaAlAs quantum wells"*, *Phys. Rev. B* **52,** 8928 (1990)

[62] E. L. Ivchenko, *"Exciton polaritons in periodic quantum-well structures"*, *Fiz. Tverd. Tela* **33,** 2388 (1991)

[63] L. C. Andreani, F. Tassone et F. Bassani, *"Radiative lifetime of free excitons in quantum wells"*, *Solid State Commun*. **77,** 641 (1991)

[64] F. Tassone, F. Bassani et L. C. etreani, *"Quantum-well reflectivity and exciton-polariton dispersion"*, *Phys. Rev. B* **45,** 6023 (1992)

[65] A. Kavokin et M. A. Kaliteevski, *"Excitonic ligth reflection and absorption in semiconductor microcavities at oblique incidence"*, *Solid State Commun.* **95,** 859 (1995)

[66] M. Sugarawa, T. Fujii, S. Yamazaki et Nakajima, *"Theoretical and experimental study of optical-absorption spectrum of exciton resonance in InGaAs/InP quantum wells"*, *Phys. Rev. B* **42,** 9587 (1990)

[67] W. T. Masselink, P. J. Pearah, J. Klem, C. K. Peng, H. Morkoç, G. D. Seters et Y-C. Chang , *"Absorption coefficients and exciton oscillator strengths in AlGaAs-GaAs superlattices"*, *Phys. Rev. B* **32,** 8027 (1985)

[68] P. W. Yu, G. D. Seters, D. C. Reynolds, K. K. Bajaj, C. W. Litton, J. Klem, D. Huang et H. Morkoç, *"Determination of transition energies and oscillator strengths in GaAs-AlGaAs multiple quantum wells using photo-voltage-induced photocurrent spectroscopy"*, *Phys. Rev. B* **35,** 9250 (1987)

[69] B. Zhang, S. S. Kano, Y. Shiraki et R. Ito, *"Reflectance study of the oscillator strength of excitons in semiconductor quantum wells"*, *Phys. Rev. B* **50,** 7499 (1994)

[70] L. C. Andreani, V. Savona, P. Schwendimann et A. Quattropani, *"Polaritons in high reflectivity microcavities : semiclassical and full quantum treatment of optical properties"*, *Superlattices Microstr.* **15,** 433 (1994)

[71] G. Bastard, *"Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures"*, Halsted, New York (1988)

[72] F. Bœuf, *Spectroscopie optique linéaire et non-linéaire dans les microcavités de semiconducteurs II-VI à base de CdTe*, Thèse de doctorat, Grenoble (2000)

[73] P. Yeh, *"optical waves in layered media"*, Wiley, New York (1988)

[74] J. Piprek, S. Bjorlin et J. E. Bowers, *"Design and analysis of vertical-cavity semiconductor optical amplifiers"*, *IEEE J. Quantum Electron.* **37,** 274 (2001)

[75] G. Bjork, Y. Yamamoto et H. Heitman, *"Spontaneous emission control in semiconductor microcavities"* dans *"Confined electrons and photons new physics and applications"* edité par E. Burstein and C. Weisbuch, Plenum Press, New York (1995)

[76] D. I. Babic et S. W. Corzine, *"Analytic expresions for the reflection delay, penetration depth, and absorptance of quarter-wave dielectric mirrors"*, *IEEE J. Quantum Electron.* **28,** 514 (1992)

[77] M. Skölnick, T.A . Fischer et D. M. Whittaker, *"Strong coupling phenomena in quantum microcavity structures"*, *Semicond. Sci. Technol.* **13,** 645 (1998)

[78] G. Panzarini, L. C. Andreani, A. Armitage, D. Baxter, M. S. Skolnick, V. N. Astratov, J. S. Roberts, A. V. Kavokin, M. R. Vladimirova adn M. A. Kaliteevski, *"Cavity polariton dispersion and polarization splitting in single and coupled semiconductor microcavities", Phys. of Solid State* **41,** 1 (1999)

[79] G. Panzarini, L. C. Andreani, A. Armitage, D. Baxter, M. S. Skolnick, V. N. Astratov, J. S. Roberts, A. V. Kavokin, M. R. Vladimirova et M. A. Kaliteevski, *"Exciton-light coupling in single and coupled semiconductor microcavities : polariton dispersion and polarization splitting"*, *Phys. Rev. B* **59,** 5082 (1999)

[80] T. Freixanet, *Couplage fort exciton-photons dans les microcavités semi-conductrices II-VI*, Thèse de doctorat, Paris (2000)

[81] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *"Processus d'interaction entre photons et atomes"*, InterEditions et Editions du CNRS (1988)

[82] M. R. Vladimirova, A. V. Kavokin et M. A. Kaliteevski, *"Dispersion of bulk exciton polaritons in a semiconductor microcavity"*, *Phys. Rev. B* **54,** 14566 (1996)

[83] A. Kavokin et B. Gil, *"GaN microcavities and Bragg reflectors : Giant exciton-light coupling"*, *Mater. Sci. Eng. B* **59,** 261 (1999)

[84] C. Monier, *Propriétés optiques de puits quantiques InGaAs/GaAs élaborés sus jets moléculaires*, Thèse de doctorat, Clermont-Ferrand (1995)

[85] D. Boffety, *Etude par spectroscopie optique d'hétérostructures GaAs/GaAlAs à puits quantiques non dopées et dopées au silicium ou au béryllium*, Thèse de doctorat, Clermont-Ferrand (1994)

[86] S. Houblos, *Détection thermique de l'absorption optique : développement de la technique - informatisation - études d'éléments 3d dans des matériaux III-V*, Thèse de doctorat, Clermont-Ferrand (1988)

[87] P. Ballet, *Spectroscopie d'hétérostructures piézoélectriques InGaAs/GaAs (111)B*, Thèse de doctorat, Clermont-Ferrand (1997)

[88] S. Colard, *Ellipsométrie spectroscopique ex situ à plusieurs angles d'incidence :caractérisation de couches massives et de structures multicouches*, Thèse de doctorat, Clermont-Ferrand (1998)

[89] A. Philippe, *Caractérisation électrique et optique du nitrure de gallium hexagonal et cubique en vue de l'obtention d'émetteurs bleus*, Thèse de doctorat, Lyon (1999)

[90] Y. El Younoussi, *Ellipsométrie cinétique sur substrats InP dans un réacteur HVPE : réalisation d'un ellipsométre spectroscopique pour la caractérisation des hétérostructures*, Thèse de doctorat, Clermont-Ferrand (1991)

[91] L. Quaranta, *"Electromagnétisme"*, Masson, Paris 1996

[92] R. M. A. Azzam et N. M. Bashara, *"Ellipsometry and polarized light"*, North-Holland publishing company, Amsterdam 1977

[93] L. Siozade, J. Leymarie, P. Disseix, A. Vasson, M. Mihailovic, N. Grandjean, M. Leroux et J. Massies, *"Modelisation of thermally detected optical absorption and luminescence of (In,Ga)N/GaN heterostructures"*, *Solid State Commun.* **115,** 575 (2000)

[94] G. Malpuech, A. Kavokin, W. Langbein et J. M. Hvam, *"Resonant Rayleigh scattering of exciton-polaritons in multiple quantum wells"*, Phys. Rev. Lett. **85,** 650 (2000)

[95] L. Siozade, J. Leymarie, P. Disseix, A. Vasson, M. Mihailovic, N. Grandjean, M. Leroux et J. Massies, *"Modelling of absorption and emission spectra of (In,Ga)N layers grown by MBE"*, *Mater. Sci. Eng. B* **82,** 71 (2001)

[96] K. Seeger, *"Semiconductor Physics"*, Springer, New York/Wien, Chapitre 5 (1973)

[97] T. Sugahara, H. Benisty et R. Houdré, *"Direct evidence that dislocation are non-radiative recombination center in GaN"*, *Jpn. J. Appl. Phys*. **37,** L398 (1998)

[98] S. Ninomiya et S. Adachi, *"Optical properties of cubic and hexagonal CdSe"*, *J. Appl. Phys.* **78,** 4681 (1995)

[99] D. E. Aspnes, *"Optical properties of solids"* edité par M. Balkanski, North-Holland, Amsterdam, Chapitre 4A (1980)

[100] D. E. Aspnes, *"Band no parabolicities, broadening and internal field distributions : The spectroscopy of Franz-Keldysh oscillations"*, *Phys. Rev. B* **10,** 4228 (1974)

[101] F. Abelès, *"Recherche sur la propagation des ondes électromangétiques sinusoïdales dans les milieux stratifiés : applications aux couches minces"*, *Annales de Physique* **5,** 596 (1950)

[102] M. Minoux, *"Programmation mathématique, Théorie et Algorithmes"*, Bordas, Paris (1983)

[103] J. C. Comfort, F. K. Urban III, *"Numerical techniques useful in the practice of ellipsometry"*, *Thin Solid Films* **270,** 78 (1995)

[104] D. W. Marquardt, *"Solution of nonlinear chemical engineering models"*, *Chemical Engineering Progress* **55,** 65 (1959)

[105] D. W. Marquardt, *"An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters"*, *J. Soc. Indust. Appl. Math.* **11,** 431 (1963)

[106] G. Yu, G. Wang, H. Ishikawa, M. Umeno, T. Soga, T. Egawa, J. Watanabe et T. Jimbo, *"Optical properties of wurtzite structure GaN on sapphire around fundamental absorption edge (0,78-4,77eV)by spectroscopic ellipsometry and the optical transmission method"*, *Appl. Phys. Lett.* **70,** 3209 (1997)

[107] H. Amano, N. Watanabe, N. Koide et I. Akasaki, *"Room-temperature low-threshold surface-stimulated emission by optical-pumping from AlGaN/GaN double heterostructure"*, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2* **32,** L1000 (1993)

[108] X. Tang, Y. Yuan, K. Wongchotigul et M. G. Spencer, *"Dispersion properties of aluminium nitride as measured by an optical waveguide technique"*, *Appl. Phys. Lett.* **70,** 3206 (1997)

[109] T. Kawashima, H. Yoshikawa, S. Adachi, S. Fuke et K. Ohtsuka, *"Optical properties of hexagonal GaN"*, *J. Appl. Phys*. **82,** 3528 (1997)

[110] G. Yu, H. Ishikawa, M. Umeno, T. Egawa, J. Watanabe, T. Jimbo et T. Soga, *"Optical properties of AlxGa1-xN/GaN heterostructures on sapphire by spectroscopic ellipsometry"*, *Appl. Phys. Lett.* **72,** 2202 (1998)

[111] J. Wagner, H. Obloh, M. Kunzer, M. Maier, K. Köhler et B. Johs, *"Dielectric function spectra of GaN, AlGaN and GaN/AlGaN heterostructures"*, *J. Appl. Phys*. **89,** 2779 (2001)

[112] D. Brunner, H. Angerer, E; Bustarret, F. Freudenberg, R. Hopler, R. Dimitrov, O. Ambacher et M. Stutzmann, *"Optical constants of epitaxial AlGaN films and their temperature dependence"*, *J. Appl. Phys*. **82,** 5090 (1997)

[113] A. Billeb, W. Grieshaber, D. Stocker, E. F. Schubert et R. F. Karlicek Jr., *"Microcavity effects in GaN epitaxial films and in Ag/GaN/sapphire structures"*, *Appl. Phys. Lett.* **70,** 2790 (1997)

[114] L. Siozade, S. Colard, M. Mihailovic, J. Leymarie, A. Vasson, N. Grandjean, M. Leroux et J. Massies, *"Temperature dependence of optical properties of h-GaN films studied by reflectivity and ellipsometry"*, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 1* **39,** 20 (2000)

[115] U. Tisch, B. Meyler, O. Katz, E. Finkman et J. Slazman, *"Dependence of the refractive index of AlGaN on temperature and composition at elevated temperatures"*, *J. Appl. Phys.* **89,** 2676 (2001)

[116] U. Ozgur, G. Webb-Wood, H. O. Everitt, F. Yun et H. Morkoc, *"Systematic measurement of Al(x)Ga(1-x)N refractive indices"*, *Appl. Phys. Lett.* **79,** 4103 (2001)

[117] G. Y. Zhao, H. Ishikawa, G. Yu, T. Egawa, J. Watanabe, T. Soga, T. Jimbo et M. Umeno, *"Thermo-optical nonlinearity of GaN grown by metalorganic chemical-vapor deposition", Appl. Phys. Lett.* **73,** 22 (1988)

[118] M. A. Vidal, G. Ramirez-Flores, H. Navarro-Contreras, A. L. Lastras-Martinez, R. C. Paul et J. E. Green, *"Refractive indices of zincblende structure beta-GaN(001) in the subband gap region (0.7-3.3 eV)"*, *Appl. Phys. Lett.* **68,** 441 (1996)

[119] M. J. Bergmann, U. Ozgur, H. C. Casey Jr, H. O. Everitt et J. F. Muth, *"Ordinary and extraordinary refractive indices for Al(x)Ga(1-x)N epitaxial layers", Appl. Phys. Lett*. **75,** 67 (1999)

[120] J. F. Muth, J. D. Brown, M.A. L. Johnson, Z. Yu, R. M. Kolbas, J. W. Cook Jr et J. F. Schetzina, *"Absorption coefficient and refractive index of GaN, AlN and AlGaN alloys"*, *MRS Internet. J. Nitride Semicond. Res.* **4S1,** G5.2 (1999)

[121] T. Peng, J. Piprek, *"Refractive index of AlGaInN alloys"*, *Electron. Lett.* **32,** (1996)

[122] V. Dimitrova, D. Manova, T. Paskova, T. Z. Uzunov, N. Ivanov et D. Dechev, *"Aluminium nitride thin films deposited by DC reactive magnetron sputtering"*, *Vacuum* **51,** 161 (1998)

[123] H. Y. Joo, H. J. Kim, S. K. Kim et S. Y. Kim, *"The optical and structural properties of AlN thin films characterized by spectroscopic ellipsometry"*, *Thin Solid Films* **368,** 67 (2000)

[124] F. Natali, F. Semond, J. Massies, . Byrne, S. Laügt, O. Tottereau et P. Vennegues, *"Correlation between threading density and the refractive index of AlN grown by molecular beam-epitaxy*", *Appl. Phys. Lett*. **82,** 1386 (2003)

[125] I.J. Fritz et T. J. Drummond, *"AlN-GaN quarter wave reflector stack grown by gas-source MBE on (100)GaAs "*, *Electron. Lett.* **31,** 68 (1995)

[126] H. M. Ng, T. D. Moustakas et S. N. G. Chu, *"High reflectivity and broad bandwidth AlN/GaN distributed Bragg reflectors grown by molecular-beam epitaxy"*, *Appl. Phys. Lett.* **76,** 2818 (2000)

[127] H. M. Ng, D. Doppalapudi, E. Iliopoulos et T. D. Moustakas, *"Distributed Bragg reflectors based on AlN/GaN multilayers"*, *Appl. Phys. Lett.* **74,** 1036 (1999)

[128] K. E. Waltrip, J. Han, J. J. Figiel, H. Zhou, E. Makarona et A. V. Nurmikko, *"Stress engineering during MOCVD of AlGaN/GaN DBR"*, *Appl. Phys. Lett.* **78,** 3205 (2001)

[129] R. Langer, A. Barski, J. Simon, N. T. Pelekanos, O. Konovalov, R. etre et L. S. Dang, *"High-reflectivity GaN/AlGaN Bragg mirrors at blue-green wavelengths grown by molecular-beam epitaxy"*, *Appl. Phys. Lett.* **74,** 3610 (1999)

[130] M. Diagne, Y. He, H. Zhou, E. Makarona, A. V. Nurmikko, J. Han, T. Takeuchi et M. Krames, *"A high injection resonant cavity violet light emitting diode incorporating (Al,Ga)N distributed Bragg reflector"*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **188,** 105 (2001)

[131] T. Someya et Y. Arakawa, *"Highly reflective GaN/Al0,34Ga0,66N quarter-wave reflectors grown by molecular organic chemical vapor deposition"*, *Appl. Phys. Lett*. **73,** 3653 (1998)

[132] M. A. Khan, J. N. Kuznia, J.M. Vanhove et D.T. Olson, *"Reflective filters based on single-crystal GaN/Al(x)Ga(1-x)N multilayers deposited using low-pressure metalorganic chemical vapor deposition"*, *Appl. Phys. Lett.* **59,** 1449 (1991)

[133] G. Kipshidze, V. Kuryatkov, K. Choi, Iu. Gherasoiu, B. Borisov, S. Nikishin, M. Holtz, D. Tsvetkov, V. Dimitriev et H. Temkin , *"AlN/AlGaN Bragg reflectors grown by gas source molecular beam epitaxy"*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **188,** 881 (2001)

[134] F. Semond, N. Antoine-Vincent, N. Schnell, G. Malpuech, M. Leroux, J. Massies, P. Disseix, J. Leymarie et A. Vasson, *"Growth by MBE and optical properties of a ten period AlGaN/AlN DBR on (111)Si"*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **183,** 163 (2001)

[135] A. Ponce, S. I. Molina, F. Felder, H. Klausing, O. Semchinova, J. Aderhold et J. Graul, *"HRTEM study of AlGaN/AlN DBR mirrors"*, *Diam. Relat. Mater.* **12,** 1178 (2003)

[136] A. Bhattacharyya, Seteep Iyer, E. Ilopoulos, A. V. Sampath, J. Cabalu, T. D. Moustakas et I. Friel, *"Highly reflective and crack-free AlGaN/AlN ultaviolet distributed Bragg reflectors"*, *J. Vac. Sci. Technol. B* **20,** 1229 (2002)

[137] M. Leroux, S. Dalmasso, F. Natali, S. Helin, C. Touzi, S. Laugt, M. Passerel, F. Omnes, F. Semond, J. Massies et P. Gibart, *"Optical characterization of AlGaN alloys (x < 0.7) grown on sapphire or silicon"*, *Phys. Stat. Sol. (b)* **234,** 887 (2002)

[138] E. D. Palik, *"Handbook of Optical Constants of Solids"* , Academic, New York (1985)

[139] B. T. Sullivan, R. P. Parsons, K. L. Westra et M. J. Brett, *"Optical properties and microstructure of relatively sputtered indium nitride films"*, *J. Appl. Phys.* **64,** 4144 (1988)

[140] G. E. Jellison Jr, *"Optical functions of GaAs, GaP, Ge determined by two channel polairzation ellipsometry"*, *Optical Materials* **1,** 151 (1992)

[141] N. Antoine-Vincent, F. Natali, M. Mihailovic, A. Vasson, J. Leymarie, P. Disseix, D. Byrne, F. Semond et J. Massies, *"Determination of the refractive indices of AlN, GaN and AlxGa1-xN grown on (111)Si substrates"*, *J. Appl. Phys*. **93,** 5222 (2003)

[142] S. R. Lee, A. F. Wright, M. H. Crawford, G. A. Petersen, J. Han et R. M. Biefeld, *"The band-gap bowing of AlGaN alloys"*, *Appl. Phys. Lett.* **74,** 3344 (1999)

[143] P. Ruterana, G. De Saint Jores, M. Laügt, F. Omnes et E. Bellet-Amalric, *"Evidence for multiple chemical ordering in AlGaN grown by metalorganic chemical vapor deposition"*, *Appl. Phys. Lett.* **78,** 344 (2001)

[144] D. G. Ebling, L. Kirste, K. W. Benz, N. Teofilov, K. Thonke et R. Sauer, *"Optical properties and ordering of AlGaN MBE-layers"*, *J. Cryst. Growth* **227-228,** 453 (2001)

[145] L. Kirste, D. G.Ebling, Ch. Haug, R. Brenn, K. W. Benz et K. Tillmann, *"Structural quality and ordering of MBE grown AlGaN layers"*, *Mater. Sci. Eng. B* **82,** 9 (2001)

[146] M. Benamara, L. Kirste, M. Albrecht, K. W. Benz et H. P. Strunk, *"Pyramidal-plane ordering in AlGaN alloys"*, *Appl. Phys. Lett.* **82,** 547 (2003)

[147] M. Laügt, E. Bellet-Amalric, P. Ruterana et F. Omnes, *"Ordering in undoped hexagonal AlGaN grown on sapphire (0001) with 0.09<x<0.247"*, *Phys. Stat. Sol. (b)* **236,** 729 (2003)

[148] S. Shokhovets R. Goldahn, V. Cimalla, T. S. Cheng et C. T. Foxon, *"Reflectivity study of hexagonal GaN films grown on GaAs:surface roughness, interface layer and refractive index"*, *J. Appl. Phys.* **84,** 1561 (1998)

[149] A. Shikanai, A. Azuhata, T. Sota, S. Chichibu, A. Kuramata, K. Horino et S. Nakamura, *"Biaxial strain dependence of exciton resonance energies in wurtzite GaN"*, *J. Appl. Phys.* **81,** 417 (1997)

[150] Z. Yang, Z. Xu, *"Electronic and optical properties of unstrained and strained wurtzite GaN"*, *Phys. Rev. B* **54,** 17577 (1996)

[151] G. M. Laws, E. C. Larkins, I. Harrison, C. Molloy et D. Somerford, *"Improved refractive index formulas for the AlxGa1-x and InyGa1-yN alloys"*, *J. Appl. Phys.* **89,** 1108 (2001)

[152] N. Antoine-Vincent, F. Natali, M. Mihailovic, P. Disseix, A. Vasson, J. Leymarie, D. Byrne, F. Semond et J. Massies, *"Determination of AlxGa1-xN refractives indexes at low and room temperature, in the 300-600 nm range, for the optimisation of GaN-based microcavities"*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **195,** 543 (2003)

[153] F. Semond, B. Damilano, S. Vézian, N. Grandjean, M. Leroux et J. Massies, *"GaN on Si(111) : From growth optimization to optical properties of quantum well structures"*, *Phys. Stat. Sol. (b)* **216,** 101 (1999)

[154] F. Natali, N. Antoine-Vincent, F. Semond, D. Byrne, L. Hirsch, A.S. Barriere, N. Grandjean, M. Leroux, J. Massies et J. Leymarie, *"AlN/AlGaN Bragg reflectors for UV spectral range grown by molecular beam epitaxy on Si(111)"*, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2* **41,** L1140 (2002)

[155] L. Hirsch, F. Natali, P. Moretto, A.S. Barriere, D. Byrne, F. Semond, J. Massies, N. Grandjean, N. Antoine-Vincent et J. Leymarie, *"RBS studies of AlGaN/AlN Bragg reflectors"*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **195,** 502 (2003)

[156] J. M. Redwing, D. A. S. Loeber, N. G. eterson, M. A. Tischler et J. S. Flynn, *"An optically pumped GaN/AlGaN vertical cavity surface emitting laser"*, *Appl. Phys. Lett.* **69,** 1 (1996)

[157] J.-Y. Duboz, L. Dua, G. Glastre, P. Legagneux, J. Massies, F. Semond et N. Grandjean, *"Dielectric microcavity in GaN/Si"*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **183,** 35 (2001)

[158] R. W. Martin, P. R. Edwards, H.-S. Kim, K.-S. Kim, I. M. Watson, M. D. Dawson, Y. Cho, T. Sets et N. W. Cheung, *"Optical spectroscopy of GaN microcavities with thicknesses controlled using a plasma etchback"*, *Appl. Phys. Lett*. **79,** 3029 (2001)

[159] B. Roycroft, M. Akhter, P. Maaskant, P. De Mierry, S. Fernetez, F. B. Naranjo, E. Calleja, T. McCormak et B. Corbett, *"Experimental characterisation of GaN-based resonant cavity light emitting diodes"*, *Phys. Stat. Sol. (a)* **192,** 97 (2002)

[160] R. W. Martin, H. S. Kim, Y. Cho, P. R. Edwards, I. M. Watson, T. Sets, N. W. Cheung et M. D. Dawson, *"GaN microcavities formed by laser lift-off and plasma etching"*, *Mater. Sci. Eng. B* **93,** 98 (2002)

[161] A. Tredicucci, Y. Chen, V. Pellegrini, et C. Deparis, *"Modification of excitonic emision in a GaAs bulk microcavity"*, *Appl. Phys. Lett*. **66,** 2388 (1995)

[162] Y. Chen, A. Trediucci et F. Bassani, *"Polaritons in semiconductor microcavities : effect of Bragg confinement"*, *J. Phys. IV* **3,** c5-453 (1993)

[163] A. Tredicucci, Y. Chen, V. Pellegrini, M. Börger, L. Sorba, F. Beltram et F. Bassani, *"Controlled exciton-photon interaction in semiconductor bulk microcavities"*, *Phys. Rev. Lett.* **75,** 3906 (1995)

[164] Y. Chen, A. Trediucci et F. Bassani, *"Bulk exciton polariton in GaAs microcavity"*, *Phys. Rev. B* **52,** 1800 (1995)

[165] G. Malpuech, *Spectrosocpie optique et modélisation de microcavités quantiques de semi-conducteurs à base de GaAs, AlAs et d'(In,Ga)As*, Rapport de DEA, Clermont-Ferrand (1998)

[166] F. Semond, B. Damilano, S. Vézian, N. Grandjean, M. Leroux et J. Massies, *"High-electron-mobility AlGaN/GaN heterostructures grown on Si(111) by molecular-beam epitaxy"*, *Appl. Phys. Lett.* **78,** 335 (2001)

[167] N. Antoine-Vincent, F. Natali, F. Semond, M. Leroux, N. Grandjean, J. Massies, J. Leymarie et A. Vasson, *"Potentialities of GaN-based microcavities grown on Silicon substrates", Phys. Stat. Sol. (a)* **188,** 519 (2001)

[168] Le miroir diélectrique a été déposé par S. Walker (Université de Sheffield)

[169] D. Baxter, M. S. Sckolnick, A. Armitage, V. N. Astratov, D. M. Whittaker, T. A. Fisher, J. S. Roberts, D. J. Mowbray et M. A. Kaliteevski, *"Polarization-dependent phenomena in the reflectivity spectra of semi-conductor quantum microcavities"*, *Phys. Rev. B* **56,** 10032 (1997)

[170] K. Kornitzer, T. Ebner, K. Thonke, R. Sauer, C. Kirchner, V. Schwegler, M. Kamp, M. Leszczynski, I. Grzegory et S. Porowski, *"Photoluminescence and reflectance spectroscopy of excitonic transitions in high-quality homoepitaxial GaN films"*, *Phys. Rev. B* **60,** 1471 (1999)

[171] W. Shan, R. J. Hauenstein, A. J. Fischer, J. J. Song, W. G. Perry, M. D. Bremser, R. F. Davis et B. Goldenberg, *"Strain effects on excitonic transitions in GaN : deformations potentials"*, *Phys. Rev. B* **54,** 13460 (1996)

[172] R. Andre, D. Heger, Le Si Dang et Y. Merle d'Aubigne, *"Spectroscopy of polaritons in CdTe-based microcavities"*, *J. Cryst. Growth* **184/185,** 758 (1998)

[173] S. Rudin, T. L. Reinecke et B. Segall, *"Temperature dependent exciton linewidths in semiconductors"*, *Phys. Rev. B* **42,** 11218 (1990)

[174] J. Bleuse , F. Kany, A. P. de Boer, P. C. M. Christianen, R. etre et H. Ulmer-Tuffigo, *"Laser emission on a cavity-polariton line in a II-VI microcavity"*, *J. Cryst. Growth* **184/185,** 750 (1998)

[175] C. Pecharroman, J. K. Son, I. W. Tao et E. E. Mendez, *"Photoluminescence excitation spectroscopy of semiconductor microcavities"*, *Phys. Rev. B* **64,** 245331 (2001)

[176] N. Antoine-Vincent, F. Natali, D. Byrne, A. Vasson, P. Disseix, J. Leymarie, M. Leroux, F. Semond et J. Massies, *"Observation of Rabi splitting in a bulk GaN microcavity grown on silicon"*, *Phys. Rev. B* **68,** 153313 (2003)

[177] P. Kelkar, V. Kozlov, H. Jeon, A. V. Nurmiko, C-C Chu, D. C. Grillo, J. Han, C. G. Hua et R. L. Gunshor, *"Excitons in II-VI semiconductor microcavity in the strong-coupling regime"*, *Phys. Rev. B* **52,** R5491 (1995)

[178] R. Houdre, R. P. Stanley, U. Oersterle, M. Illegems et C. Weisbuch, *"Room-temperature cavity polaritons in a semiconductor microcavity"*, *Phys. Rev. B* **49,** 16761 (1994)

[179] W. Shan, B. D. Little, A. J. Fischer, J. J. Song, B. Goldenberg, W. G. Perry, M. D. Bremser et R. F. Davis, *"Binding energy for the intrinsic excitons in wurtzite GaN"*, *Phys. Rev. B* **54,** 16369 (1996)

[180] S. J. Xu, W. Liu et M. F. Li, *"Direct determination of free exciton binding energy from phonon-assisted luminescence spectra in GaN epilayers"*, *Appl. Phys. Lett.* **81,** 2959 (2002)

[181] A. S. Zubrilov, S. A. Nikishin, G. D. Kipshide, V. V. Kuryatkov, H. Temkin, T. I. Prokofyeva et M. Holtz, *"Optical properties of GaN grown on Si(111) by gas source moleuclar beam epitaxy with ammonia"*, *J. Appl. Phys*. **91,** 1209 (2002)

Index

A

amplificateur à détection synchrone.....57
angle (influence des mesures en angle).123
anticroisement 49
approximation locale 22

B

bande de trous légers 17
bande de trous lourds.....17
bande des trous découplés 17
bande interdite directe 16
bandes d'énergie.....15
blende de zinc.....*Voir* structure cristalline

C

cavité .*Voir* microcavité à miroirs de Bragg
cavité Fabry-Pérot
  définition 29
  intervalle spectral libre 31
cavity pulling.....121
champ électrique *E* 69
champ électromagnétique.....29, 35, 41
champ magnétique *H*.....69
clivage des échantillons.....127
coefficient d'extinction .....*Voir* indice de réfraction complexe *N*
coefficients de Fresnel
  polarisation *TE*..... 71
  polarisation *TM*..... 72
confinement des excitons..... *Voir* puits quantiques (interaction exciton-photon)
confinement des photons 43
constante diélectrique relative ε_r..... 21
contrainte résiduelle..... 17
cos Δ..... 84
couplage spin-orbite Δ_{SO}..... 16
cryostat..... 57

D

dédoublement de Rabi
  définition..... 49
  expressions..... 50
Descartes.....*Voir* loi de Snell-Descartes
désordre.... *Voir* élargissement inhomogène
distribution gaussienne . *Voir* élargissement inhomogène

E

élargissement inhomogène..... 22
ellipsométrie
  expérience..... 67
  modélisation..... 81
énergie de liaison de l'exciton..... 20
épaisseur optique de la cavité L_{opt}..... 31
épitaxie sous jets moléculaires..... 14
équations de Maxwell..... 42

exciton
définition 18
relation de dispersion 20

F

fonction d'erreur χ^2 86
fonction de mérite *FM* 87
force d'oscillateur
dans les puits quantiques f_{osc}/S 27

G

GaN
structure critalline 12
structure de bandes 15
gradient d'épaisseur 122

H

hétéroépitaxie 13

I

indice
corrigé 92
minimisé 92
indice de réfraction
à 300 K 99
à 5 K 104
indice de réfraction complexe *N* 23
interférences ..... *Voir* cavité Fabry-Pérot ou miroir de Bragg

L

laser à polaritons 12
loi de Sellmeier 92
loi de Snell-Descartes 75
Lorentz (modèle de) 20
lorentzienne (fonction de Lorentz) 79
luminescence ..... *Voir* photoluminescence

M

masse effective 17
masse réduite 19
matrice couche 76
matrice interface 75
matrices de transfert
formalisme d'Abelès 81
formalisme d'Azzam et Bashara 72
microcavité à miroirs de Bragg 38
énergie de résonance E_s 39
largeur à mi-hauteur Γ_c 40
longueur effective de cavité L_{eff} 39
mode de cavité 39
relation de dispersion du photon 43
microcavité A247 (structure) 126
microcavité A269 (structure) 144
microcavité A284 (structure) 136
miroir A172 (structure) 106
miroir A178 (structure) 107
miroir A285 (structure) 108
miroir de Bragg
coefficient de réflexion 34
définition 32
largeur Δ_{SB} 35
longueur de pénétration L_{DBR} 35
longueur d'onde de résonance λ_0 33
relation de Bragg 33
stop band 33
miroir interférentiel ..... *Voir* miroir de Bragg
modèle de Lorentz ..... *Voir* Lorentz
modulateur 57
monochromateur 56

N

nitrures 7
niveaux électroniques 24

P

paramètres de maille
AlN 12
GaN 12
Paramètres liés à la force d'oscillateur
B 28
$\hbar\Gamma_0$ 28
photoexcitation 60
photoluminescence
modélisation 77
résolue en angle 64
sous incidence normale 59
photoréflectivité
expérience 65

modélisation 80
polarisation *TE* 58
polarisation *TM* 58
polariton de cavité
définition 45
mise en évidence expérimentale.....118
relations de dispersion.....45
procédure de minimisation.....86
puits quantique
définition 24
interaction exciton-photon.....44
pulsation plasma ω_p.....21

R

recombinaison non radiative 61
recombinaison radiative 61
réflectivité
modélisation 69
résolue en angle.....57
sous incidence normale 56
relation de dispersion
exciton.....20
exciton dans un puits quantique 25
photon.....43
polariton..... 46

S

Sellmeier.....*Voir* loi de Sellmeier
silicium Si(111) 14
splitting ..... *Voir* dédoublement de Rabi
structure cristalline
blende de zinc 12
wurtzite 12
structure multicouche..... 72

T

tan Ψ..... 84
théorie des potentiels de déformation..... 17
thermalisation 60
trou..... 19

W

wurtzite ..... *Voir* structure cristalline

Liste des travaux

Publications dans une revue internationale avec comité de lecture

① **"Observation of Rabi splitting in a bulk GaN microcavity grown on silicon"**
N. Antoine-Vincent, F. Natali, D. Byrne, A. Vasson, P. Disseix, J. Leymarie, M. Leroux, F. Semond et J. Massies
Physical Review B **68**, 153313 (2003).

② **"Determination of the refractive indices of AlN, GaN and AlxGa1-xN grown on (111)Si substrates"**
N. Antoine-Vincent, F. Natali, M. Mihailovic, A. Vasson, J. Leymarie, P. Disseix, D. Byrne, F. Semond et J. Massies
Journal of Applied Physics **93**, 5222 (2003).

③ **"AlN/AlGaN Bragg reflectors for UV spectral range grown by molecular beam epitaxy on Si(111)"**
F. Natali, N. Antoine-Vincent, F. Semond, D. Byrne, L. Hirsch, A.S. Barriere, N. Grandjean, M. Leroux, J. Massies et J. Leymarie
Japanese Journal of Applied Physics (Part 2: Letters) **41**, L1140 (2002).

Publications dans une revue internationale avec comité de lecture lors de conférences scientifiques

④ **"Advances in the realisation of GaN-based microcavities : towards strong coupling at room temperature"**
F. Semond, D. Byrne, F. Natali, M. Leroux, J. Massies, N. Antoine-Vincent, A. Vasson, P. Disseix et J. Leymarie.
résumé accepté, article soumis.
Material Research Society (MRS) Fall Meeting, Boston, Etats-Unis, 1-5 décembre 2003.

⑤ **"Determination of $Al_xGa_{1-x}N$ refractives indexes at low and room temperature, in the 300-600 nm range, for the optimisation of GaN-based microcavities"**

N. Antoine-Vincent, F. Natali, M. Mihailovic, P. Disseix, A. Vasson, J. Leymarie, D. Byrne, F. Semond et J. Massies.
Physica Status Solidi (a) ***195****, 543 (2003)*.
International Workshop on the Physics of Light-Matter Coupling in Nitrides (PLMCN-2), Rithymnon, Crete (Greece), 25-30 May 2002.

⑥ **"RBS studies of AlGaN/AlN Bragg reflectors"**
L. Hirsch, F. Natali, P. Moretto, A.S. Barriere, D. Byrne, F. Semond, J. Massies, N. Grandjean, N. Antoine-Vincent et J. Leymarie.
Physica Status Solidi (a) ***195****, 502 (2003)*.
International Workshop on the Physics of Light-Matter Coupling in Nitrides (PLMCN-2), Rithymnon, Crete (Greece), 25-30 May 2002.

⑦ **"Modelling and spectroscopy of GaN microcavities"**
N. Antoine-Vincent, F. Natali, P. Disseix, M. Mihailovic, A. Vasson, J. Leymarie, F. Semond, M. Leroux et J. Massies.
Physica Status Solidi (a) ***190****, 187 (2002)*.
International Workshop on the Physics of Light-Matter Coupling in Nitrides (PLMCN-1), Rome (Italy), 26-29 September 2001.

⑧ **"Potentialities of GaN-based microcavities grown on silicon substrates"**
N. Antoine-Vincent, F. Natali, F. Semond, M. Leroux, N. Grandjean, J. Massies, J. Leymarie et A. Vasson.
Physica Status Solidi (a) ***188****, 519 (2001)*.
Fourth International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS4), Denver (USA), 16-20 July 2001.

⑨ **"Growth by molecular beam epitaxy and optical properties of a ten-period AlGaN/AlN distributed Bragg reflector on Si(111)"**
F. Semond, N. Antoine-Vincent, N. Schnell, G. Malpuech, M. Leroux, J. Massies, P. Disseix J. Leymarie et A. Vasson.
Physica Status Solidi (a) ***183****, 163 (2001)*.
International Workshop on the Physics of Light-Matter Coupling in Nitrides (PLMCN-0), 8-12 October 2000, Saint-Nectaire (France)

Communications orales et présentations de poster

"Recherche du couplage fort lumière-matière dans les microcavités à base de GaN"
N. Antoine-Vincent, F. Natali, D. Byrne, A. Vasson, P. Disseix, J. Leymarie, M. Leroux, F. Semond et J. Massies.
Groupe de recherche (GDR) "Semiconducteurs à large bande interdite", 15-18 juin 2003, Nice.
Poster et présentation orale (J. Leymarie).

"Molecular beam epitaxy growth of group III-nitrides microcavities : optical and structural properties"
F. Natali, N. Antoine-Vincent, D. Byrne, F. Semond, M. Leroux, N. Grandjean, J. Massies et J. Leymarie.

International Workshop on the Physics of Light-Matter Coupling in Nitrides (PLMCN-2), Rithymnon, Crete (Greece), 25-30 May 2002.
Présentation orale (D. Byrne).

"Ellipsométrie spectroscopique de composés à base de nitrures"
M. Mihailovic, S. Colard, L. Siozade, J. Leymarie, P. Disseix, A. Vasson et N. Antoine-Vincent.
Ecole thématique "Elaboration et caractérisation des cristaux massifs et en couche mince pour l'optique", 23-27 avril 2001, Les Houches.
Poster.

"Growth and caracterisation of GaN-based microcavities"
F. Natali, N. Antoine-Vincent, F. Semond, M. Leroux, J. Massies et J. Leymarie.
International Workshop on the Physics of Light-Matter Coupling in Nitrides. (PLMCN-1), 26-29 Septembre 2001, Rome (Italie).
Poster et présentation orale (F. Natali).

"Modélisation et caractérisation de microcavités à base de GaN"
N. Antoine-Vincent, F. Natali, P. Disseix, M. Mihailovic, A. Vasson, J. Leymarie, F. Semond, M. Leroux et J. Massies.
Journées Thématiques "Nitrures" du GDR "Semiconducteurs à large bande interdite", 21-23 mai 2001, Grenoble.
Présentation orale (N. Antoine-Vincent).

"Croissance et caractérisation de microcavités à base de nitrures III-V sur substrat silicium"
F. Natali, N. Antoine-Vincent, F. Semond, M. Leroux, J. Massies, J. Leymarie et A. Vasson.
Journées Thématiques "Nitrures" du GDR "Semiconducteurs à large bande interdite", 21-23 mai 2001, Grenoble.
Poster.

"Spectroscopie optique d'une microcavité à base de GaAs et de miroirs de Bragg à base de nitrures"
N. Antoine-Vincent.
Journée de l'Ecole Doctorale des Sciences Fondamentales, 10 novembre 2000, Clermont-Ferrand.
Présentation orale (N. Antoine-Vincent).

Résumé :

Ce mémoire est consacré à l'étude du couplage lumière-matière dans des structures à base de GaN (semiconducteur à bande interdite directe). L'objectif de ce travail est la mise en évidence expérimentale du couplage fort exciton-photon dans des microcavités à base de GaN.

Des difficultés liées à l'élaboration des nitrures nous ont contraint à effectuer deux études préliminaires : tout d'abord, la détermination des indices de réfraction d'AlN, GaN et AlGaN par ellipsométrie spectroscopique et par réflectivité, puis la caractérisation de miroirs de Bragg AlN/GaN et AlN/AlGaN. A partir des résultats obtenus, nous avons imaginé puis effectué le design de plusieurs structures de microcavités pour lesquelles le couplage fort lumière-matière était atteint théoriquement.

Les microcavités ont ensuite été élaborées par épitaxie sous jets moléculaires sur substrat de silicium et nous les avons caractérisées par spectroscopie optique : réflectivité et photoluminescence à basse température, en fonction de l'angle d'incidence et de la position. Les expériences de réflectivité résolues en angle nous ont permis de mettre en évidence pour la première fois le régime de couplage fort dans une microcavité à base de GaN. La structure étudiée est une microcavité massive à base de GaN encastrée entre 4 alternances de couches diélectriques SiO_2/Si_3N_4 formant le miroir haut et le substrat de silicium jouant le rôle du miroir bas. Le régime de couplage fort atteint dans cette structure est caractérisé par un dédoublement de Rabi de 31 meV persistant à une température de 77K, mais ne subsistant pas à température ambiante, à cause des élargissements induits par l'augmentation de la température.

Finalement, nous avons proposé des microcavités massives ou à puits quantiques permettant théoriquement l'observation du régime de couplage fort à température ambiante. Ainsi, des dispositifs tels que le laser à polaritons, laser à très faible seuil, pourrait être envisagé.

Abstract :

This memory is devoted to the study of the coupling light-matter in structures containing GaN (semiconductor with direct band gap). The objective of this work is the experimental description of the exciton-photon strong coupling in microcavities containing GaN.

Difficulties related to the growth of nitrides have constrained us to carry out two preliminary studies : first of all, determination of the refractive indices of AlN, GaN and AlGaN by spectroscopic ellipsometry and reflectivity, then the characterization of Bragg mirrors AlN/GaN and AlN/AlGaN. From the results obtained, we imagined, then carried out the design of several structures of microcavities for which the light-matter strong coupling was reached theoretically.

The microcavities were then grown by molecular beam epitaxy on silicon substrate and we characterized them by optical spectroscopy : reflectivity and photoluminescence at low temperature, as a function of the incidence angle and of the position. The angle resolved reflectivity experiments enabled us to highlight for the first time, the strong coupling regime in a microcavity containing GaN. The studied structure is a massive microcavity containing GaN, embedded between 4 alternations of dielectric layers SiO2/Si3N4 forming the top mirror and the silicon substrate acting as the bottom mirror. The strong coupling regime reached in this structure, is characterized by a Rabi splitting of 31 meV persistent at a temperature of 77K, but not remaining at room temperature, because of the widenings induced by the increase of the temperature.

Finally, we proposed massive microcavities or with quantum wells theoretically allowing the observation of the strong coupling regime at room temperature. Thus, devices such as the polariton laser, laser with very weak threshold, could be considered.

Mots-clés :

Semi-conducteur	Exciton	Polariton de cavité
Microcavité	Force d'oscillateur	GaN
Réflectivité	Photoluminescence	Ellipsométrie