Spectroscopie optique de polaritons dans des cavités planaires et des guides d'onde à base de GaN et ZnO

F. Réveret

▶ **To cite this version:**

F. Réveret. Spectroscopie optique de polaritons dans des cavités planaires et des guides d'onde à base de GaN et ZnO. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Clermont Auvergne, 2020. tel-02976709v2

HAL Id: tel-02976709

https://theses.hal.science/tel-02976709v2

Submitted on 16 Sep 2021

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

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

Université Clermont Auvergne

École doctorale des sciences fondamentales

Habilitation à diriger des recherches

François Réveret

Spectroscopie optique de polaritons dans des cavités planaires et des guides d'onde à base de GaN et ZnO

Soutenue le 1 juillet 2020, devant le jury composé de :

Joël CIBERT	Directeur de recherche	Rapporteur
Mathieu GALLART	Maitre de conférence	Rapporteur
Maxime RICHARD	Directeur de recherche	Rapporteur
Guillaume MALPUECH	Directeur de recherche	Président
Jésus ZÚÑIGA-PÉREZ	Chargé de recherche	Examinateur
Martine MIHAILOVIC	Maitre de conférence	Examinateur
Joël LEYMARIE	Professeur	Examinateur
Pierre DISSEIX	Professeur	Examinateur

Table des matières

Abréviations **5**

Introduction **7**

1 Polaritons dans les microcavités planaires **15**
1.1 Historique et état de l'art . . . 15
1.2 Optimisation du facteur de qualité . . . 20
1.3 Laser à polaritons . . . 24
1.3.1 ZnO : première observation jusqu'à 120 K . . . 24
1.3.2 GaN et ZnO à température ambiante . . . 28
1.3.3 Diagrammes de phases de 10 à 300 K . . . 33
1.3.4 Discussion comparaison GaN et ZnO . . . 37
1.4 Commutateur optique . . . 51

2 Guides d'onde polaritoniques **55**
2.1 Le contexte . . . 55
2.2 Polaritons guidés . . . 56
2.2.1 Présentation du guide ZnO 50 nm . . . 56
2.2.2 Démonstration du couplage fort et effet laser . . . 59
2.2.3 Temps de passage . . . 62
2.2.4 Interférences . . . 64
2.2.5 Longueur d'atténuation . . . 67
2.2.6 Résonateur . . . 68
2.2.7 Influence du cladding supérieur . . . 68
2.2.8 Et avec GaN ? . . . 70
2.3 Amplification . . . 71

3 Compétition entre modes polaritoniques horizontaux et verticaux **73**
3.1 Les deux lasers avec un seuil similaire . . . 74
3.2 Le laser horizontal seul . . . 77
3.3 Le laser vertical seul . . . 80

Conclusion et perspectives **83**

CV court **87**

Abréviations

Description des abréviations utilisées tout au long de ce manuscrit

DBR : Miroir de Bragg (distributed Bragg mirror)

EHP : Plasma électrons−trous (Electrons−holes plasma)

FIB : Faisceau d'ions focalisés (focused ion beam)

FMT : Formalisme des matrices de transfert

FWHM : Largeur à mi-hauteur (Full width at half maximum)

L_{DBR} : Longueur de pénétration du champ électrique

L_{eff} : Longueur effective de la cavité

LPB : Branche basse du polariton (lower polariton branch)

MEB : Microscopie électronique à balayage

Ω : Dédoublement de Rabi

Q : Facteur de qualité

TEM : Microscopie électronique en transmission

UPB : Branche haute du polariton (upper polariton branch)

Caractéristique des sources laser utilisées

Pour les caractérisations basses puissances, nous utilisons un laser continu HeCd émettant à 325 nm. Les mesures en fonction de la puissance sont principalement réalisées avec la quatrième harmonique d'un laser Nd :YAG (266 nm, q-switch passif). La durée des impulsions est de 400 ps et le taux de répétition de 21 kHz. Dans ce manuscrit l'intensité de l'injection optique est principalement donnée en puissance moyenne par unité de surface (W/cm^2). Pour passer en puissance crête, il suffit de multiplier la puissance par 120 000. Concernant les mesures de photoluminescence résolue en temps c'est la troisième harmonique d'un laser titane :saphir (266 nm) qui est utilisée. La durée des impulsions est de 150 fs et le taux de répétition de 76 MHz.

Introduction

Après ma thèse, j'ai intégré l'équipe de Sébastien Sauvage et Philippe Boucaud à l'Institut d'Électronique Fondamentale à Orsay pour un postdoc. Le sujet de recherche sur lequel j'ai travaillé, la nanoscopie dans des boîtes quantiques uniques d'InAs/GaAs, m'a permis d'élargir mes compétences en spectroscopie optique dans le domaine de l'infrarouge à l'échelle nanomètrique [1]. J'ai également pu m'initier au travail en salle blanche avec la réalisation de dépôts, de gravures et de caractérisations.

Lors de mon arrivée à l'Institut Pascal en 2010, j'ai intégré l'équipe Spectroscopie Optique des Solides dirigée par Joël Leymarie, Professeur d'Université et composée de Martine Mihailovic, Maître de Conférences, Pierre Disseix, Professeur d'Université et François Médard, Maître de Conférences. C'est Aimé Vasson, Ingénieur de Recherche, qui avait en charge la partie expérimentale jusqu'à son départ à la retraite en 2008. Delphine Lagarde lui a succédé pendant 2 ans, puis a changé de laboratoire. En 2010, j'ai eu dans un premier temps un contrat d'Ingénieur de Recherche longue durée que j'ai pu pérenniser à l'issue du concours CNRS fin 2012. En tant qu'Ingénieur de Recherche dans l'équipe Spectroscopie Optique des Solides, mon rôle est de m'occuper de la plateforme de spectroscopie optique, de la conception et le développement de nouvelles techniques expérimentales, du maintien des bancs de mesures existants, de la réalisation de campagnes de mesures, de l'analyse des résultats, ainsi que de la formation et l'accompagnement des étudiants. Pour faire avancer nos thématiques de recherche, j'ai conçu et mis en place de nouveaux montages expérimentaux : l'imagerie de Fourier et l'imagerie en espace réel, la transmission et photoluminescence jusqu'à 230 nm, le mélange à quatre ondes dégénérés en fréquence intégré en temps ou avec la résolution spectrale et la photoluminescence résolue en temps avec une résolution à la picoseconde.
Depuis 2015, le plateau de spectroscopie optique, dont je suis le responsable scientifique, a rejoint la plateforme d'assistance à la recherche, aux technologies et aux entreprises (UCA PARTNER). Ce service de l'Université Clermont Auvergne (UCA) regroupe les compétences technologiques locales et les propose aux chercheurs et entreprises.

Durant ces années, j'ai pu dépasser mon rôle initial et m'impliquer pleinement dans les activités de recherche. J'ai bénéficié d'une grande liberté d'action sur les différentes thématiques de recherche abordées dans l'équipe et j'ai également eu l'envie et la volonté de m'intéresser à d'autres sujets de recherche. Dans ce contexte, l'habilitation à diriger des recherche me permettrait d'augmenter encore mon implication dans la stratégie scientifique de l'équipe et l'encadrement des étudiants en thèse.
Les thématiques sur lesquelles je me suis impliqué durant ces neuf dernières années sont brièvement décrites par la suite.

- Étude de multi-puits quantiques AlGaN/AlGaN pour l'émission à 280 nm (2011−2016)
Le projet "Vertical cavity surface emission laser operating in deep UV range", financé par l'ANR (VESUVE) et coordonné par Frédéric Genty sur la période 2011−2014, a impliqué quatre laboratoires : Georgia Tech-CNRS, Supelec Metz, le C2N et l'Institut Pascal. L'objectif était de réaliser une source cohérente solide et compacte émettant à 280 nm pour différentes applications potentielles comme

la spectroscopie, la lithographie, la stérilisation et la médecine. Des puits quantiques d'AlGaN/AlGaN ont été choisis comme zone active. Dans cette gamme de longueurs d'onde, le rendement radiatif des matériaux nitrures étant très faible et l'absorption résiduelle des miroirs n'étant plus négligeable, la réalisation d'une zone active et d'un résonateur constituait un réel défit. Les deux premières difficultés rencontrées étaient :
(i) de réaliser la croissance des couches ternaires AlGaN à forte concentration d'aluminium en préservant un taux de recombinaisons radiatives élevé,
(ii) de "designer" la zone active pour conserver de la force d'oscillateur suivant l'axe de croissance.
Pour ce projet, je me suis consacré, en collaboration avec Gaëlle Le Gac (post-doctorante 2012−2014), à l'étude des propriétés optiques des zones actives à base de puits quantiques AlGaN/AlGaN réalisées par l'équipe d'Abdallah Ougazzaden (Georgia Tech). J'ai fait évoluer nos expériences de transmission et de photoluminescence pour avoir accès à la gamme de longueurs d'onde 230−300 nm. Nous avons pu, montrer l'évolution de l'émission en fonction de la température pour différentes concentrations d'aluminium de la zone active, estimer le rendement quantique, observer l'absorption des puits et des barrières et ainsi confirmer les designs (sur la base de calculs de type fonction enveloppe) proposés par Pierre Disseix (IP) [2, 3]. J'ai également travaillé en étroite collaboration avec Sophie Bouchoule (C2N) sur la caractérisation et l'optimisation de miroirs de Bragg en vue de l'élaboration d'une microcavité planaire active centrée à 280 nm.

- Influence de nanoparticules métalliques sur l'extraction lumineuse de luminophores (2015−)
Antoine Moreau de l'Institut Pascal s'intéresse depuis quelques années aux propriétés de nanoparticules métalliques [4]. Je me suis rapproché d'Antoine en 2015 pour lui proposer des expériences de spectroscopie optique afin d'étudier la réponse optique de ces nanoparticules métalliques. Lorsque l'on excite ces dernières avec une onde lumineuse, il est possible de créer des plasmons de surface. En fonction de la taille et de la forme des nanoparticules, ces plasmons de surface provoquent des résonances dans la gamme du visible. Nous avons commencé par mesurer la longueur d'onde de résonance pour différentes tailles de nanocubes d'argent.
Ensuite, une collaboration avec Audrey Potdevin, Geneviève Chadeyron et Rachid Mahiou de l'Institut de chimie de Clermont-Ferrand (ICCF) s'est mise en place pour étudier le potentiel des nanoparticules métalliques sur l'amélioration de l'extraction lumineuse de luminophores. Nous avons eu le soutien de la région à travers le CPER (2017−2019) pour l'achat d'une streak camera mais aussi le financement d'un post-doctorant, Mohammad Khaywayh, qui a apporté une dynamique pour le projet. Récemment, nous avons également eu le soutien du LabEx IMobS3 pour renouveler le financement de Mohammad avec le projet METALUM (nano-objets METAlliques et LUMinophores compatibles avec des LEDs) 2019−2020. Pour cette thématique, j'ai imaginé et développé des expériences sur mesure pour avoir accès à la dépendance angulaire de l'émission entre 0 et 90°, à l'influence de la longueur d'onde d'excitation, à l'influence de la nature de l'excitation (source spontanée, source cohérente continue ou impulsionnelle) et à la dépendance spatiale à l'échelle du micron. Nous avons ainsi montré que l'amélioration de l'extraction de luminescence (et aussi de l'injection optique) est fortement dépendante de la taille et de la concentration des nanoparticules mais aussi du coefficient d'absorption de la couche sous les nanoparticules.

- Caractérisation optique de couches anti-reflets (2014−)
Angélique Bousquet de l'Institut de chimie de Clermont-Ferrand réalise des couches d'oxynitrures de silicium par pulvérisation plasma. Cette méthode possède l'avantage de pouvoir fabriquer à faible coût des couches minces à gradient d'indice. Amira Farhaoui, qui a fait sa thèse dans l'équipe d'Angélique en collaboration avec l'équipe Electromagnétisme et Nanophotonique de l'Institut Pascal, a réalisé plusieurs systèmes anti-reflets pouvant être utilisés sur des photo-détecteurs ou cellules photovoltaïque en silicium. J'ai proposé à Amira des expériences sur mesure pour estimer le coefficient

de réflexion de ces structures sur la gamme 300 nm à 1700 nm. Nous avons montré que le coefficient de réflexion moyen du silicium entre 300−900 nm de 45% pouvait diminuer jusqu'à 4% avec un système anti-reflet composé de seulement 4 couches (200 nm) en accord avec les calculs de Rafik Smaali, Emmanuel Centeno et Antoine Moreau [5, 6].

- Étude des propriétés optiques de luminophores nanostructurés (2016−)
Depuis plusieurs années, Audrey Potdevin de l'ICCF s'intéresse aux luminophores pour les applications éclairage à DELs blanches. Avec Jeff Nyalosaso (post-doctorant), ils ont fabriqué des luminophores nanostructurés pour améliorer l'extraction de la lumière émise par le luminophore. Dans ce contexte, ils m'ont contacté pour mesurer la dépendance angulaire de l'émission de couches avec et sans nanostructuration. Je leur ai proposé de mesurer l'homogénéité de leurs échantillons en utilisant la micro-photoluminescence résolue spatialement, puis d'observer la dépendance angulaire de ±30° en imageant le plan de Fourier. Nous avons observé une augmentation de l'intensité de luminescence en incidence normale pour les couches nanostructurées [7].
Plus récemment dans le cadre de la thèse de Nehed Amara, j'ai proposé à Nehed et Audrey d'effectuer des mesures de temps de déclin de luminescence sur leurs structures composées de nanofils ZnO imprégnés de nanoparticules de YAG:Ce. Avec ce luminophore composite, il est possible de contrôler la proportion de luminescence dans le rouge en fonction de la longueur d'onde d'excitation. Nous avons montré que le temps de déclin de la luminescence des nanofils à 600 nm n'est pas modifié par la présence du YAG:Ce, mais ce dernier grâce à son indice de réfraction plus faible exalte la luminescence des nanofils.

- Étude de nano- et micro-fils InGaN et GaN (2010−)
La collaboration entre l'équipe de croissance de l'Institut Pascal et notre équipe existait bien longtemps avant mon arrivée. Depuis 2010, je me suis investi dans la caractérisation optique et l'étude des nano- et micro-structures réalisées par les étudiants de l'équipe croissance comme Kaddour Lekhal et Geoffrey Avit, ainsi qu'Elissa Roche en thèse en collaboration avec les deux équipes. Avec Kaddour nous avons démontré l'importante influence de la température de croissance des micro-fils GaN sur leurs propriétés optiques. Avec Geoffrey nous avons pu mesurer la réponse optique d'un nano-fil GaN unique sans défaut [8]. Les mesures avec Elissa nous ont permis d'observer l'émission de nano-fils InGaN dans une gamme de longueur d'onde très étendue, de 400 nm à 800 nm [9].
Plus récemment Jesus Zuniga Perez et Blandine Alloing (CRHEA) ont initié une activité sur les micro-fils GaN en obtenant un financement de la part du GaNEX. L'idée est de réaliser un laser à très faible seuil en utilisant une structure PIN de type "cœur-coquille" pour une injection électrique. Mathieu Déchaux a démarré sa thèse dans ce contexte avec pour mission de réaliser les structures au CRHEA et les études optiques à l'Institut Pascal. J'ai accompagné Mathieu dans ce projet en étudiant les propriétés optiques de micro-fils GaN PIN uniques. Nous avons pu observer un seuil laser faible sur un même micro-fil PIN unique de 5 et 300 K. C'est maintenant Léo Mallet Dida qui continue ce travail de thèse. Nous souhaitons, en réalisant notamment des mesures de photoluminescence résolue en temps, identifier clairement les mécanismes de gain impliqués dans cet effet laser.

- Caractérisation optique de couches GaAs nitrurées (2017−)
Dans le cadre de sa thèse dans l'équipe surface et interface de l'Institut Pascal, Hussein Mehdi s'est intéressé à différentes méthodes de nitruration de couches GaAs. J'ai partagé mes compétences en spectroscopie optique pour mesurer, analyser et interpréter les propriétés optiques de ces couches. En fonction des conditions de nitruration, nous avons montré que la couche nitrurée (GaN) pouvait cristalliser sous forme cubique ou wurtzite [10]. De plus nous avons identifié les conditions de nitruration permettant d'augmenter l'intensité de photoluminescence de la couche de GaAs d'un facteur 10. La diminution des recombinaisons de surface améliore très nettement le rendement radiatif. Des

mesures de photoluminescence résolue en temps sont prévues pour estimer le temps de vie des porteurs.

- Étude des polaritons dans des microcavités planaires et des guides d'ondes (2010−).
L'étude des polaritons de cavité est la thématique historique de l'équipe qui a été initiée au début des années 2000 avec le matériau GaN et dans le cadre du contrat "Clermont" coordonné par Alexei Kavokin. L'extension de cette activité au matériau ZnO a débuté avec le projet ANR ZOOM (Zinc oxide optical microcavities, 2006−2009) coordonné par Thierry Guillet. Cette thématique bénéficie d'une collaboration efficace entre le CRHEA de Valbonne, le C2N de Saclay, le L2C de Montpellier et l'Institut Pascal. Après plusieurs tentatives, nous avons obtenu un deuxième financement de l'ANR sur la période 2016−2020, le projet se nomme "Plug and Bose" (Room-temperature electrically-injected polariton lasers), il est coordonné par Sophie Bouchoule. Sur cette thématique, j'ai encadré et j'encadre le travail d'étudiants en thèse en co-direction avec Joël Leymarie, Pierre Disseix ou Martine Mihailovic : Laurent Orosz (2010−2013), Emilien Mallet (2011−2014), Omar Jamadi (2014−2018) et Geoffrey Kreider (en cours). J'ai également encadré plusieurs étudiants de master : Zigang Weng (2012), Laurent Bignet (2013), Thibaut Flottat (2013), Omar Jamadi (2014), Joel-Edouard Nkeck (2016), Mamadou Fall (2017), Loic Ramousse (2018) et Hassen Souissi (2019).
Pour ces quatre doctorants, nous nous sommes répartis un encadrement à 33% chacun en essayant au mieux d'être complémentaires. J'ai pu ainsi encadrer les étudiants sur la partie mesure expérimentale, l'analyse des données, l'interprétation, la modélisation des résultats mais également dans la valorisation des résultats à travers les présentations lors de conférence et la rédaction d'articles.

Plus spécifiquement, lorsque la thèse de Laurent Orosz a débuté en 2010, nous utilisions principalement des mesures résolues en angles pour observer les dispersions polaritoniques. Avec l'amélioration du facteur de qualité nous avons rencontré de nouvelles difficultés comme la présence de fluctuations d'épaisseur de la zone active à l'échelle du micron qui provoque un élargissement du mode photonique (désordre photonique). C'est en faisant varier la taille de la zone sondée que l'on observe clairement l'influence du désordre photonique. Il est devenu alors important de pouvoir mesurer la dispersion polaritonique en un même point de l'échantillon et avec un petit spot pour s'affranchir du désordre photonique. C'est dans ce contexte que j'ai développé une expérience de microphotoluminescence qui permet d'imager le plan de Fourier (espace des vecteurs d'onde, champ lointain) et l'espace réel (champ proche). J'ai également travaillé sur la stabilité du montage pour s'affranchir au maximum des vibrations issues du pompage du cryostat et de la circulation d'hélium liquide. Nous avons pu mettre en évidence le laser à polaritons dans une structure ZnO ainsi que le fonctionnement du commutateur optique polaritonique.

Avec Emilien Mallet, nous avons conçu et développé une expérience de mélange à quatre ondes dégénérée en fréquence et intégré en temps pour avoir accès au temps de décohérence des excitons dans GaN et ZnO, paramètres étroitement liés aux interactions excitons-phonons et excitons-excitons. Par la suite, nous avons fait évoluer le dispositif expérimental pour rajouter la résolution spectrale au mélange à quatre ondes pour avoir accès finement à la réponse des excitons A et B. Le cumul de plusieurs expériences comme la photoluminescence, la réflectivité, l'autocorélation interférentielle et le mélange à quatre ondes nous a permis d'estimer avec précision les paramètres excitoniques de GaN et ZnO (la force d'oscillateur et les élargissements homogène et inhomogène). Ces valeurs constituent, à l'heure actuelle, des entrées fiables pour simuler avec précision la réponse optique des structures à base de GaN et ZnO.

Avec Omar Jamadi nous avons mis en place une procédure systématique et répétable pour la mesure des diagrammes de phases de 5 à 300 K. Ces résultats nous ont permis de comprendre l'influence de

la fraction excitonique sur le seuil mais aussi d'observer le rôle des phonons LO sur la relaxation des polaritons. Nous avons ensuite amélioré l'homogénéité du spot d'excitation pour étudier finement l'influence du désordre photonique sur le laser à polaritons. Nous avons démarré et développé l'activité sur les guides polaritoniques en étudiant la dispersion des polaritons guidés, l'influence de la taille du résonateur et du diamètre du spot sur le seuil laser. Finalement c'est grâce à une expérience à deux spots d'excitation que nous avons pu clairement mettre en évidence l'amplification polaritonique dans les guides.

C'est maintenant Geoffrey Kreider qui continue le travail sur les polaritons guidés. Nous avons commencé par l'étude des longueurs d'atténuation des polaritons guidés dans ZnO en fonction de la fraction excitonique et de la température. Puis nous avons mis en place un filtrage spatial du plan de Fourier pour avoir accès, dans une zone bien définie, à l'évolution du blue shift de la branche polaritonique en fonction de la puissance d'excitation. Geoffrey réalise ensuite des simulations pour estimer le pourcentage de force d'oscillateur au seuil laser. Nous avons également réalisé des mesures de photoluminescence résolue en temps pour estimer le temps de vie non radiatif des excitons et ainsi calculer la densité de porteurs injectés.

J'ai choisi très naturellement de rédiger mon rapport d'HDR sur les polaritons pour plusieurs raisons. J'ai travaillé sans discontinuité depuis 2010 sur ce sujet et j'ai encadré de nombreux étudiants. J'ai été acteur dans cette thématique en participant activement grâce un contact permanent et très régulier avec Jesus Zuniga Pérez (du CRHEA de Valbonne pour la réalisation des échantillons), Sophie Bouchoule (du C2N pour la réalisation des miroirs et étapes technologiques) et Thierry Guillet (du L2C pour la partie spectroscopie optique). Les discussions régulières avec Dmitry Solnyshkov et Guillaume Malpuech (de l'IP pour la partie théorique) ont été très enrichissantes et stimulantes. A l'aide de simulations utilisant le formalisme des matrices de transfert, j'ai calculé la réponse optique des microcavités planaires en prenant en compte la structure réelle et l'indice des couches mesuré par Martine Mihailovic et Sophie Bouchoule. Ces simulations réalistes m'ont permis de proposer les designs des nouvelles structures. J'ai également pu proposer des idées de mesures, d'études et d'interprétations de résultats pour participer activement aux orientations du projet et à l'amélioration de la compréhension des polaritons. Finalement, j'avais envie de retracer ces neuf années de recherche en montrant mon implication et en expliquant d'où nous sommes partis et où en nous en sommes aujourd'hui. J'ai donc choisi de consacrer ce rapport entièrement à l'étude expérimentale des polaritons dans les microcavités planaires et les guides d'onde.

Replaçons d'abord cette étude dans le contexte de la recherche sur les lasers à faible coût énergétique. Pour obtenir une émission stimulée, il faut réaliser une inversion de population, la différence d'énergie des pseudo-niveaux de Fermi (entre l'état initial et l'état final de la transition) doit être supérieure à l'énergie des photons émis ($\Delta F > h\nu$) [11]. Concrètement pour réaliser une diode laser, il faut une jonction PN pour injecter les porteurs, une zone intrinsèque dans laquelle l'inversion de population sera réalisée mais il faut également un résonateur pour compenser les pertes et renvoyer une partie des photons dans la zone active pour favoriser l'émission stimulée. L'augmentation de la densité de porteurs injectée permet d'obtenir une majorité d'électrons dans la bande de conduction. Une fois la condition de transparence atteinte, l'injection doit encore être augmentée pour que le gain compense les pertes afin d'atteindre le seuil laser. Pour diminuer le courant de seuil de fonctionnement des diodes laser, des doubles hétérostructures ont été utilisées dans les années 70 puis des puits quantiques. Les faces clivées des premières diodes laser faisaient office de miroirs. L'émission était alors multimodes à cause de l'épaisseur importante du résonateur.
Un empilement de bi-couches transparentes d'indice de réfraction différent avec l'épaisseur de chaque

couches fixée à $\lambda/4n$ (avec λ la longueur d'onde et n l'indice de réfraction de la couche) permet d'obtenir des interférence constructives. Avec ce type de structure, appelé miroir de Bragg, il est possible de réaliser un miroir sélectif en longueur d'onde avec un coefficient de réflexion qui peut être supérieur à 99%. A la fin des années 80, l'utilisation de microcavités planaires, composées de deux miroirs de Bragg, a rendu possible la réalisation des diodes laser à cavité verticale émettant par la surface (VCSEL). La diminution du volume de la cavité et l'amélioration du confinement des photons ont fortement contribué à l'abaissement du seuil. Ces structures possèdent de nombreux avantages comme la possibilité d'obtenir une émission monomode, une faible divergence et une modulation plus rapide du signal [12].
Ces microcavités planaires ont également été le point de démarrage de la polaritonique ou de l'étude du couplage fort entre photons et excitons (paires électron−trou en interaction coulombienne). Des photons, confinés dans la couche d'un matériau semiconducteur, peuvent interagir fortement avec des excitons. Une nouvelle quasi-particule est alors observée : le polariton de cavité possédant deux états propres [13]. Lorsque la finesse du résonateur est grande, les photons peuvent faire un nombre important d'allers et retours dans le résonateur, être absorbés puis ré-émis par la zone active. La signature expérimentale du régime de couplage fort est un anticroisement des deux modes polaritoniques (LPB et UPB), caractéristique d'un état mixte lumière-matière. Lorsque l'énergie du photon est résonnante avec celle de d'exciton, on observe un écart minimum entre les deux branches polaritoniques. Cette différence d'énergie, appelé dédoublement de Rabi, quantifie la force du couplage entre les excitons et les photons.
De par leur nature bosonique, les polaritons peuvent s'accumuler dans un même état d'énergie. A partir d'une densité ou d'une température critique, il est possible d'obtenir un condensat de polaritons. Grâce à la masse effective du polariton qui est 10^5 fois plus faible que celle de l'exciton, la condensation des polaritons peut être obtenue à température ambiante [14]. Dans ce cas, il n'y a pas besoin de réaliser une inversion de population contrairement à un laser classique, le condensat est la source de photons cohérents. L'injection de porteurs doit rester faible car on cherche à ne pas écranter l'interaction coulombienne pour conserver les excitons. Dans le cas d'une structure GaAs, le seuil laser polaritonique est deux ordres de grandeur plus faible que celui d'un VCSEL [15]. Le laser à polaritons est la brique élémentaire des circuits polaritoniques et il est aussi possible d'utiliser les polaritons pour réaliser des transistors optiques, des portes logiques optiques, des commutateurs ou des amplificateurs [16].

L'utilisation des arséniures (GaAs, AlGaAs, InGaAs) rend possible la réalisation de microcavités planaires à fort facteur de qualité ($10^4 - 10^5$) incluant une zone active à base de puits quantiques InGaAs d'une grande finesse spectrale. Depuis les année 90, ces microcavités planaires ont été une plateforme privilégiée pour l'étude de l'interaction lumière-matière. Les propriétés polaritoniques ont été utilisées pour montrer des effets physiques d'optique non linéaire (effets paramétrique), de comportements collectif (condensation), de comportements de fluide (propagation, superfluidité). Ces structures ont également permis la réalisation de nombreux démonstrateurs. Cependant la faible énergie de liaison des excitons dans GaAs (et de CdTe) limite l'existence des polaritons aux basses températures (<40 K). Pour réaliser des composants polaritoniques, il a fallu se tourner vers les semiconducteurs à grand gap possédant une énergie de liaison supérieure ou égale à l'agitation thermique à température ambiante comme GaN, ZnO, CuCl ou certains matériaux organiques.

Pour obtenir le même effet à température ambiante, il ne suffit pas de simplement remplacer GaAs par GaN ou ZnO. Ces semiconducteurs à grands gaps ont des propriétés spécifiques comme une force d'oscillateur importante et une grande interaction polariton-phonon optique, ainsi que des inconvénients comme le manque de substrats pour GaN et la difficulté de réaliser un dopage p pour ZnO. Concernant l'hétéroépitaxie de GaN, les équipes de croissance ont cherché des solutions pour mini-

miser les effets de la contrainte. L'utilisation de couches tampons est alors indispensable lors de la croissance de GaN sur substrat silicium ou saphir. Malgré cela, la différence des paramètres de maille entre la couche épitaxiée et le substrat provoque une forte contrainte et une densité de dislocations importantes, de plus la différence des coefficients de dilatation thermique occasionne des fissures. Les fissures et les dislocations sont des canaux de recombinaisons non radiatifs que l'on cherche à éviter.
A cela s'ajoute une difficulté : réaliser un résonateur avec un facteur de qualité élevé tout en conservant une zone active de haute qualité optique. En effet, les fluctuations de contrainte et de composition dans la zone active entrainent une augmentation de l'élargissement inhomogène de l'exciton. Si l'élargissement de l'exciton devient supérieur au dédoublement de Rabi alors le couplage fort est perdu, on passe en couplage faible. De plus la présence de contrainte et de fissures dans les couches composant le miroir de Bragg n'est pas favorable pour le coefficient de réflexion et donc le facteur de qualité. En 2010, les facteurs de qualité mesurés sur les microcavités planaires fabriquées par le consortium étaient de 250−500. Le travail d'optimisation a nécessité de nombreux allers et retours entre les équipes de croissance/technologie et la spectroscopie optique. Ces études préliminaires ont été indispensables pour le projet car on sait maintenant qu'il faut un facteur de qualité d'au moins 650−1000 pour observer le laser à polaritons. De plus on sait aussi que les deux principaux leviers pour diminuer le seuil sont le facteur de qualité et le dédoublement de Rabi.

La forte interaction polariton-phonon optique est une spécificité des matériaux GaN et ZnO. En effet par rapport à GaAs, cette valeur est 14 fois supérieure pour GaN et 20 fois pour ZnO. La conséquence sur l'élargissement homogène de l'exciton est importante car la valeur de ce dernier à température ambiante atteint 20 meV pour GaN et 45 meV pour ZnO. Cela pourrait être pénalisant pour conserver le couplage fort à température ambiante mais nous verrons que dans le cas de ZnO grâce aux forces d'oscillateurs importantes la branche basse polaritonique n'est plus influencée par le couplage exciton-phonon. Nous verrons également que cette forte interaction polariton-phonon optique contribue de manière efficace à la relaxation des polaritons vers l'état fondamental.

Même si ZnO peut être homoépitaxié, c'est avec une microcavité composée d'un miroir à base de nitrures (AlN/AlGaN) sur silicium que nous avons observé pour la première fois le laser à polaritons. Les zones actives ZnO présentent une faible contrainte résiduelle et donc un élargissement inhomogène modéré. Le cas de GaN est différent car la contrainte dans la couche est importante et sa variation en fonction de l'épaisseur n'est pas linéaire. Les photons confinés dans une zone active GaN vont alors interagir avec des excitons dont l'énergie varie suivant l'épaisseur de la couche.

C'est dans ce contexte qu'ont débuté les études que je vais présenter. L'organisation de ce rapport est la suivante :
Le premier chapitre de ce manuscrit est consacré aux polaritons de cavité dans GaN et ZnO. Un état de l'art non exhaustif sur les microcavités planaires est présenté pour placer le contexte. Ce chapitre retrace l'avancée de nos travaux sur les polaritons de cavité de 2010 à 2018. Après la présentation de l'optimisation du facteur de qualité de la cavité, l'observation du laser à polaritons à basse température puis jusqu'à température ambiante est détaillée. Les diagrammes de phase pour GaN et ZnO en fonction de la température sont ensuite analysés pour mettre en évidence le rôle de la fraction excitonique et des phonons LO sur le seuil. La densité de porteurs injectés au seuil est comparée à la densité de Mott. Les seuils laser à polaritons sont finalement comparés aux seuls VCSEL de la littérature.

Le deuxième chapitre est dédié aux guides polaritoniques. Après avoir identifié la présence de modes propagatifs, le couplage fort est mis en évidence à travers la mesure de la dispersion polaritonique. L'observation du laser à polaritons guidés est analysée et l'importance du temps de passage sous le

spot excitateur est discutée. Après une estimation de la longueur d'atténuation, l'influence du résonateur et du cladding supérieur est présentée. Finalement une expérience à deux spots permet de mettre en évidence l'amplification des polaritons.

Le troisième chapitre présente une étude de la compétition des modes horizontaux et verticaux dans une microcavité planaire. Des mesures illustrent la possibilité d'obtenir ces deux lasers simultanément ou indépendamment. L'influence du laser horizontal sur le seuil du laser vertical est discutée.

Il existe de multiples prolongements à ce travail, je présenterai quelques études en cours et à venir après la conclusion dans les perspectives.

Chapitre 1

Polaritons dans les microcavités planaires

Sommaire

1.1 Historique et état de l'art 15
1.2 Optimisation du facteur de qualité 20
1.3 Laser à polaritons 24
1.3.1 ZnO : première observation jusqu'à 120 K 24
1.3.2 GaN et ZnO à température ambiante 28
1.3.3 Diagrammes de phases de 10 à 300 K 33
1.3.4 Discussion comparaison GaN et ZnO 37
1.4 Commutateur optique 51

Ce premier chapitre sur les microcavités planaires est le plus conséquent de ce manuscrit car il représente la majeure partie de mon travail sur les polaritons. La première partie est consacrée à un état de l'art non exhaustif des microcavités planaires orienté sur les matériaux inorganiques à grands gaps. Dans la deuxième partie, je présente le travail d'optimisation du facteur de qualité de cavité qui nous a permis d'atteindre un temps de vie photonique proche de la picoseconde. La troisième partie est le cœur du sujet, après avoir mis en évidence l'observation du laser à polaritons dans une microcavité planaire ZnO jusqu'à 120 K puis à température ambiante, je présente une étude complète des diagrammes de phase pour GaN et ZnO de 10 à 300 K. Cette troisième partie se termine par une comparaison de ces deux semiconducteurs utilisés comme zone active. Grâce à des mesures de temps de déclin, la densité de porteurs au seuil est estimée puis comparée à la densité de Mott mesurée dans la structure GaN. Finalement le seuil laser à polaritons est comparé aux seuils VCSEL de la littérature. Un exemple d'application possible est présenté dans la quatrième et dernière partie.

1.1 Historique et état de l'art

La première observation expérimentale des polaritons de cavité a été réalisée en 1992 par des mesures de réflectivité à 5 K sur une microcavité planaire GaAs à puits quantiques par Weisbuch et al. [13]. Le couplage fort exciton-photon a ensuite été mis en évidence par des mesures de photoluminescence et d'absorption [17, 18]. En 1996, Imamoglu et al. ont proposé d'utiliser le condensat de polaritons pour réaliser une source cohérente [19]. En 1998, Dang et al. ont observé la première émission non linéaire polaritonique [20]. C'est en 2006 que le premier condensat de Bose-Einstein a été observé avec des polaritons dans une microcavité planaire à base de CdTe jusqu'à 40 K [14]. Et ce n'est que très récemment (2013) que le laser à polaritons sous injection électrique et sous champ magnétique dans GaAs a été mis en évidence presque simultanément par un consortium international [21] et un

groupe du Michigan [22]. Tous ces travaux ont été réalisés avec des semiconducteurs à petits gaps (GaAs et CdTe) où la faible énergie de liaison ne rend possible les études qu'aux basses températures (5−40 K). Cependant la maturité de la filière GaAs fait de ce matériau un système polaritonique privilégié pour observer des effets de physique fondamentale comme l'amplification paramétrique [23], l'oscillation paramétrique optique [24], la bistabilité [25], la superfluidité [26], la génération de défauts topologiques [27], les oscillations Josephson [28], la magnetricité [29] ; mais aussi pour réaliser des démonstrateurs polaritoniques fonctionnant à basse température comme des transistors et des portes logiques [30, 31].

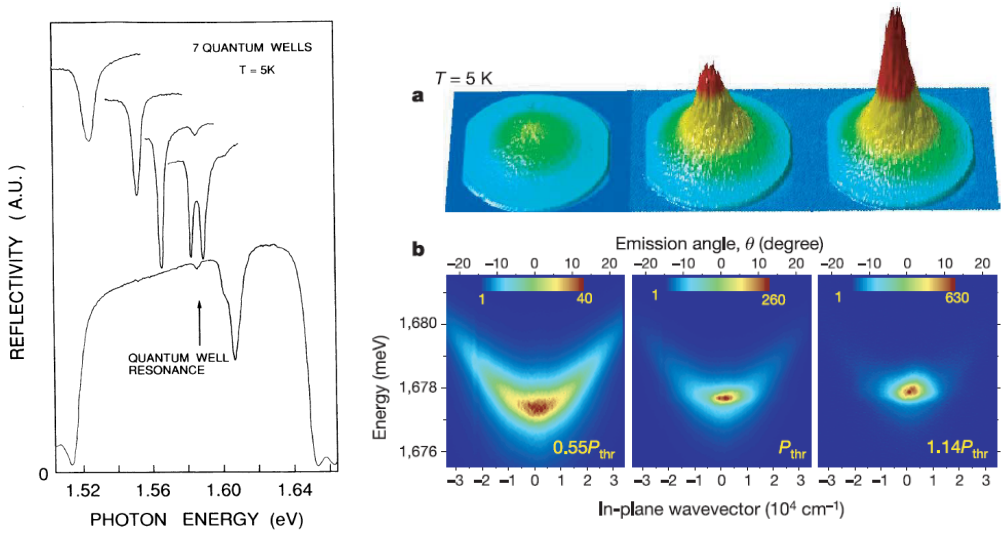

FIGURE 1.1 – (a) Première observation expérimentale des polaritons de cavité dans GaAs issue de [13]. (b) Condensation de Bose-Eistein des polaritons dans une microcavité planaire CdTe issue de [14].

Le tableau 1.1 rappelle l'énergie de bande interdite (E_g), l'énergie de liaison (E_b) et le rayon de Bohr (a_b) pour les semiconducteurs GaAs, CdTe, GaN et ZnO.
Contrairement à GaAs et CdTe, GaN et ZnO possèdent des excitons avec une énergie de liaison égale ou supérieure à l'énergie d'agitation thermique à température ambiante (25,2 meV). De plus des dédoublements de Rabi plus élevés sont attendus en lien avec leurs forces d'oscillateur plus conséquentes. Même si les excitons de GaN et ZnO sont 4−5 fois plus petit que ceux de GaAs, ils sont 6−9 fois plus grand que le paramètre de maille et sont donc aussi des excitons de Wannier-Mott.

	GaAs	CdTe	GaN	ZnO
E_g à 300 K (eV)	1,42	1,44	3,45	3,38
E_b 3D (meV)	4,8	10	25	60
a_b 3D (nm)	11,6	6,8	2,8	2,1

TABLE 1.1 – Comparaison des paramètres excitoniques des semiconducteurs GaAs, CdTe, GaN et ZnO où E_g, E_b, F_{osc} et a_b sont respectivement l'énergie de bande interdite, l'énergie de liaison et le rayon de Bohr.

En 1998, le semiconducteur à grand gap GaN est proposé comme un candidat très prometteur pour "l'étude" des polaritons grâce à ses forces d'oscillateur importantes [32]. En 2003 les matériaux GaN

et ZnO sont successivement proposés pour la réalisation d'un laser à polaritons à température ambiante [33, 34]. Cette même année, l'anticroisement, signature du couplage fort est observée pour la première fois dans une microcavité GaN sur silicium à basse température [35]. Puis à température ambiante en 2005 sur des structures simples sans miroirs de Bragg malgré un faible facteur de qualité (~50) [36].

Parallèlement le groupe de Nicolas Grandjean à Lausanne, qui a choisi une stratégie différente, élabore des microcavités planaires GaN sur substrat saphir avec un miroir inférieur AlInN/(Al)GaN en accord de maille. Ils peuvent ainsi empiler 30−40 paires sans contrainte et sans fissure [37,38]. Ils réalisent des structures permettant d'atteindre localement un facteur de qualité de 2800 ; une valeur qui est restée pendant presque dix ans la référence de l'état de l'art pour les nitrures [39]. Le temps de vie des photons dans la cavité et la qualité de la couche active permettent alors d'observer l'émission des polaritons [40], puis pour la première fois le laser à polaritons pompé optiquement et fonctionnant à température ambiante avec une couche massive [41] puis avec des puits quantiques [42]. Grâce à ces microcavités à l'état de l'art, ils ont pu mesurer les diagrammes de phase [43], étudier l'influence des bi-excitons [44] et évaluer la densité de Mott [45].

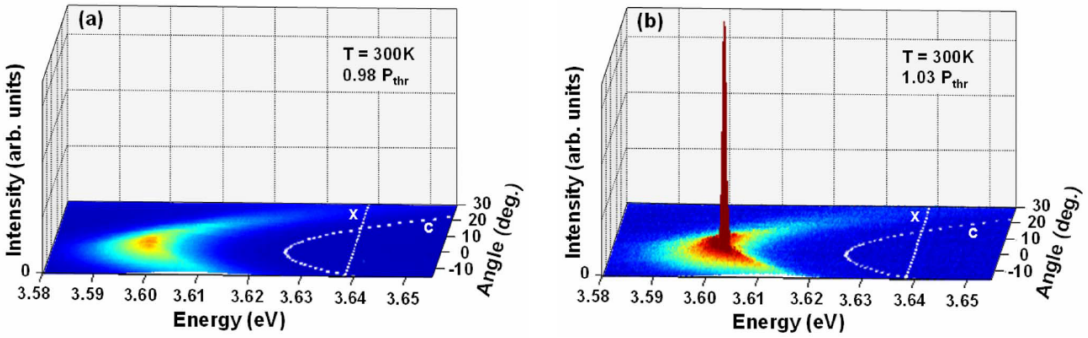

FIGURE 1.2 – (a) Laser à polaritons sous injection optique à température ambiante dans une microcavité planaire GaN extrait de [42].

Concernant les cavités GaN sur silicium, en 2006, la contrainte accumulée dans les miroirs AlN/AlGaN ne permet pas de conserver une couche active de qualité optique suffisante pour maintenir le couplage fort au-delà de 15 paires [46]. En effet l'élargissement inhomogène des excitons augmente avec le nombre de paires. Lorsque sa valeur est similaire à celle du dédoublement de Rabi, le couplage fort est perdu [47, 48]. La difficulté ici est d'augmenter le confinement optique sans dégrader la couche active, le meilleur compromis avec ces miroirs était une structure avec 10 paires. Nous avions pu observer l'émission des polaritons à température ambiante mais le facteur de qualité de 250 n'était pas suffisant pour atteindre un seuil laser [49].
Pour pallier ce problème une méthode a été développée par Fabrice Semond au CRHEA. Le substrat silicium est structuré afin d'obtenir des mesas de quelques dizaines à quelques centaines de micromètres de côté. Lors de la croissance, les couches se relaxent par les faces latérales des mesas [50]. Il est alors possible de déposer 30 paires d'AlN/AlGaN sans fissure directement sur silicium structuré, tout en conservant des élargissements inhomogènes excitoniques modérés. Cette réalisation représente une avancée remarquable pour les microcavités planaires à grand gap car le désordre photonique mesuré est un ordre de grandeur plus faible que dans les structures à l'état de l'art à cette époque [51] et localement le facteur de qualité mesuré atteint 3500 [52]. Cette microcavité nous a permis d'observer le laser à polaritons à température en ambiante sur substrat silicium, ces résultats sont présentés dans la section 1.3.2.

Pour décorréler la qualité optique de la zone active et celle des miroirs, Duboz et al. ont proposé en 2001 de placer une couche de GaN entre deux miroirs diélectriques [53], cependant cette méthode nécessite beaucoup d'étapes technologiques. Nous avons mis en évidence le couplage fort dans ce type de structure par des mesures de transmission et de photoluminescence [54, 55] mais le facteur de qualité n'était pas suffisant pour atteindre le seuil laser. Récemment l'équipe de Pavlos Savvidis à Heraklion a observé un seuil laser à température ambiante avec une microcavité GaN à deux miroirs diélectriques cependant il ne mentionne pas dans l'article si le couplage fort est conservé [56]. Plus récemment une étude a été publiée sur ce même type de procédé, les auteurs montrent cette fois-ci un laser à polaritons avec un seuil bas grâce notamment à un piège photonique [57].

Une autre voie a été développée par l'équipe de Yasuhiko Arakawa à Tokyo, la zone active en GaN se trouve entre deux miroirs d'AlGaN/air. Le fort contraste d'indice leur permet d'obtenir d'importants coefficients de réflexion avec peu de paires [58]. Le laser à polaritons est lui aussi obtenu dans un piège photonique [58]. Cependant comme dans le cas précèdent les différentes étapes technologiques successives induisent un désordre photonique important.

Le seul groupe qui prétend avoir observé le laser à polaritons à température ambiante sous injection électrique est celui de Pallab Bhattacharya dans le Michigan [59]. Cependant de nombreux doutes existent sur ce travail, pour n'en citer que quelques-uns :
i) Le Rabi mesuré est 32 meV, cette valeur est attendue lorsque la zone active est fine ($\lambda/4-\lambda/2$) alors qu'ici elle est de 690 nm (5λ).
ii) Le facteur de qualité mesuré est 1900 alors que les miroirs de Bragg sont élaborés avec du TiO_2, ce matériau possède une absorption importante à 360 nm qui le rend inutilisable pour réalisé un miroir dans le proche UV.
iii) L'allure de la photoluminescence de la zone active à 10 K ne correspond pas aux résultats publiés dans la littérature notamment le rapport d'intensités et la différence d'énergie entre D^0X_A et X_A.
Dans un commentaire publié, Benoit Devaud exprime clairement ses doutes concernant le couplage fort et la précision des mesures [60].

Concernant les microcavités planaires à base de ZnO, plusieurs équipes en 2008−2009 ont observé presque simultanément le couplage fort par des mesures de réflectivité ou de photoluminescence à 5−10 K [61, 62] et à température ambiante [63–65]. Cependant les approches sont bien différentes. Shimada et al. et Chen et al. ont réalisé des structures hybrides avec un miroir inférieur AlN/AlGaN et un miroir supérieur diélectrique [63, 65]. Nakayama et al. et Schmidt-Grund et al. ont choisi de réaliser une microcavité à deux miroirs diélectriques [61, 64]. Pour ces quatre travaux le substrat utilisé est du saphir. Le consortium CRHEA/IP/L2C/C2N a choisi de conserver un miroir AlN/AlGaN directement épitaxié sur silicium (celui utilisé pour les cavités GaN) et d'utiliser une simple couche de d'aluminium comme miroir supérieur [62].
Dès 2011 nous avons mis en évidence le laser à polaritons sous injection optique jusqu'à 120 K avec une microcavité hybride sur silicium [66] et Franke et al. l'ont obtenu jusqu'à 250 K avec une microcavité à deux miroirs diélectriques [67]. Le premier article sur l'effet laser à polaritons à température ambiante a été publié en 2012 par une équipe taïwanaise [68]. Cependant leurs résultats soulèvent de nombreuses interrogations. Le facteur de qualité (~200) semble trop faible pour atteindre le seuil. Dans cet article, deux points sont présentés, le premier, qui correspond à une fraction excitonique de 11%, est attribué à un laser en couplage fort alors que le deuxième (25% exciton) serait un laser en couplage faible. Il manque une preuve de la conservation du couplage fort pour le premier point et une deuxième preuve pour expliquer la transition du couplage fort au couplage faible.

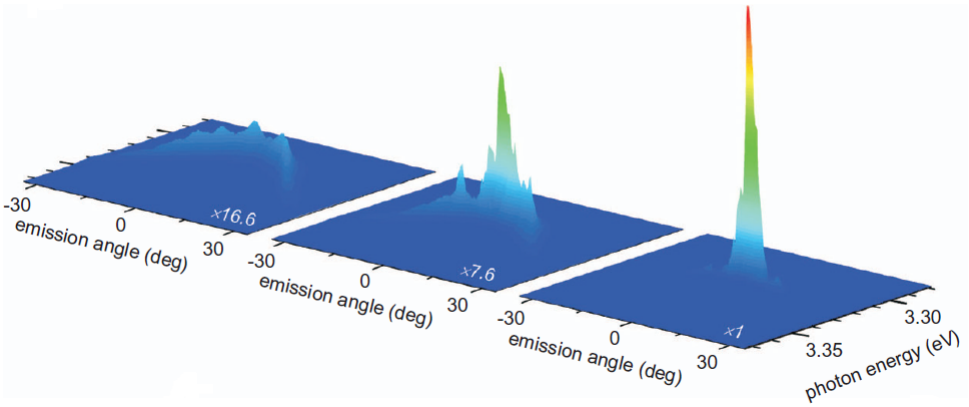

FIGURE 1.3 – Laser à polaritons dans une microcavité ZnO à 130 K extrait de [67]

De notre côté, c'est en 2013 que le laser à polaritons à température ambiante a été atteint [69]. Nous avons ensuite montré la dépendance du seuil en fonction de la fraction excitonique et de la température [52], l'influence des phonons LO [70] et la possibilité de réaliser un commutateur optique [71], tous ces résultats seront présentés dans le premier chapitre.

Cet état de l'art est non exhaustif et volontairement centré sur les semiconducteurs à grand gap GaN et ZnO car ce manuscrit est consacré à l'étude des polaritons dans ces deux matériaux. Cependant il existe d'autres matériaux à grand gap qui sont potentiellement intéressants pour la polaritonique à température ambiante comme les halogénures de cuivres, les pérovskites et les organiques. Sans rentrer dans les détails je vais simplement citer quelques exemples.
L'anticroisement, la signature du couplage fort a été mis en évidence avec une zone active à base de chlorure de cuivre (CuCl) [72], d'iodure de cuivre (CuI) [73], puis plus récemment un condensat de polaritons a été observé avec du bromure de cuivre (CuBr) [74].
Les pérovskites qui peuvent être organique-inorganique [75] ou tout inorganique [76] sont également adaptées pour la polaritonique à température ambiante. D'après les auteurs, ce matériau est prometteur car il est facile à fabriquer, peu cher et accordable en longueur d'onde.
Les condensats de polaritons à température ambiante sont également observés avec des matériaux organiques. La première observation a été réalisée avec un cristal d'anthracène comme zone active [77]. Cependant d'autres travaux ont montré que la condensation est possible même avec une zone active amorphe [78], un polymère [79], un colorant [80], une protéine fluorescente [81]. Plus récemment et pour la première fois, la superfluidité a été observée à température ambiante [82].

Dans le cas des organiques, la constante diélectrique est faible et l'exciton est petit devant le paramètre de maille, on parle d'exciton de Frenkel. Les porteurs sont localisés sur la même molécule, les interactions électroniques sont faibles, elles dépendent de la structure moléculaire et de sa morphologie [16]. Concernant GaN et ZnO, comme nous l'avons vu dans la table 1.1, l'exciton est grand devant le paramètre de maille, c'est un exciton type Wannier-Mott. Il s'étend sur plusieurs atomes et peut interagir avec d'autres excitons.

Cet état de l'art est aussi volontairement centré sur les cavités planaires mais depuis le début des années 2000 de nombreuses structures sont utilisées pour l'étude des polaritons comme les micropiliers [83, 84], les micro- [85, 86] et nanofils [87, 88] ainsi que les cristaux photoniques [89, 90].

Les guides polaritoniques quant à eux seront présentés dans le chapitre 2.

1.2 Optimisation du facteur de qualité

Pour conserver le régime de couplage de fort, il est important que les photons restent le plus longtemps possible dans la cavité pour interagir avec les excitons. Les étapes d'optimisation des miroirs sont donc primordiales, mais il faut garder en tête que la couche active doit aussi être de haute qualité optique, c'est à dire avec peu de contrainte, de défauts et de fluctuations d'épaisseur afin de garder un élargissement excitonique petit devant le dédoublement de Rabi.

Le tableau présenté page 2 de la référence [91] répertorie une liste non exhaustive de microcavités planaires fabriquées dans la gamme du violet au proche UV. Il met en évidence la difficulté d'élaborer des structures à facteur de qualité supérieur à 1000 et fonctionnant à une longueur d'onde inférieure à 380 nm. En effet, il y a plusieurs difficultés à surmonter, il faut trouver des matériaux transparents à ces courtes longueurs d'onde avec une absorption résiduelle la plus faible possible, être capable de réaliser des interfaces abruptes, minimiser la rugosité et être très précis et reproductible dans l'épaisseur des couches.

Le facteur de qualité et le dédoublement de Rabi constituent les deux principaux leviers qui permettent d'agir sur le seuil du laser à polaritons [92]. Pour atteindre ce seuil avec une microcavité GaN ou ZnO, nous allons voir qu'il faut au moins un facteur de qualité supérieur à 500. Pour maintenir les photons le plus longtemps dans la cavité, il nous faut des miroirs à fort coefficient de réflexion. Les miroirs AlN/AlGaN déposés directement sur un substrat en silicium structuré au CRHEA ont permis de passer en quelques années de 80-90% [46] à 99,5% [51]. La figure 1.4 présente une mesure de réflectivité d'un miroir de Bragg de 30 paires d'AlN/$Al_{0,3}$GaN sur silicium structuré. La simulation est réalisée avec le formalisme des matrices de transfert (FMT) en considérant 30 paires idéales, c'est à dire sans absorption résiduelle et avec des interfaces abruptes.

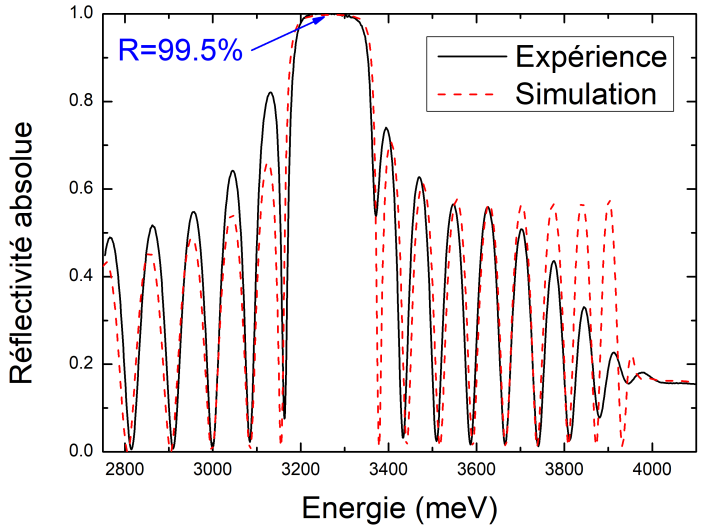

FIGURE 1.4 – Mesure et simulation de réflectivité d'un miroir de Bragg de 30 paires AlN/$Al_{0,3}$GaN sur silicium

De même l'amélioration des techniques de dépôt par PECVD (plasma-enhanced chemical vapor deposition) ou par évaporation développées par Sophie Bouchoule au C2N permet maintenant de dépasser les 99% pour les miroirs supérieurs diélectriques [91]. La figure 1.5 présente des mesures de réflectivité et transmission de miroirs SiO_2/HfO_2 et SiO_2/SiN_x avec les simulations FMT correspondantes.

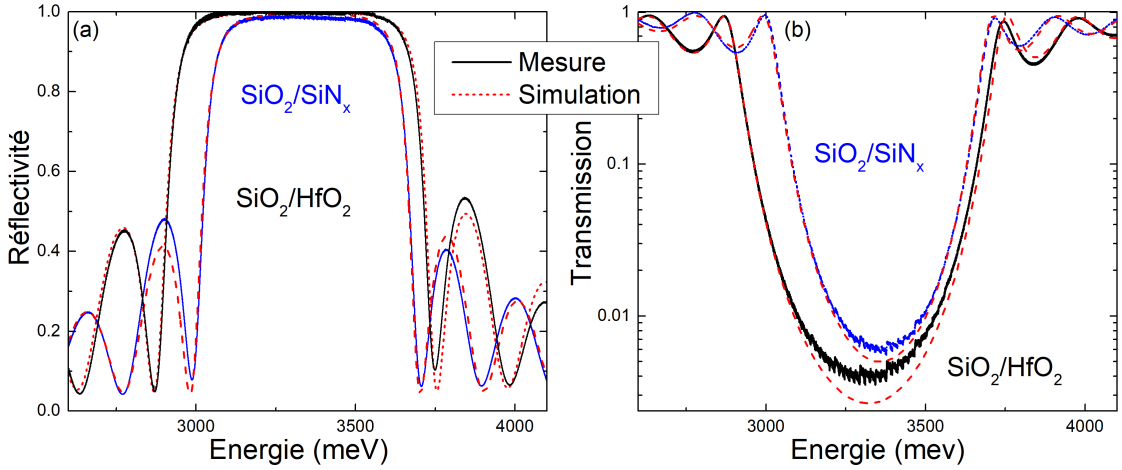

FIGURE 1.5 – (a) Réflectivité et (b) transmission de miroirs de Bragg diélectrique SiO_2/HfO_2 et SiO_2/SiN_x (trait plein) accompagnés des simulations avec le FMT (pointillés rouge)

Le contraste d'indice (Δ_n) entre les bi-couches composant le miroir de Bragg est un paramètre important, on cherche à le maximiser. Un fort Δ_n permet d'obtenir une réflectivité élevée avec peu de paires, une bande d'arrêt large (Δ_{SB}) et une faible longueur de pénétration du champ électrique (L_{DBR}). Δ_n et L_{DBR} sont définis par les expressions suivantes :

$$\Delta_n = \frac{n_h - n_b}{\frac{1}{2}(n_h + n_b)} \quad , \quad L_{DBR} \approx \frac{\lambda_0}{2} \frac{1}{n_h - n_b} \tag{1.1}$$

où n_h et n_b sont respectivement les indices de réfraction haut et bas des couches du miroir et λ_0 la longueur d'onde à laquelle est centré le miroir. Dans le cas du laser à polaritons, une large bande d'arrêt évitera la fuite des polaritons [93, 94] et une faible longueur de pénétration améliorera le recouvrement du champ électrique avec la couche active et conduira donc à un dédoublement de Rabi plus élevé [95, 96]. Dans le tableau 1.2 sont reportés les paramètres calculés et mesurés pour les trois types de miroirs présentés précédemment. Le miroir à base de semiconducteurs nécessite un nombre de paires élevé pour dépasser les 99%. La bande d'arrêt est étroite et la longueur de pénétration importante mais on peut épitaxier à la surface de ce miroir une couche active GaN ou ZnO de haute qualité optique. Le miroir SiO_2/HfO_2 possède quant à lui un fort contraste d'indice, il faut moins de 10 paires pour atteindre 99%. La faible valeur de L_{DBR} nous a permis d'obtenir un Rabi jusqu'à 240 meV dans une microcavité ZnO à deux miroirs diélectriques [69] et grâce à la largeur de la bande d'arrêt, il est possible de faire fonctionner le laser à polaritons en commutateur optique (décrit dans la partie 1.4).

La mesure absolue de la réflectivité avec une précision élevée n'est pas simple à réaliser. Pour normaliser la mesure il faut un miroir étalon parfait et stable dans le temps. Une simple micro-rayure, un défaut, une poussière peuvent diffuser la lumière et ainsi fausser la mesure. Après plusieurs séries de tests nous avons montré qu'au mieux nous pouvons atteindre une précision de ±0,5% qui est

	$AlN/Al_{0,3}GaN$	SiO_2/SiN_x	SiO_2/HfO_2
Δ_n (%) à 360 nm	12	24	55
Nombre de paires	30	12	9,5
Rmax (%)	99,5 ± 0,5	99,5 ± 0,5	99,7 ± 0,5
Δ_{SB} (90% de Rmax)	167 ± 5	542 ± 5	702 ± 5
L_{DBR} (nm)	656	444	286

TABLE 1.2 – Résumé des paramètres principaux des trois miroirs de Bragg

insuffisante pour la mesure de valeurs entre 99 et 99,9%. C'est pourquoi nous avons choisi de mesurer directement le facteur de qualité de microcavités passives (avec une zone centrale transparente). La partie fabrication est plus longue car il faut déposer un miroir inférieur, une zone centrale et un miroir supérieur mais la mesure de la largeur à mi-hauteur du mode photonique est très précise et reproductible.

Trois microcavités passives ont été réalisées au C2N sur substrat SiO_2. La couche centrale en HfO_2 est entourée de deux miroirs de Bragg SiO_2/HfO_2 de 11 paires chacun. Le seul paramètre variable d'un échantillon à l'autre est l'épaisseur de la couche passive qui est $\lambda/2$, λ (168 nm) et 2λ. Ces échantillons ont été étudiés par imagerie de Fourier pour accéder à la dispersion du mode photonique (figure 1.6a). Le facteur de qualité ($Q\sim \lambda/\Delta\lambda$) est mesuré sur le spectre de réflectivité issu de Fig. 1.6a et correspond à l'incidence normal (figure 1.6b).

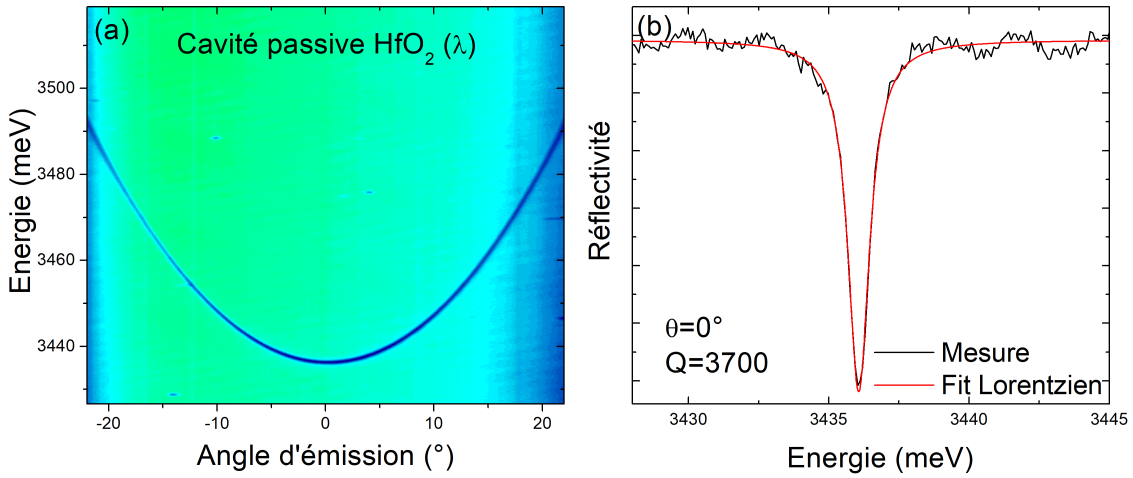

FIGURE 1.6 – Dispersion du mode photonique mesuré à température ambiante en imagerie de Fourier pour la microcavité passive λ en μréflectivité . (b) Spectre issu de l'image (a) pour les pixels correspondants à 0°.

Pour chaque échantillon les valeurs de facteur de qualité moyennées sur une vingtaine de mesures (triangle vert) sont comparées aux valeurs les plus élevées mesurées (triangles bleus) sur la figure 1.7. Ces valeurs, comprises entre 2000 et 4000, sont élevées pour des cavités planaires à 360 nm mais restent beaucoup plus faibles que les simulations avec le FMT pour une structure idéale (sans pertes). Pour expliquer la diminution du facteur de qualité, on va s'intéresser à deux sources de pertes : la rugosité aux interfaces et l'absorption résiduelle. Des calculs réalisés par Sophie nous indiquent qu'il faut une rugosité de 10 nm pour faire chuter le facteur de qualité (Q) entre 2000 et 4000. Cette piste

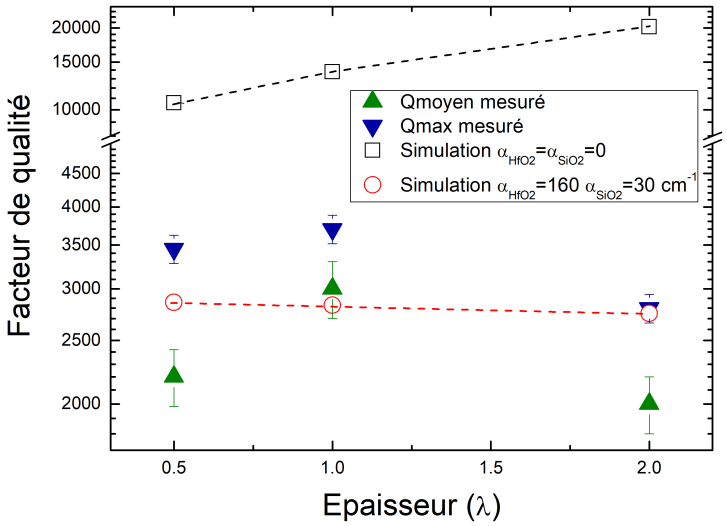

FIGURE 1.7 – Facteur de qualité moyen (triangles vert) et maximum (triangles bleu) pour les 3 microcavités passives. Simulation avec le FMT avec (ronds rouge) et sans (carrés noir) absorption résiduelle. Les traits en pointillés sont un guide pour les yeux.

peut être écartée car la rugosité mesurée pour ces miroirs est de l'ordre du nanomètre [91]. Des simulations avec le FMT ont été utilisées pour estimer l'absorption résiduelle dans SiO_2 et HfO_2. Le facteur de qualité est censé augmenter avec l'épaisseur de la couche passive, hors ici sa valeur moyenne mesurée varie entre 2000 et 3000 pour les trois épaisseurs. Ceci est dû à une absorption résiduelle beaucoup plus élevée dans la zone centrale (HfO_2). Après avoir testé plusieurs jeux de paramètres, celui qui correspond le mieux est 30 cm^{-1} pour SiO_2 et 160 cm^{-1} pour HfO_2.
A partir de ces valeurs, il est intéressant d'estimer la réflectivité maximum que l'on pourra atteindre avec ces matériaux. La figure 1.8a présente le calcul de la réflectivité du miroir SiO_2/HfO_2 en fonction du nombre de paires avec (ronds rouges) et sans absorption résiduelle (carrés noirs).

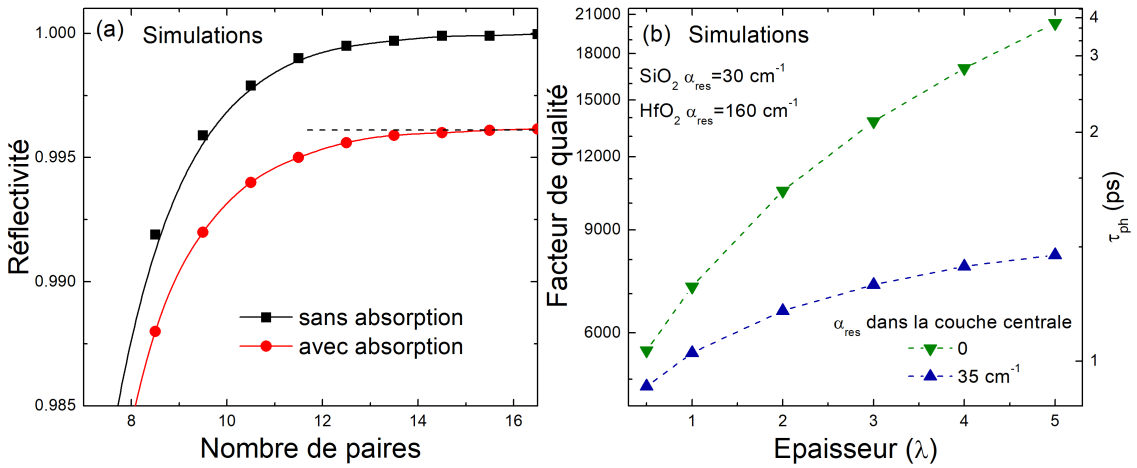

FIGURE 1.8 – (a) Simulation de réflectivité à une longueur d'onde de 360 nm d'un miroir de Bragg SiO_2/HfO_2 en fonction du nombre de paires avec (ronds rouge) et sans (carré noir) absorption. (b) Facteur de qualité calculé à 360 nm en fonction de l'épaisseur de couche active.

La simulation avec absorption indique qu'à partir de 14 paires la réflectivité du miroir sature à 99,6%. Il est donc inutile de chercher à dépasser cette valeur pour la fabrication de futurs miroirs. Afin de prévoir le facteur de qualité que l'on pourra atteindre, il nous faut estimer l'absorption résiduelle d'une couche active. La microcavité ZnO entre deux miroirs diélectriques (présentée dans la partie 1.3.2) se prête à cette estimation car l'absorption résiduelle de la couche de ZnO est le seul paramètre inconnu. Le facteur de qualité dans cette structure peut atteindre localement 4250 [71], pour obtenir cette même valeur en simulation il faut une absorption résiduelle de 35 cm^{-1}. Les simulations présentées figure 1.8b sont réalisées avec deux miroirs SiO_2/HfO_2 de 14 paires et une couche centrale de ZnO. Avec ce système on peut espérer atteindre un facteur de qualité de 8000, soit un facteur 2 par rapport à notre meilleure mesure.

1.3 Laser à polaritons

1.3.1 ZnO : première observation jusqu'à 120 K

Contrairement à GaN, ZnO est peu sensible à la contrainte, il peut s'épitaxier sur plusieurs paires d'AlN/AlGaN en conservant des élargissements excitoniques inhomogènes modérés. Ainsi nous avons pu observer le premier laser à polaritons dans ZnO avec une microcavité composée de 13 paires d'AlN/AlGaN sur silicium, d'une couche active de ZnO ($5\lambda/4$) et de 10 paires de SiO_2/HfO_2. Nous avons mesuré localement un facteur de qualité pouvant aller jusqu'à 650. La figure 1.9 présente la dispersion de la branche basse polaritonique (LPB) mesurée par réflectivité à température ambiante, pour un désaccord de δ=−65 meV. Le désaccord (δ) correspond à la différence entre l'énergie des excitons et l'énergie du mode photonique nu à l'état fondamental (en k=0). Plus le désaccord est négatif (positif) plus la part photonique (excitonique) du polariton est importante.
Dès que l'épaisseur de la couche active dépasse λ dans GaN [97] (140 nm) ou $\lambda/2$ (80 nm) dans ZnO [62] on ne peut plus détecter la branche polaritonique haute (UPB) à cause de la forte absorption au-delà du gap. Afin de pouvoir estimer le dédoublement de Rabi, nous utilisons le FMT. Mais pour que l'estimation soit le plus juste possible, il faut connaître avec une grande précision les paramètres excitoniques de la couche active. Ce travail a été réalisé pendant la thèse d'Emilien Mallet [98]. Grâce à une combinaison de techniques de spectroscopie optique (la réflectivité, la photoluminescence, l'autocorrélation de réflectivité et le mélange à quatre ondes dégénéré en fréquence), nous avons déterminé avec précision les paramètres excitoniques de GaN et ZnO [99, 100]. Les valeurs que j'ai utilisées dans les simulations sont présentées dans le tableau 1.6. Pour les simulations à température ambiante l'élargissement homogène utilisé est 20 meV dans GaN et 45 meV dans ZnO pour A et B. Concernant l'énergie des excitons (qui dépend de la contrainte) et l'élargissement inhomogène (qui dépend des fluctuations d'épaisseur, de composition et de contrainte), ces paramètres ont quant à eux été estimés pour chaque échantillon par des mesures de réflectivité à 5 K.

	Fosc (meV^2)	γ (meV)
GaN X_A	40000 ± 2000	0,4 ± 0,05
GaN X_B	39000 ± 2000	0,65 ± 0,05
ZnO X_A	155000 ± 5000	0,55 ± 0,05
ZnO X_B	250000 ± 5000	1,35 ± 0,10

TABLE 1.3 – Forces d'oscillateur (Fosc) et élargissements homogènes (γ) des excitons X_A et X_B de GaN et ZnO mesurés à 5 K [98].

La simulation réalisée sur la figure 1.9, sans prendre en compte l'absorption bande à bande, permet

de connaître l'énergie de la UPB et ainsi estimer le dédoublement de Rabi. C'est ensuite avec un simple modèle 2×2 que le désaccord et la fraction excitonique (ou photonique) sont déterminés.

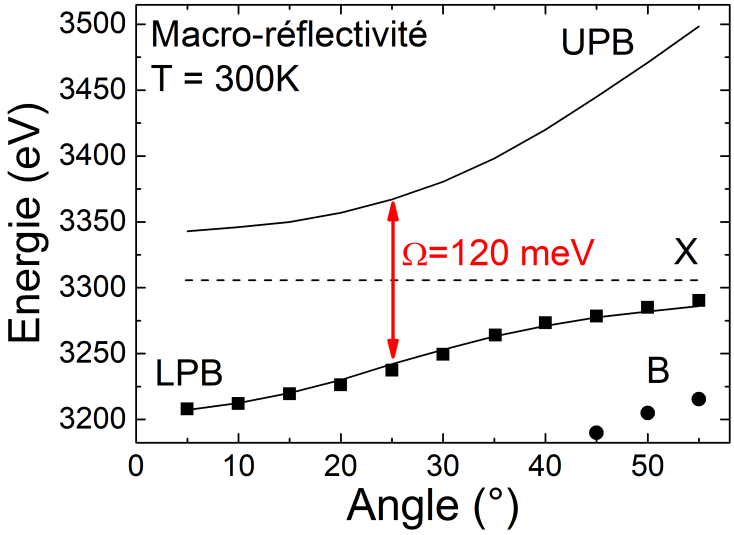

FIGURE 1.9 – Dispersion de la LPB mesurée par réflectivité en angle (carrés noir) à température ambiante à un désaccord de −65 meV. La courbe noire correspond à une simulation réalisée à l'aide du FMT.

C'est à basse température et jusqu'à 120 K que nous avons tout d'abord observé le seuil laser [66, 70]. La figure 1.10 présente des mesures en imagerie de Fourier à 90 K à 0,06 P_{th}, P_{th} et 1,76 P_{th} pour un désaccord de −15 meV. Sous le seuil la courbure de la LPB mesurée est clairement visible. Pour ce point la fraction excitonique est significative (45%). Le seuil est marqué par un important affinement spectral ainsi qu'une forte non linéarité de l'émission (figure 1.11a−b).

L'état fondamental de la LPB est par définition à plus basse énergie que celui du mode de cavité nu (dispersion photonique sans couplage fort). Pour atteindre le seuil du laser à polaritons il faut augmenter l'intensité de pompage. Cette augmentation peut provoquer un écrantage progressif de la force d'oscillateur cela se traduit par une diminution du Rabi [101]. Expérimentalement nous observons un décalage de la LPB vers les hautes énergies (blueshift). Pendant plusieurs années nous avons utilisé la position en énergie du mode de cavité nu comme un critère de maintien ou non du couplage fort. Tant que l'énergie de la LPB mesurée n'atteint pas celle du mode nu calculé le couplage fort est conservé.

Cependant pour calculer la dispersion du mode de cavité nu nous utilisons un indice contant. Au voisinage excitonique l'indice est fortement dispersif [102, 103]. L'erreur sur la position en énergie du mode nu n'est alors pas négligeable, ce critère n'est donc plus satisfaisant. Le désaccord est lui aussi estimé avec la position du mode nu calculé, la précision de cette valeur est donc aussi discutable. J'ai cependant choisi ici de continuer à l'utiliser car il est omniprésent dans la littérature c'est donc un moyen de comparer facilement ce travail avec les études publiées. De plus, ce désaccord me sert aussi à estimer la fraction excitonique ou photonique du polariton. Il important de noter ici que l'on peut utiliser une valeur fiable : la profondeur du piège polaritonique. Cette grandeur est facilement mesurable, elle correspond à la différence entre l'énergie du réservoir excitonique et l'état fondamental. Cette valeur $(E_x - E_{LPB})$ sera donc donnée à chaque fois qu'il est possible de la mesurer.

En ellipsometrie, il est possible de mesurer l'indice de réfraction. Cependant le calcul du mode nu ne peut se faire qu'avec un indice sans la contribution des excitons. Pour retirer cette contribution

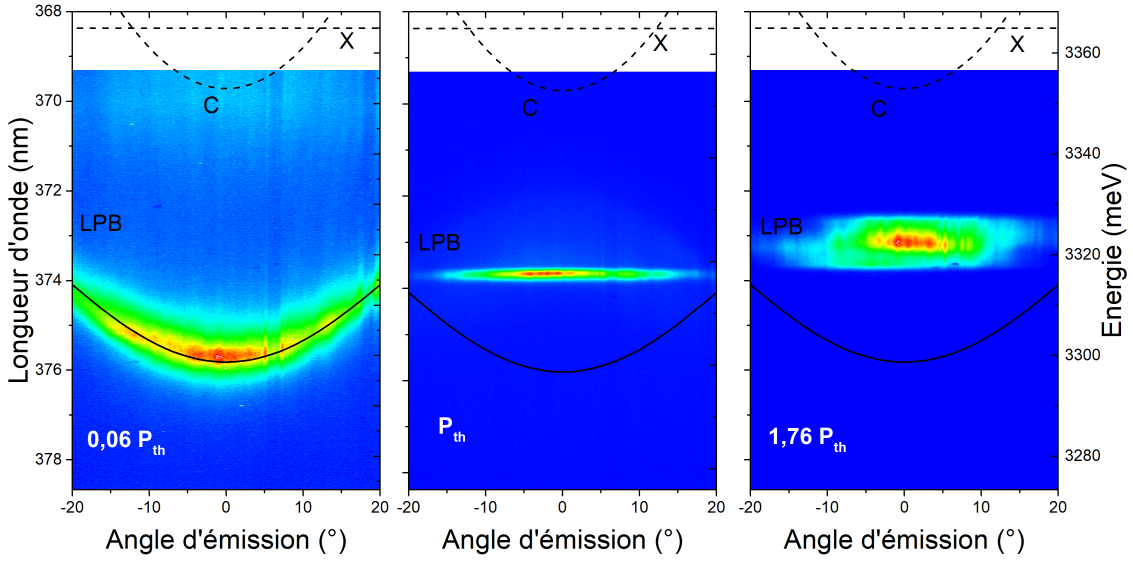

FIGURE 1.10 – Imagerie de Fourier à 90 K, pour un désaccord de −15 meV et une puissance d'excitation de (a) 0,06 P_{th}, (b) P_{th} et (c) 1,76 P_{th}. Les lignes pointillées correspondent au mode de cavité nu (C) et à la résonance excitonique (X). La ligne en trait plein représente la LPB calculée à l'aide d'un simple modèle 2×2.

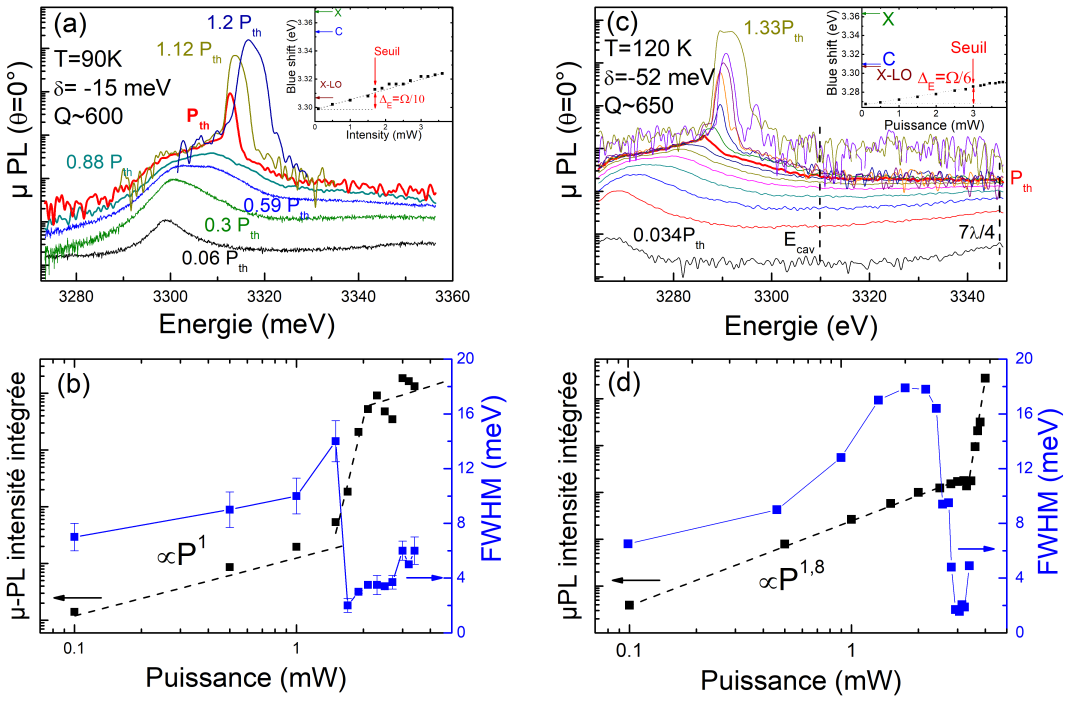

FIGURE 1.11 – (a) µPL en fonction de la puissance sous incidence normale à 90 K (δ =−15 meV, $E_x - E_{LPB}$=70 meV) (c) et à 120 K (δ =−52 meV, $E_x - E_{LPB}$=95 meV). L'insert montre l'évolution du blueshift de la LPB. (b,d) Intensité intégrée et largeur à mi-hauteur mesurées sur la figure a,c.

sur la mesure de l'indice, il faudrait connaître avec précision l'influence excitonique dans toutes les configurations, c'est à dire quelle que soit la puissance d'excitation, la température du réseau, la température électronique et la contrainte de la zone active. Dans la pratique cela est très compliqué en particulier pour les couches épaisses de GaN où la forte contrainte accumulée à cause du désaccord paramétrique sur les premiers nanomètres se relâche progressivement sur toute l'épaisseur de la couche (figure 1.12). En d'autres termes, l'énergie des excitons se décale continûment vers les basses énergies lorsque l'on sonde la couche du bas vers le haut. Dans la modélisation, il faudrait discrétiser la zone active et introduire l'indice en fonction de l'énergie en suivant l'évolution de la relaxation.

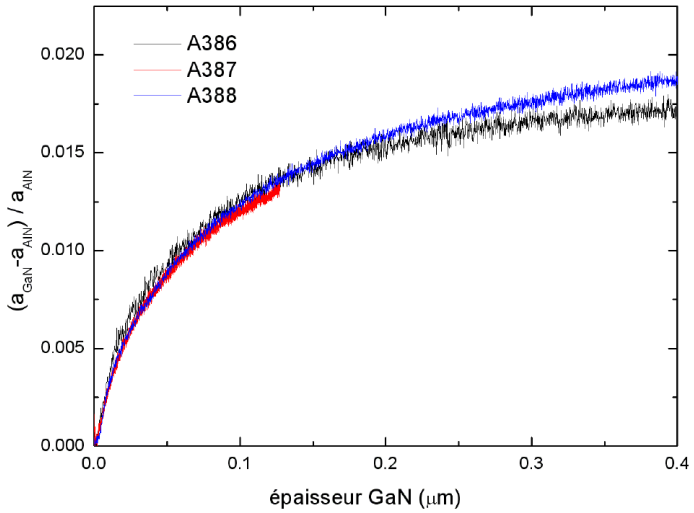

FIGURE 1.12 – Relaxation d'une couche de GaN déposée sur AlN en fonction de son épaisseur.

Un critère qui semble alors plus pertinent pour vérifier le maintien du couplage fort est l'évolution du blueshift en fonction de la puissance. Une discontinuité dans l'évolution de ce dernier peut indiquer une transition vers le couplage faible. Cela a été très clairement observé dans des microcavités GaAs et GaInAs [83, 104]. Pour ces deux cas, le deuxième seuil (laser à photon) se caractérise par une stabilisation de l'énergie du mode laser sur celle du mode de cavité nu.
Dans l'insert de la figure 1.11a, l'évolution continue de la LPB en k=0 n'indique pas de changement de régime et le blueshift au seuil correspond à 10% du dédoublement de Rabi. Au-delà du seuil l'émission devient multimode à cause du désordre photonique. L'effet du désordre photonique sur l'émission laser sera détaillée dans la partie 1.3.2.
Un deuxième point a été mesuré (figure 1.11c−d) pour une température proche (120 K) mais pour un désaccord beaucoup plus négatif (−52 meV). Ces deux points présentent beaucoup de similitudes, une forte non-linéarité et un affinement spectral au seuil ainsi qu'un blueshift continu. Par contre l'évolution de l'intensité intégrée sous le seuil est bien différente. Pour le premier point, l'évolution linéaire en fonction de la puissance (P^1) indique une relaxation assistée par phonon LO [105] tandis que l'évolution du deuxième point en $P^{1,8}$ correspond à une relaxation faisant intervenir les interactions exciton-exciton. Pour le premier point, la LPB est résonnante avec X-LO, un exciton-polariton peut alors passer directement du réservoir à l'état fondamental (en émettant un phonon). Concernant le deuxième point, le désaccord est plus négatif, le piège est plus profond. Il faut alors augmenter les interactions excitons-excitons pour permettre aux polaritons d'atteindre le bas de la LPB. La conséquence est une augmentation du seuil laser de 1,7 à 3 mW.

Des travaux réalisés avec les systèmes CdTe, GaAs et GaN montrent aussi une diminution du seuil

grâce à la relaxation assistée par LO [44, 106, 107]. L'énergie du phonon LO (E_{LO}) à 5 K et le terme d'interaction polariton−phonon optique Γ_{LO} pour CdTe, GaAs, GaN et ZnO sont présentés dans la table 1.4. Pour CdTe, GaAs et GaN l'énergie du LO est supérieure ou égale au Rabi, la LPB ne pourra être résonnante avec le LO que pour les désaccords négatifs. Le cas de ZnO est différent car l'énergie du LO est 2 à 3 fois plus petite que le Rabi. La première ou la deuxième réplique LO pourra intervenir dans la relaxation des polaritons.

	E_{LO} à 5 K (meV)	Γ_{LO} (meV)
CdTe	21	16
GaAs	36	5,5
GaN	92	420
ZnO	72	620

TABLE 1.4 – L'énergie du phonon LO (E_{LO}) à 5 K et le terme d'interaction polariton−phonon optique Γ_{LO} pour les semiconducteurs CdTe, GaAs, GaN et ZnO [98, 108, 109].

Les termes d'interaction polariton−phonon optique sont bien plus élevés dans GaN et ZnO c'est ce qui explique que l'élargissement homogène à température ambiante soit relativement élevé, 20 et 45 meV respectivement. Nous pourrions alors avoir des doutes sur le potentiel de ZnO pour réaliser des composants polaritoniques à température ambiante. Heureusement, grâce à une valeur de Rabi élevée, les polaritons se situent à une énergie inférieure à celle de X-LO et ne sont plus influencés par l'élargissement homogène excitonique, comme l'ont montré Trichet et al. [85]. C'est pour cette raison que nous avons pu mesurer un élargissement de LPB de 1,2 meV à température ambiante pour un polariton à 50% exciton [69].

1.3.2 GaN et ZnO à température ambiante

Pour obtenir sans ambiguïté l'effet laser à polaritons à température ambiante, l'amélioration du facteur de qualité est indispensable. En effet, le seuil et le blueshift seront plus faibles et la finesse de raie simplifiera l'interprétation. C'est grâce à une superbe microcavité ZnO à deux miroirs diélectriques que nous avons observé l'effet laser à polaritons jusqu'à la température ambiante [69]. Cette structure combine deux atouts : un fort facteur de qualité (jusqu'à 4000 localement) et un dédoublement de Rabi élevé (240 meV). Plusieurs étapes technologiques ont été nécessaires pour réaliser cette structure [69]. C'est un substrat ZnO de 500 μm qui a été aminci par Feng Li durant sa thèse jusqu'à quelques centaines de nanomètres. De ce fort amincissement résulte un gradient d'épaisseur important sur la couche active. Nous avons ainsi pu avoir accès à des épaisseurs allant de λ (160 nm) à 6λ. Grâce au gradient et à la largeur de la bande d'arrêt nous avons mesuré des fractions excitoniques extrêmes : de 17% à 96% [71]. C'est dans les zones épaisses que nous avons mis en évidence un effet intéressant de commutation optique (présenté dans la section 1.4). Par contre à cause des diverses étapes d'amincissement de la zone active, la structure possède un désordre photonique important qui rend difficile les mesures systématiques.

La structuration du silicium a permis de lever un verrou technologique important sur la qualité du miroir inférieur des microcavités (section 1.2). L'ordre de grandeur gagné sur le facteur de qualité a été déterminant pour l'observation du laser à polaritons à température ambiante sur substrat silicium. De plus, à la surface du miroir, il est possible de déposer une couche active de ZnO ou de GaN. On

peut alors avoir deux microcavités possédant des qualités structurale et optique similaires. Grâce à ces deux structures nous allons pouvoir comparer avec précision l'utilisation de GaN et ZnO comme zone active d'un laser à polaritons. La figure 1.13 présente une image d'une mesa et une image MEB de la tranche de la microcavité ZnO. La structure GaN possède une couche active d'épaisseur ~$7\lambda/2$ soit 450 nm ($7\lambda/4$ soit 290 nm pour ZnO).

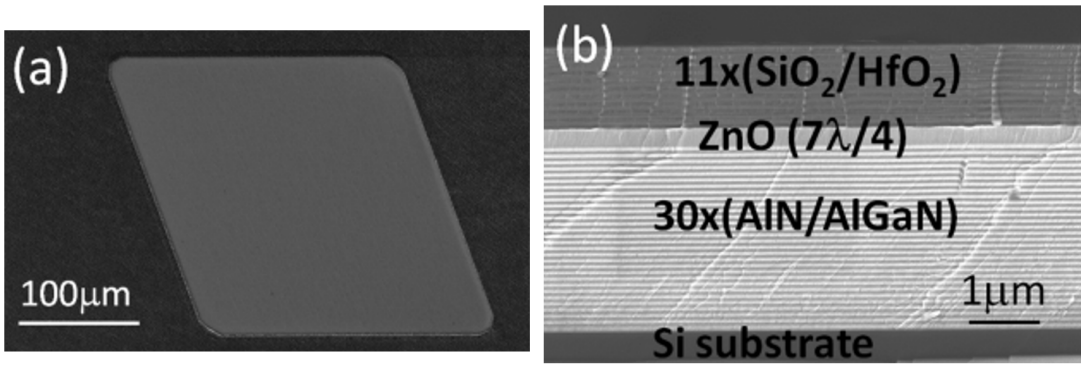

FIGURE 1.13 – (a) Image d'une mesa au microscope optique. (b) Image MEB de la tranche de la microcavité ZnO sur mesa.

Pour avoir une image du désordre photonique, nous avons mesuré l'énergie de la LPB le long d'une mesa pour un désaccord correspondant à une une fraction photonique élevée (figure 1.14).

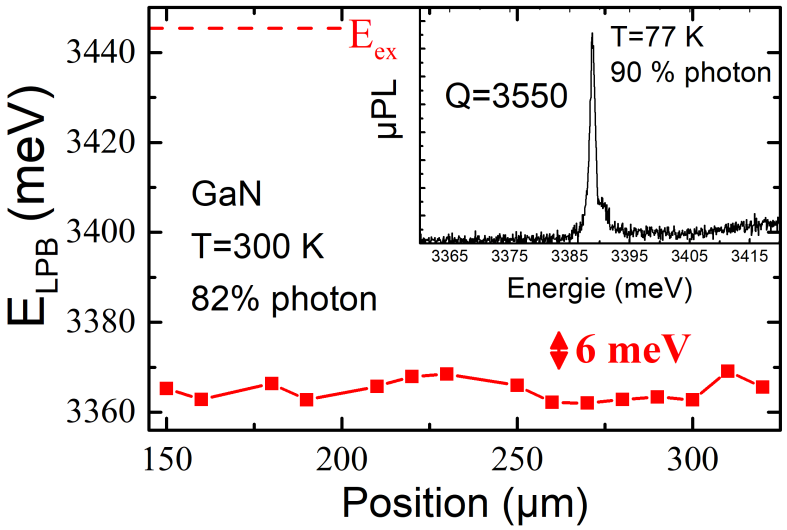

FIGURE 1.14 – Évolution de l'énergie de la LPB avec une fraction photonique de 82% pour la microcavité GaN. Une mesure du facteur de qualité pour le point le plus photonique disponible est tracée dans l'insert.

Il est facile de trouver des zones où l'énergie de la LPB varie de ±1 meV sur une zone de 50 μm. En moyenne pour un déplacement de 150 μm, l'énergie de la LPB varie de ±3 meV. Ces résultats sont en bon accord avec une cartographie 2D d'une mesa de 100×100 μm^2 réalisée au L2C par Thierry Guillet [51]. Des mesures sur la microcavité ZnO montrent des résultats similaires. Sur ces mesas le facteur de qualité varie de 1000 à 2000 mais localement il peut atteindre 3550 (insert de la figure 1.14). Ces valeurs représentent un faible désordre photonique et un facteur de qualité élevé qui constitue aujourd'hui l'état de l'art pour les microcavités planaires proche UV.

La figure 1.15 présente des mesures d'imagerie de Fourier à température ambiante et à basse puissance.

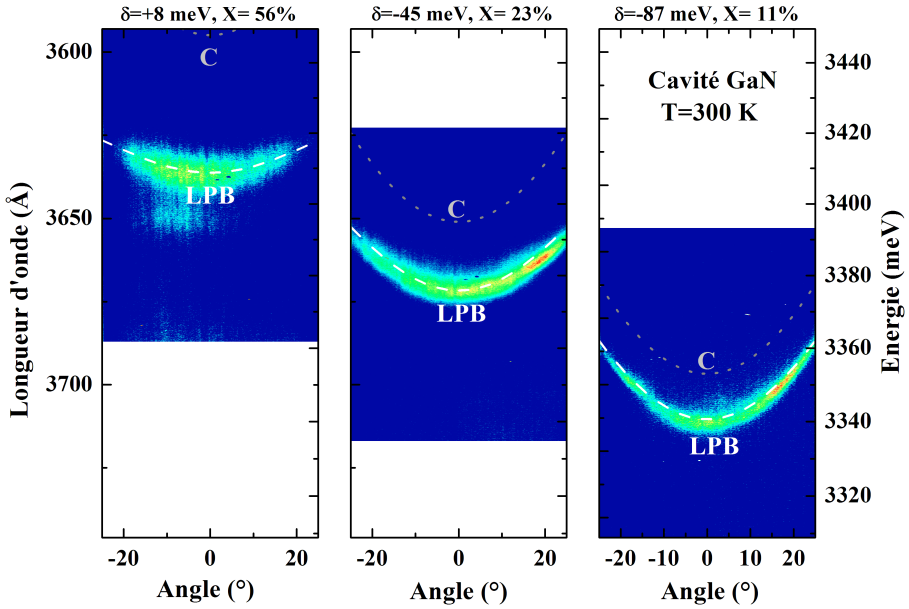

FIGURE 1.15 – Imagerie de Fourier enregistrée à température ambiante pour 3 désaccords : $\delta = 8$, -45 et -87 meV. Les courbes en pointillé correspondent au calcul du mode nu avec un indice constant (C) et au calcul de la LPB avec le modèle 2×2.

Le changement de courbure de la LPB indique un changement de masse du polariton. La fraction excitonique et donc la masse du polariton augmentent lorsque l'on se déplace vers les désaccords positifs. Ces observations confirment le maintien du régime de couplage fort à température ambiante sous le seuil. Comme à basse température, le seuil est caractérisé par une forte non linéarité de l'émission combinée avec un affinement spectral (figure 1.16). L'évolution du blueshift est continue, sa valeur au seuil est de 7 meV, ce qui correspond à 9% du dédoublement de Rabi. Cependant les analyses au-delà du seuil sont difficiles car l'émission laser est rapidement multimode. Bien que le désordre photonique soit faible, ici avec un spot de 150 µm^2, nous sondons pour ce point différentes épaisseurs de zone active. Les 3 raies laser sont associées à 3 branches polaritoniques (LPB1, LPB2 et LPB3).

Pour étudier l'influence de ce désordre photonique nous avons choisi de combiner des mesures en imagerie de Fourier et en espace réel. Ce travail a été réalisé dans le cadre de la thèse d'Omar Jamadi à température ambiante et avec un large spot d'excitation (650 μm^2). Les mesures en imagerie de Fourier sont présentées sur la figure 1.17 et dans l'espace réel sur la figure 1.18. Au seuil (Pth) les polaritons vont se condenser dans une zone sous le spot qui correspond à l'état de plus basse énergie où le facteur de qualité est le plus élevé cette zone est notée A sur les figures 1.17 et 1.18. Si on continue d'augmenter la puissance de pompe, d'autres condensats vont alors se former à des états d'énergie supérieure (B, C, D, ...). Grâce à des mesures de tomographie en espace réel nous avons pu reconstruire des images 2D. Cette méthode consiste à enregistrer un spectre, déplacer la lentille devant le spectromètre pour sonder la zone voisine puis répéter l'opération. Avec une cinquantaine de spectres il est possible de reconstruire une image pour une énergie choisie et la comparer avec une image 2D obtenue en ouvrant les fentes du spectromètre (sur laquelle toutes les énergie sont confondues).

La figure 1.19 présente les images reconstruites à 1,4Pth pour les énergies $E_A = 3370{,}9$ meV, $E_B =$

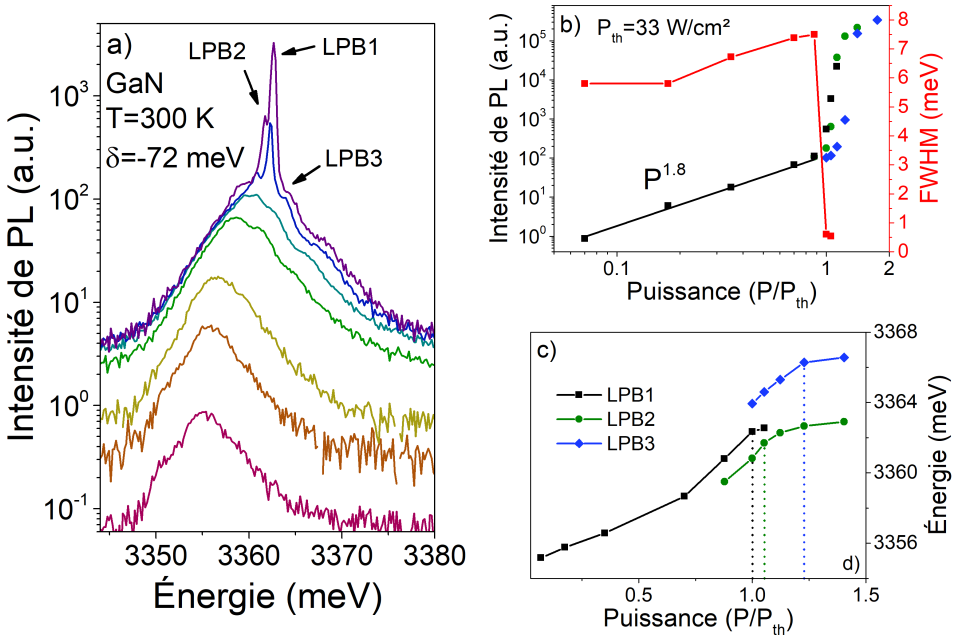

FIGURE 1.16 – (a) μPL en fonction de la puissance de 0,07Pth à 1,05Pth sur la microcavité GaN à température ambiante. (b) Évolution de l'intensité maximum, de la largeur à mi-hauteur et de (c) l'énergie en fonction de la puissance d'excitation.

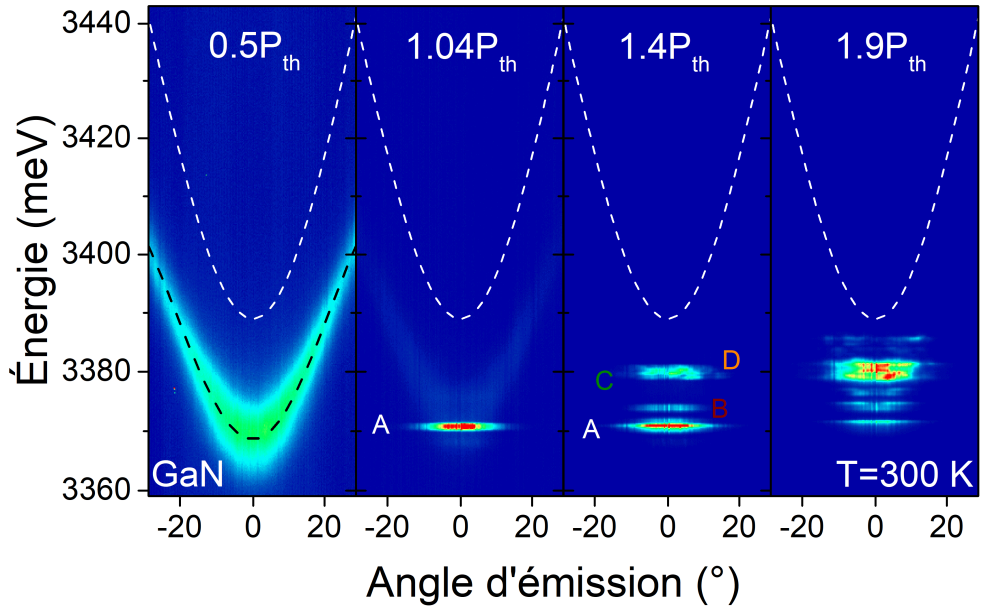

FIGURE 1.17 – Imagerie de Fourier sur la microcavité GaN à température ambiante pour un désaccord de -56 meV (78% photon) à 0,5Pth, Pth, 1,4Pth et 1,9Pth. Les courbes en pointillées sont calculées comme sur la figure 1.15.

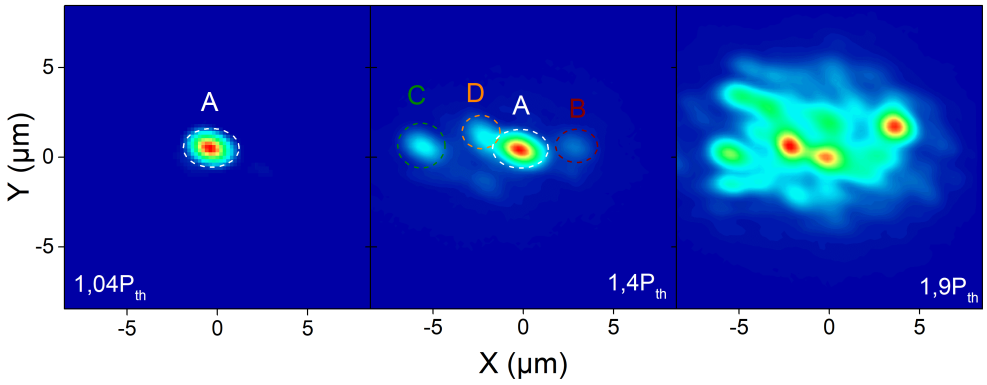

FIGURE 1.18 – Imagerie en espace réel 2D des mêmes points mesurés sur la figure 1.17 à Pth, 1,4Pth et 1,9Pth

3374,3 meV, $E_C = 3379,2$ meV et $E_D = 3380,3$ meV correspondant aux zones A, B, C et D notées sur la figure 1.17. On peut alors clairement relier une zone sur l'échantillon à l'énergie à laquelle elle émet [110]. Au seuil la plupart des points mesurés ont une émission monomode puis au-delà du seuil de nouveaux modes laser apparaissent à plus haute énergie. Cet effet est directement lié au désordre photonique de la structure.

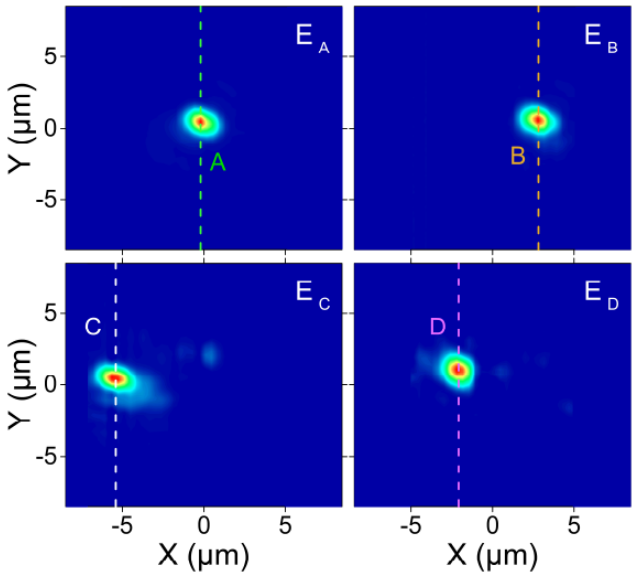

FIGURE 1.19 – Images reconstruites à 1,4Pth pour les énergies $E_A = 3370,9$ meV, $E_B = 3374,3$ meV, $E_C = 3379,2$ meV et $E_D = 3380,3$ meV correspondant aux zones A, B, C et D notées sur la figure 1.17.

La dépendance du seuil laser à polaritons en fonction de la taille du spot est présentée sur la figure 2.10. L'allure est similaire pour les deux matériaux. Lorsque la taille du spot est petite (5 μm) la forte densité sous le spot induit un fort potentiel qui éjecte les polaritons créés hors de la zone de pompage à cause des interactions répulsives polaritons−polaritons et polaritons−porteurs [111]. La conséquence est une forte augmentation du seuil. Quand on augmente la taille du spot d'excitation le gradient de potentiel répulsif diminue, le seuil diminue jusqu'à une valeur minimale qui correspond au spot optimal de ~14 μm. Cette taille de spot a été conservée tout au long de l'étude des diagrammes de phase (partie 1.3.3). La légère augmentation du seuil avec le diamètre du spot est

attribuée au désordre photonique.

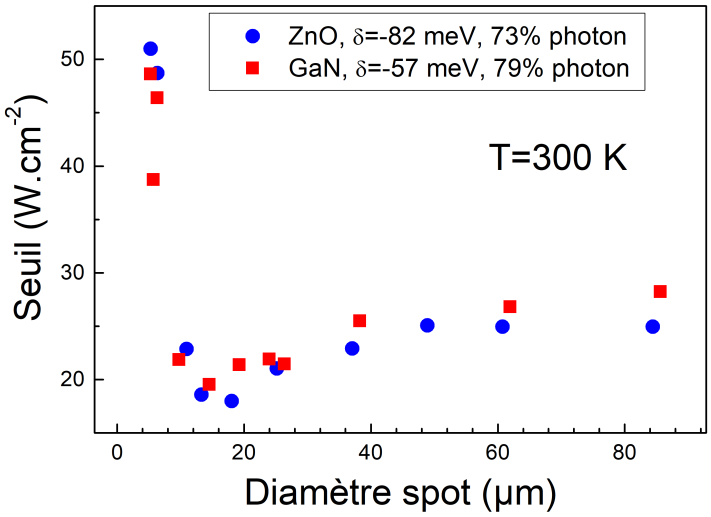

FIGURE 1.20 – Évolution du seuil laser à polaritons en fonction de la taille du spot pour GaN et ZnO avec une part photonique comparable.

1.3.3 Diagrammes de phases de 10 à 300 K

Des diagrammes de phases ont été mesurés dans CdTe [106] et GaAs [112] à basse température puis dans GaN [43] et ZnO [71] jusqu'à température ambiante. La comparaison de GaN et ZnO n'est pas évidente car les structures et les conditions expérimentales de ces deux travaux [43] et [71] sont très différentes. Ici nous avons l'opportunité de faire une comparaison précise de ces deux semiconducteurs à grand gap grâce à deux structures similaires présentées dans la partie 1.3.2.
Le seuil du laser à polaritons a été mesuré en fonction du désaccord de 10 à 300 K dans les même conditions pour les microcavités GaN et ZnO [52]. Les diagrammes de phase sont tracés sur la figure 1.22. Avant de commenter l'étude en température, on va s'intéresser à la figure 1.21 où l'on distingue très clairement trois zones.
Lorsque le désaccord est négatif, la profondeur de la LPB est importante, le temps nécessaire à la relaxation des polaritons du réservoir vers l'état fondamental (τ_{rel}) est grand devant le temps de vie du polariton (τ_{pol}). Il faut alors augmenter la puissance du pompage, c'est à dire le nombre de polaritons pour favoriser les interactions polaritons−polaritons afin de peupler l'état fondamental, c'est le régime cinétique.
Pour les désaccords positifs, les polaritons atteignent facilement l'état de plus basse énergie car $\tau_{pol} > \tau_{rel}$. Dans ce régime thermodynamique le seuil ne dépend plus que de la densité d'états. L'augmentation de la masse du polariton entraîne une hausse du seuil. De plus les interactions polaritons−polaritons sont aussi plus efficaces avec l'augmentation du désaccord (et donc de la fraction excitonique)ou de la température, les polaritons peuvent alors s'échapper de ce piège peu profond ce qui conduit aussi à une augmentation du seuil.
Entre ces deux régimes, le seuil passe par un minimum correspondant à un désaccord optimal (δ_{opt}). Cette zone est nommée régime de compromis ($\tau_{rel} \sim \tau_{pol}$).
Les désaccords qui rendent l'état fondamental de la LPB résonant avec les énergies des phonons LO (1LO et 2LO) sont notés sur les figures 1.21 et 1.22.

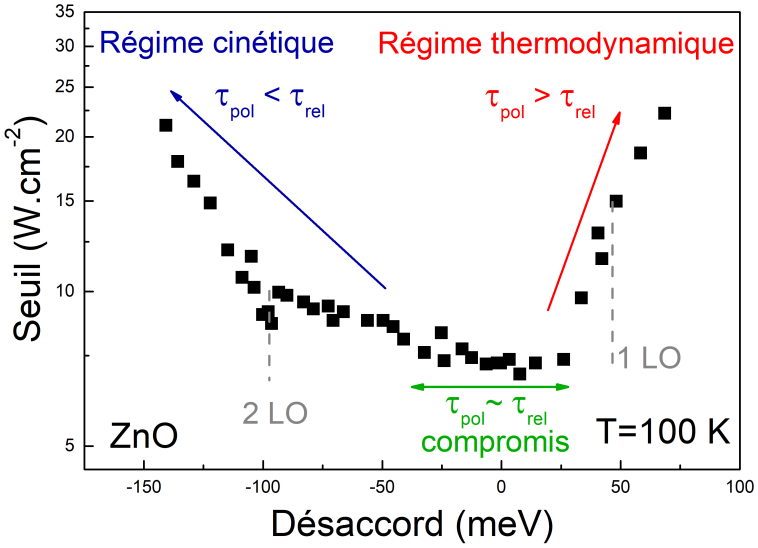

FIGURE 1.21 – Diagramme de phase mesuré à 100 K sur la microcavité ZnO.

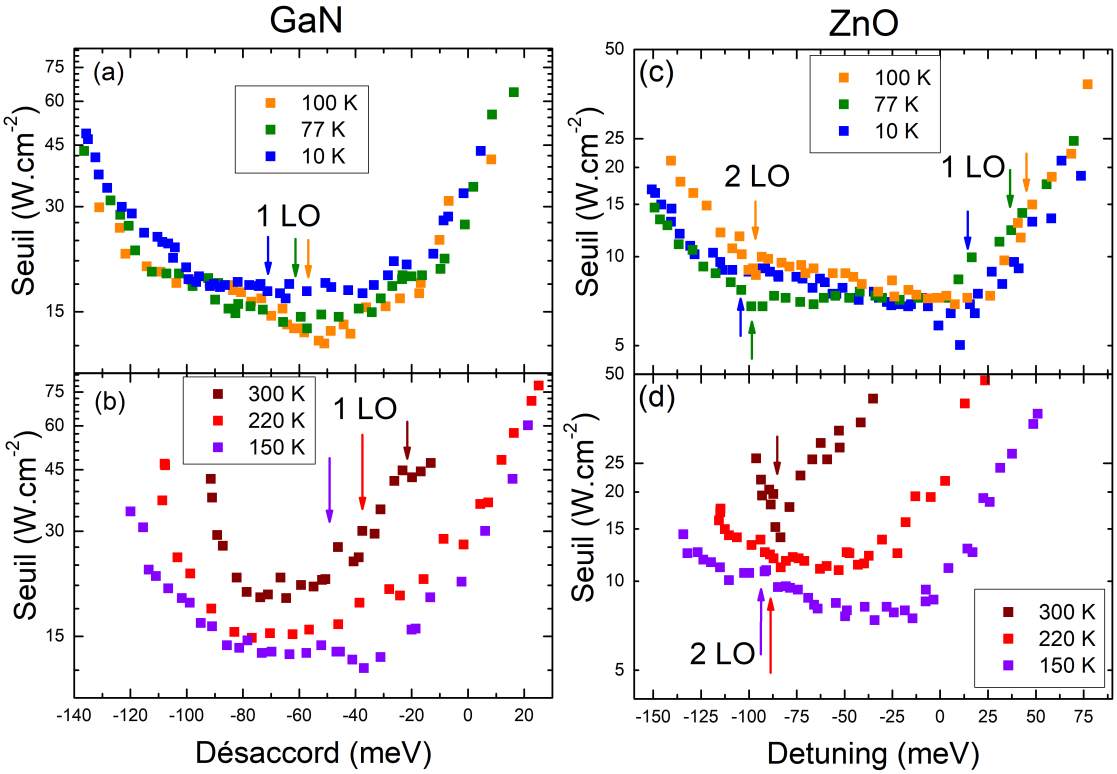

FIGURE 1.22 – Diagramme de phase mesuré dans les microcavités GaN et ZnO à 10, 77, 100, 150, 220 et 300 K.

Pour chaque température, on peut identifier les trois zones ainsi que le désaccord optimal qui correspond au seuil minimum. Ces informations sont présentées sur la figure 1.23 accompagnées de la dépendance en température des 1 LO et 2 LO.
Nous avons vu dans la partie 1.3.1 que le seuil diminue lorsque la relaxation des polaritons est assistée

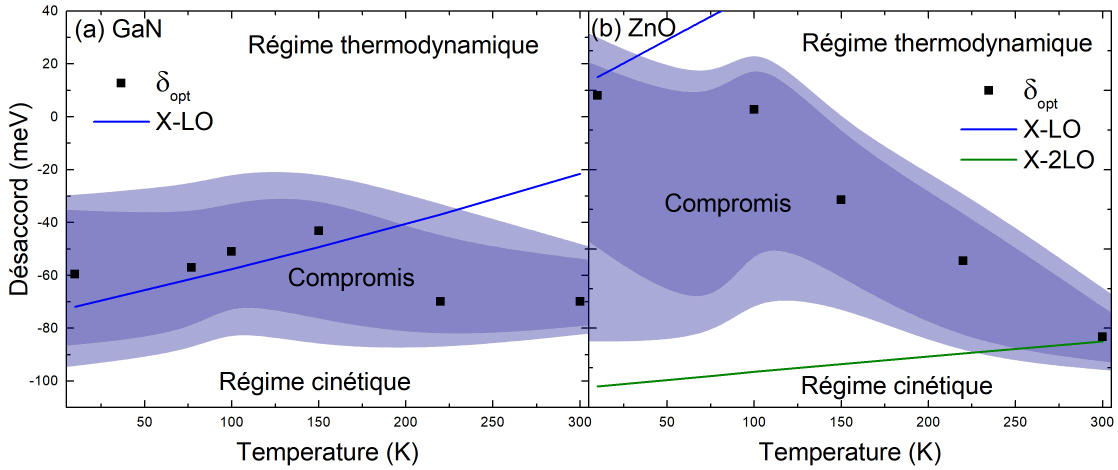

FIGURE 1.23 – Évolution du régime de compris en fonction de la température. Cette zone (foncée) est estimée grâce à la figure 1.22 et la zone claire correspond à l'incertitude. La dépendance en température du désaccord correspondant à la résonance avec l'énergie des 1 LO et 2 LO est aussi tracée.

par les phonons LO. Grâce à ces mesures sur une grande gamme de désaccord et de température nous allons voir que l'efficacité sur la relaxation dépend du régime. Lorsque la LPB est résonante avec un LO pour un désaccord très négatif, c'est à dire dans le régime cinétique, la diminution du seuil n'est que faiblement marquée car τ_{rel} est déjà supérieur à τ_{pol}. C'est le cas pour le 2 LO dans ZnO de 10 à 220 K. Par contre quand la résonance se situe dans le régime de compromis l'effet sur le seuil est très prononcé. On l'observe clairement pour ZnO avec le 1 LO à 10 K et le 2 LO à 300 K et pour GaN à 77 et 100 K. Dans le régime thermodynamique, les polaritons ont un temps de vie supérieur au temps qu'il leur faut pour atteindre l'état fondamental, c'est pourquoi la présence des LO dans cette zone n'a pas d'influence sur le seuil (1 LO dans ZnO à 77−100 K et dans GaN à 220 et 300 K). Pour GaN à 10 K, le 1 LO est à un désaccord plus négatif que le désaccord optimal, le seuil est faiblement influencé. Lorsque la température augmente, le 1 LO se rapproche du centre de la zone de compromis et son effet sur le seuil devient plus important. En effet la position du désaccord optimal suit son évolution entre 77 et 150 K (figure 1.23a). Plus surprenant le seuil diminue entre 10 et 150 K. Du point de vue de la thermodynamique on s'attend à une augmentation du seuil avec la température. Comme la relaxation assistée des LO est efficace dans la zone de compromis, nous mesurons des seuils plus bas entre 77 et 150 K qu'à 10 K.

La figure 1.24a présente une comparaison des seuils mesurés à 10 K en fonction de l'écart d'énergie entre l'exciton et le bas de la LPB, soit la profondeur du piège.
Comme attendu, on trouve des seuils pour ZnO deux fois plus bas en accord avec le facteur 2 sur le dédoublement de Rabi (80 meV pour GaN et 160 meV pour ZnO). Localement on mesure jusqu'à un facteur 3 d'écart pour le seuil optimal grâce à la relaxation assisté par 1 LO. Comme on peut le voir sur la figure 1.24a, un Rabi plus grand permet d'obtenir des pièges plus profonds mais aussi d'atteindre une fraction excitonique plus importante. La fraction excitonique calculée dans GaN est 2 à 3 fois plus petite que dans ZnO pour une même profondeur de piège. Dans les cas extrêmes nous pouvons avoir un laser avec des polaritons 93% photons dans GaN ou 71% excitons dans ZnO. Nous avons aussi montré que lorsque le Rabi est encore plus grand (240 meV), le seuil est observé jusqu'à une fraction excitonique de 96% [71]. Cette fraction peut atteindre 97% dans les microfils ZnO pour lesquels le Rabi est estimé à 300 meV [113].
A température ambiante les seuils mesurés avec GaN et ZnO sont proches (figure 1.24b) mais au désaccord optimal ZnO prend l'avantage grâce encore à l'assistance des LO. L'évolution en tempé-

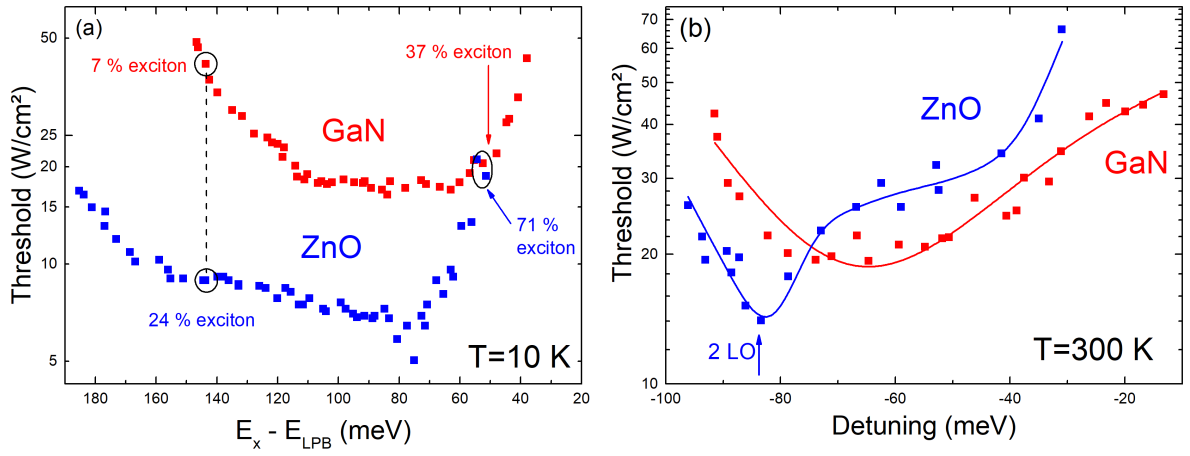

FIGURE 1.24 – Comparaison des seuils mesurés dans GaN et ZnO (a) à 10 K en fonction de la profondeur du piège et (b) à 300 K en fonction du désaccord.

rature des seuils minimum pour GaN et ZnO est comparée sur la figure 1.25.

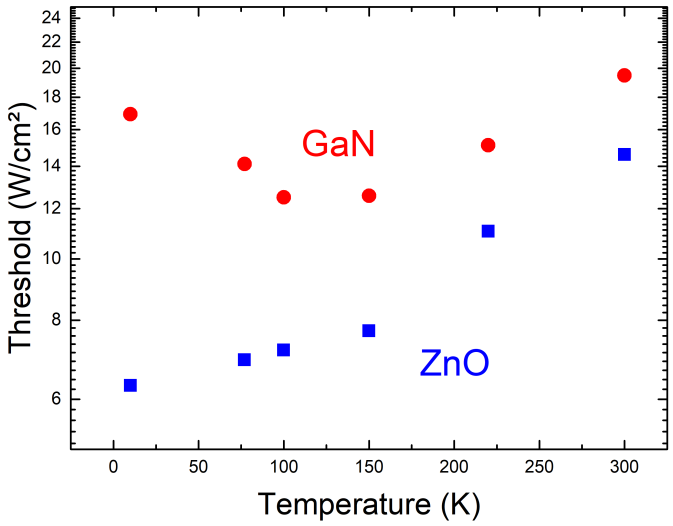

FIGURE 1.25 – Comparaison des seuils minimum mesurés en fonction de la température pour les microcavités GaN et ZnO.

L'évolution atypique du seuil pour GaN est expliquée avec l'assistance des LO. La différence marquante ici est la plus forte augmentation du seuil pour la microcavité ZnO (×2,5). Pour GaN, le seuil optimal est obtenu avec un piège polaritonique de 80−90 meV à 5 et 300 K. La fraction excitonique est faible dans les 2 cas (voir le tableau 1.5), le temps de vie du polariton est alors principalement limité par le temps de vie du photon.

La situation est très différente dans ZnO, la profondeur du piège est presque multipliée par deux entre 5 et 300 K. On retrouve ce facteur sur la fraction excitonique, à température ambiante cette dernière est comparable à GaN. Finalement c'est la part photonique qui semble contrôler le seuil pour les deux matériaux à 300 K. On peut aussi noter que l'assistance du 2 LO permet d'obtenir un seuil minimum malgré une profondeur de piège de 131 meV à température ambiante.

	δ (meV)	Fraction X (%)	$E_X - E_{LPB}$ (meV)
GaN $P_{th\ opt}$ à 10 K	-60	20	80
ZnO $P_{th\ opt}$ à 10 K	+9	53	75
GaN $P_{th\ opt}$ à 300 K	-70	17	88
ZnO $P_{th\ opt}$ à 300 K	-82	27	131

TABLE 1.5 – Désaccord, fraction excitonique et profondeur du piège estimés au seuil optimal à 5 et 300 K pour GaN et ZnO.

1.3.4 Discussion comparaison GaN et ZnO

Les semiconducteurs GaN et ZnO sont deux bons candidats pour la réalisation d'un laser à polaritons fonctionnant à température ambiante, mais lequel est le plus adapté ?

Les forces d'oscillateur des excitons de ZnO sont 4−6 fois plus élevées que pour GaN. Le dédoublement de Rabi est donc logiquement environ deux fois plus élevé dans ZnO car Ω est proportionnel à la racine carré de la force d'oscillateur :

$$\Omega \propto \sqrt{\frac{F_{osc}\, d}{L_{eff}}} \tag{1.2}$$

où d est l'épaisseur de la zone active et L_{eff} la longueur effective de la cavité. ZnO possède donc un avantage car on pourra espérer atteindre des seuils plus bas. La longueur effective peut être estimé par l'expression suivante :

$$L_{eff} = d + \frac{1}{2}(L_{DBR1} + L_{DBR2}) \tag{1.3}$$

où L_{DBR1} et L_{DBR2} correspondent aux longueurs de pénétration dans les miroirs de Bragg inférieur et supérieur.
Pour maximiser le Rabi il est intéressant de choisir une zone active épaisse, cependant au-delà de $\lambda/2-\lambda$ la UPB n'est plus détectable à cause de la forte absorption au-delà du gap. Une des problématiques à laquelle nous avons dû faire face alors est comment estimer le dédoublement de Rabi dans ce cas ?
Pour cela nous réalisons un calcul à l'aide du FMT en retirant la contribution du bande à bande pour révéler clairement la position de la UPB. Cette méthode est critiquable car l'indice utilisé pour modéliser la zone active est simplifié. Pour estimer la précision de cette simulation, nous allons comparer ce calcul avec des valeurs de Rabi mesurées sur structures à zones actives fines [35, 46] sur la figure 1.26. Pour faciliter la lecture, le seul paramètre variable dans la simulation est l'épaisseur de la zone active. La structure utilisée dans le calcul est la microcavité GaN avec deux miroirs de Bragg étudiée dans les parties 1.3.2 et 1.3.3. La courbe calculée est en bon accord avec les dédoublements de Rabi mesurés sur des structures possédant deux miroirs de Bragg car les longueurs effectives des microcavités mesurées et celle utilisée dans la simulation sont très proches. Cette estimation du Rabi apparait raisonnable. Comme on peut l'imaginer en regardant l'équation 1.2, lorsque la L_{eff} est plus

faible (élevé) le Rabi mesuré est plus grand (petit). C'est pourquoi les Rabi mesurés pour une structure avec L_{eff} grand (petit) se situent au-dessous (dessus) de la courbe calculée.

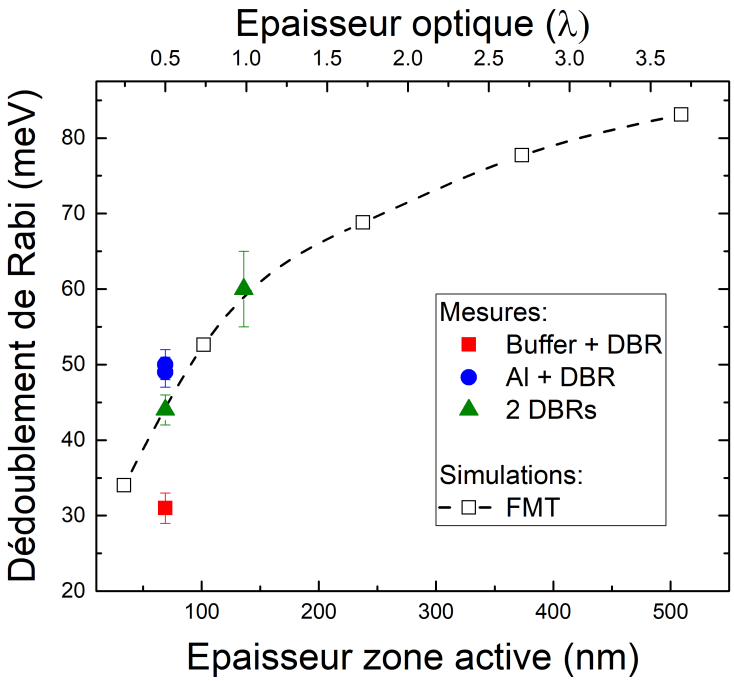

FIGURE 1.26 – Mesure du dédoublement de Rabi issu des références [35, 46] et estimation du dédoublement de Rabi pour différentes épaisseurs de zone active calculées avec le FMT pour la structure de la microcavité GaN étudiée dans cette partie. La longueur effective de la cavité (L_{eff}) est petite lorsque les structures possèdent un miroir d'aluminium (rond bleu) et elle est importante pour la structure avec un buffer à la place d'un miroir (carré rouge)

Comme il l'est rappelé dans le tableau 1.6, l'interaction exciton-phonon longitudinal optique est plus importante dans ZnO que dans GaN ce qui induit un élargissement homogène de 45 meV à température ambiante. Ce désavantage pour ZnO pourrait être rédhibitoire pour les applications à température ambiante, cependant lorsque la différence LPB−exciton devient plus importante que le couplage exciton-phonon, ce dernier n'a plus d'influence sur l'élargissement inhomogène [85].

Concernant la relaxation des polaritons, avec GaN il est difficile de profiter de l'influence maximale des LO sur le seuil à température ambiante. Il faudrait diminuer (augmenter) le Rabi pour être résonnant avec le 1 LO (2 LO) (voir tableau 1.6). La première solution n'est pas intéressante et la deuxième n'est pas réalisable avec une cavité planaire mais peut être envisagée avec un micro- ou nano-fil. En effet le meilleur recouvrement entre le champ électrique et la zone active d'une structure 1D permet d'obtenir un Rabi plus important (115 meV) [114]. ZnO possède ici encore l'avantage. Le design de la structure étudiée dans cette partie constitue un bon exemple car il est bien adapté pour l'obtention du seuil minimal à 300 K.

Le tableau 1.6 résume les paramètres concernant les microcavités GaN et ZnO.

Pour une même puissance d'excitation l'intensité de photoluminescence est supérieure d'un ordre

	GaN	ZnO
Épaisseur zone active (nm)	450	290
Ω (meV)	80	160
Énergie du LO à 5 K (meV)	91	72
Interaction exciton-photon du LO (meV)	420	620

TABLE 1.6 – Comparaison des principaux paramètres des systèmes GaN et ZnO

de grandeur pour le ZnO (figure 1.27). On sait que les forces d'oscillateur dans ZnO sont 4−6 fois supérieures à celles de GaN, on s'attend donc à avoir un temps de vie radiatif plus court pour ZnO et donc un meilleur rendement radiatif. Cependant comme nous allons le voir, dans ces structures c'est principalement le temps de vie non radiatif qui domine. Une analyse plus poussée des mesures de temps de déclin est nécessaire pour expliquer ce facteur 10 sur l'émission.

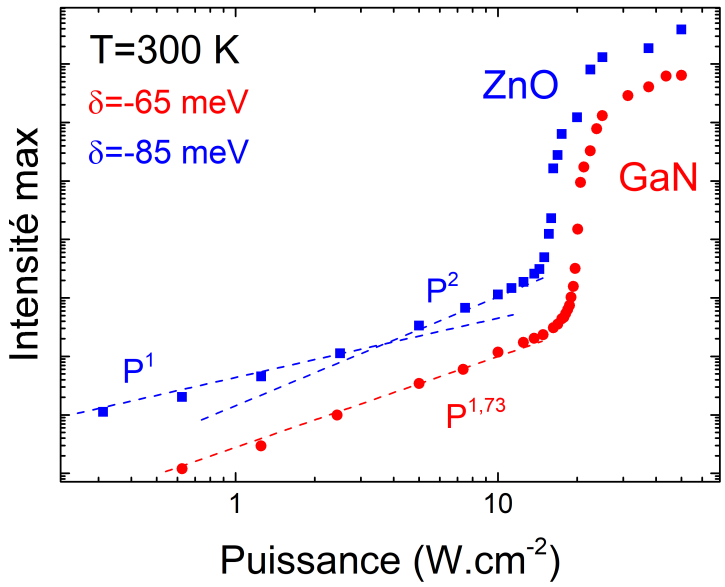

FIGURE 1.27 – Comparaison de l'intensité maximum de la LPB en fonction de la puissance de l'injection optique pour les microcavités GaN et ZnO. Les deux échantillons ont été mesurés dans les mêmes conditions.

Toutes les mesures sont réalisées sous pompage optique. Connaissant la puissance du laser qui illumine l'échantillon et la surface du spot, on peut alors calculer la densité d'excitation moyenne en W.cm^{-2}. Pour réaliser une comparaison plus précise entre GaN et ZnO, il nous faudrait calculer la densité d'excitons injectée dans chaque système. Dans cette optique nous avons réalisé des mesures de photoluminescence résolue en temps (TRPL) pour accéder aux temps de déclin.
Une image typique de mesure de TRPL sur la demi-cavité GaN mesurée à 5 K est présentée sur la figure 1.28a.
La figure 1.28b présente le temps de déclin (τ) de la photoluminescence à l'énergie des excitons libres ($X_A - X_B$). Ce type de mesure a été réalisé pour différentes puissances d'excitation, les résultats sont présentés sur la figure 1.29. Le temps de déclin (τ) de la luminescence des excitons, estimé à l'aide

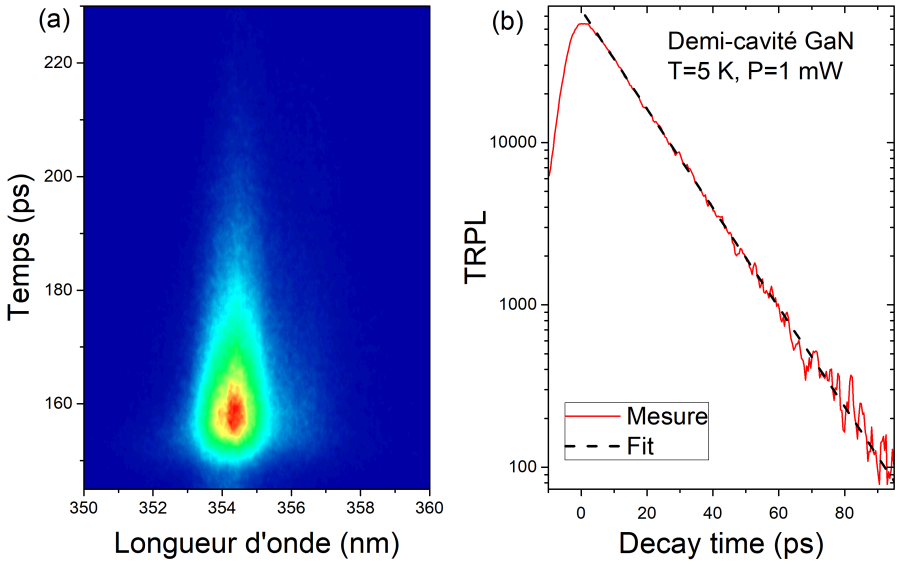

FIGURE 1.28 – (a) Image typique de photoluminescence résolue en temps sur la demi-cavité GaN à 5 K. (b) Spectre issu de (a) à l'énergie des excitons libres, le temps de déclin est estimé à l'aide d'une exponentielle décroissante.

d'une exponentielle décroissante, dépend de deux contributions le temps de vie radiatif (τ_R) et le temps de vie non radiatif (τ_{NR}). Il s'écrit :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_{NR}}. \tag{1.4}$$

Dans notre cas, à basse température le temps de vie radiatif de 250−300 ps dans GaN [115, 116] est grand devant le temps de vie non radiatif. A basse puissance nous estimons mesurer directement le τ_{NR}. Lorsque la puissance d'excitation augmente la saturation progressive des canaux de recombinaisons non radiatives entraine une augmentation du temps de déclin. Pour valider cette hypothèse, nous avons choisi de faire des mesures similaires sur une couche massive de GaN de référence (figure 1.30). Pour cette dernière le taux de dislocations est très faible ($10^6 - 10^7$ cm^{-2}) par rapport à celui de la demi-cavité (5.10^9 cm^{-2}). Il est alors plus facile de saturer les canaux de recombinaisons non radiatifs. Le temps de déclin mesuré varie de 65 à 230 ps. Pour cette couche le temps de déclin à haute puissance se rapproche du τ_R de la littérature.

Afin d'estimer la densité de porteurs, nous allons considérer le nombre de porteurs générés et la recombinaison de ces derniers. Les mesures de temps de déclin et les mesures des diagrammes de phase sont réalisées avec deux sources bien différentes dont les caractéristiques sont détaillées dans la table 1.7. Le temps de vie non radiatif moyen des excitons de la microcavité GaN est de 13,5 ps, ce temps est grand devant 150 fs mais petit face à 400 ps. C'est pourquoi la source femtoseconde sera considérée ici comme une excitation impulsionnelle tandis que le laser qswitch sera assimilé à une excitation quasi-continue.
En mesurant la puissance moyenne injectée optiquement sur l'échantillon, nous pouvons en déduire le nombre de photons injectés. Sachant que l'épaisseur de la microcavité est grande (450 nm), une

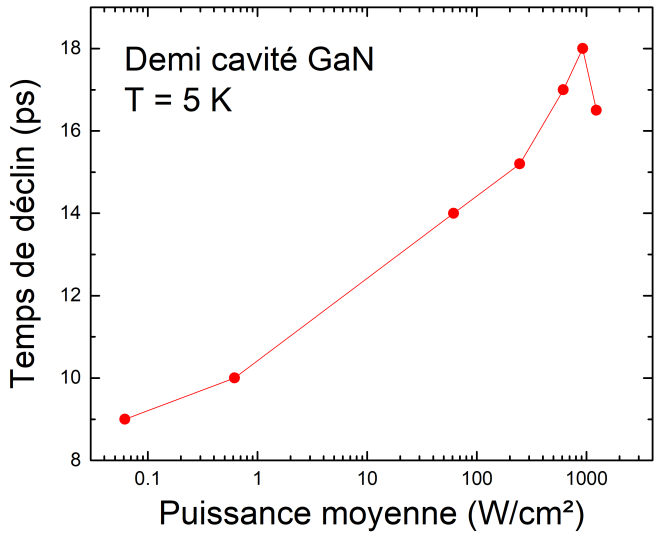

FIGURE 1.29 – Évolution du temps de déclin en fonction de la puissance d'excitation de la demi-cavité GaN à 5 K.

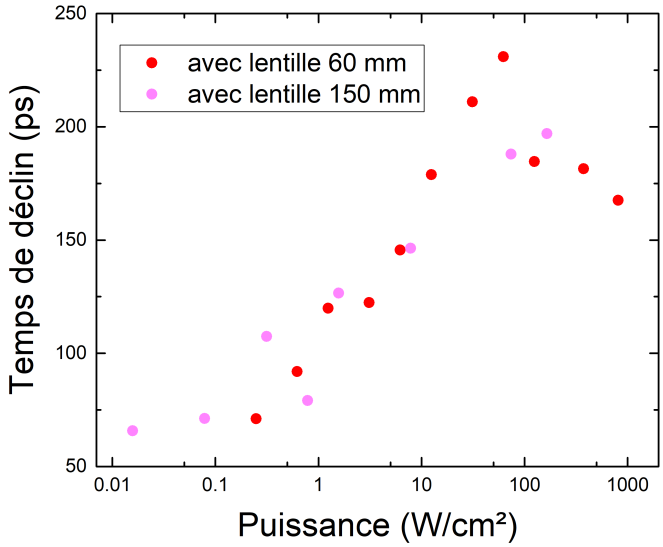

FIGURE 1.30 – Évolution du temps de déclin en fonction de la puissance d'excitation de la couche massive GaN de référence à 5 K.

question importante se pose ici : *est-ce que la répartition des porteurs est homogène ?*
Concrètement on crée des paires électron-trou à 4,66 eV. A cette énergie l'absorption est $\sim 10^5\ cm^{-1}$, les photons injectés sont donc absorbés sur une centaine de nanomètres. Après relaxation, les porteurs alimentent le réservoir excitonique à 3,45−3,5 eV. Les excitons peuvent ensuite diffuser sur des longueurs de 150−200 nm [117–119]. Avec l'excitation impulsionnelle, on peut donc avoir des excitons dans la zone active sur une épaisseur d'environ 250 nm. Concernant l'excitation quasi-continue c'est différent car la largeur spectrale de la raie laser est très étroite. Dans ces conditions, il est possible

de saturer les états disponibles à 266 nm sur une épaisseur de 100 nm pour une puissance moyenne de 56 W/cm^2. Idéalement, il faudrait utiliser une épaisseur variable en fonction de la puissance d'excitation pour estimer la densité de porteurs injectée. Dans notre cas, j'ai choisi d'utiliser une épaisseur de 350 nm avec la source quasi-continue.

	Excitation impulsionnelle	Excitation quasi-continue
Longueur d'onde d'émission	266 nm	266 nm
Durée de l'impulsion	150 fs	400 ps
Taux de répétition	76 MHz	21 kHz
Rapport cyclique	8,8 10^4	1,2 10^5
Largeur spectrale	12 meV	12 μeV

TABLE 1.7 – Caractéristiques de l'excitation impulsionnelle et de l'excitation quasi-continue.

Au-delà d'une certaine densité, la densité de Mott, l'interaction coulombienne est écrantée, les excitons sont dissociés laissant la place à un plasma d'électrons et de trous. La transition entre un gaz d'excitons et un plasma électrons−trous se produit lorsque la distance moyenne entre les excitons (r) est proche du rayon de Bohr (figure 1.31).

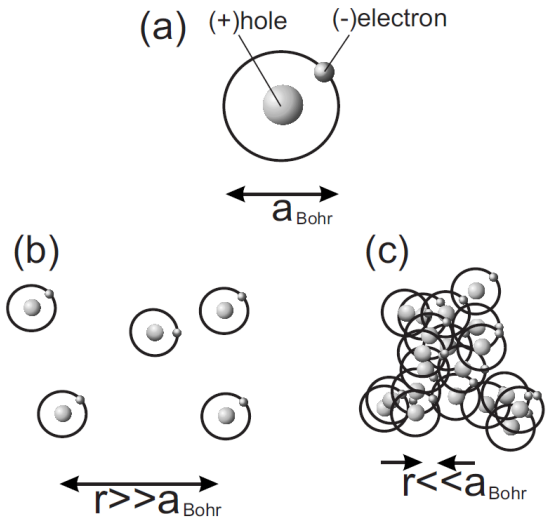

FIGURE 1.31 – Extrait de la référence [120], (a) représentation d'un exciton de Wannier, (b) gaz d'excitons sous la densité de Mott. (c) Lorsque la densité d'excitons est supérieure à la densité de Mott, on a alors un plasma d'électrons et de trous.

On peut alors estimer grossièrement la densité de Mott en inversant le volume d'un exciton :

$$n_{approx} = \left(\frac{4}{3}\pi a_B^3\right)^{-1} \tag{1.5}$$

Pour GaN et ZnO on trouve $1,1.10^{19}$ cm^{-3} et $2,6.10^{19}$ cm^{-3}. Cependant cette méthode de calcul surestimerait la densité d'un ordre de grandeur d'après Klingshirn et al. [121].
Il existe plusieurs approches dans la littérature pour calculer la densité de Mott mais la dispersion

des résultats est importante (~ 3 ordres de grandeur). Joel Leymarie et Pierre Disseix se sont intéressés récemment à la méthode proposée par Versteegh et al. [122], ils ont refait les calculs pour GaN et ZnO (figure 1.32). D'après ce modèle, la densité de Mott dépend fortement de la température. Cependant les valeurs calculées apparaissent basses devant les estimations expérimentales présentes dans la littérature (voir le tableau 1.8) [123–126].

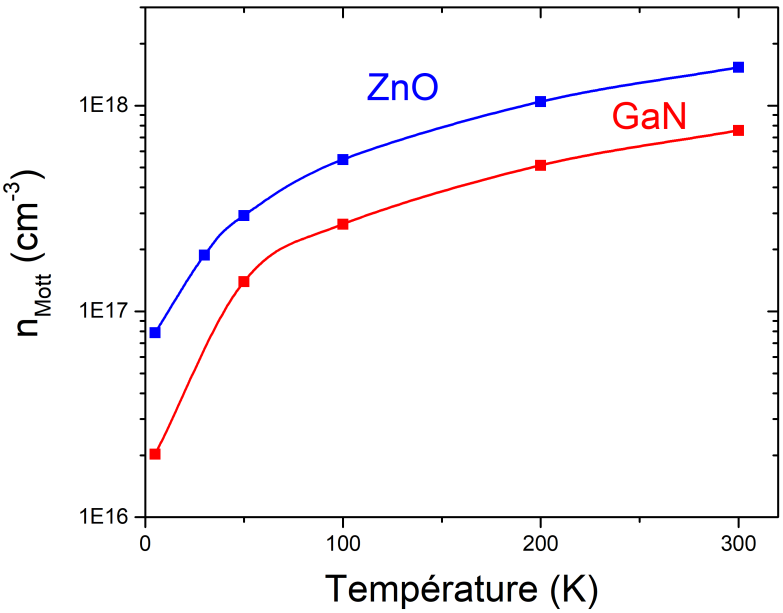

FIGURE 1.32 – Evolution de la densité de Mott calculée dans GaN et ZnO en utilisant la méthode proposée par Versteegh et al. [122].

[123] 8 K	[124] 30 K	[125] 6 K	[126] 4 K
8.10^{17}	$2-3.10^{18}$	$1,7-16.10^{18}$	$3-6.10^{18}$

TABLE 1.8 – Densités de Mott expérimentales exprimées en cm^{-3} pour GaN.

Comme on va le voir, il est difficile de mesurer expérimentalement la densité de Mott. L'étude de Hess al. est orientée sur la mesure du gain optique dans GaN, ils donnent une estimation de la densité de Mott ($8.10^{17}\ cm^{-3}$) mais sans donner de détail sur leur méthode [123].
Binet et al. estiment la densité de Mott via des mesures de photoluminescence en fonction de la puissance [124]. Ils s'intéressent au redshift de l'émission excitonique. Lorsque la densité de porteurs augmente la renormalisation du gap induit un redshift tandis que l'écrantage de l'interaction coulombienne produit un blueshift. Ces deux effets se compensent parfaitement et donc l'énergie des excitons ne varie pas. Cependant lorsque l'interaction coulombienne est complètement écrantée le pic de luminescence va alors suivre l'évolution de la renormalisation du gap (redshift). C'est ce premier critère qui est choisi comme limite basse ($1,8.10^{18}\ cm^{-3}$) de la densité de Mott. La limite haute ($3,8.10^{18}\ cm^{-3}$) est déterminée par le seuil non linéaire de l'émission à haute énergie (3,52 eV). Entre ces deux limites Binet et al. considèrent avoir une cohabitation excitons et plasma d'électrons−trous. Ils observent aussi une augmentation linéaire de la densité de Mott avec la température électronique ($8.10^{18}\ cm^{-3}$ à 250 K). Cette étude est très détaillée et les mesures sont convaincantes.

Nagai et al. se sont intéressés à la renormalisation du gap sous forte excitation [125]. Ils observent, sur leurs spectres de PL, une bande large à $1,6.10^{19}\ cm^{-3}$ qu'ils attribuent à l'émission du plasma électrons−trous. Pour une densité de $1,7.10^{18}\ cm^{-3}$ cette bande n'est pas visible. La densité de Mott devrait se situer dans cet intervalle.
Kyhm et al. observent directement l'écrantage des excitons par des mesures de réflectivité résolue en temps à 4 K [126]. Lorsque la pompe est inactive la signature des excitons est clairement visible. Avec la pompe active, ils doivent alors atteindre une densité de $6.10^{18}\ cm^{-3}$ pour écranter les excitons. Pour une densité similaire ils observent également une bande large côté basse énergie qui pourrait être l'émission du plasma électrons−trous.
Il est aussi important de noter que d'après les mesures de Kyhm et al. la densité de Mott sous excitation résonante ($5.10^{19}\ cm^{-3}$) est un ordre de grandeur plus élevé que dans le cas d'une excitation non résonante. Alors que seuls les excitons participent à leur propre écrantage sous excitation résonante, la cohabitation des paires électron−trous avec les excitons contribue à un écrantage plus efficace de l'interaction coulombienne lors d'une excitation non résonante [126, 127].

Pour tous ces travaux, la température du réseau est basse (4−30 K), mais il faut garder en tête que sous forte excitation la température électronique est beaucoup plus élevée. Dans le cas de Binet et al., elle est estimée à 120 K lorsque le réseau est à 30 K. Il faut donc comparer les $2-3.10^{18}\ cm^{-3}$ mesurés par Binet et al. à $3.10^{17}\ cm^{-3}$ la valeur calculée par la méthode de Versteegh et al. pour 120 K (figure 1.32).

Concernant la microcavité GaN, si on considère un temps de vie excitonique moyen de 13,5 ps (figure 1.29), la densité de porteurs injectés pour le seuil optimal à 5 K est égale à $8,4.10^{17}$ cm^{-3}. Cette valeur est supérieure à la valeur calculée (figure 1.32) mais inférieure aux estimations expérimentales (tableau 1.8). Comme nos seuils laser sont proches de la densité de Mott, la question qui se pose alors est : ***avons-nous toujours des excitons ?***

La transition du laser à polaritons vers un laser classique est clairement observée dans les microcavités GaAs [83, 104]. Au delà d'une forte densité de porteurs les excitons sont dissociés laissant la place à un plasma électrons−trous. Au deuxième seuil l'émission ne se fait plus sur l'état fondamental de la branche polaritonique mais sur celui du mode photonique. Dans notre cas nous ne pouvons pas identifier ce deuxième seuil à cause du caractère multimodes du laser à polaritons.

Si on s'intéresse à la figure 1.33 issue d'une étude de Klingshirn et al. [128], on peut voir que l'augmentation de la puissance entraîne une renormalisation du gap. Lorsque la densité augmente, la force d'oscillateur est progressivement écrantée, l'énergie de liaison diminue jusqu'à devenir nulle : il n'y a plus d'excitons, c'est la densité de Mott. D'après le calcul tracé sur cette même figure il faut augmenter encore la densité d'un facteur 10 pour obtenir du gain (lorsque le calcul de l'évolution du potentiel chimique de la paire électron-trou croise l'évolution de ΔE_g). Si le milieu actif se trouve dans un résonateur, en continuant d'augmenter la densité de porteurs on peut alors observer un seuil laser lorsque le gain compense les pertes.
Expérimentalement Hess et al. ont montré que dans GaN à basse température, le gain est obtenu pour une densité 100 fois supérieure à la densité de Mott [123]. De plus, dans une récente étude expérimentale sur un nanofil unique de ZnO, Wille et al. ont observé qu'il faut une densité 200 fois supérieure à la densité de Mott pour obtenir un seuil laser à température ambiante [103]. Ils mesurent également une augmentation du seuil d'un facteur 25 entre 5 et 300 K.

Dans notre cas (figure 1.25) le seuil du laser à polaritons est quasiment similaire entre 5 et 300 K pour GaN et augmente d'un facteur 2,5 pour ZnO. Cette évolution ne correspond pas aux mécanismes d'un laser classique comme on vient de le discuter (figure 1.33).

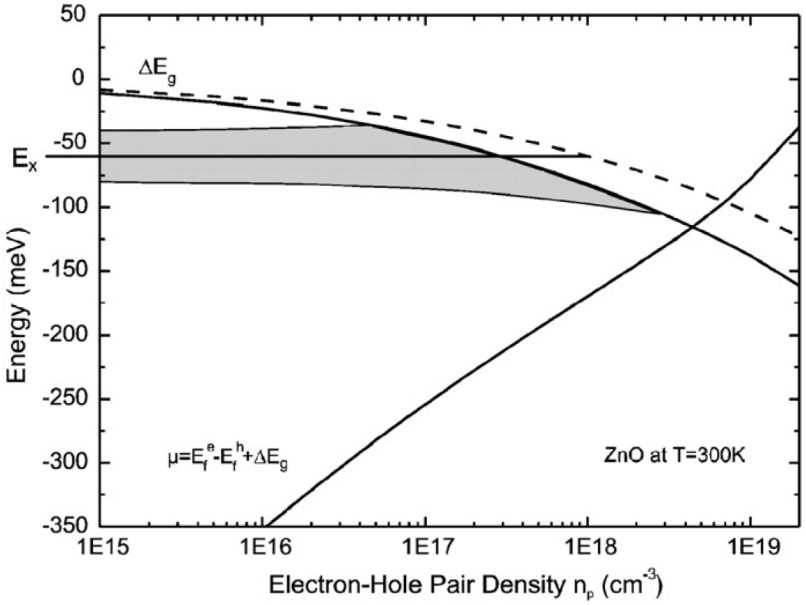

FIGURE 1.33 – Dépendance de l'énergie de bande interdite en fonction de la densité de paires électron−trou à température pour ZnO issu de [128]. Pour ΔE_g la ligne pointillée correspond à un calcul issu de [129] et la ligne continue d'un fit de données expérimentales de [130]. μ représente le potentiel chimique de la paire électron-trou.

Lors des mesures pour établir les diagrammes de phase nous avons visualisé plus d'un millier de points sans observer d'effets clairs indiquant la perte du couplage fort. Nous avons aussi longtemps essayé de chercher des preuves du maintien du couplage fort au seuil et au-delà à température ambiante, en vain car la largeur de la dispersion polaritonique, la cohabitation spatiale et temporelle ne permettent pas d'observer de variation de courbure ou de discontinuité de l'évolution du blueshift. De plus la transition est probablement molle et donc difficile à détecter.

Un critère simple à analyser est l'évolution du blueshift à 5 K (pour conserver une meilleure finesse de raie). L'idéal serait de faire une mesure avec un large spot et un filtre spatial pour s'affranchir de la cohabitation spatiale et du désordre photonique. Cependant le signal trop faible dû au filtrage spatial rend très difficile les mesures aux basses puissances. Nous allons alors utiliser le spot optimal de (~14 μm) soit les mêmes conditions que pour l'étude des diagrammes de phase (partie 1.3.3). Les mesures sont réalisées de $0{,}007P_{th}$ jusqu'à $1{,}03P_{th}$ et l'évolution en énergie de la LPB est tracée en fonction de la puissance crête (figure 1.34).

Cette mesure montre une évolution typique de la LPB jusqu'au seuil. On observe très clairement que l'énergie de la LPB ne varie pas de $0{,}007P_{th}$ à $0{,}2P_{th}$. On peut dire que dans cette gamme de puissance le blueshift est nul, c'est à dire que nous n'avons pas commencé l'écrantage de la force d'oscillateur. Jusqu'à une puissance crête de 0,7 MW/cm^2 ($0{,}2P_{th}$) soit $2{,}9.10^{17}$ cm^{-3} la force d'oscillateur des excitons est toujours de 100%. L'évolution de la LPB ne présente pas de discontinuité qui pourrait indiquer un changement de régime. Cependant une variation continue de l'indice suite à un écrantage progressif des excitons pourrait contribuer à cette évolution continue.

On sait que l'écrantage débute à partir de $2{,}9.10^{17}$ cm^{-3}*, mais que vaut la force d'oscillateur au seuil à* $1{,}4.10^{18}$ cm^{-3} *?*
Pour répondre à cette question, nous avons réalisé une mesure similaire dans une zone légèrement

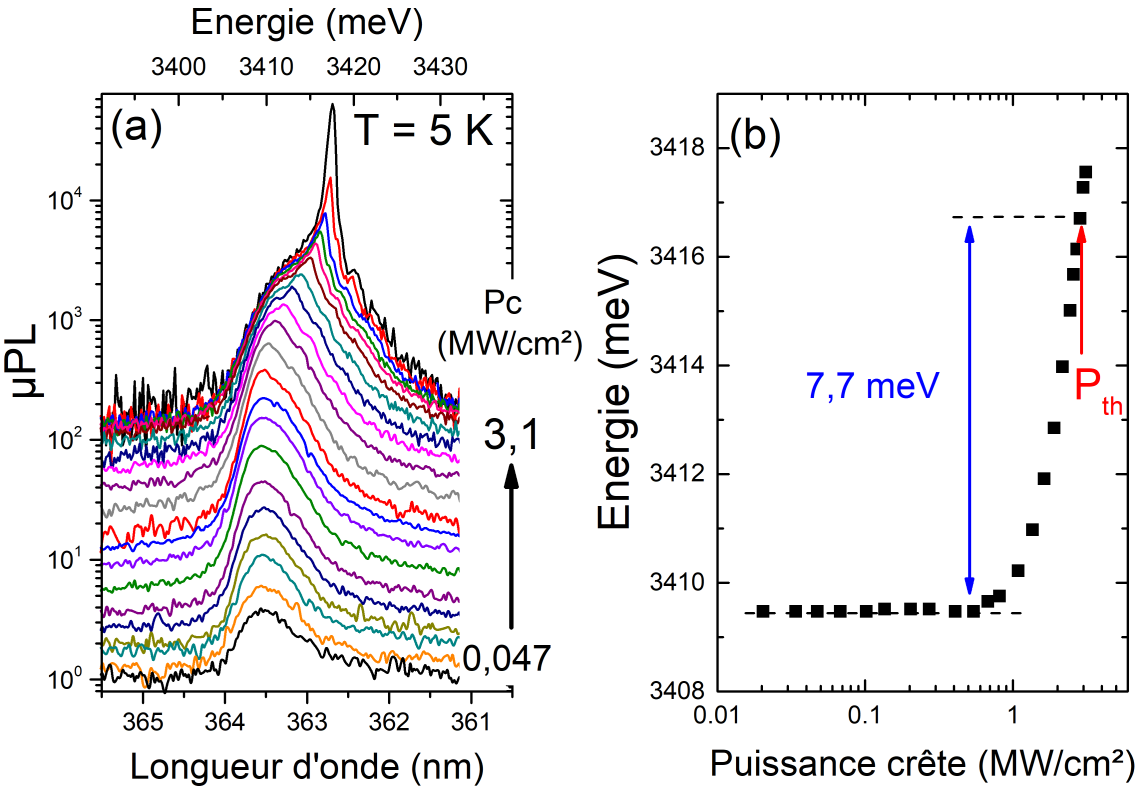

FIGURE 1.34 – (a) Mesures de μPL allant de $0{,}007P_{th}$ jusqu'à $1{,}03P_{th}$ sur la microcavité GaN à 5 K. (b) Évolution du blueshift de la LPB en fonction de la puissance crête mesurée sur (a).

plus épaisse. La LPB se retrouve décalée de 20 meV vers les basses énergies et on détecte alors sous excitation continue deux LPBs additionnelles avec une fraction excitonique très importante à 3489 meV et 3501 meV (figure 1.35a). Ces modes peuvent exister car la zone active est relativement épaisse (~480 nm) et la dispersion de l'indice est forte, notamment à seulement 5−15 meV sous les excitons. Sous excitation quasi-continue, seulement la luminescence de la LPB additionnelle est détectée (3489 meV). Comme on peut l'attendre pour une fraction excitonique si élevée (~86%), le blueshift est plus petit (3 meV) car la diminution du Rabi dans cette zone n'a que très peu d'influence.
Il est important de noter ici que dans le cas où il n'y aurait plus d'excitons au seuil ($1{,}4.10^{18}$ cm^{-3}), le mode à 3492,4 meV serait alors purement photonique. Dans ce cas, il faudrait que la zone active ait un indice égal à 2,85. Cette valeur élevée n'est pas atteignable sans la présence des excitons.

On sait maintenant qu'il reste de la force d'oscillateur au seuil mais on ne sait toujours pas où se situe le seuil par rapport à la densité de Mott. Pour répondre à ce dernier point, nous allons estimer la densité de Mott expérimentalement à la manière de Binet et al. [124]. Pour cela on va s'intéresser à l'évolution en énergie de l'émission excitonique de la demi-cavité GaN sous forte injection (figure 1.36b), les spectres sont présentés sur la figure 1.36a. Si on choisit le même critère que les auteurs pour la limite basse, c'est à dire le début du redshift de D^0X, on trouve une puissance crête de 9 MW/cm^2. Cette limite se situe entre le 4ème et le 5ème spectre à partir du bas sur la figure 1.36a. Sur le 5ème spectre on devine toujours l'épaulement lié à l'émission des excitons libres par contre sur le 6ème spectre (le rouge) cet épaulement a disparu. Cela signifie qu'il y a probablement une cohabitation excitons et électrons−trous jusqu'à 14 MW/cm^2. Cela correspond à une densité de porteurs de $4-6.10^{18}$ cm^{-3}. Il est important de noter ici que la température du réseau est 5 K mais que celle des porteurs est estimée à 170 K. Ce résultat est très proche des estimations de Binet et al. (6.10^{18} cm^{-3} à 170 K) [124].
De plus il faut augmenter la puissance d'excitation d'un facteur 100 au-delà de la densité de Mott esti-

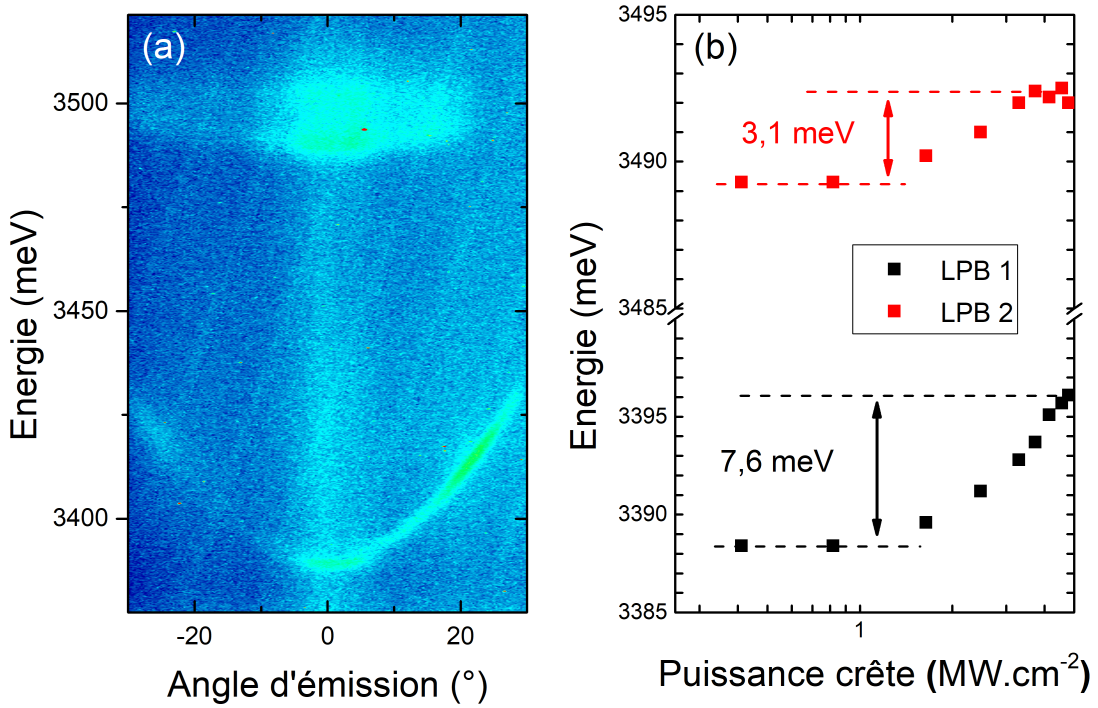

FIGURE 1.35 – (a) Imagerie de Fourier de la microcavité GaN sous excitation continue à 5 K. (b) Évolution du blueshift des LPBs en fonction de la puissance crête sous excitation quasi-continue.

mée pour obtenir un seuil laser. Ce dernier résultat est en très bon accord avec la littérature [103, 123]. Pour confirmer cette estimation de la densité de Mott dans GaN, nous avons étudié dans les mêmes conditions notre GaN de référence sous forte excitation (figure 1.37). Dans ce cas, le décalage en énergie des excitons liés n'est pas significatif. Cependant pour une puissance moyenne de 2,7 W/cm^2 on observe nettement la contribution de l'exciton A. Dès 5,7 W/cm^2 cette transition est élargie spectralement et décalée vers les basses énergies, et n'est plus détectée à 11,2 W/cm^2. D'après cette mesure, on semble perdre les excitons entre 5,7 et 11,2 W/cm^2 soit une puissance crête de 0,68−1,3 MW/cm^2. Si on utilise le temps de déclin mesuré pour une puissance crête similaire (150 ps, figure 1.30), on trouve une densité de porteur de $3-6.10^{18}$ cm^{-3}. Ces valeurs sont très proches de celles estimées sur la demi-cavité.

La discussion est volontairement restée centrée sur GaN car c'est pour ce matériau que nous avions le plus de doute à cause sa plus faible énergie de liaison et sa densité de Mott plus basse (rayon de Bohr plus grand). Concernant ZnO tout le monde n'est pas non plus d'accord pour s'accorder sur une valeur commune de la densité de Mott comme le montre le tableau 1.9.

[121] 10 K	[131] 300 K	[132] 300 K	[133] 300 K	[134] 300 K
$0,5.10^{18}$	10^{18}	$5,5.10^{18}$	4.10^{19}	3.10^{19}

TABLE 1.9 – Densités de Mott expérimentales exprimées en cm^{-3} pour ZnO.

Klingshirn et al. estiment la densité de Mott dans ZnO à $0,5.10^{18}$ cm^{-3} par des mesures de photolu-

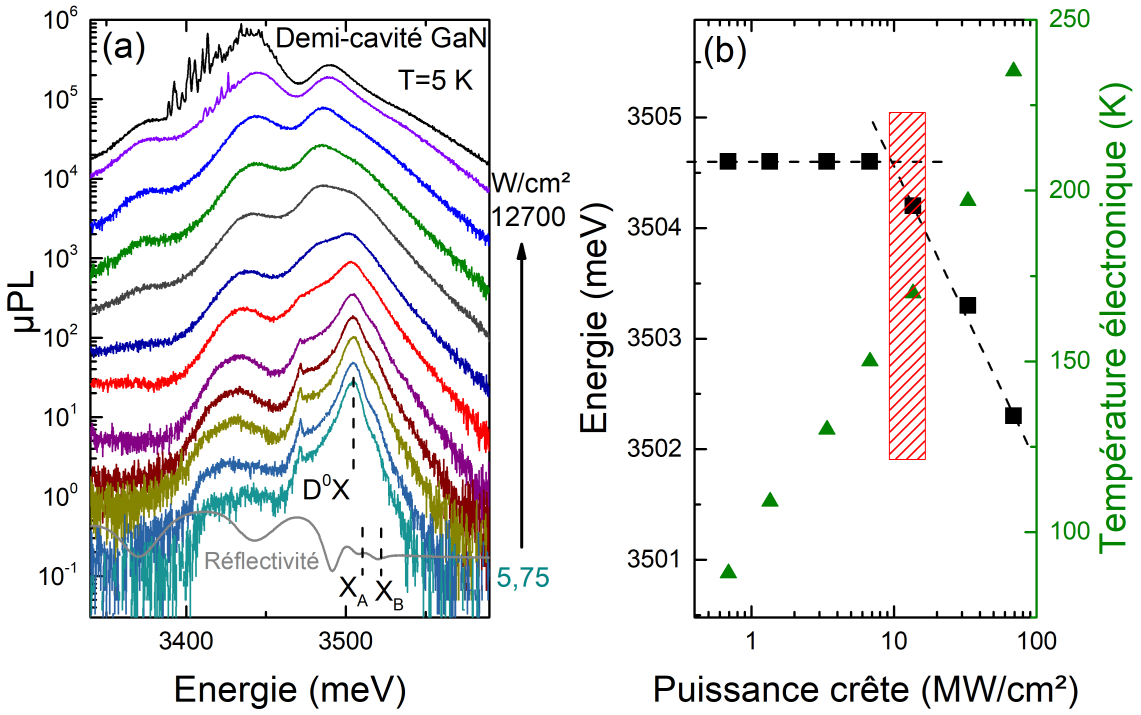

FIGURE 1.36 – (a) μPL de la demi-cavité GaN à 5 K sous forte excitation (quasi-continue) pour une puissance moyenne de 5,75 W/cm^2 à 12,7 kW/cm^2. (b) Évolution de l'énergie de D^0X et estimation de la température électronique en fonction de la puissance d'excitation. Une puissance moyenne de 5,75 W/cm^2 correspond à une puissance crête de 0,69 MW/cm^2.

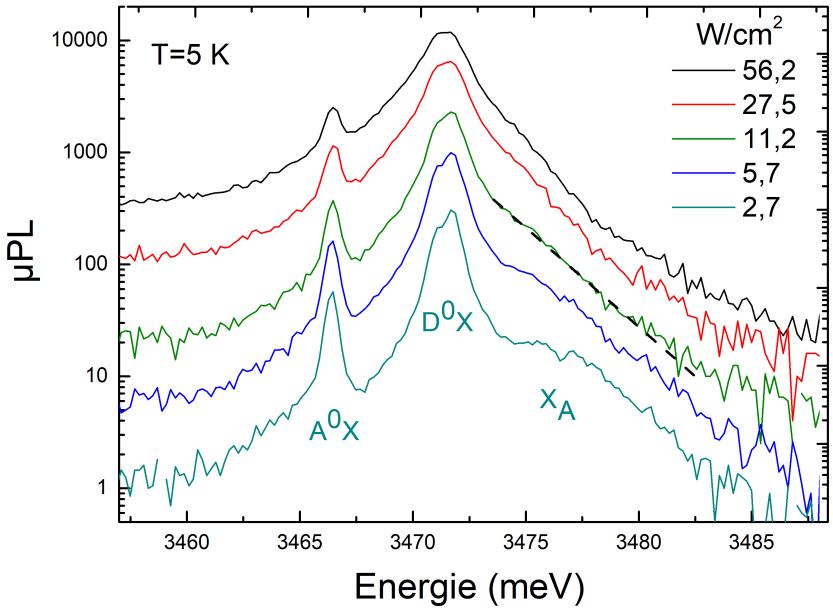

FIGURE 1.37 – μPL du GaN de référence à 5 K sous excitation quasi-continue pour une puissance moyenne de 2,7 W/cm^2 à 56,2 W/cm^2..

minescence sous forte excitation [121]. A 10 K, ils observent un épaulement côté basse énergie qui est attribué au plasma électrons−trous. Pour les auteurs cette densité ne dépend pas de la température [128]. De plus ils considèrent qu'il n'y a pas de gain excitonique à température ambiante.
Versteegh et al. ont réalisé une étude intéressante avec des mesures pompe sonde sous excitation à 800 nm [122]. Cette longueur d'onde leur permet d'atteindre des densités élevés ainsi que de pouvoir sonder une zone plus profonde pour s'affranchir des impuretés de surface. Cependant pour estimer la densité de porteurs expérimentale, ils utilisent une fonction phénoménologique pour être en accord avec leurs résultats théoriques. Cette méthode pose questionnement sur les densités mesurées. Concernant la densité de Mott calculée, elle est de $1,5.10^{18}\ cm^{-3}$ à température ambiante.
Tang et al. observent une émission laser avec du gain excitonic à température ambiante [131]. Au-delà du seuil à partir de $10^{18}\ cm^{-3}$ ils commencent à détecter l'émission du plasma électrons−trous (EHP).
En identifiant un redshift sur leurs mesures de gain, Chen et al. estiment la densité de Mott à température ambiante à $5,5.10^{18}\ cm^{-3}$ [132].
Par des mesures de pompe sonde en transmission, Sun et al. observent une diminution de leur temps transitoire qu'il attribuent au passage à la densité de Mott pour $4.10^{19}\ cm^{-3}$ à température ambiante [133].
Arai et al. ont réalisé des expériences de photoluminescence résolue en temps à température ambiante [134]. Ils observent la transition entre l'émission excitonique et l'EHP à $3.10^{19}\ cm^{-3}$.

Dans la plupart de ces études, l'émission du plasma électrons−trous et des excitons coexiste sur une gamme de puissance, ce qui confirme que la transition de Mott n'est pas brutale.

Concernant nos mesures, il est fort probable que nos densités de porteurs soient surestimées. On connaît précisément le nombre de photons que l'on injecte sur l'échantillon. Cependant pour estimer la densité de porteurs on utilise le temps de vie excitonique mesuré sur la demi-cavité. La fuite des polaritons dans les modes de Bragg et dans les modes guidés (ce point sera détaillé dans le chapitre 3) est bien prise en compte dans la mesure. Cependant lorsque le miroir supérieur est présent, la relaxation des excitons−polaritons du réservoir vers l'état fondamental est favorisée car le temps de vie du photon passe de la dizaine de femtoseconde à la picoseconde. Cette fuite "volontaire", qui n'est pas prise en compte dans la mesure, entraine une surestimation de la densité de porteurs.
De plus, dans les microcavités il existe un gradient d'épaisseur et de composition pour le miroir inférieur qui ne dépend pas du gradient d'épaisseur de la couche active. Cela signifie que lorsque l'on change de désaccord (donc de position sur l'échantillon) la positon en énergie de la bande d'arrêt du miroir inférieur varie aussi. Lorsque le miroir se décale vers les hautes énergies la fuite des polaritons dans ces modes de Bragg augmente. Pour quantifier ces pertes il faudrait faire des mesures de temps de déclin pour différentes positions en énergie du miroir inférieur. Expérimentalement à température ambiante le miroir est très décalé pour les désaccords négatifs principalement pour la microcavité ZnO. On peut constater sur la figure 1.22d que la zone de compromis est très réduite à 300 K en comparaison de celle de GaN. La fuite importante des polaritons vers ces modes de Bragg couplés au réservoir à grand k entraine une forte augmentation du seuil qui nous empêche d'accéder au régime cinétique.

Hormis pour l'expérience de TRPL, les mesures présentées dans ce manuscrit sont enregistrées avec un temps d'exposition du capteur CCD de 0,1 s à quelques minutes. Il est possible que l'on observe de la cohabitation temporelle notamment avec la source impulsionnelle comme on l'a vu dans la partie 1.3.1. Kamman et al. ont montré qu'il est possible d'être en régime de couplage faible les premières picosecondes après l'impulsion puis de revenir en couplage fort ensuite [135].
A cela s'ajoute la cohabitation spatiale, la densité d'excitation est plus importante au centre du spot.

La mesure est une moyenne des zones luminescentes sous le spot.

Dans le cas de GaN, le temps de vie excitonique mesuré à température ambiante varie de 15 à 30 ps. Si on prend un temps de vie moyen de 22,5 ps, on obtient une densité de porteurs de $1,6.10^{18}$ cm^{-3}. Cette valeur est deux fois plus élevée qu'à 5 K mais on se situe toujours sous la densité de Mott. D'autant plus que cette dernière est censée augmenter avec la température.
Dans le tableau 1.10, sont regroupées les densités de porteurs estimées au seuil laser à polaritons optimal à 5 et 300 K avec un pompage quasi-continu (400 ps / 21 kHz) et impulsionnel (150 fs / 76 MHz).

	Densité à 5 K (cm^{-3})	Densité à 300 K (cm^{-3})
Excitation quasi-continue	$8,4.10^{17}$	$1,6.10^{18}$
Excitation impulsionnelle	$9,6.10^{17}$	$1,1.10^{18}$

TABLE 1.10 – Densités de porteurs estimées au seuil laser à polaritons optimal à 5 et 300 K avec un pompage quasi-continu (400 ps / 21kHz) et impulsionnel (150 fs / 76MHz).

On peut noter ici que la densité de porteurs au seuil à température ambiante est très proche que celle de la microcavité GaN ($2,2.10^{18}$ cm^{-3}) qui a été utilisée pour la première observation du laser à polaritons [41].
De plus il est intéressant de voir que les densités de porteurs au seuil obtenues avec les deux sources sont plutôt proches alors que ces lasers sont très différents.

Pour finir ce chapitre, nous avons vu que nos seuils laser à polaritons se situent sous la densité de Mott mais relativement proche de cette dernière. La densité de porteurs dépend du temps de vie excitonique, ici ce dernier est petit ($10-30$ ps) à cause des différents canaux de recombinaisons non radiatifs. Cela se traduit par une injection optique importante pour compenser les pertes. On peut alors se demander : ***où se situent nos résultats par rapport à la littérature et est-ce que le seuil du laser à polaritons est réellement plus faible qu'un laser vertical émettant par la surface (VCSEL) ?***

Concernant les VCSELs, il y a beaucoup de résultats dans la littérature notamment pour des structures injectées électriquement et à des longueurs d'onde proche du bleu. Ici on va se concentrer uniquement sur les VCSELs pompés optiquement qui émettent dans le proche UV (360−400 nm) et fonctionnant à température ambiante. Une comparaison de la densité de porteurs au seuil serait intéressante cependant cette valeur est rarement donnée dans les travaux publiés.
Sur la figure 1.38, les seuils laser à polaritons sont comparés aux seuils VCSEL pour GaN et ZnO à température ambiante dans des microcavités planaires sous injection optique. Tous les seuils ont été convertis en puissance crête en MW/cm^2. Nos valeurs apparaissent sous la forme d'un rond rouge pour GaN et d'un triangle bleu pour ZnO.

En regardant cette figure, on se demande si le laser à polaritons à un intérêt du point de vue de la consommation car plusieurs VCSELs ont un seuil inférieur.
Il est important de noter ici que la qualité optique de la zone active est probablement bien différente d'un échantillon à l'autre. Nous avons vu que le temps de vie excitonique (et donc la densité de porteurs) pouvait varier d'un facteur 13 en fonction du taux de dislocation (figure 1.29 et 1.30). Sur cette figure, certains VCSELs GaN ont des taux de dislocations 2 ordres de grandeurs inférieurs à ceux de notre microcavité, ce qui explique pourquoi les seuils VCSELs en MW/cm^2 sont similaires ou plus faibles. De plus pour les VCSELs, les zones actives sont principalement des puits quantiques où le

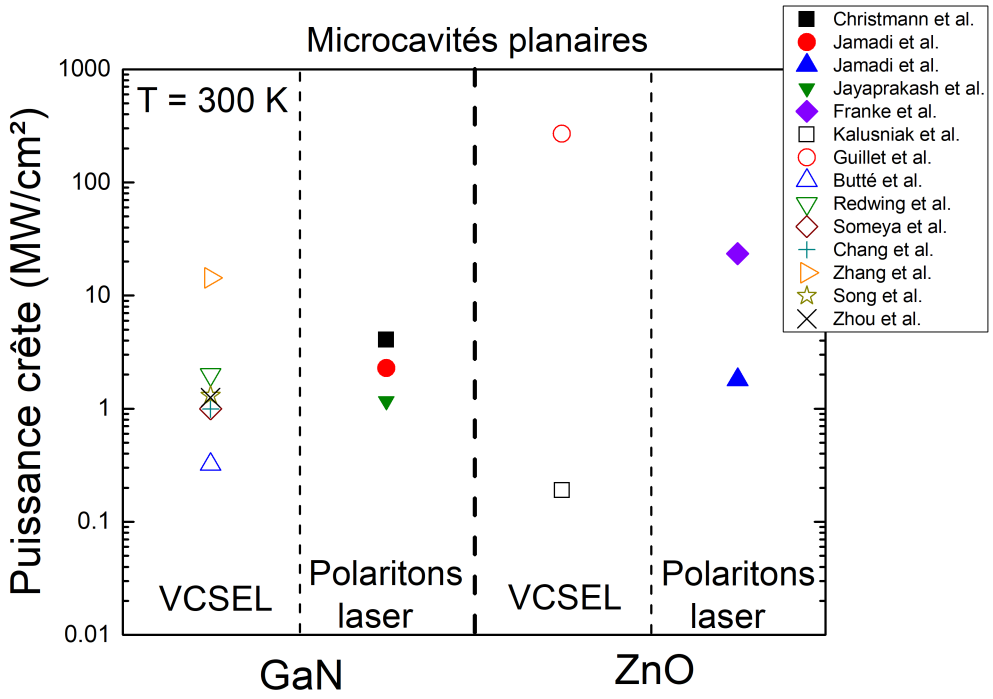

FIGURE 1.38 – Comparaison des seuils laser à polaritons et VCSEL pour GaN et ZnO à température ambiante, ces données sont issues des références [42, 57, 67, 136–144].

temps de vie excitonique peut être beaucoup plus élevé (jusqu'à 40−90 fois plus que pour notre microcavité GaN) [145, 146].
Il est aussi possible que certains VCSELs fonctionnent en régime de couplage fort mais il n'y a pas de preuves expérimentales dans les articles pour l'affirmer. Par exemple, dans l'article de Kalusniak et al., le laser émet à 384 nm soit à la même longueur d'onde que le creux sur le spectre de réflectivité. Ce mode est interprété comme un mode photonique nu alors que cela pourrait être la branche basse polaritonique [136].

Quoiqu'il en soit, il est encore possible de diminuer les seuils laser polaritoniques en jouant sur la qualité de la zone active, le temps de vie photonique, le dédoublement de Rabi, la longueur effective de la cavité mais aussi sur le confinement des polaritons. En effet, le réservoir excitonique que l'on crée pour alimenter le laser à polaritons ne sert pas uniquement à alimenter les modes polaritoniques confinés suivant l'axe de croissance (modes verticaux). Une partie du réservoir alimente des modes propagatifs (modes horizontaux), c'est ce que nous allons voir dans les chapitre 2 et 3.

1.4 Commutateur optique

Le laser à polaritons est le plus emblématique exemple d'application basée sur le régime de couplage de fort. Cependant les multiples propriétés des polaritons offrent la possibilité de réaliser beaucoup d'autres fonctions, en voici quelques exemples : un oscillateur paramétrique optique [24], un transistor optique [30, 31], un interféromètre [147], des portes logiques [31], un amplificateur [148].
La plupart de ces démonstrations sont réalisées avec GaAs à basse température, ici nous allons présenter le fonctionnement d'un commutateur optique dans une microcavité ZnO possédant un fort

gradient d'épaisseur (figure 1.39). Ce travail a été réalisé durant la thèse de Laurent Orosz. Nous allons nous intéresser ici à des mesures à 70 K car l'effet est plus clair et plus marqué, mais le fonctionnement à température ambiante est similaire.

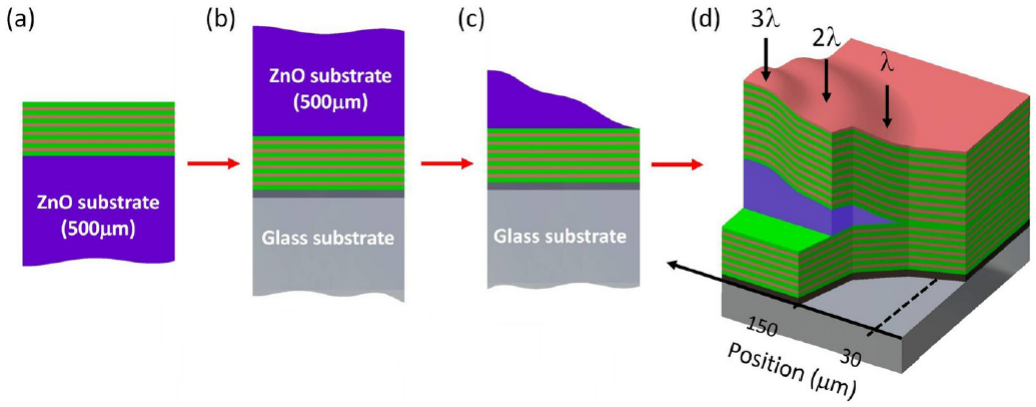

FIGURE 1.39 – (a) 6,5 paires de SiO_2/HfO_2 suivies d'une couche d'aluminium sont déposées sur un substrat ZnO. (b) La structure est retournée et collée sur un substrat en verre. (c) Le substrat de ZnO (500 μm) est gravé puis poli jusqu'à quelque centaines de nanomètres. (d) La structure est complétée par 10 paires de SiO_2/HfO_2.

Lorsque l'épaisseur de la zone active est grande, dans ZnO typiquement dès 2λ soit 320 nm, il peut exister plus d'un mode photonique. Cet effet est particulièrement marqué à basse température ou l'indice de réfraction varie fortement au voisinage de la transition excitonique ($nd = k\lambda$). En fonction du gradient d'épaisseur, on va pouvoir coupler deux ou trois modes optiques aux excitons. Dans ces zones épaisses, nous avons observé un condensat de polaritons capable de commuter d'une LPB à l'autre simplement en faisant varier la puissance d'excitation ou la fraction excitonique des LPBs.
La figure 1.40 présente des images de Fourier mesurées dans une région où la zone active est très épaisse (~900 nm). Le dédoublement de Rabi est estimé à 260 meV [149]. A basse puissance ($0{,}1P_{th}$), on distingue clairement 3 LPBs notées LPB0, LPB1 et LPB2. A P_{th}, un seuil laser à polaritons est observé sur la LPB1. Lorsque l'on augmente la puissance les polaritons peuvent relaxer dans les 3 branches polaritoniques. Cependant la fraction excitonique de la LPB0 est trop importante pour permettre la condensation des polaritons. Le piège de la LPB2 (73% exciton) est profond, les polaritons ne peuvent pas atteindre l'état fondamental car le temps de relaxation est supérieur au temps de vie du polariton. C'est alors la LPB1 (93% exciton) qui est favorisée car elle se trouve dans la zone de compromis comme on l'a vu dans la partie 1.3.3. Si on augmente la puissance de l'injection, les interactions polaritons−polaritons vont être améliorées et les polaritons pourront atteindre le bas de la LPB2 (figure 1.40c et f). En faisant varier la puissance de pompe de quelques pour-cents, l'énergie du laser passe de 3,33 à 3,295 eV. Cet écart d'énergie est réglable en fonction de l'épaisseur de la zone active dans la limite de la zone accessible par les polaritons [71].

Il est aussi possible de contrôler la commutation du laser en faisant simplement varier l'épaisseur de la zone active (figure 1.41). La puissance d'injection est fixée très légèrement au-dessus du seuil et il suffit de se déplacer sur l'échantillon en suivant le gradient d'épaisseur. Le principe de fonctionnement est le même que précédemment. La condensation des polaritons dépend du temps de vie du polariton et du temps de relaxation. Pour le désaccord de la figure 1.41a, l'émission laser est localisée sur la LPB1. Si on choisit une zone plus épaisse (figure 1.41b) le désaccord devient plus négatif, la LP2 sort de la fenêtre de détection, on devine la LPB0 mais c'est toujours la LPB1 qui lase. Sur la

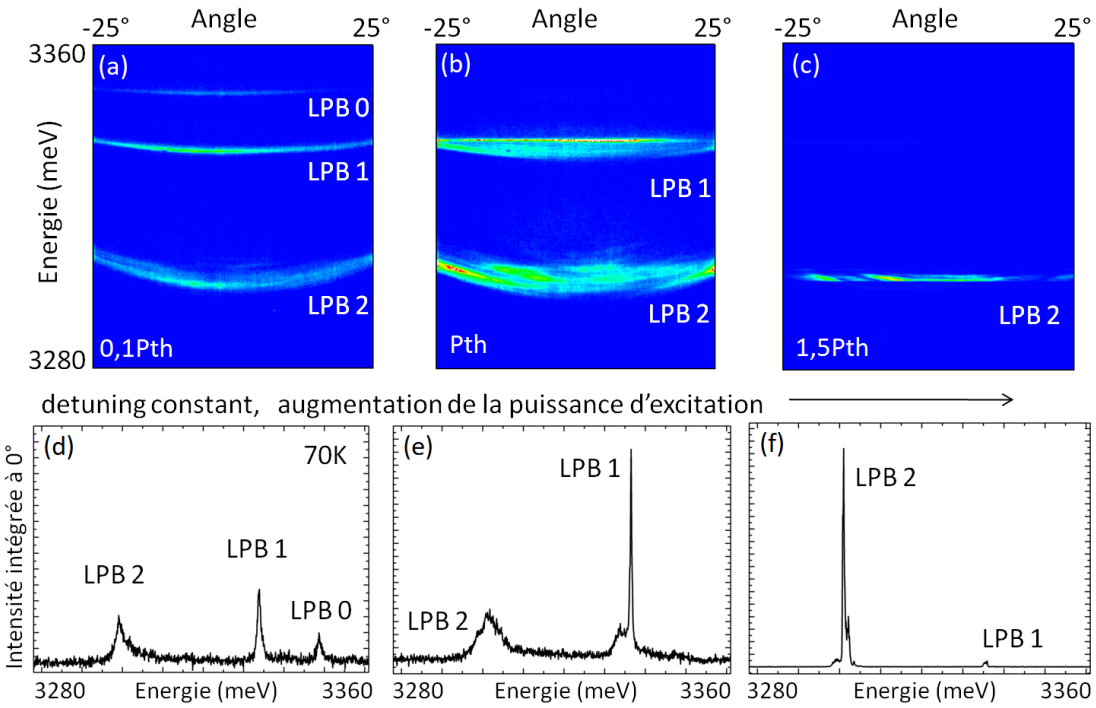

FIGURE 1.40 – (a-c) Imagerie de Fourier à 70 K pour 0,1P_{th}, P_{th}, 2,5P_{th}, (d-f) spectre correspondant à l'image du dessus pour un angle d'émission de 0°.

figure 1.41c, la LPB0 entre dans la zone de compromis, on a alors une émission laser sur les deux branches (LPB0 et 1) simultanément. C'est en choisissant un point légèrement plus négatif que l'on garde uniquement le laser sur LPB0. L'évolution du mode laser en fonction du désaccord est tracée sur la figure 1.42. Dans ce cas de figure, la commutation est observée pour une épaisseur de zone active de 913 nm.

Pour conclure ce chapitre sur les polaritons dans les microcavités planaires, nous avons vu que l'amélioration du temps de vie photonique a été un point clé pour l'observation du laser à polaritons GaN et ZnO à température ambiante sur substrat silicium. La fabrication de deux microcavités planaires GaN et ZnO similaires avec un faible désordre photonique nous a permis de réaliser des études approfondies et de comparer ces deux matériaux dans des conditions expérimentales identiques. ZnO possède de nombreux avantages face à GaN pour la réalisation d'un laser à polaritons comme la faible sensibilité à l'accumulation de contrainte, l'énergie du LO qui permet d'obtenir un seuil plus petit grâce à une meilleure relaxation des polaritons, une intensité d'émission dix fois plus forte. Pour la réalisation du composant, l'injection des trous reste le point bloquant mais il peut être contourné par l'utilisation d'une couche AlGaN dopé p. Néanmoins pour être compétitif par rapport aux VCSELs, nous avons vu qu'il reste une marge d'amélioration concernant la limite des pertes par recombinaisons non radiatives.
Nous allons maintenant voir qu'avec une structure contenant seulement 3 couches il est possible de d'obtenir des polaritons guidés avec lesquels le seuil laser est encore plus faible.

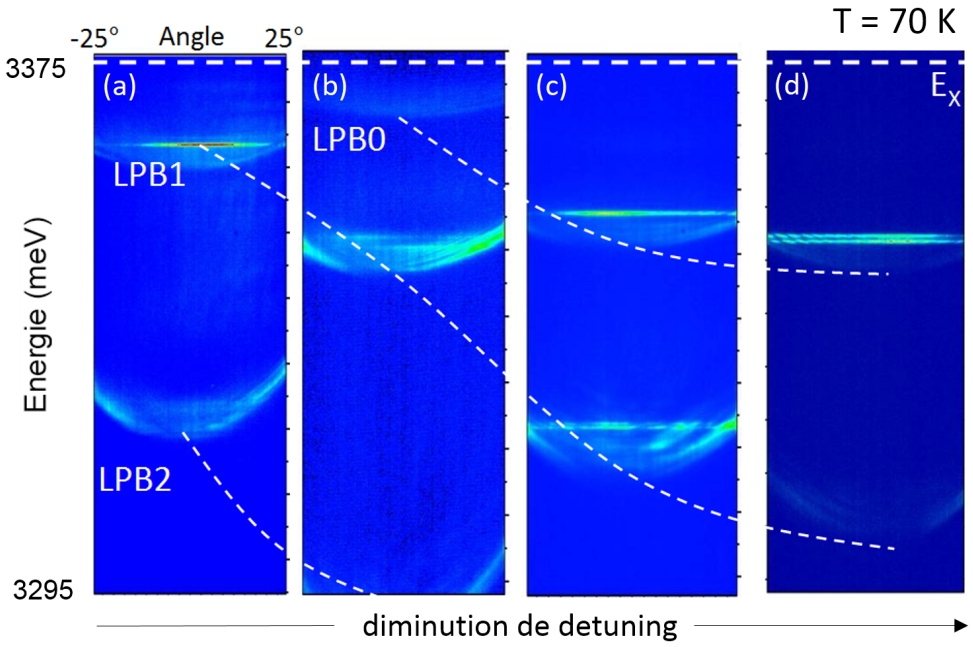

FIGURE 1.41 – Imagerie de Fourier à 70 K pour (a,b,c et d) différentes épaisseurs de zone active.

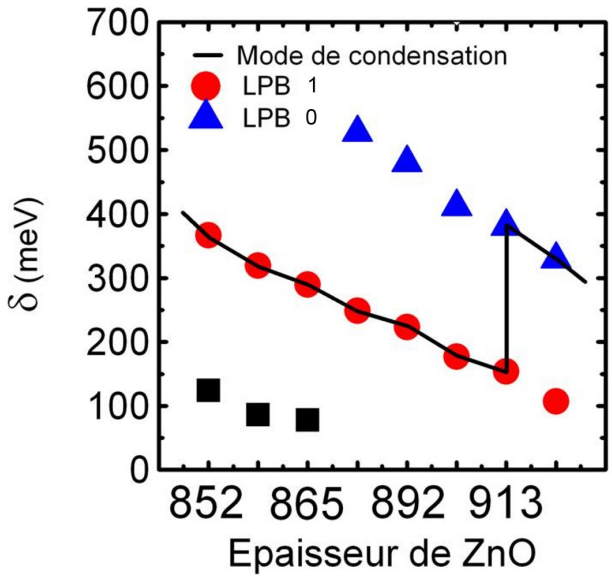

FIGURE 1.42 – Commutation du laser en fonction du désaccord.

Chapitre 2

Guides d'onde polaritoniques

Sommaire

2.1 Le contexte 55
2.2 Polaritons guidés 56
2.2.1 Présentation du guide ZnO 50 nm 56
2.2.2 Démonstration du couplage fort et effet laser 59
2.2.3 Temps de passage 62
2.2.4 Interférences 64
2.2.5 Longueur d'atténuation 67
2.2.6 Résonateur 68
2.2.7 Influence du cladding supérieur 68
2.2.8 Et avec GaN? 70
2.3 Amplification 71

Ce deuxième chapitre est dédié aux polaritons guidés. Comme dans le cas des microcavités planaires, GaN et ZnO sont pressentis pour conserver les polaritons guidés à température ambiante et ainsi élaborer des circuits polaritoniques optiques. Mais jusqu'en 2017 ni le couplage fort à température ni l'effet laser n'avaient été démontrés dans ces structures guidantes inorganiques.
Après un bref état de l'art, la structure guide à base de ZnO est présentée. Le couplage fort est démontré jusqu'à la température ambiante et l'effet laser est analysé. L'importance du résonateur et du temps de passage des polaritons sous le spot d'excitation est ensuite discuté. Ce chapitre se termine par la mise en évidence de l'amplification des polaritons guidés [150].

2.1 Le contexte

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, les polaritons ont beaucoup été étudiés dans des microcavités planaires. Si on s'intéresse à la propagation des polaritons notamment pour faire des circuits polaritoniques optiques alors la configuration polaritons guidés est très prometteuse, voici les principaux avantages :
i) Il n'y a pas besoin de miroirs de Bragg, les polaritons sont confinés par réflexion interne totale dans la zone active.
ii) Les pertes sont plus faibles et le Rabi est plus élevé grâce au meilleur recouvrement du champ électrique et de la zone active.
iii) La structure est simple à réaliser, un guide est composé de trois couches (par rapport aux 80

couches de nos microcavités planaires), la couche active guidante se trouve entre deux couches d'indices inférieurs (claddings).
iv) La technologie utilisée pour la fabrication de pièges polaritoniques et la prise de contacts pour l'injection électrique sera plus simple.

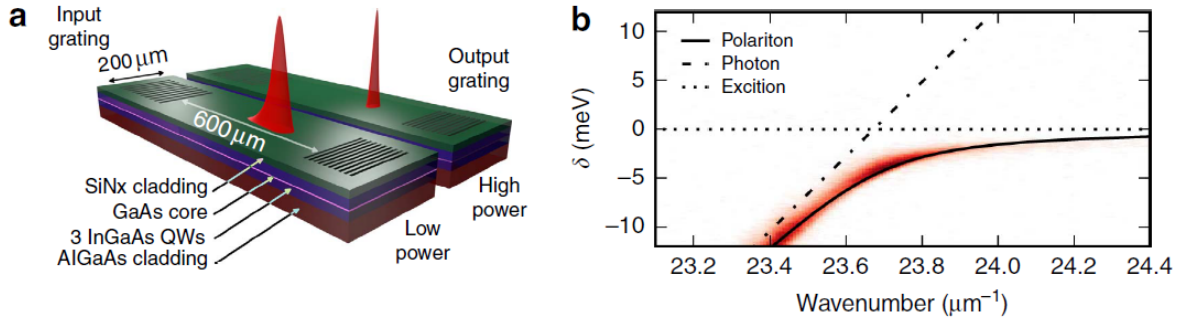

FIGURE 2.1 – (a) Schéma du guide GaAs et (b) dispersion des polaritons guidés mesurée à 10 K issus de [151]

.

La première observation du couplage fort entre un exciton et un mode guidé a été réalisée en 2011 par Ellenboger et al. [152] dans un guide organique à température ambiante. En 2013, Walker et al. [153] ont également observé l'anticroisement dans un guide planaire à base de GaAs à 5 K. L'année suivant D. Solnyshkov et G. Malpuech ont proposé d'utiliser les matériaux GaN ou ZnO comme zone active guidante pour réaliser un amplificateur polaritonique injecté électriquement et fonctionnant à température ambiante [148]. Plus récemment, Ciers et al. ont observé le couplage fort avec des modes guidés dans une structure à base de GaN mais seulement jusqu'à 100 K car le signal devient trop faible au-delà de cette température [154].
Parallèlement le groupe de Krizhanovskii à Sheffield utilise les propriétés non linéaire et dispersive des polaritons guidés pour observer des solitons brillants et sombres [151, 155].

2.2 Polaritons guidés

2.2.1 Présentation du guide ZnO 50 nm

Le guide étudié dans cette partie est présenté sur la figure 2.2a. L'échantillon a été épitaxié par jets moléculaires sur un substrat ZnO plan m. La zone active, en ZnO, d'épaisseur 50 nm, est située entre deux couches de $Zn_{0.74}Mg_{0.26}O$. La première couche épitaxiée de ZnMgO d'un micron d'épaisseur fait office de tampon et de couche d'indice de réfraction inférieur à la couche guidante (lower cladding). La dernière couche de ZnMgO de 100 nm correspond au cladding supérieur. Un matériau d'indice plus faible est utilisé pour le cladding afin que les photons restent en réflexion totale et se propagent dans la zone active de la même manière que dans une fibre optique.
Des mesures de photoluminescence sous excitation continue et de réflectivité du guide ZnO 50 nm sont présentées sur la figure 2.3. D'après les règles de sélection, en polarisation perpendiculaire à c, on s'attend à avoir une force d'oscillateur importante sur X_A et X_B et faible sur X_C alors qu'en polarisation parallèle la force d'oscillateur sera faible sur X_A et importante sur X_C [156]. On observe clairement les excitons liés aux donneurs (D^0X) ainsi que les excitons libres X_A, X_B et X_C (figure 2.3b). La position en énergie des excitons X_A=3375 meV et X_B=3381 meV indique que la couche est relaxée. Cependant lorsque l'on s'approche des fissures, le ZnMgO subit une contrainte en tension et impose

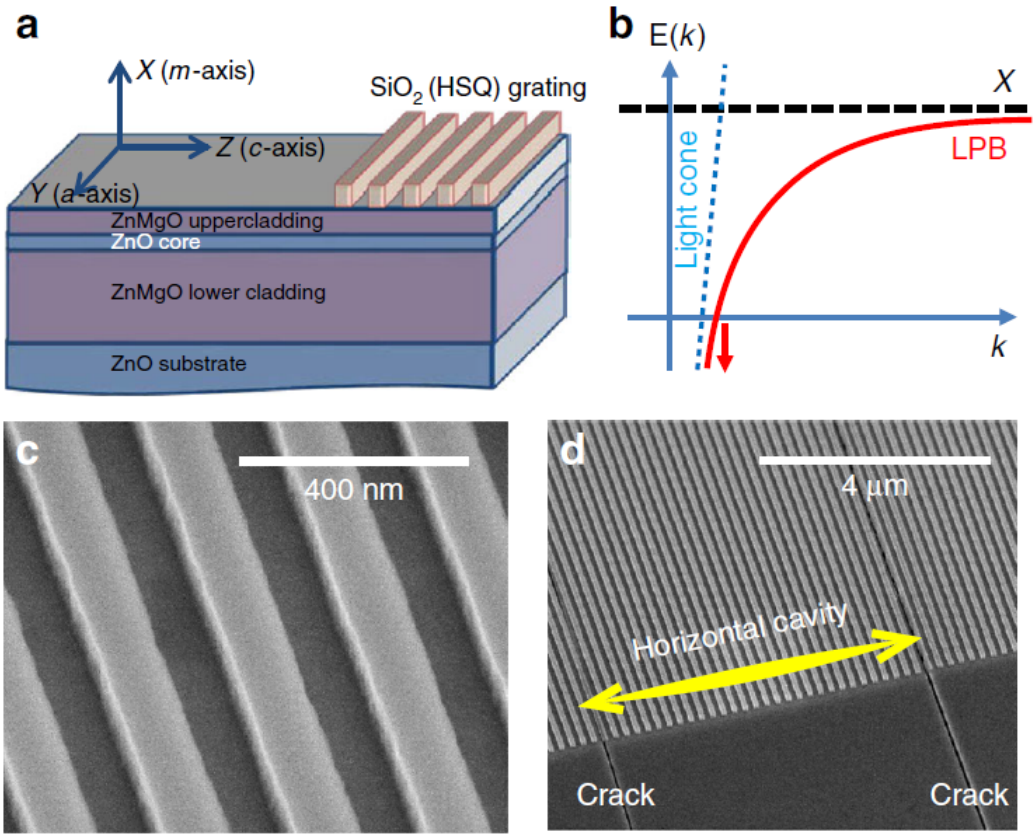

FIGURE 2.2 – (a) Schéma du guide massif ZnO 50 nm avec le réseau SiO_2. (b) Allure de la dispersion de la LPB (rouge), du mode guidé photonique (pointillé bleu) et des excitons (pointillé noir). Image MEB vue du dessus (c) avec un zoom sur le réseau, on voit la périodicité de 200 nm et (d) avec le réseau et deux fissures qui forment une petite cavité horizontale de 6 μm

.

une contrainte compressive sur le ZnO qui se traduit par un décalage des excitons vers les hautes énergies pouvant aller jusqu'à 10 meV.

Les oscillations observées sur les spectres de μPL correspondent aux répliques LO du ZnO et du ZnMgO. L'intensité de luminescence excitonique est 100 fois plus importante en polarisation perpendiculaire à l'axe c qu'en polarisation parallèle. Les mesures présentées par la suite seront réalisées sans polariseur.
La longueur d'onde de l'excitation continue, 325 nm soit 3814 meV, est inférieur au gap de ZnMgO (3890 meV). Dans cette configuration la majeure partie de la pompe est absorbée dans la zone active. Alors que si on utilise une source à 266 nm, l'excitation sera alors principalement absorbée dans le cladding supérieur de ZnMgO. Comme on peut le voir sur la figure 2.4, avec l'excitation à 266 nm, la luminescence de ZnMgO est 17 fois plus intense que celle de ZnO. A basse puissance la totalité de la pompe sera absorbée dans les 100 nm de ZnMgO. Une partie des porteurs pourra diffuser jusqu'à la zone active et une partie des photons émis par le ZnMgO participera au pompage du ZnO. A forte puissance, il est possible que l'on sature la densité d'états de ZnMgO à 266 nm (car la raie laser est très fine $\sim$ 12 μeV), dans ce cas alors on peut espérer pomper directement le ZnO. Il faut donc garder en tête que les seuils mesurés sur cette structure seront surestimés.

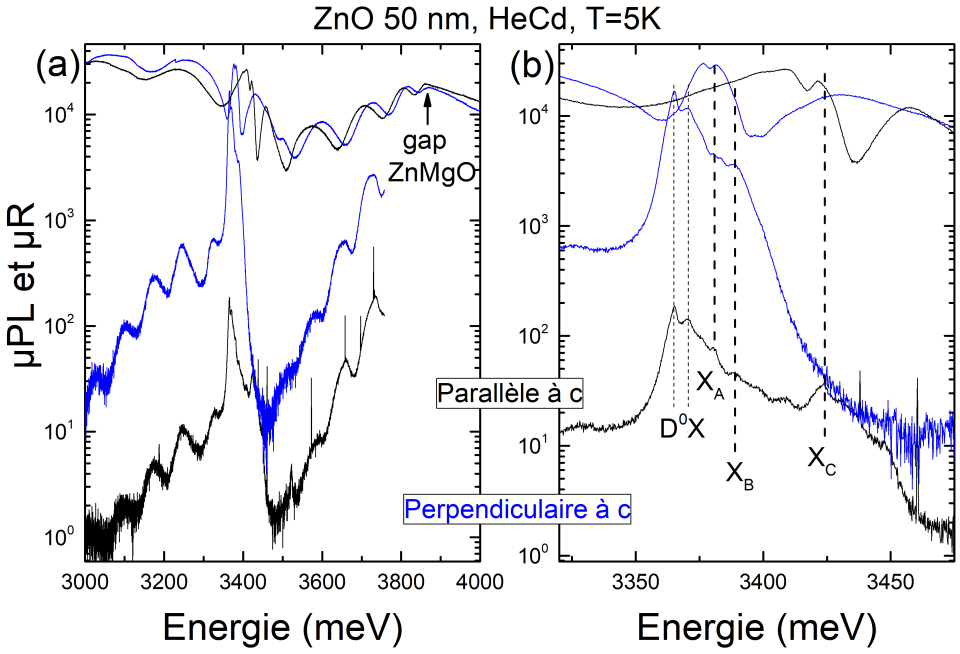

FIGURE 2.3 – (a) Mesures de photoluminescence sous excitation continue (HeCd) et réflectivité du guide ZnO 50 nm à 5 K en polarisations perpendiculaire et parallèle à c. (b) Zoom de (a) sur les transitions excitoniques.

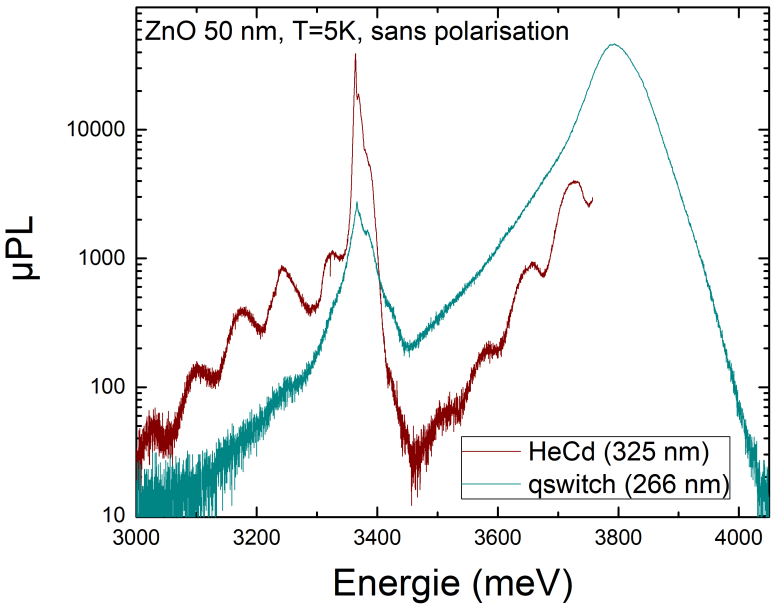

FIGURE 2.4 – Comparaison de la luminescence du guide ZnO 50 nm avec excitation continue à 325 nm et excitation quasi-continue à 266 nm.

2.2.2 Démonstration du couplage fort et effet laser

L'allure de la dispersion de la LPB est tracée sur la figure 2.2b. Il est important de noter ici que contrairement aux microcavités planaires, la LPB n'a pas d'état fondamental. Néanmoins les polaritons pourront relaxer et s'accumuler sur un état privilégié.
Afin de pouvoir extraire les modes guidés, des réseaux en SiO_2 ont été élaborés par lithographie électronique sur la surface de la structure (figure 2.2c et 2.2d).
Le désaccord de paramètre de maille entre ZnO et ZnMgO et la différence de leur coefficient de dilatation thermique conduit à la formation de fissures bien définies (figure 2.5a). Ces dernières années nos collègues du CRHEA ont beaucoup travaillé en utilisant des couches tampons ou des conditions de croissances adaptées pour fabriquer de belles couches sans fissures. Nous allons voir ici que dans le cas des guides polaritoniques, les fissures sont un atout. Elles forment des cavités horizontales (figure 2.2d) qui font office de résonateurs. Ces fissures régulièrement espacées (figure 2.5b) nous permettent d'avoir des cavités horizontales de 5 à 60 μm de longueur. Après avoir privilégié les études loin des fissures ces dernières années, on cherche maintenant les zones denses en fissures! Nous avons même planifié récemment, lors d'une réunion de projet, la fabrication d'une nouvelle série d'échantillons avec une plus forte densité de fissures.

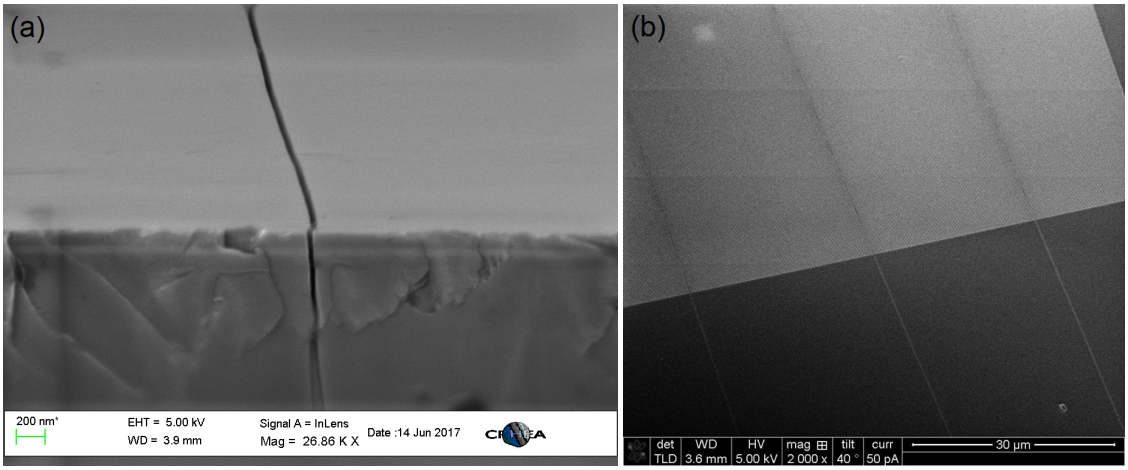

FIGURE 2.5 – (a) Image MEB vue de profil, on voit une fissure bien définie. (a) Image MEB vue du dessus, les fissures régulières forment des cavités horizontales.

.

Les fissures ont aussi un deuxième intérêt, elles offrent une porte de sortie aux modes guidés. En effet on peut observer très clairement les modes guidés en imagerie sans réseau (figure 2.6). En imagerie espace réel, les fissures s'allument de part et d'autre du spot d'excitation et celà jusqu'à une centaine de micromètre du spot. La mesure présentée figure 2.6 est réalisée sur une demi-cavité. La couche active de 130 μm est épitaxiée sur un miroir de Bragg de 30 paires de ZnO/ZnMgO [157]. Cet échantillon supporte des modes modes guidés qui ont un comportement identique au guide 50 nm présenté précédemment. Cependant les fissures semblent être plus larges pour la demi-cavité, l'extraction de lumière est meilleure ce qui permet de faire des images plus lisibles. Comme on va le voir, la signature spectrale mesurée dépend fortement de la zone observée. Sous le spot (spectre noir), la luminescence est dominée par l'émission du premier mode de Bragg à 3555 meV et D^0X à 3370 meV, on distingue aussi les excitons libres côté haute énergie. Si on regarde maintenant le signal qui provient des fissures, on remarque une émission centrée vers 3330−3340 meV qui correspond aux polaritons guidés. La puissance d'excitation est volontairement fixée à P_{th} pour observer aussi le peigne de modes laser. Ce motif est similaire sur les trois spectres, en effet le résonateur ici est la cavité horizontale de 28 μm celle qui encadre le spot. Donc quelque soit la fissure que l'on choisit pour observer le signal

(a, b ou c), l'émission spectrale des modes laser est identique mais son intensité dépend bien sûr de la distance. On voit aussi clairement l'influence de l'absorption sur les modes qui se propagent. Sous les excitons vers 3375 meV, l'absorption est importante, à 11 μm du spot (spectre rouge) on détecte toujours des polaritons guidés par contre le signal devient très faible à 68 μm (spectre vert) et nul à 94 μm (spectre bleu).

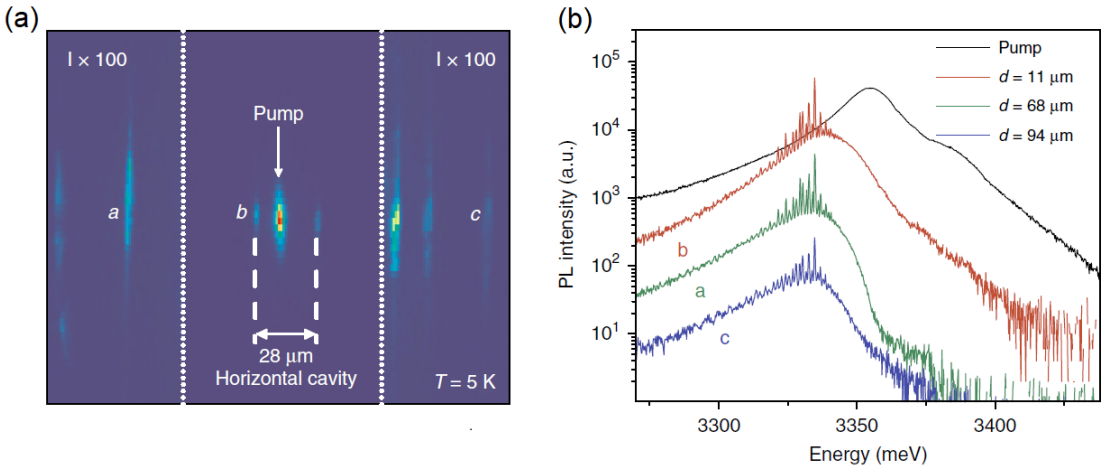

FIGURE 2.6 – (a) Image en espace réel 2D, le spot est placé dans la cavité horizontale de 28 μm. On distingue l'émission des polaritons guidés par les différentes fissures. (b) Spectres de μPL mesurés sous le spot, à 11, 68 et 94 μm du spot.

Les réseaux SiO_2 déposés sur le guide nous permettent de mesurer les dispersions polaritoniques en imageant le plan de Fourier à la sortie de l'objectif (figure 2.7). A 5 K et 0,1Pth, l'image est dominée par l'émission des excitons liés (D^0X) vers 3370 meV et on observe très clairement l'évolution de la LPB. Un modèle 2 × 2 est utilisé ici pour reproduire l'évolution de la LPB et ainsi déduire le dédoublement de Rabi. La pente du mode guidé nu est tout d'abord fixée à l'aide d'une dispersion à désaccord très négatif ou le mode polaritonique possède une fraction photonique supérieure à 90%. Ici nous avons choisi de prendre un mode photonique non dispersif c'est à dire avec un indice constant car il est difficile de connaitre avec précision l'indice sans la contribution excitonique. Néanmoins des calculs réalisés par Ciers et al. sur les guide GaN montre que l'évaluation Rabi est surestimée lorsqu'un indice constant est utilisé. Le Rabi estimé avec un indice dispersif est de ~37% plus faible [154]. Dans notre cas, le Rabi estimé avec un mode nu sans dispersion est 224 meV à 5 K. Geoffrey Kreider dans le cadre de sa thèse réalise actuellement des simulations avec un indice dispersif et la prise en compte de la structure réelle. Il trouve un Rabi de 154 meV soit une diminution de 31% en bon accord avec le travail de Ciers et al. [154].

Si on augmente l'intensité du pompage optique, on observe un seuil laser (figure 2.7c). Les polaritons se relaxent le long de la LPB jusqu'à un état privilégié qui se situe ici à 3345 meV (17°). La puissance moyenne au seuil est faible (1,2 W/cm^2), ce qui est confirmé par un faible blueshift (1 meV). A température ambiante, le Rabi estimé à 0,1 P_{pth} et le même qu'à 5 K. Cependant la puissance au seuil est plus élevée (15,8 W/cm^2), le Rabi baisse de 20% à cause de l'écrantage des forces d'oscillateur.

Il est important de noter ici que contrairement aux microcavités planaires, les guides ne comportent pas de miroir de Bragg, lors d'une mesure de photoluminescence on observe la réponse du cladding supérieur mais aussi celle de la zone active. A 5 K, à basse puissance on distingue très clairement l'émission des excitons liés et libres (figure 2.8). Comme on peut le pressentir, ces contributions sont toujours visibles au seuil laser ce qui confirme la présence des excitons à 1,65 W/cm^2, soit une puis-

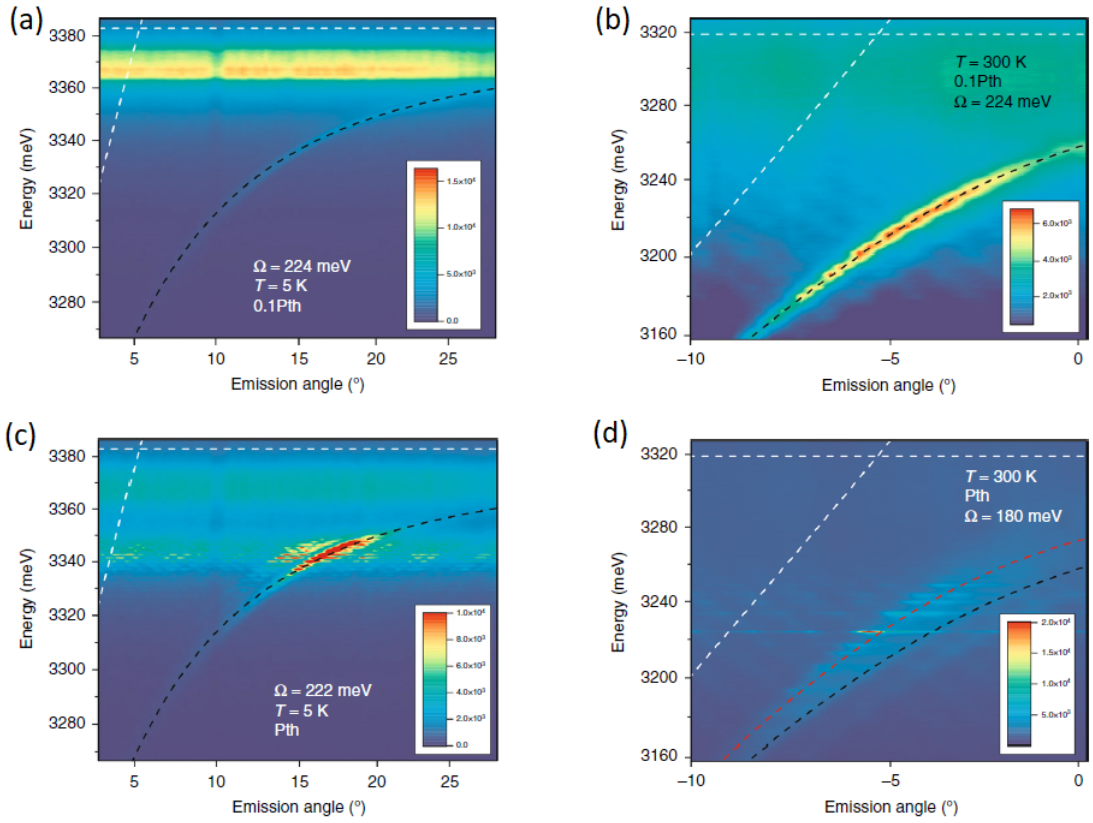

FIGURE 2.7 – Dispersion polaritonique du guide ZnO à 5 K et 300 K pour deux puissances d'excitation : 0,1 P_{pth} et P_{pth}

sance crête de 200 kW/cm^2. Légèrement sous le seuil on commence à détecter le peigne de modes dont la période dépend de la taille du résonateur. Le faible blueshift observé ici correspond à un début d'écrantage de la force d'oscillateur (figure 2.9).

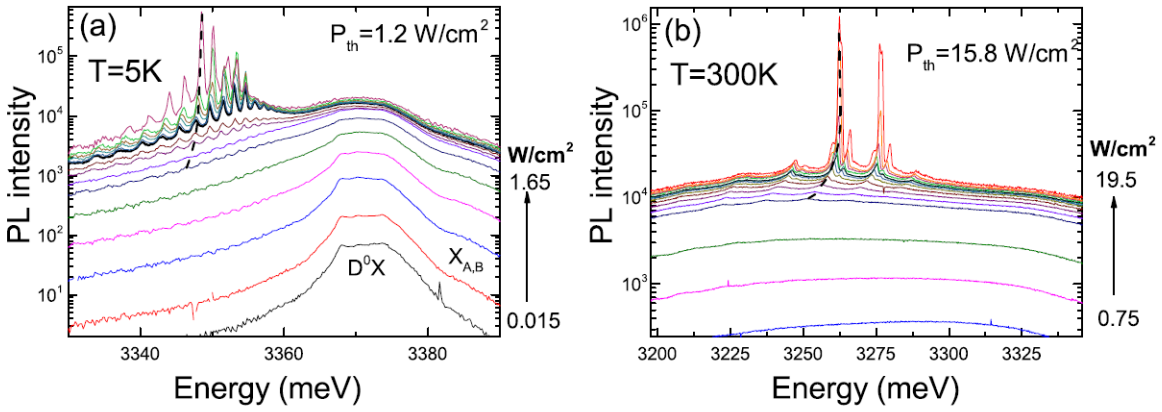

FIGURE 2.8 – Évolution des spectres en fonction de la puissance de (a) 0,015 à 1,65 W/cm^2 à 5 K et de (b) 0,75 à 19,5 W/cm^2 à 300 K sans résolution angulaire.

A température ambiante, il faut augmenter le pompage optique jusqu'à 15,8 W/cm^2 pour atteindre le seuil. Dans ce cas le blue shift devient significatif (>10 meV).

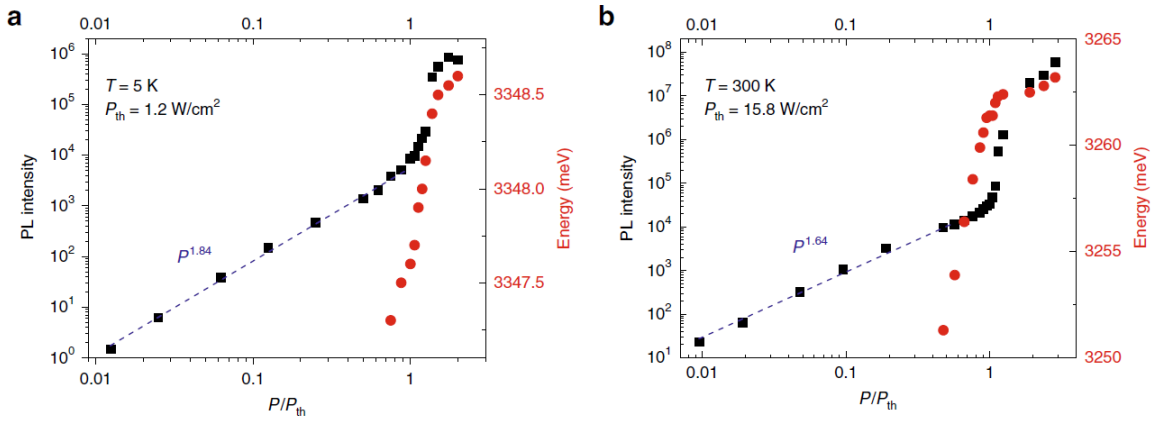

FIGURE 2.9 – Intensité maximum et blueshift des modes guidés en fonction de la puissance d'excitation mesurés la figure 2.8, (a) à 5 K et (b) à 300 K.

2.2.3 Temps de passage

Dans ces guides la taille du spot et la longueur de la cavité ont une influence sur le seuil (figure 2.10). Le seuil minimum est obtenu lorsque le diamètre du spot d'excitation correspond à la longueur de la cavité.

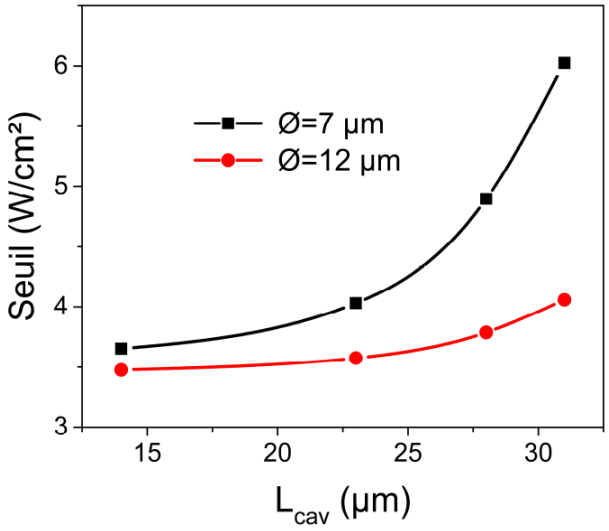

FIGURE 2.10 – Dépendance du seuil laser des polaritons guidés en fonction de la longueur de la cavité pour deux diamètres de spot : 7 et 12 μm.

Lors de l'injection optique, des paires électrons–trous créés à haute énergie relaxent vers le réservoir excitonique. Nous avons donc un réservoir excitonique sous le spot d'excitation. Dans une microcavité planaire (configuration verticale) l'émission laser prend naissance généralement sous le spot et le seuil laser dépend du temps de vie des photons dans la cavité. Les photons peuvent faire une centaine d'allers et retours dans la zone active et interagir fortement avec les excitons.
Dans les guides (configuration horizontale), c'est différent on ne va pas s'intéresser au temps de vie des photons mais au temps durant lequel les polaritons vont se propager sous le spot : le temps de

passage τ_p (figure 2.11). On va donc chercher à optimiser τ_p pour obtenir le seuil optimal. Pour cela nous avons intérêt à augmenter la taille du spot ou à diminuer la longueur de la cavité comme on peut le voir sur la figure 2.10.

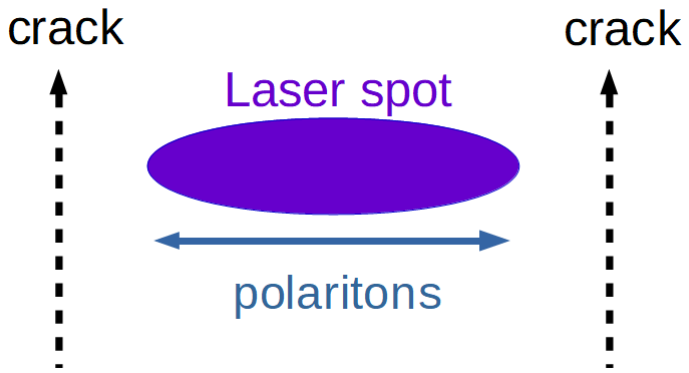

FIGURE 2.11 – Dessin d'une cavité horizontale délimitée par deux fissures. La flèche bleue symbolise le passage des polaritons sous le spot ce qui correspond au temps de passage (τ_p).

Pour calculer le temps de passage nous avons besoin de la vitesse de groupe des polaritons. Cette dernière, qui s'obtient à partir de la dérivée de la dispersion polaritonique, est tracée sur la figure 2.12. Le temps de passage est ensuite estimé en considérant un spot d'un diamètre de 20 μm.

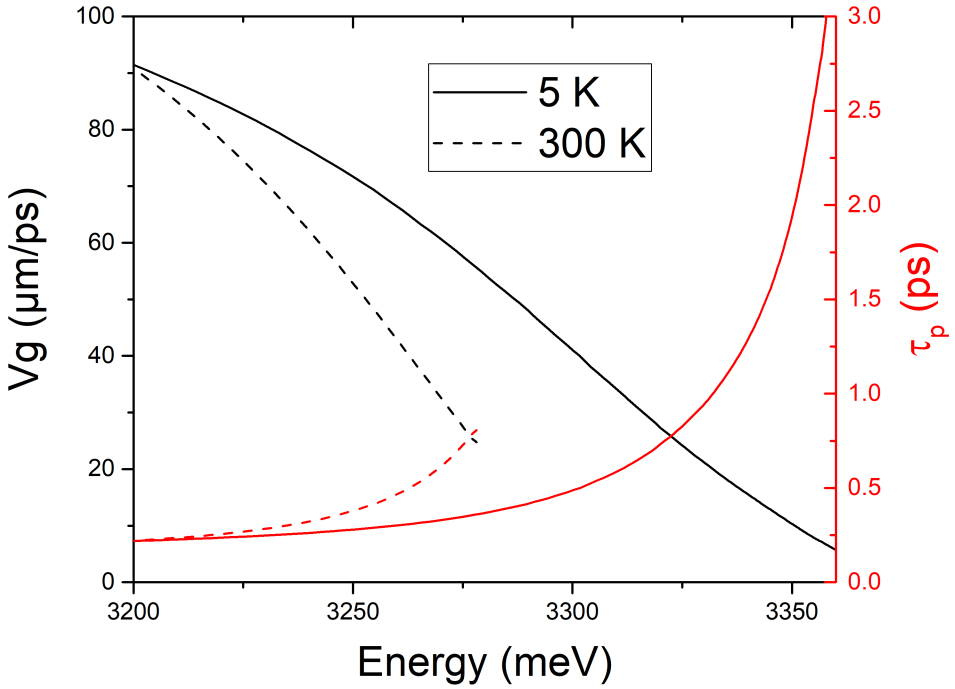

FIGURE 2.12 – Vitesse de groupe des polaritons guidés en fonction de l'énergie à 5 et 300 K. Le temps de passage est estimé en considérant un spot de 20 μm.

Les paramètres concernant le laser à polaritons guidés à 5 et 300 K sont présentés dans le tableau 2.1. A basse température la fraction excitonique de l'état privilégié est importante (90%), la vitesse de

groupe des polaritons est 13 $\mu m/ps$, ce qui correspond à un temps de passage de 1,5 ps. A température ambiante la situation est bien différente, la part photonique plus importante entraine une vitesse de groupe de 60 $\mu m/ps$, soit un τ_p de 0,33 ps.

	5 K	300 K
Fraction excitonique (%)	90	50−60
Vg ($\mu m/ps$)	13	60
τ_p (ps)	1,5	0,33
P_{th} (W/cm^2)	1,2	15,8

TABLE 2.1 – Fraction excitonique, vitesse de groupe, temps de passage et puissance au seuil pour les polaritons guidés à 5 et 300 K dans le guide ZnO 50 nm.

L'évolution du seuil optimal du laser à polaritons guidés (configuration horizontale) est comparée à celui de la microcavité planaire (configuration verticale) étudiée dans le chapitre 1 sur la figure 2.13. Bien que les structures soient complètement différentes les valeurs des seuils mesurés sont proches. Le temps de vie du photon dans la microcavité de ~0,4 ps est proche du temps de passage à température ambiante mais plus faible que celui à 5 K. Cela explique pourquoi à basse température le laser à polaritons horizontal possède un seuil plus faible et que ces seuils soient comparables à température ambiante.

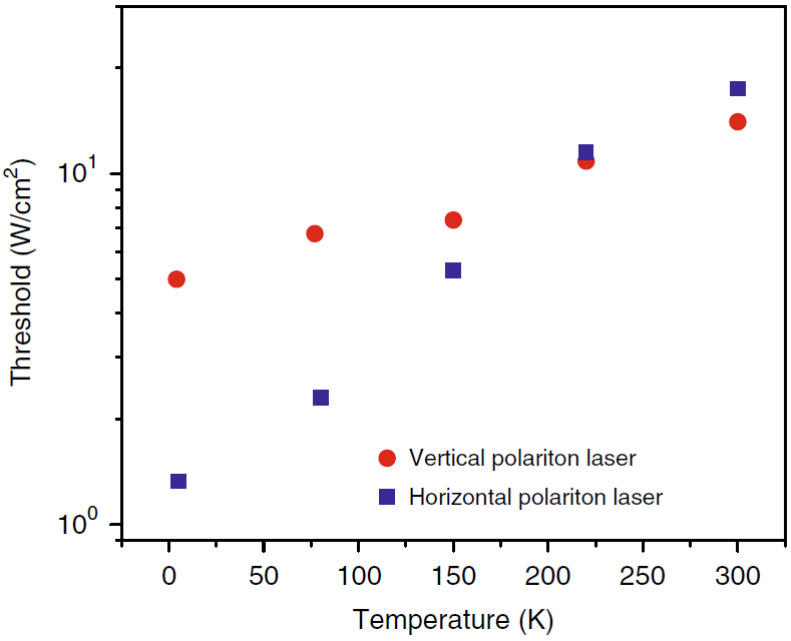

FIGURE 2.13 – Comparaison de l'évolution du seuil laser à polaritons optimal dans une configuration horizontale (guide ZnO 50 nm) et une configuration verticale (cavité ZnO étudiée dans le chapitre 1).

2.2.4 Interférences

Si on réalise des mesures d'imagerie d'une cavité horizontale pour une puissance supérieure au seuil, on observe alors de jolies franges d'interférence (figure 2.14). Dans cette zone hors réseau, la lumière

guidée est extraite uniquement par les fissures qui forment la cavité (figure 2.14a). Le spot est placé au centre d'une cavité horizontale de 20 μm. En observant les images en espace réel 2D et 1D (figures 2.14a et b), on distingue clairement l'émission du réservoir excitonique sous le spot ainsi que l'émission des polaritons guidés qui provient des fissures. Sur la figure 2.14c, la mesure en imagerie de Fourier dévoile de belles franges d'interférence. Ces interférences, qui proviennent d'une même source cohérente filtrée par deux fissures, prouvent la nature cohérente de la source. Il est ainsi possible d'estimer la longueur de la cavité grâce à la distance entre les franges lumineuses (interfrange). Dans notre cas l'interfrange correspond à 4 pixels sur le détecteur, en utilisant la distance focale de l'objectif et en tenant compte du grandissement du plan de Fourier vu sur la caméra CCD, on trouve une longueur de cavité de 19,8 μm. Cette valeur est en très bon accord avec la distance entre les deux fissures mesurée sur la figure 2.14a.

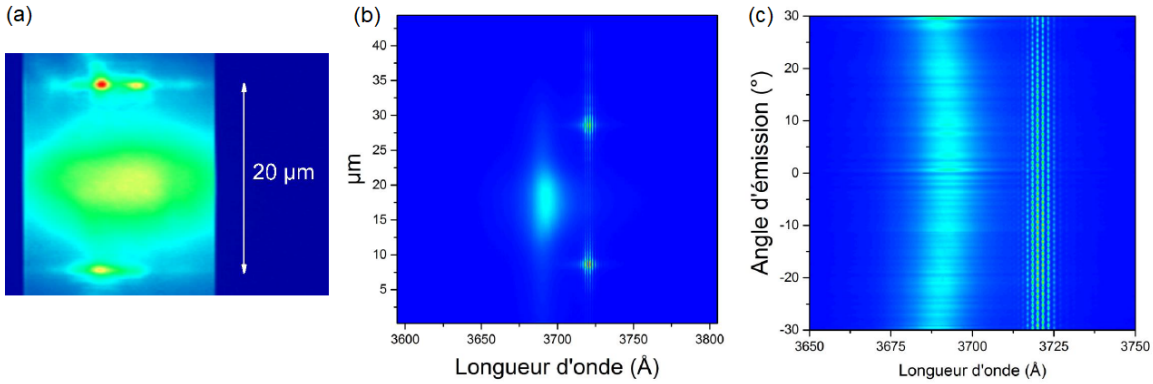

FIGURE 2.14 – (a) Image en espace réel 2D, on distingue le spot placé au centre d'une cavité horizontale de 20 μm. (b) Image en espace réel 1D et (c) imagerie de Fourier du même point à 5 K sur le guide ZnO 50 nm pour une puissance supérieure au seuil.

Les mesures de dispersion sur les réseaux nous ont permis de confirmer la nature polaritonique des modes guidés (figure 2.7). Malgré l'absence d'état fondamental, au seuil les polaritons s'accumulent dans un état privilégié. Si on continue d'augmenter l'intensité du pompage optique, on va alors augmenter les interactions polaritons−polaritons. Ces derniers vont alors pouvoir se relaxer vers des états de plus basse énergie comme on peut le voir sur la figure 2.15.

Avec ce système, on peut facilement augmenter l'intensité du pompage optique jusqu'à 20P_{th} (soit $P_{crete} = 5,8\ MW/cm^2$) tout en observant des polaritons sur la LPB. Cela signifie que malgré cette densité de pompage très élevée, le régime de couplage fort est préservé.
Une vidéo des mesures présentées sur la figure 2.15 est accessible sur le site internet de l'éditeur chez lequel ces résultats ont été publiés (dans la partie "electronic supplementary material" : `https://www.nature.com/articles/s41377-018-0084-z`).

Lorsque l'on réalise des mesures de la dispersion polaritonique comme c'est le cas sur les figures 2.7 et 2.15, on collecte alors les polaritons guidés qui sont extraits par le réseau mais aussi ceux extraits par les fissures. On observe alors la dispersion des polaritons, l'accumulation des polaritons sur l'état privilégié ainsi que les interférences. Pour s'affranchir de l'émission provenant des fissures, on peut réaliser un filtrage spatial et ne collecter que le signal extrait par le réseau. La figure 2.16 présente des mesures de la dispersion polaritonique à température ambiante à 0,5P_{th} et P_{th}. Au seuil on distingue clairement le peigne de modes sans présence de signal hors dispersion grâce au filtre.

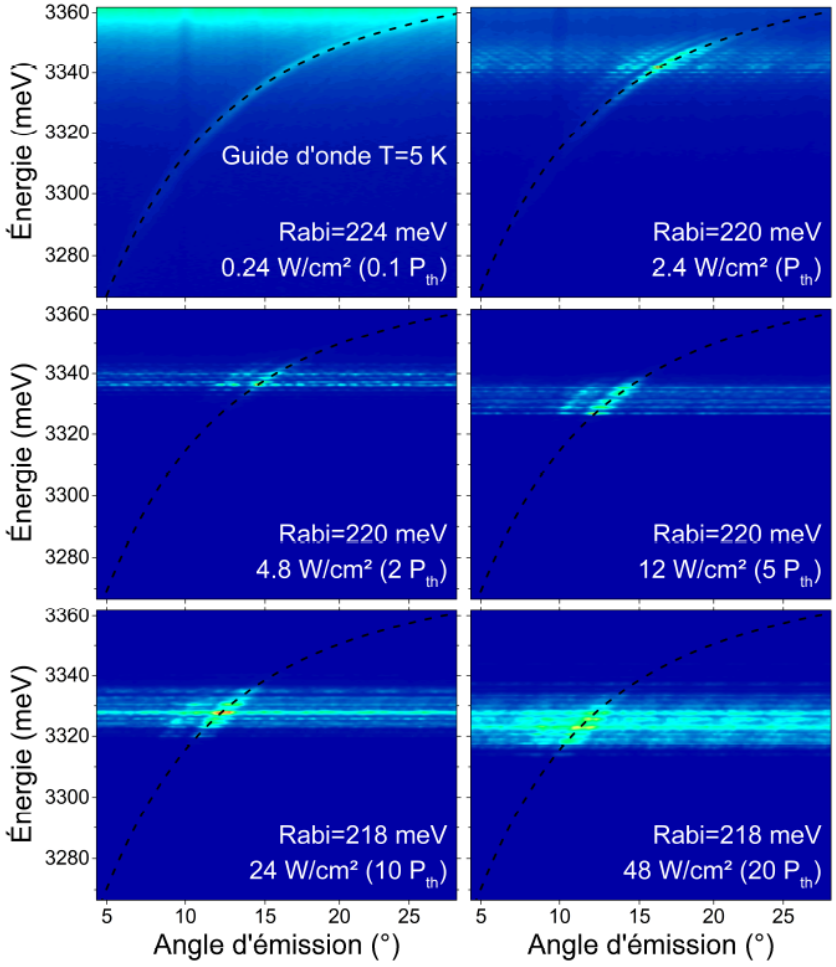

FIGURE 2.15 – Imagerie de Fourier du guide ZnO 50 nm à 5 K pour une puissance d'excitation de 0,1 à 20P_{th}.

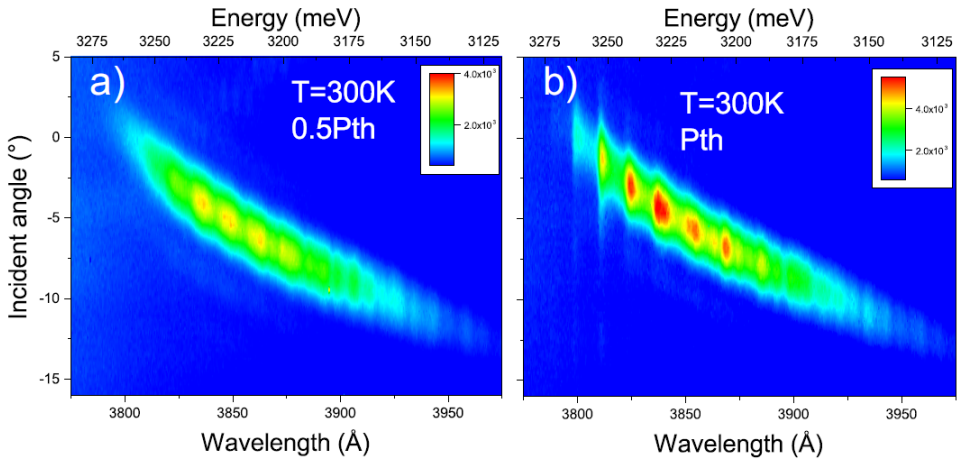

FIGURE 2.16 – Imagerie de Fourier du guide ZnO 50 nm à température ambiante à 0,5P_{th} et P_{th} avec un filtrage spatial pour s'affranchir du signal provenant des fissures.

2.2.5 Longueur d'atténuation

Contrairement à une microcavité planaire, ici il n'est pas possible de mesurer directement le temps de vie des photons. Cependant on peut estimer la longueur d'atténuation des polaritons guidés et diviser cette valeur par la vitesse de groupe pour avoir accès aux temps de vie polaritonique. La distance de propagation des polaritons dépend de l'absorption de la zone active. Le coefficient d'absorption de cette dernière est très élevé au voisinage de l'énergie excitonique puis diminue pour les énergies inférieures.
Dans notre cas, nous avons rencontré beaucoup de difficultés pour estimer proprement ces longueurs d'atténuation. Sous excitation non résonante (à 266 nm ou 325 nm), il n'est pas simple de distinguer les polaritons guidés de la luminescence de la zone active particulièrement lorsque celle-ci est guidée dans le cladding supérieur puis extraite par une fissure quelques dizaines de microns plus loin. C'est finalement les mesures résonantes qui nous ont donné les résultats les plus fiables (figure 2.17). Pour cela nous avons pompé optiquement une cavité horizontale au-delà du seuil et mesuré l'intensité du signal cohérent issu des fissures placées à différentes distances de la source (spot). Malheureusement la zone sondée avec cette méthode est très restreinte (~35 meV) et la fraction photonique des polaritons est faible. On n'a donc pas accès au temps de vie du photon guidé comme dans le cas des systèmes GaAs et GaN (tableau 2.2), on sait simplement qu'il est inférieur à 0,6 ps.

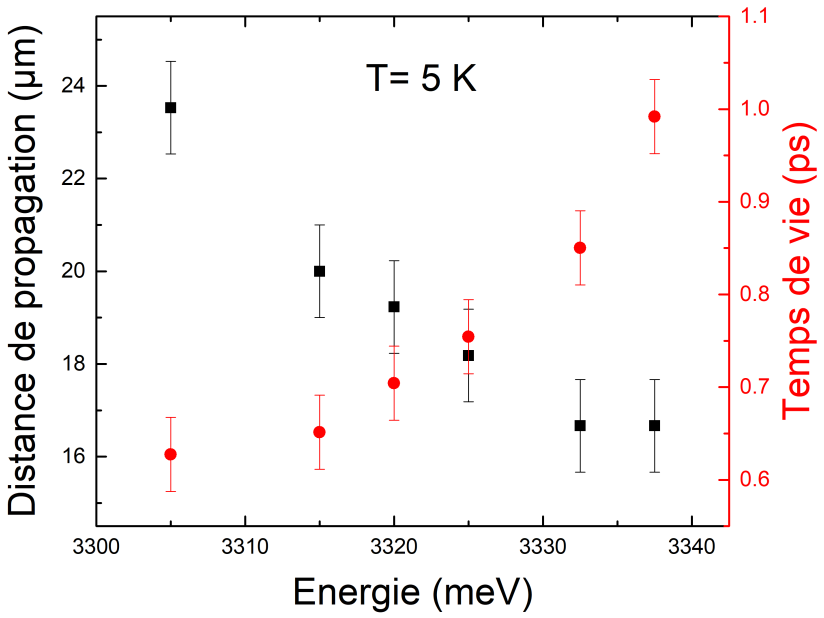

FIGURE 2.17 – (a) Longueurs d'atténuation des modes guidés polaritoniques mesurées dans le guide ZnO 50 nm à 5 K et le temps de vie polaritonique estimé à 5 K.

	GaAs [153]	GaN [154]	ZnO
Fraction photonique (%)	93	95	28
Absorption (cm^{-1})	24	100	425
Longueur de propagation (μm)	410	100	23,5
Temps de vie (ps)	8,5	1	0,63

TABLE 2.2 – Comparaisons de la fraction photonique, l'absorption, la longueur de propagation et du temps de vie des polaritons guidés avec comme zone active GaAs, GaN et ZnO à 10 K.

2.2.6 Résonateur

Dans les microcavités planaires, la zone active est fine, il est important que les photons fassent le plus grand nombre d'allers et retours pour interagir avec les excitons. Pour la microcavité ZnO présentée dans le chapitre 1, en 0,4 ps, les photons font 90 allers-retours soit une distance de 52,2 µm.
Dans les guides la longueur des cavités horizontales est grande, typiquement 100 fois plus que pour les microcavités planaires. Mais alors quelle est l'importance du résonateur?
Sans résonateur ou si la longueur de cavité est supérieure à 60 μm il n'est plus possible d'atteindre le seuil. De plus, nous avons vu sur la figure 2.10 la dépendance du seuil en fonction de la longueur de la cavité. L'expérience montre que ces fissures s'avèrent essentielles pour l'observation de l'effet laser, mais quelle est leur coefficient de réflexion?
L'indice de ZnO hors résonance est de 2,3. Un mode guidé dans ZnO voit une face clivée comme un mauvais miroir de réflectivité égale à 15,5%. Par contre si maintenant on considère une lame d'air pris en sandwich dans du ZnO (une fissure), il va exister des interférences qui vont faire varier fortement la réflectivité. Le calcul de la réflectivité vue de ZnO pour différentes épaisseurs de fissure est présenté sur la figure 2.18a. Lorsque l'épaisseur d'air correspond à un multiple de $\lambda/4$ (93 nm, 280 nm, ...) la réflectivité peut atteindre 46% vers 3300 meV. Par contre cette dernière peut s'annuler pour des épaisseurs correspondant à un multiple de $\lambda/2$ (186 nm, 372 nm, ...).

Au voisinage des transitions excitoniques l'indice varie fortement. A 5 K, à l'énergie des modes laser se situe 25 meV sous l'exciton A, l'indice de la zone active est supérieur à 2,3 et la dépendance sur la réflectivité n'est pas négligeable (voir figure 2.18b). A 3350 meV, l'indice de la zone active peut atteindre 2,72 soit une réflectivité de 58%. A température ambiante, à 3240 meV l'indice est de 2,45, on a alors 51%.
Les images MEB indiquent qu'il y a deux distributions de fissures : une série de 50−60 nm d'épaisseur et une autre de 150−200 nm (figure 2.19).
Avec les fissures fines (50−60 nm), on peut espérer avoir des coefficients de réflexion de 38 à 50%, alors qu'avec les fissures plus épaisses on aura entre 2 et 30%. Il est possible que l'épaisseur des fissures varie avec la température. Pour résumer, les calculs montrent que dans le meilleur des cas, un polaritons sur deux peut revenir sous le spot.

2.2.7 Influence du cladding supérieur

Pour ce guide, il est difficile d'estimer la densité de porteurs car le laser d'excitation est principalement absorbé dans le cladding supérieur (100 nm de ZnMgO). Des mesures complémentaires sont nécessaires pour estimer précisément à quelle puissance d'excitation on commence à blanchir la couche de ZnMgO et quelle part des porteurs créés dans le cladding supérieur va diffuser vers la zone active.

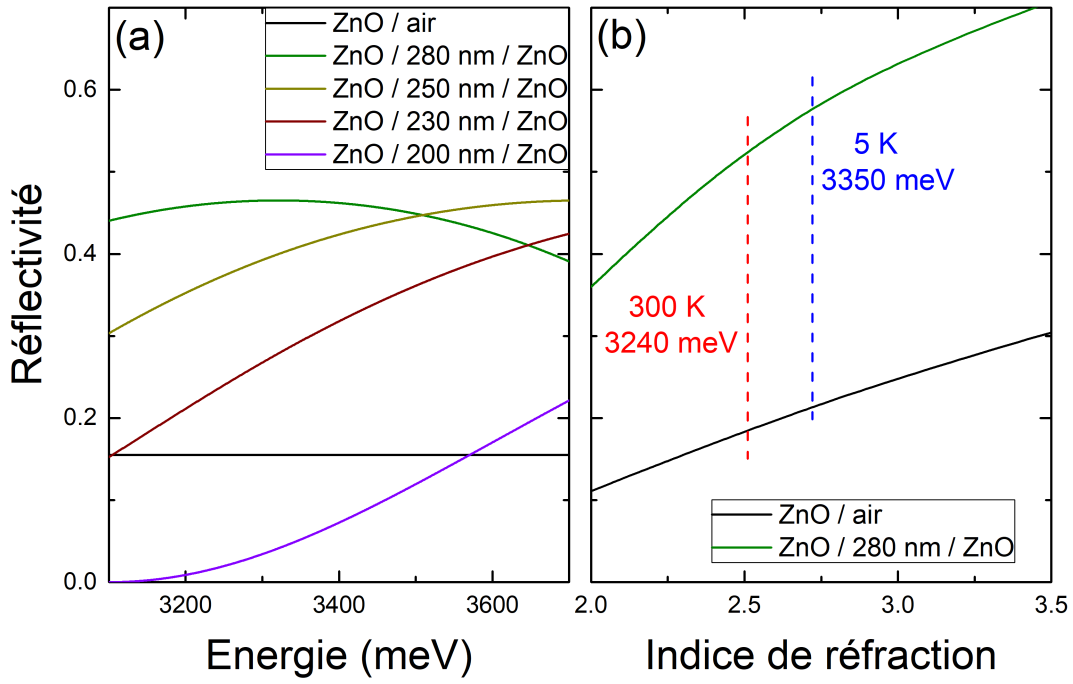

FIGURE 2.18 – (a) Calcul de la réflectivité vue de ZnO d'une interface ZnO-air puis avec des fissures d'épaisseur 200, 230, 250 et 280 nm. (b) Calcul de la réflectivité vue de ZnO à 3300 meV en fonction de l'indice de ZnO.

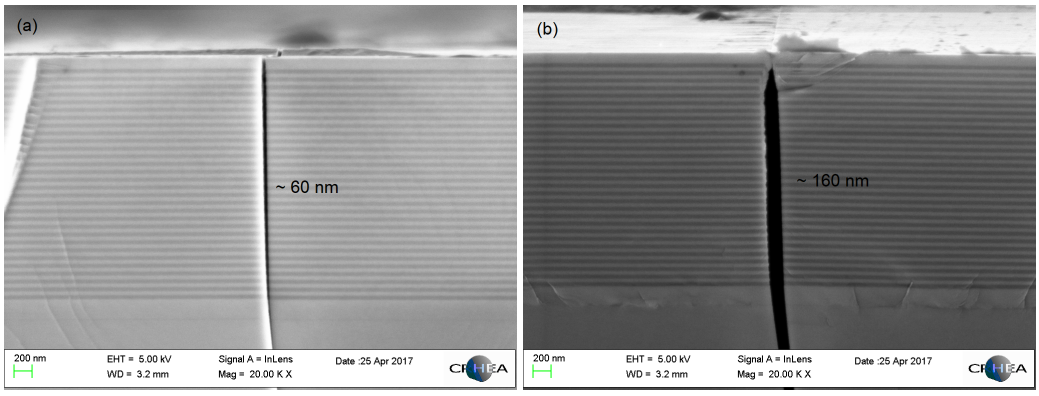

FIGURE 2.19 – Images MEB de fissures d'épaisseur (a) 60 nm et (b) 150 nm.

Cependant si on s'intéresse aux seuils laser d'un guide similaire mais avec un cladding supérieur deux fois moins épais (50 nm), on observe une diminution d'un facteur 10 alors que l'absorption du cladding supérieur est seulement divisée par 1,6.
La mesure présentée sur la figure 2.20 montre l'évolution des spectres de μPL sur le guide ZnO avec un cladding supérieur de 50 nm à 5 K. La détection est volontairement réglée pour observer l'émission sous le spot mais comme la cavité choisie est petite (15 μm), on observe aussi l'émission provenant des fissures. On peut donc observer ici très clairement le seuil laser des polaritons guidés tout en conservant la signature spectrale des excitons. Sur ce même échantillon nous avons pu observer des seuils laser très bas jusqu'à 0,1 W/cm^2 en puissance moyenne (soit une puissance crête

de 12 kW/cm^2). Cela représente une amélioration d'un facteur 50 par rapport à la microcavité ZnO présentée dans le chapitre 1. Des mesures complémentaires sont nécessaires pour expliquer quantitativement cette forte diminution du seuil.

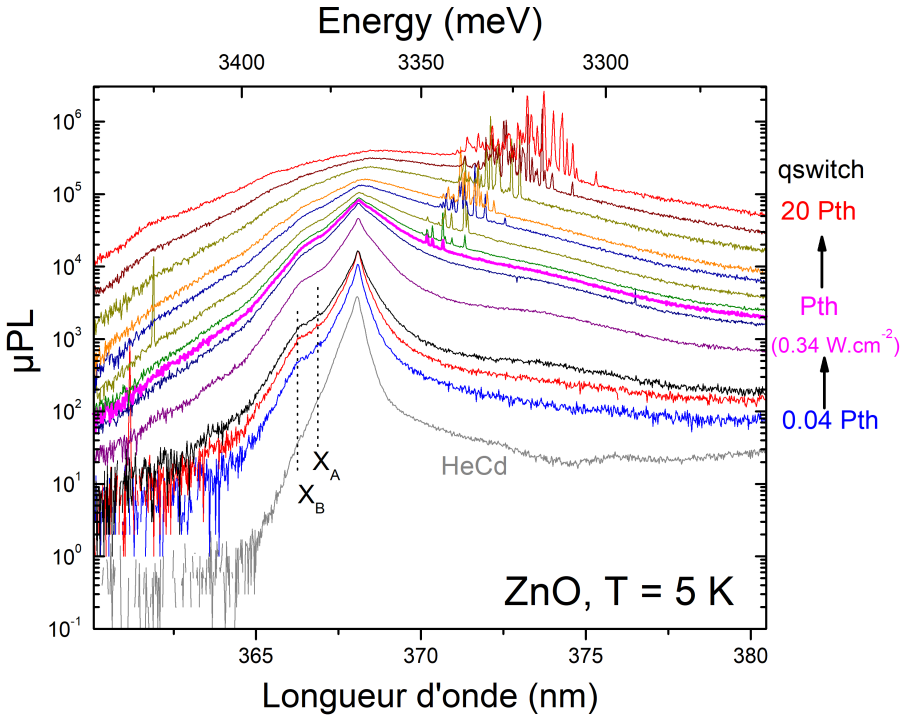

FIGURE 2.20 – μPL en puissance à 5 K sur un guide ZnO 50 nm avec un cladding supérieur de 50 nm, la cavité fait 15 μm et le spot 10 μm.

2.2.8 Et avec GaN ?

ZnO est moins sensible à la contrainte que GaN. Dans le cas du guide étudié ici, la couche de ZnO de 50 nm est relaxée. Cependant, au voisinage des fissures le ZnMgO du cladding inférieur subit une contrainte en tension (suivant l'axe c) de la part du substrat et impose une contrainte en compression à la zone active. Expérimentalement, on observe un décalage de l'énergie excitonique d'environ 10 meV vers les hautes énergies lorsque l'on se déplace du centre de la cavité jusqu'à une fissure. C'est une configuration favorable pour les cavités horizontales car les polaritons qui se propagent vers une fissure rencontrent une zone active très légèrement moins absorbante que le centre du résonateur.
La situation est inverse pour GaN, il faut atteindre une épaisseur d'au moins 500 nm pour obtenir une couche relaxée sur silicium avec une couche tampon d'AlN. Le paramètre de maille de GaN est plus grand que celui de l'Al(Ga)N, la zone active est donc contrainte en compression. Cela se manifeste par un décalage des excitons vers les hautes énergies. La figure 2.21a présente des mesures de l'énergie de l'exciton A à 5 K pour différentes épaisseurs de zone guidante.
Pour le cas extrême (100 nm), l'exciton A se trouve à 3527 meV soit un décalage de 49 meV vers les hautes énergies par rapport au GaN non contraint. Cela correspond à une contrainte en compression de de la zone active de 30 kbars. Il est important de noter ici qu'à l'approche d'une fissure la couche se relaxe complètement comme on peut le voir sur la figure 2.21b. Cette situation est rédhibitoire pour la réalisation d'un laser horizontal. En effet, les polaritons guidés créés au centre d'une cavité sont absorbés avant d'arriver sur la fissure. Il y a ici une contradiction, car on cherche à augmenter

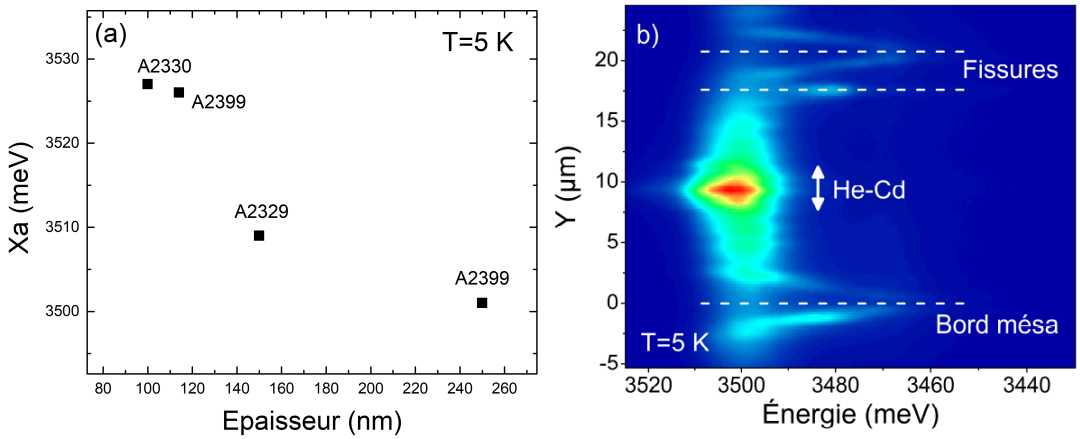

FIGURE 2.21 – (a) Évolution de l'énergie de l'exciton A à 5 K en fonction de l'épaisseur de GaN. (b) μPL en espace réel 1D à 5 K, on observe la relaxation de la zone active au voisinage des fissures. Cette mesure est réalisée sur une mesa de la microcavité GaN étudiée dans le chapitre 1. Le comportement observé sur les guides GaN est identique.

la contrainte pour obtenir une densité de fissures élevée et paradoxalement il nous faut une zone active la moins contrainte possible pour conserver les polaritons guidés aux abords des fissures. La solution idéale serait de pouvoir obtenir une zone active contrainte en tension au centre de la cavité car l'énergie des excitons serait plus élevée au voisinage des fissures. Une autre piste est de choisir une zone active épaisse (>250 nm) et de fabriquer les cavités par gravure par faisceau d'ions focalisés (FIB).

2.3 Amplification

L'amplification polaritonique dans un guide d'onde ZnO a été proposée par Solnyshkov et al. très récemment [148]. Nous avons vu précédemment qu'il est possible de créer une source cohérente polaritonique dans une cavité horizontale définie par deux fissures. Les polaritons se propagent ensuite dans la couche guidante. Nous allons voir qu'il est possible d'amplifier ces polaritons simplement en plaçant un réservoir excitonique sur leur chemin. Pour cela, nous avons réalisé une expérience de µPL avec deux spots d'excitation séparés spatialement. Le premier spot (laser pump) est placé dans une cavité horizontale de 28 μm (figure 2.22a). La puissance d'excitation est choisie juste au-dessus du seuil (1,5P$_{th}$), c'est pourquoi on observe du signal provenant des fissures qui définissent la cavité (figure 2.22a). Cette dernière est appelé "lasing cavity".

Le second spot (reservoir pump) est placé à 60 μm du premier spot dans une cavité plus longue (63 μm). Nous avons volontairement choisi une longue cavité car il faut pouvoir augmenter la puissance du spot réservoir sans atteindre le seuil.
Les figures 2.22a, b et c sont des mesures réalisées en espace réel dans une zone où les longueurs de cavités sont courtes pour illustrer et expliquer plus facilement l'expérience. La mesure présentée sur la figure 2.22d a été effectuée dans une zone voisine où les cavités laser et réservoir mesurent 28 et 63 μm, et avec 60 μm d'écart entre les deux spots.
Le signal est mesuré sur la première fissure à droite du second spot (figure 2.22c). Lorsque seulement le premier spot est allumé, le spectre noir est enregistré (figure 2.22d). On observe le peigne de modes lasers qui correspond aux polaritons cohérents provenant de la cavité laser qui se sont propagés sur quelques dizaines de microns. Si seulement le second spot est allumé on détecte les polaritons guidés alimenté par le spot réservoir (spectre bleu). Dès que les deux spots sont actifs, les

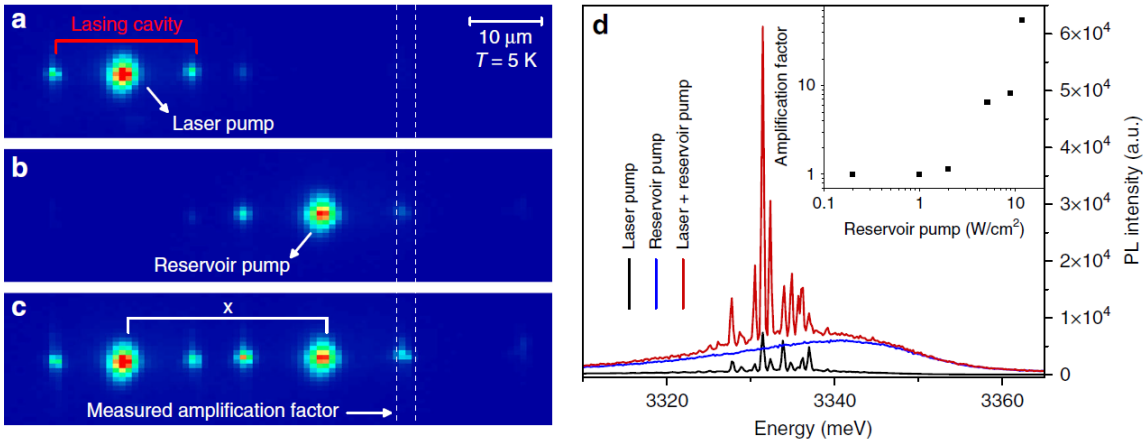

FIGURE 2.22 – Imagerie en espace réel 2D à 5 K de (a) la cavité laser avec le spot de pompe placé à son centre et de (b) la deuxième cavité où le spot réservoir est positionné en son centre. (c) Même image que (a) mais avec les deux spots actifs en même temps. Les pointillés encadrent la fissure sur laquelle la détection est placée. (d) Spectres de photoluminescence mesurés dans les trois configurations, c'est-à-dire uniquement avec la pompe laser (spectre noir), uniquement avec la pompe réservoir (spectre bleu) et avec les deux pompes (spectre rouge). L'insert correspond à l'évolution du facteur d'amplification en fonction de l'intensité de la pompe réservoir.

polaritons cohérents créés dans la cavité laser sont amplifiés lors de leur passage sous le spot réservoir (spectre rouge). Le facteur d'amplification est contrôlé par l'intensité de puissance du spot réservoir, il correspond au ratio du spectre rouge sur le spectre noir, ce ratio peut atteindre 55. On observe une amplification au-delà de 2 W/cm^2. Pour les puissances inférieures à ce seuil, le temps de relaxation des polaritons est inférieur au temps de passage des polaritons sous le spot dans ce cas il n'y a pas d'amplification. Le temps de relaxation des polaritons de la cavité réservoir est le paramètre clé qui gouverne l'amplification.
Ce fonctionnement peut aussi être vu comme un transistor optique où le signal est transmis de la source (la cavité laser) jusqu'au drain (la fissure). Le signal est contrôlé par la grille/gate (le réservoir).

Pour conclure, nous avons mis en évidence la nature polaritonique des modes guidés par des mesures de μPL dans le plan de Fourier. Il est possible d'accumuler des polaritons dans un état privilégié et d'obtenir un laser à très faible seuil. Par rapport aux microcavités planaires, la configuration guide d'onde possède de nombreux avantages, elle est simple à réaliser, les polaritons peuvent se propager rapidement sur plusieurs micromètres, nous avons obtenu un seuil 50 fois plus faible et il est possible de réaliser un transistor optique. De plus, ce n'est que le début des études sur les polaritons guidés, nous espérons atteindre des seuils encore plus bas en confinant les polaritons dans une seule direction (gravure de ridges) et en améliorant le design de la structure.

Chapitre 3

Compétition entre modes polaritoniques horizontaux et verticaux

Sommaire

3.1 Les deux lasers avec un seuil similaire 74
3.2 Le laser horizontal seul 77
3.3 Le laser vertical seul 80

Jusqu'ici nous avons observé l'effet laser à polaritons grâce à un confinement vertical dans des cavités planaires, et avec un confinement horizontal dans des guides d'onde. Nous allons maintenant voir qu'il est possible de confiner des polaritons suivant les directions verticale et horizontale au sein d'une même structure [158]. Avec un pompage optique, nous pouvons créer un réservoir excitonique qui permettra d'alimenter le mode fondamental de la cavité mais aussi les modes guidés (figure 3.1).

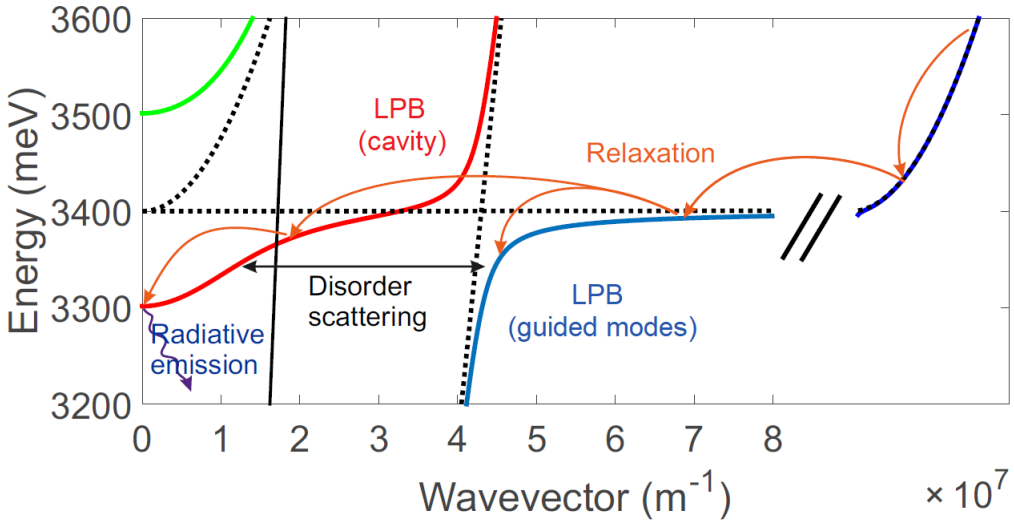

FIGURE 3.1 – Schéma de principe de la relaxation des polaritons du réservoir excitonique vers l'état fondamental des polaritons de cavité et vers l'état privilégié des polaritons guidés.

Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, grâce au gradient d'épaisseur sur la zone active il est facile de contrôler la fraction excitonique du polariton et donc le seuil du laser vertical (figure 3.2). Le seuil du laser horizontal est quant à lui ajustable en fonction de la taille du spot et de la longueur

de la cavité. Dans cette partie nous allons montrer la compétition entre le laser vertical et le laser horizontal dans les 3 cas de figure suivants : les 2 lasers avec un seuil similaire, uniquement le laser horizontal et uniquement le laser vertical. Pour cela nous avons choisi trois désaccords −96, −22 et +54 meV indiqués par des flèches vertes sur la figure 3.2. La compétition entre les modes horizontaux et verticaux existe à température ambiante mais la largeur spectrale rend difficiles les analyses. Afin de montrer clairement les effets, nous avons choisi ici de réaliser toutes les mesures à 5 K.

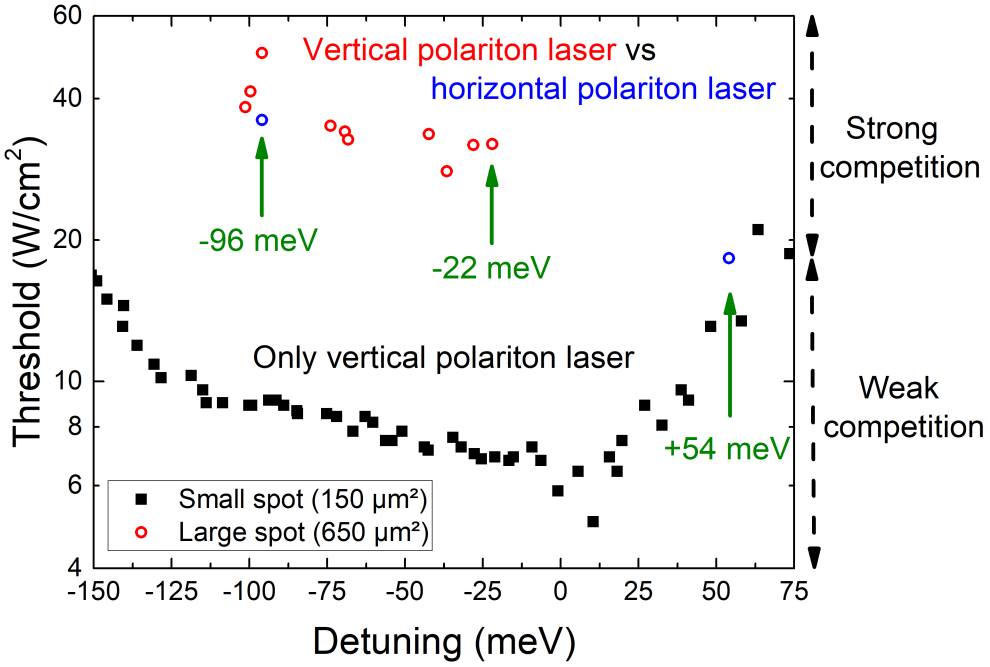

FIGURE 3.2 – Évolution du seuil laser à polaritons vertical à 10 K mesuré avec le spot optimal (150 μm^2, carrés noirs) et avec un spot large (650 μm^2, cercles rouges). Les deux seuils du laser horizontal mesurés ici sont représentés à l'aide d'un cercle bleu.

La microcavité ZnO étudiée dans le chapitre 1 dans la partie 1.3.2 est une structure idéale pour mettre en évidence cette compétition car elle possède un facteur de qualité suffisant pour un bon confinement vertical mais également des fissures et bords de mesa qui assurent le confinement horizontal ainsi que l'extraction des polaritons guidés. La figure 3.3a est une image d'une mesa de 100×100 μm^2 vue au microscope optique. La figure 3.3b présente une image en espace réel de la zone représentée par le carré rouge sur la figure 3.3a. Le spot laser n'est pas représenté ici car il est plus grand que l'image, il s'étend sur une surface de 25×33 μm^2. Sous le seuil on distingue uniquement la luminescence des polaritons verticaux sous le réservoir. A partir du moment où la puissance d'excitation est supérieure aux seuils laser (figure 3.3b), on observe deux zones plus intenses (en rouge) qui correspondent aux lasers vertical et horizontal.

3.1 Les deux lasers avec un seuil similaire

La figure 3.4 présente les dispersions polaritoniques mesurées en imagerie de Fourier pour différentes puissances d'excitation. A 17 W/cm^2, on distingue très clairement les dispersions des branches

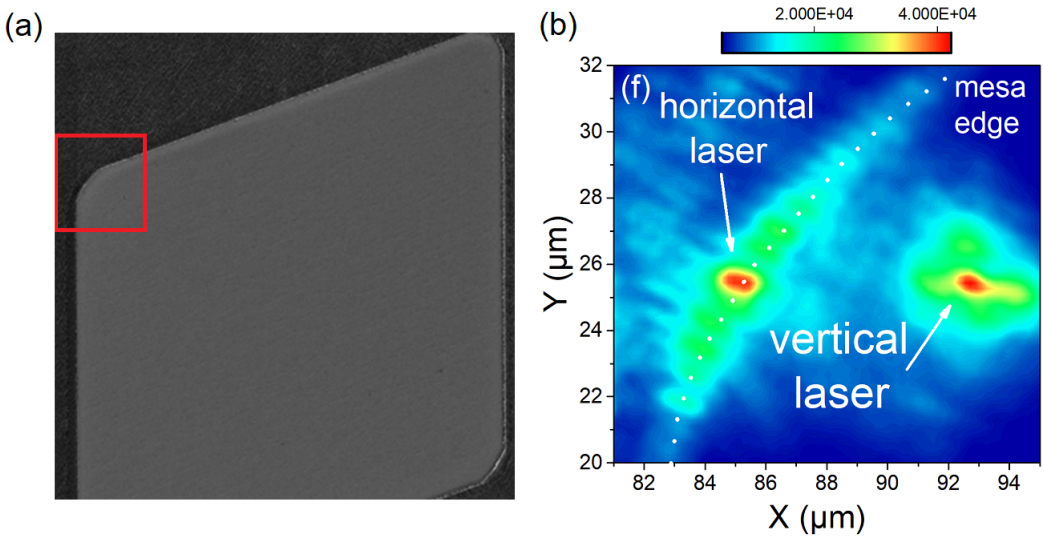

FIGURE 3.3 – (a) Image d'une mesa de 100 × 100 μm^2 vu au microscope optique. (b) Image en espace réel à 61 W/cm^2 (au-dessus des deux seuils), on observe le laser horizontal et le laser vertical séparés spatialement de 8 μm mais alimentés par le même réservoir.

basses (LPB1 et LPB2). Le changement de courbure entre LPB1 et LPB2 est très marqué car cela correspond à une importante variation de la fraction excitonique (facteur 3,4). Pour ce point, la LPB2 est à un désaccord trop positif (107 meV) pour espérer accumuler des polaritons dans l'état fondamental. Par contre le désaccord de la LPB1 est choisi négatif (-96 meV) pour observer les lasers horizontal et vertical avec un seuil très proche. A 35 W/cm^2, on observe de l'émission spontanée des polaritons guidés à 3310 meV qui provient du bord du mesa. Le seuil laser horizontal est obtenu à 36 W/cm^2 et sur la figure 3.4c (39 W/cm^2) l'émission cohérente se traduit par l'observation sur les spectres d'un peigne de modes très fins correspondant à la cavité horizontale excitée (figure 3.5). Il n'y a pas de réseau sur cette structure, nous n'avons donc pas accès à la dispersion des polaritons guidés. Il faut augmenter l'excitation jusqu'à 50 W/cm^2 pour atteindre le seuil vertical. Pour une puissance supérieure aux deux seuils (61 W/cm^2), on distingue clairement la cohabitation entre les deux lasers. Lorsque l'on augmente la puissance les interactions polariton-polariton augmentent et l'état privilégié du laser horizontal se décale vers les basses énergies (figure 3.4d).
Si on s'intéresse maintenant aux spectres en incidence normale (figure 3.5), à basse puissance on observe clairement les LPB1 et LPB2. En augmentant la puissance d'excitation, on retrouve à 36 $W.cm^{-2}$ le seuil du laser horizontal avec son peigne de modes caractéristiques à 3310−3315 meV ainsi que le seuil laser vertical à 50 $W.cm^{-2}$ (3237 meV). Dans les deux cas, la forte non linéarité et le blueshift caractéristiques du laser à polaritons sont bien identifiés (figure 3.6). L'évolution en énergie de la LPB1 nous montre que jusqu'à 5 $W.cm^{-2}$ la puissance injectée n'écrante pas la force d'oscillateur. Cette valeur qui correspond à une puissance crête de 0,6 $MW.cm^{-2}$ est en très bon accord avec la valeur mesurée sur la cavité GaN (0,7 $MW.cm^{-2}$) dans le premier chapitre. Entre 5 et 50 $W.cm^{-2}$, la LPB1 se décale vers les hautes énergies de 10 meV. L'évolution en énergie du mode laser principal, qui peut être suivie jusqu'à 85 $W.cm^{-2}$, montre très clairement que le réservoir excitonique est verrouillé au seuil.
Il est important de noter qu'au seuil du laser à polaritons guidés le réservoir n'est pas verrouillé. En effet, ici le spot recouvre toute la cavité horizontale, le réservoir excitonique est grand spatialement. En d'autres termes, les pertes liées à l'effet laser sont petites devant la taille du réservoir. Si on utilise un petit spot, le réservoir sera petit devant la taille de la cavité, alors on pourra également observer un verrouillage du réservoir [110].

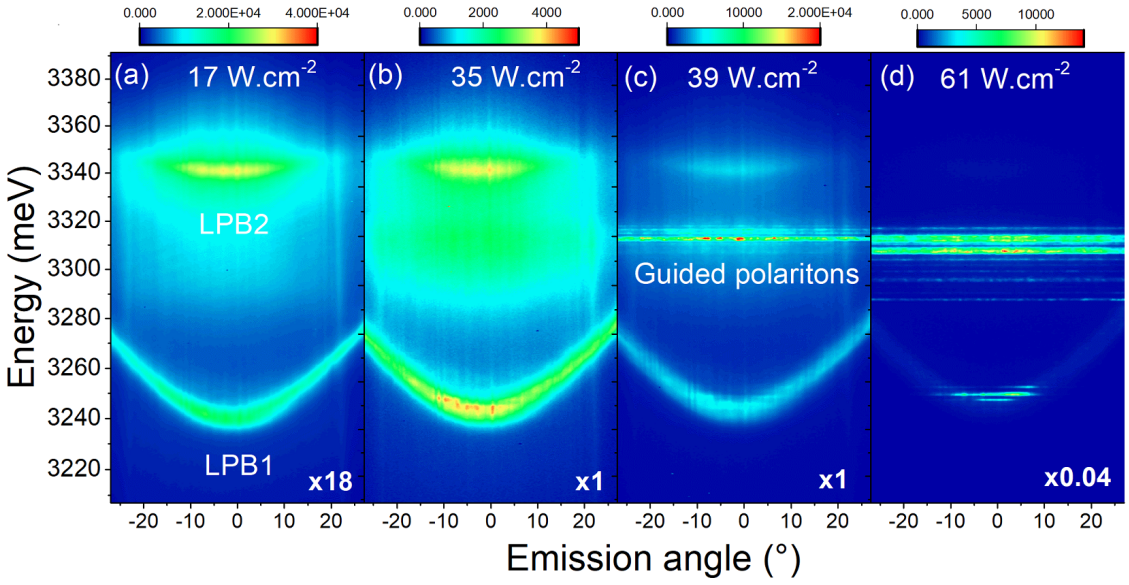

FIGURE 3.4 – μPL en imagerie de Fourier à 5 K en fonction de la puissance sous excitation quasi-continue à (a) 17 W/cm^2, (b) 35 W/cm^2, (c) 39 W/cm^2 et (d) 61 W/cm^2.

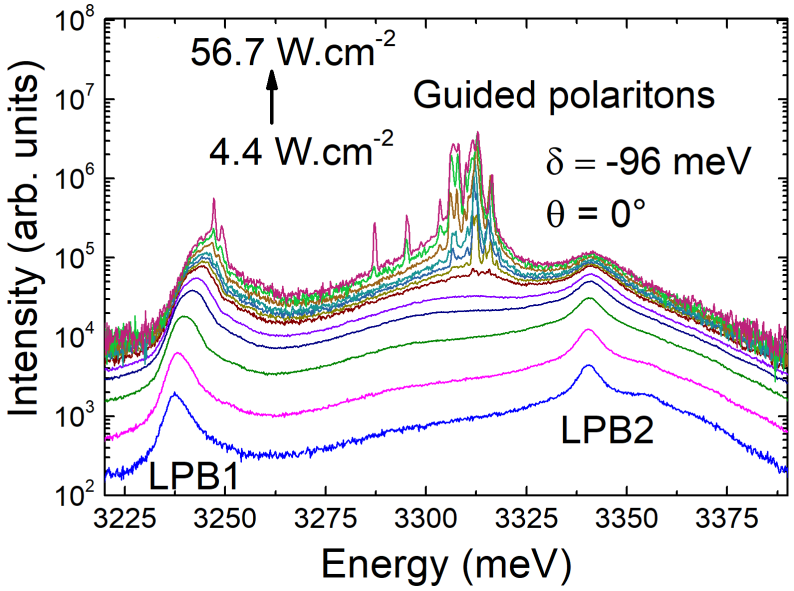

FIGURE 3.5 – μPL en fonction de la puissance d'excitation de 4,4 à 56,7 $W.cm^{-2}$

Le cas du laser vertical est différent. L'émission laser est localisée sous le réservoir, la taille du condensat est identique à celle du réservoir. Dans ce cas, l'augmentation de la puissance d'excitation sert majoritairement à compenser les pertes. L'énergie du mode laser n'augmente plus, l'écrantage des forces d'oscillateur est stable.

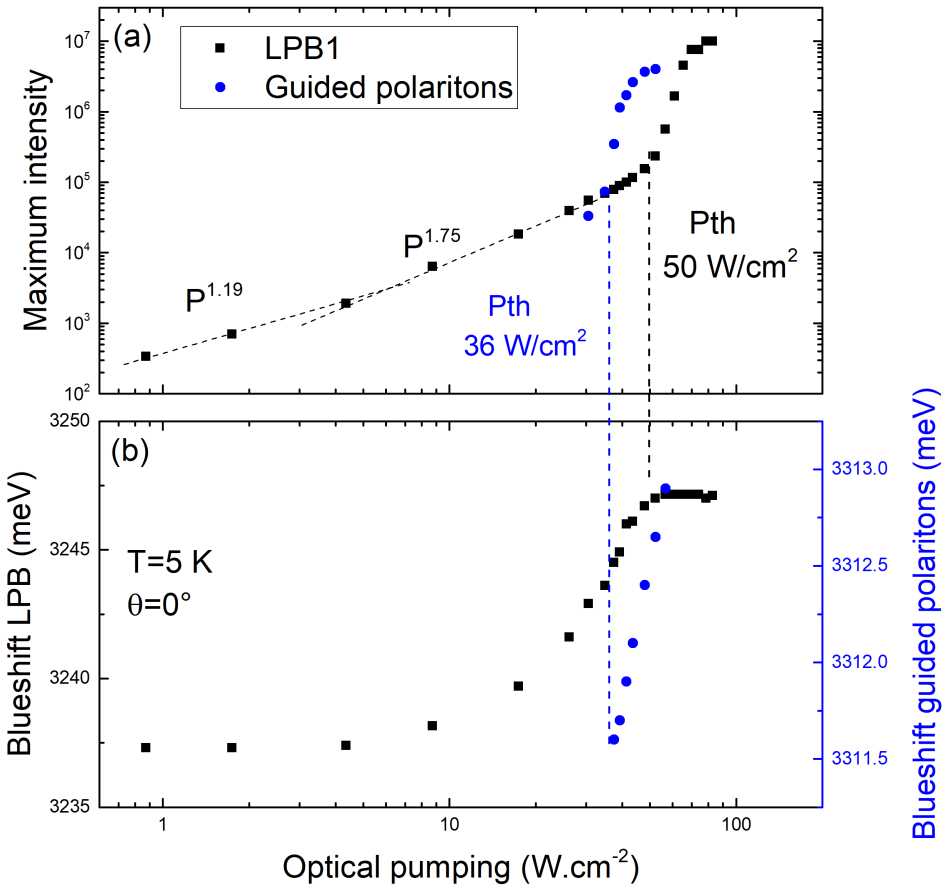

FIGURE 3.6 – (a) Intensité maximum et (b) blueshift en fonction de la puissance d'excitation, mesurés sur la figure 3.5.

3.2 Le laser horizontal seul

Pour mettre en évidence uniquement le laser horizontal dans cette microcavité planaire, il suffit de trouver un point où le seuil du laser vertical est élevé. Nous avons choisi volontairement un désaccord très positif (+54 meV) afin de privilégier les polaritons guidés conformément au diagramme de phase (figure 3.2). La figure 3.7a présente une image en espace réel 2D sous le seuil. On distingue l'émission des polaritons sous le spot au centre de l'image (x=0 et y=0) ainsi que les polaritons guidés qui sortent par le bord de la mesa (x=0 et y=20 μm). Une image en espace réel 1D (c'est à dire avec la résolution spectrale en x et la résolution en μm en y) est enregistrée au seuil (figure 3.7b). On distingue très clairement que l'émission laser des polaritons guidés (3320 meV) est séparée spatialement et en énergie de l'émission spontanée des polaritons de la LPB à 3340 meV.

La mesure de μPL en imagerie de Fourier à basse puissance nous confirme qu'il s'agit bien des polaritons de cavité car la dispersion de la LPB est nettement visible (figure 3.8a). Au seuil on retrouve la cohabitation entre le laser à polaritons guidés et les polaritons de cavités toujours visibles (figure 3.8b).

Les spectres en fonction de la puissance en incidence normale nous montrent l'évolution de la LPB (figure 3.9). Elle se décale vers les hautes énergies avec une pente différente au-delà du seuil laser horizontal (figure 3.10). Ce point est intéressant car il montre que le réservoir excitonique est bien commun pour les deux configurations. La relaxation des polaritons vers l'état fondamental est dimi-

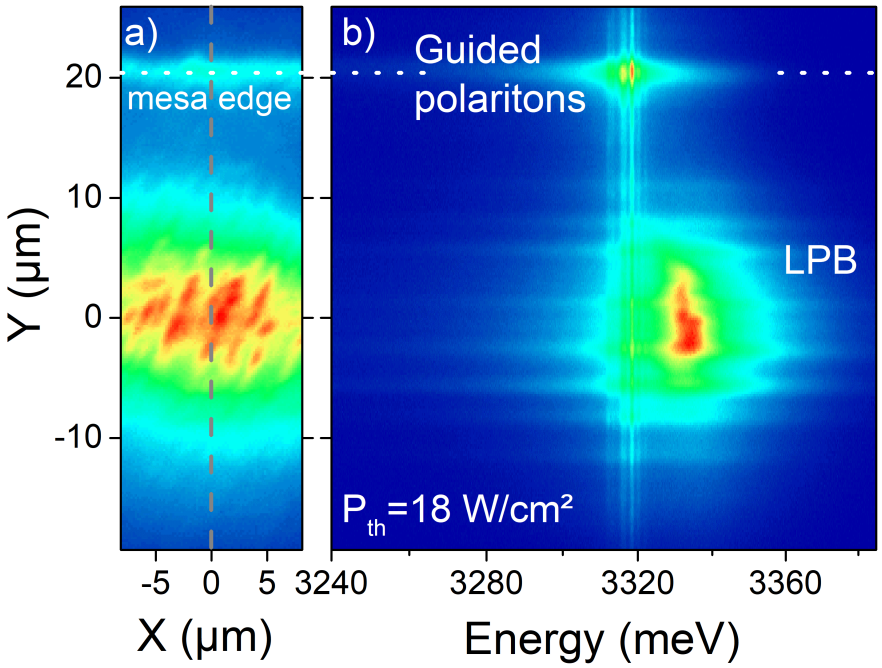

FIGURE 3.7 – (a) Image espace réel 2D sous le seuil et (b) image en espace réel 1D au seuil à 5 K.

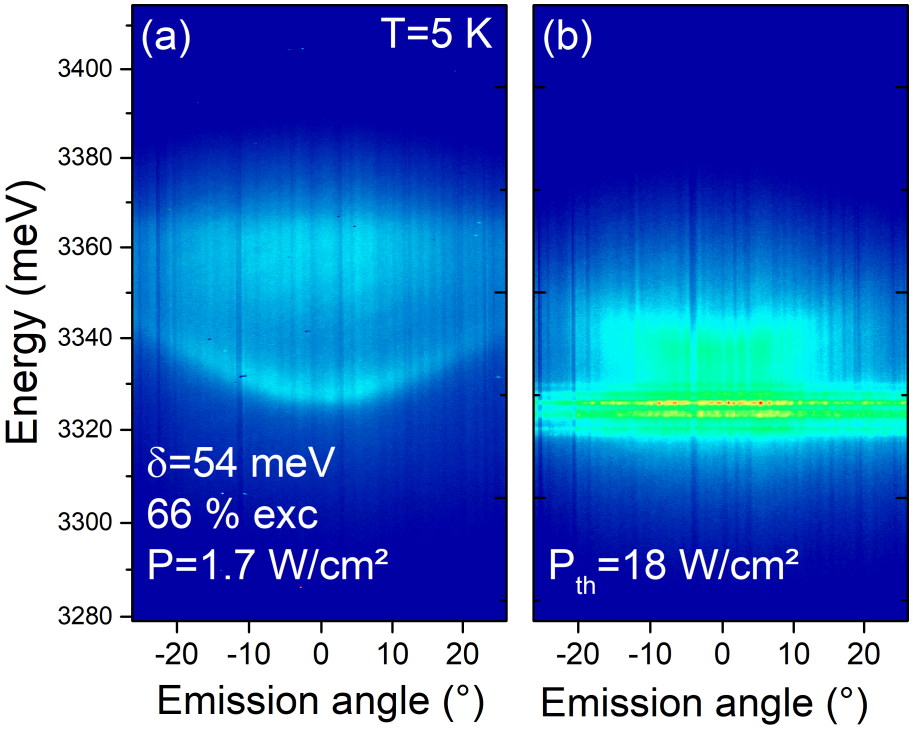

FIGURE 3.8 – Imagerie de Fourier (a) à 1,7 W/cm^2 et (b) à 18 W/cm^2 (au seuil) à 5 K.

nuée au profit du laser horizontal. Cet effet est loin d'être négligeable car pour ce point le seuil laser vertical n'est plus accessible.

La taille du spot joue ici un rôle clé, avec une surface d'excitation de 150 μm^2, le laser horizontal n'est

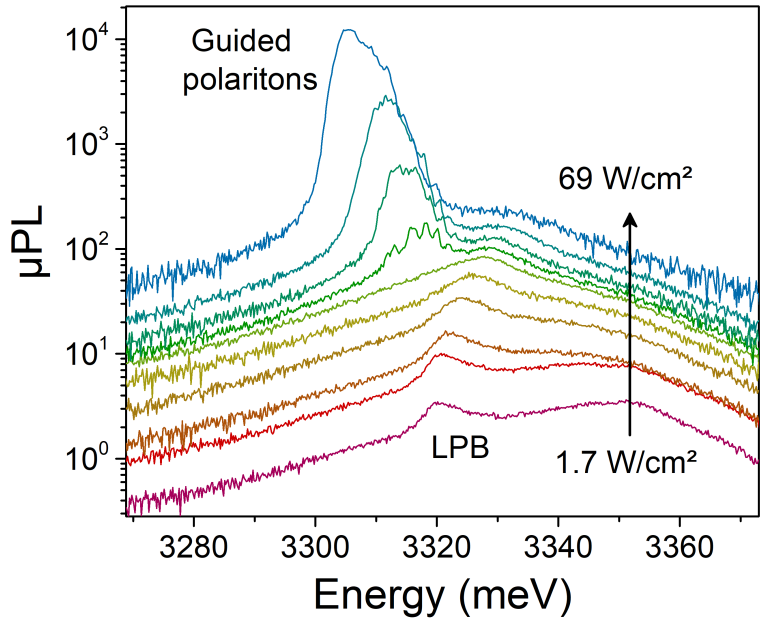

FIGURE 3.9 – μPL en fonction de la puissance d'excitation de 1,7 W/cm^2 à 69 W/cm^2 à 5 K.

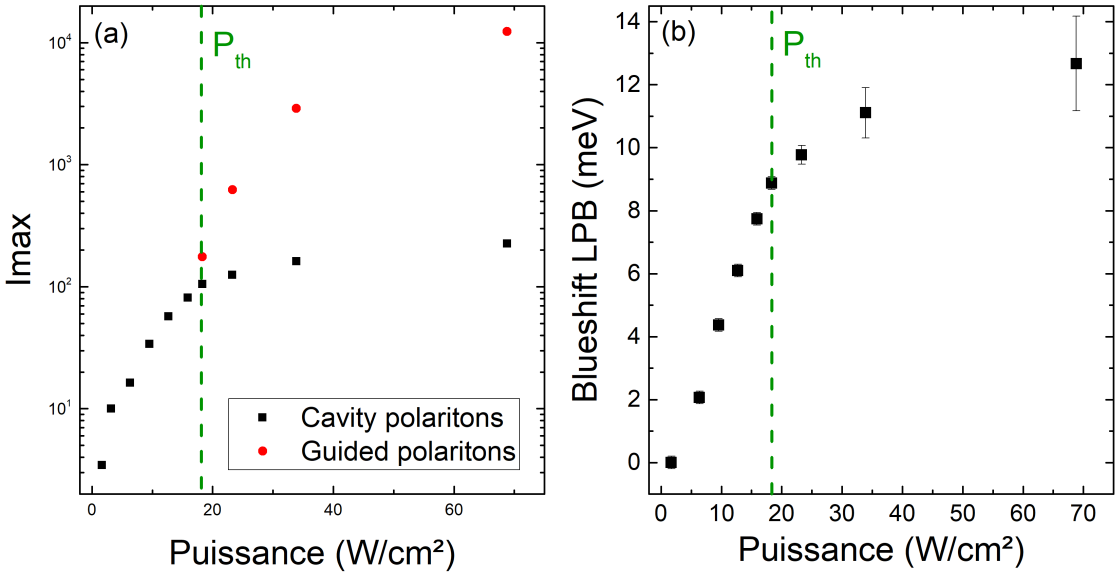

FIGURE 3.10 – Évolutions de l'intensité maximum et de l'énergie en fonction de la puissance d'excitation mesurées sur la figure 3.9.

pas favorisé, on peut atteindre le seuil vertical pour $15-20$ W/cm^2 à $\delta = +54$ meV (figure 3.2). Si maintenant on utilise un spot de 650 μm^2, le temps de passage des polaritons est plus élevé, le seuil laser horizontal mesuré est 18 W/cm^2. Le réservoir excitonique commun est tellement impacté pour compenser les pertes du laser horizontal qu'il ne fournit plus suffisamment de polaritons pour parvenir au seuil du laser vertical (figure 3.10). Pour cette structure l'émission laser horizontal se situe à plus basse énergie que dans le guide 50 nm présenté dans le chapitre 2. Les fissures ou bords des

mesas semblent être moins efficaces comme miroirs que dans les guides plan m. Pour compenser les pertes il faut pomper plus fort, il y a plus d'interactions polaritons-polaritons : le condensat se forme plus bas sur la branche basse.

3.3 Le laser vertical seul

C'est le point qui devait être le plus facile à trouver, cependant même dans la zone de compromis comme c'est le cas ici ($\delta = -22$ meV), le seuil du laser horizontal est toujours plus bas avec le spot de 650 μm^2. Cette structure comporte plusieurs tailles de mesas. Celles de taille supérieure à 200 μm ont suffisamment de fissures pour former des cavités horizontales. Celles de 100 μm ont très peu de fissures mais une seule suffit à faire une cavité horizontale avec un bord et celles de 50 μm n'ont pas de fissures mais les cavités sont présentes grâce aux bords de la mesa.
Cependant si on ferme les fentes du spectromètre, on peut masquer l'émission qui vient du bord de la mesa et ne détecter que l'émission qui vient de l'état fondamental. Dans ce cas on observe seulement les dispersions des polaritons de cavités et le seuil du laser vertical (figure 3.11 et 3.12).

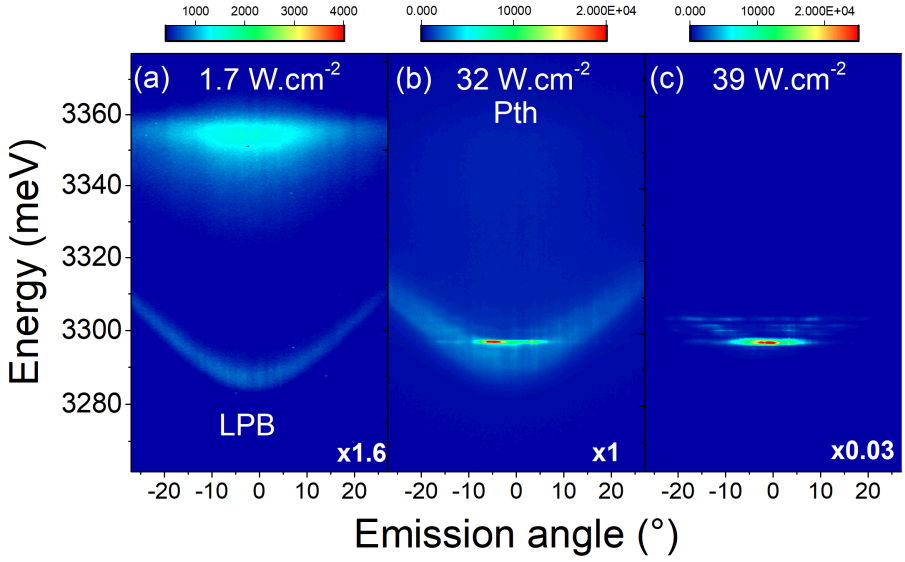

FIGURE 3.11 – Imagerie de Fourier à 5 K pour un désaccord de −22 meV et une puissance d'excitation de (a) 1,7 W/cm^2, (b) 32 W/cm^2 (Pth) et (c) 39 W/cm^2.

Ces figures ont le mérite de montrer que l'on peut facilement passer à côté du laser horizontal et ne détecter que le laser vertical. C'est même assez naturel de réaliser des mesures en évitant les fissures, les défauts et les bords des mesas. Cependant lorsque l'on regarde les seuils laser verticaux sur la figure 3.2, on voit tout de suite qu'il y a une forte différence entre les mesures réalisées avec un spot de 150 μm^2 et 650 μm^2. Avec le spot de 150 μm^2, le laser horizontal n'est pas favorisé, son seuil est élevé, il n'y a pas ou très peu de compétition avec le laser vertical.
Avec le spot de 650 μm^2, la situation est inversée, le temps de passage est important et le seuil du laser horizontal se trouve alors plus bas que celui du laser vertical. La compétition est omniprésente(figure 3.2).

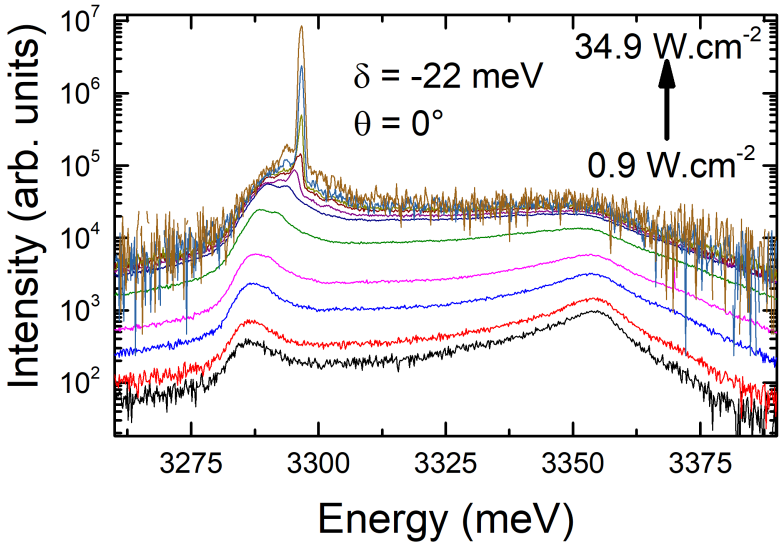

FIGURE 3.12 – μPL en fonction de la puissance d'excitation de 0,9 à 34,9 W/cm^2 à $\delta = -22$ meV et à 5 K.

Ce n'est pas évident de quantifier la perte liée à l'alimentation des polaritons guidés. Cependant si on compare les seuils du laser vertical des points 1 et 2 mesurés avec les deux tailles de spot (figure 3.2), on trouve un rapport 4,7−5,6 (tableau 3.1). Dans le chapitre 1 nous avons vu que le désordre photonique entraine une augmentation de 30% du seuil quand la taille du spot passe de 150 μm^2 à 650 μm^2. Nous savons aussi qu'une variation locale du facteur de qualité peut affecter le seuil d'un facteur 2 au maximum. Donc la perte liée à l'alimentation du laser horizontal est le facteur le plus influent sur la variation observée du seuil vertical.

δ (meV)	Pth_{hor} (W/cm^2) spot 650 μm^2	Pth_{ver} (W/cm^2) spot 650 μm^2	Pth_{ver} (W/cm^2) spot 150 μm^2	$\frac{Pth_{ver}\ (650)}{Pth_{ver}\ (150)}$
− 96	36	50	9	5,6
− 22	/	35	7,5	4,7
+ 54	18	/	14	/

TABLE 3.1 – Comparaison des puissances au seuil du laser horizontal et vertical.

En conclusion, il faut garder en tête que même lorsque l'on a choisi le design d'une microcavité planaire pour confiner verticalement les polaritons, une partie importante des excitons du réservoir peut alimenter des modes comme les polaritons guidés. Ne pas détecter les polaritons guidés ne signifie pas qu'il n'y en a pas, car il faut avoir un réseau, une fissure ou un bord pour les extraire. En configuration "gros spot", si le laser horizontal ne semble pas influencé par le seuil vertical (comme nous l'avons vu dans la partie 3.1), la réciproque n'est pas vraie. Les polaritons guidés sollicitent fortement le réservoir excitonique ce qui a pour conséquence d'augmenter nettement le seuil du laser vertical. Dans certains cas, ce dernier n'est plus atteignable.

Conclusion et perspectives

Initialement j'avais choisi une filière électronique avec l'objectif de devenir enseignant. Mon premier stage en laboratoire m'a fait découvrir la recherche et m'a donné l'envie de m'inscrire en Master Recherche. Mon deuxième stage en laboratoire a confirmé mon goût pour la recherche et notamment pour l'optique. C'est en thèse puis en post-doctorat que j'ai pu acquérir une solide expérience en spectroscopie optique de semiconducteurs. Durant ces neuf dernières années en tant qu'ingénieur de recherche dans l'équipe spectroscopie optique, j'ai mis à profit cette expérience et je l'ai également enrichie en m'intéressant à des thématiques voisines.

L'histoire des polaritons dans les semiconducteurs à grand gap est passionnante et très excitante. Elle a commencé il y a 20 ans avec GaN. Le manque de substrat a imposé la croissance de GaN principalement sur silicium ou saphir. Les équipes de croissance ont dû faire face à des problèmes de contraintes, de dislocations, de fissures liés à l'hétéroépitaxie. Elles ont utilisé des solutions innovantes comme la micro-structuration du substrat ou l'ajout de couches tampons pour atténuer ces problèmes. Il y a une dizaine d'années on observait simplement l'anticroisement des modes polaritoniques. En quelques années nos collègues du CRHEA (Jesus Zuniga Pérez et Fabrice Semond) et du C2N (Sophie Bouchoule), qui élaborent les microcavités, ont réussi à gagner un ordre de grandeur sur le facteur de qualité de la cavité et sur le désordre photonique. Ces améliorations conséquentes nous ont permis d'observer le laser à polaritons jusqu'à la température ambiante, de montrer et d'étudier la propagation des polaritons, l'influence des pièges photoniques et de déterminer des diagrammes de phase complets pour GaN et ZnO de 5 à 300 K. Nous avons ainsi pu identifier l'influence de la fraction excitonique sur le seuil mais aussi le rôle des phonons LO dans l'amélioration des mécanismes de relaxation polaritonique. Leur effet sur la diminution du seuil n'est d'ailleurs pas négligeable dans la zone de compromis. La mesure du temps de vie non radiatif des excitons nous donne maintenant accès à l'estimation de la densité de porteurs. On sait alors que la densité de porteurs injectée au seuil est très proche de la densité de Mott. Pour que notre laser à polaritons ait un seuil plus faible que le meilleur VCSEL de la littérature, il faudrait pouvoir baisser la densité de dislocations de la zone active.

C'est ici que les guides polaritoniques apparaissent comme une solution idéale. En effet ces structures sont très simples à réaliser. Avec seulement trois couches nous observons des polaritons guidés. Le seuil laser peut être 50 fois plus faible qu'avec une microcavité planaire. Et ce n'est que le début de l'histoire des guides polaritoniques, plusieurs pistes sont possibles pour baisser encore le seuil comme l'amélioration du design du guide, l'optimisation du résonateur et le confinement 1D des polaritons guidés. De plus nous venons de montrer qu'il est possible de d'amplifier un mode guidé se propageant sous un réservoir excitonique. Ce système peut également être envisagé comme un transistor optique. Finalement la réalisation de contacts électriques sur cette structure guidante sera aussi plus simple.

L'étude de la compétition entre les modes verticaux et horizontaux nous apprend que les polaritons guidés peuvent être considérés comme une perte importante pour un laser à polaritons vertical dans une microcavité planaire. Il donc important d'en tenir compte lors du design de nouvelles microcavités planaires.

Ces années de recherche sur les polaritons m'ont permis de prendre de la hauteur sur cette thématique. Ce sujet est très stimulant car il évolue rapidement à l'échelle internationale. Notre consortium (CRHEA, C2N, L2C et IP) est dynamique et efficace, et le mélange de nos compétences est bénéfique et moteur pour ce projet sur la polaritonique grand gap. La bonne relation et la bonne ambiance de travail participent beaucoup à l'envie de s'impliquer pleinement dans ce sujet. Les derniers résultats sur les structures guidantes ouvrent de belles perspectives pour la réalisation de ce laser à polaritons injecté électriquement.

Concernant les perspectives, sur les polaritons, à court terme, je souhaite :
- Continuer les mesures de temps de vie non radiatif des excitons des structures guidantes afin d'estimer la densité de porteurs. Les premiers résultats montrent que l'évolution des temps de déclin des structures homoépitaxiées sur plan m comporte plusieurs contributions (contrairement à ceux mesurés sur les échantillons plan c). Un modèle est nécessaire pour interpréter ces mesures.

- Étudier l'influence du cladding supérieur et du confinement 1D des polaritons guidés sur le seuil. Nous avons vu que l'absorption dans le cladding supérieur n'est pas négligeable, en diminuant son épaisseur il est encore possible de baisser le seuil. Une autre voie pour diminuer le seuil est la suppression d'une direction de propagation par gravure. Les premières mesures nous ont montré que la gravure peut dégrader les fissures (donc le résonateur). Cependant il est aussi possible de réaliser un résonateur horizontal avec des faces gravées par FIB. Les premiers résultats sont prometteurs. Le confinement 1D reste donc une piste d'étude sérieuse pour la diminution du seuil.

- Analyser l'évolution des polaritons guidés sous excitation quasi-résonnante.
L'acquisition récente d'une source laser quasi-continue à 349 nm va nous permettre d'étudier les polaritons guidés sous excitation quasi-résonnante. Nous pourrons étudier l'effet d'un pompage optique énergétiquement très proche du réservoir, mais également observer l'influence d'un pompage directement dans la zone active (sans absorption dans le cladding supérieur).

A plus long terme, j'aimerais :
- Accéder au comportement dynamique des polaritons à l'échelle de la picoseconde.
La cohabitation temporelle est présente dans nos mesures mais nous n'avons pas pu encore la quantifier. Je souhaite étudier le comportement des polaritons sur les premières picosecondes qui suivent l'impulsion pour répondre aux questions suivantes :
Est ce que sous très forte excitation le système passe ponctuellement et/ou spatialement en régime de couplage faible ? Quelle est l'évolution temporelle du blueshift ?

- Étudier la propagation des polaritons guidés sous injection résonnante.
Nous savons que la vitesse de propagation des polaritons guidés est grande ($13-60$ μm/ps) et qu'elle dépend fortement de la fraction excitonique. A l'aide de deux réseaux, j'aimerais étudier la dépendance spatiale et temporelle des polaritons guidés en fonction de la puissance d'injection et de la température.

Et bien sûr, l'observation de la dispersion polaritonique puis de l'effet laser sous injection électrique serait un aboutissement à ces années de recherche sur les polaritons grand gap.

Concernant mes activités locales, je souhaite au sein de la thématique N2 (Nanostructures et Na-

nophotoniques) du laboratoire continuer à renforcer la collaboration avec l'équipe électromagnétisme et nanophotonique et avec l'Institut de chimie de Clermont Ferrand (ICCF). Nous avons des domaines d'intérêt communs et, nos compétences et nos équipements sont complémentaires. Nous nous retrouvons actuellement sur trois thématiques : l'étude de couches anti-reflets, l'étude de l'amélioration de l'extraction lumineuse de luminophores avec des nanoparticules métalliques, et avec nanostructuration. Pour ces trois sujets de recherche la collaboration est stimulante et les premiers résultats ont été valorisés à travers des communications et des articles. Concernant l'activité sur les nanoparticules métalliques, les mesures en cours sont très encourageantes, en effet l'extraction lumineuse est améliorée d'un facteur 2 par la présence de nanoparticules métalliques dispersées à la surface. Nous étudions actuellement le rôle clé de la concentration des nanoparticules. Une trop forte densité éteint le signal par absorption alors qu'à une trop faible densité elles n'ont plus d'effet. Contrairement à que ce l'on pensait la taille et la forme des nanoparticules aurait également de l'influence, une étude est en cours. J'aimerais maintenant étudier l'influence de la longueur d'onde d'excitation et d'extraction pour différentes tailles de de nanoparticules.
De plus pour comprendre plus finement l'amélioration de l'extraction et de l'injection en fonction de l'absorption de la zone guidante, je souhaite étudier la réponse optique des polaritons guidés dans ZnO en présence de nanoparticules métalliques.

Afin de profiter du potentiel de notre streak camera, j'aimerais développer l'étude des temps de déclins. Concernant les couches GaAs nitrurées, la nette amélioration de l'intensité de photoluminescence nous indique que la couche nitrurée améliore le rendement radiatif. J'aimerai maintenant confirmer ce résultat en comparant la mesure du temps vie des porteurs dans une couche GaAs avec et sans nitruration.
Concernant les nano- et micro-fils GaN, nous savons qu'il est possible d'obtenir du GaN sans défauts (contrairement aux couches 2D). Je souhaite donc mesurer le temps de vie non radiatif des excitons et confirmer si, comme on le pense, il est bien supérieur à celui des couches 2D. Pour l'instant les premiers obstacles que nous avons rencontrés sont le dopage non intentionnel des micro-fils et la faiblesse d'émission du signal d'un micro-fils unique. Le rendement de la streak camera étant beaucoup plus faible que celui d'une CCD classique il faut un niveau de signal plus élevé. Nous allons donc réaliser ce type de mesure sur un ensemble de micro-fils ou sur un micro-fil unique avec un volume plus important comme ceux élaborés par l'équipe de croissance du laboratoire. Pour ces mesures, il est indispensable de trouver des fils non dopés afin de conserver la structure excitonique. Ce travail s'inscrit dans le cadre de la thèse de Léo Mallet Dida, ces mesures nous permettraient de quantifier le nombre de porteurs injectés et d'avancer dans la compréhension des mécanismes mis en œuvre lors de l'effet laser dans les structures PIN.

Dans le cadre de sa thèse à l'ICCF, Rodolphe Valleix réalise des boîtes quantiques cœur coquille d'InP/ZnS pour des applications d'affichage. En contrôlant la taille des boîtes, l'émission de ces nano-objets peut couvrir le spectre du visible. Récemment nous avons réalisé des mesures pour avoir accès aux temps de déclin de photoluminescence. J'aimerais maintenant mesurer l'énergie de bande interdite du cœur et de la coquille pour ensuite étudier les temps de déclin avec une injection optique soit dans la coquille soit dans le cœur de 5 à 300 K. Si comme on le pense, les résultats sont intéressants, nous écrirons un projet afin de développer cette collaboration.

Finalement, je prépare actuellement une expérience de microphotoluminescence dans l'infra-rouge de 800 à 3000 nm pour renforcer notre collaboration avec l'équipe de croissance du laboratoire et ainsi étudier leurs micro- et nanofils de d'InGaN et d'InGaAs. C'est aussi une belle occasion d'élargir notre champ d'investigation en l'ouvrant vers les matériaux à petits gaps.

CV court

Cursus universitaire

2005–2008 **Doctorat en Matériaux et Composants pour l'Électronique**
Université Blaise Pascal – Clermont II

2004–2005 **Master Recherche Optoélectronique**
Université Blaise Pascal – Clermont II

Expériences professionnelles

Recherche :

2010– **Ingénieur de recherche** à l'Institut Pascal – Clermont-Ferrand (63)
IR2 CNRS depuis décembre 2012

2009–2010 **Post Doctorant** à l'Institut d'Electronique Fondamentale – Orsay (91)

2008–2009 **Attaché Temporaire de Recherche** au LASMEA – Clermont-Ferrand (63)

2005–2008 **Thèse de doctorat** au LASMEA – Clermont-Ferrand (63)

Enseignement :

2018– **Vacataire** à l'École Universitaire de Physique et d'Ingénierie de l'UCA
Cours optoélectronique et projets phénomènes collectifs en Master Physique 1er année

2010– **Vacataire** au Département Mesures Physiques de l'IUT de Clermont-Ferrand
TP électronique et optique

2008–2009 **Attaché Temporaire d'Enseignement** à Polytech'Clermont-Fd, Génie Physique
CM, TD et TP de soutien physique, capteurs, suivi de projet

2005–2008 **Moniteur** au Département Mesures Physiques de l'IUT de Clermont-Ferrand
TP électricité, électronique et électrotechnique

Domaine technique :

1997–2000 **3 ans d'expérience en milieu industriel**
Électricité industrielle : atelier et bureau d'étude

Publications

Auteur et co-auteur de **41 articles** publiés dans des revues internationale à comité de lecture (dont 1 Light : Science and Application, 1 Nanoletter, 1 Physical Review Letter, 1 Journal of Physical Chemistry C, 1 Applied Surface Science, 7 Physical Review B et 5 Applied Physics Letter) et plus de 100 communications lors de conférences
h=15, 760 citations (source Google Scholar mars 2020)

Encadrement d'étudiants

- 4 thèses encadrées à 33% en co-direction avec J. Leymarie et P. Disseix ou M. Mihailovic dont 3 soutenues : Laurent Orosz (2010–2013), Emilien Mallet (2011–2014) et Omar Jamadi (2014–2018) et 1 thèse en cours : Geoffrey Kreyder (2017–)
- 7 Masters 2ème année, 3 Masters 1er année et 4 BTS

Responsabilités administratives

- Correspondant formation de l'Institut Pascal pour le CNRS depuis 2018
- Membre élu représentant des ITA au conseil d'administration d'UCA-PARTNERS depuis 2015
- Responsable de la plateforme spectroscopie optique depuis 2010

Bibliographie

[1] S Sauvage, A Driss, F Réveret, P Boucaud, A Dazzi, R Prazeres, F Glotin, J-M Ortéga, A Miard, Y Halioua, et al. Homogeneous broadening of the s to p transition in ingaas/gaas quantum dots measured by infrared absorption imaging with nanoscale resolution. *Physical Review B*, 83(3) :035302, 2011.

[2] Xin Li, S Sundaram, Pierre Disseix, G Le Gac, S Bouchoule, G Patriarche, F Réveret, Joël Leymarie, Y El Gmili, T Moudakir, et al. Algan-based mqws grown on a thick relaxed algan buffer on aln templates emitting at 285 nm. *Optical Materials Express*, 5(2) :380–392, 2015.

[3] Xin Li, Gaëlle Le Gac, Sophie Bouchoule, Youssef El Gmili, Gilles Patriarche, Suresh Sundaram, Pierre Disseix, François Reveret, Joël Leymarie, Jérémy Streque, et al. Structural and optical investigations of algan mqws grown on a relaxed algan buffer on aln templates for emission at 280 nm. *Journal of Crystal Growth*, 432 :37–44, 2015.

[4] Antoine Moreau, Cristian Ciracì, Jack J Mock, Ryan T Hill, Qiang Wang, Benjamin J Wiley, Ashutosh Chilkoti, and David R Smith. Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas. *Nature*, 492(7427) :86–89, 2012.

[5] A Farhaoui, A Bousquet, R Smaali, A Moreau, E Centeno, J Cellier, C Bernard, R Rapegno, F Réveret, and E Tomasella. Reactive gas pulsing sputtering process, a promising technique to elaborate silicon oxynitride multilayer nanometric antireflective coatings. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 50(1) :015306, 2016.

[6] Emmanuel Centeno, Amira Farahoui, Rafik Smaali, Ang Bousquet, François Réveret, Olivier Teytaud, Antoine Moreau, et al. Ultra thin anti-reflective coatings designed using differential evolution. *arXiv preprint arXiv :1904.02907*, 2019.

[7] Jeff L Nyalosaso, Audrey Potdevin, François Réveret, Pierre Disseix, Rachid Mahiou, and Geneviève Chadeyron. Enhancement of light extraction in y3al5o12 : Tb3+ thin films through nanopatterning. *Chemical Engineering Science*, 213 :115416, 2020.

[8] Geoffrey Avit, Kaddour Lekhal, Yamina Andre, Catherine Bougerol, Francois Reveret, Joel Leymarie, Evelyne Gil, Guillaume Monier, Dominique Castelluci, and Agnes Trassoudaine. Ultralong and defect-free gan nanowires grown by the hvpe process. *Nano letters*, 14(2) :559–562, 2014.

[9] Elissa Roche, Yamina Andre, Geoffrey Avit, Catherine Bougerol, Dominique Castelluci, Francois Réveret, Evelyne Gil, Francois Médard, Joel Leymarie, Theo Jean, et al. Circumventing the miscibility gap in ingan nanowires emitting from blue to red. *Nanotechnology*, 29(46) :465602, 2018.

[10] H Mehdi, F Reveret, Catherine Bougerol, C Robert-Goumet, PE Hoggan, L Bideux, B Gruzza, J Leymarie, and G Monier. Study of gan layer crystallization on gaas (100) using electron cyclotron resonance or glow discharge n2 plasma sources for the nitriding process. *Applied Surface Science*, 495 :143586, 2019.

[11] Maurice GA Bernard and Georges Duraffourg. Laser conditions in semiconductors. *physica status solidi (b)*, 1(7) :699–703, 1961.

[12] Kenichi Iga. Surface-emitting laser-its birth and generation of new optoelectronics field. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 6(6) :1201–1215, 2000.

[13] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :3314–3317, 1992.

[14] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymanska, R. Andre, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, and Le Si Dang. Bose-einstein condensation of exciton polaritons. *Nature*, 443(7110) :409–414, 2006.

[15] Hui Deng, Gregor Weihs, David Snoke, Jacqueline Bloch, and Yoshihisa Yamamoto. Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 100(26) :15318–15323, 2003.

[16] D. Sanvitto and S. Kena-Cohen. The road towards polaritonic devices. *Nature Materials*, 15 :1061, 2016.

[17] R. Houdré, C. Weisbuch, R. P. Stanley, U. Oesterle, P. Pellandini, and M. Ilegems. Measurement of cavity-polariton dispersion curve from angle-resolved photoluminescence experiments. *Phys. Rev. Lett.*, 73 :2043–2046, 1994.

[18] R. Houdré, R. P. Stanley, U. Oesterle, M. Ilegems, and C. Weisbuch. Room-temperature cavity polaritons in a semiconductor microcavity. *Phys. Rev. B*, 49 :16761–16764, 1994.

[19] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau, and Y. Yamamoto. Nonequilibrium condensates and lasers without inversion : Exciton-polariton lasers. *Phys. Rev. A*, 53 :4250–4253, 1996.

[20] Le Si Dang, D. Heger, R. André, F. Bœuf, and R. Romestain. Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :3920–3923, 1998.

[21] C. Schneider, A. Rahimi-Iman, N. Y. Kim, J. Fischer, I. G. Savenko, M. Amthor, M. Lermer, A. Wolf, L. Worschech, V. D. Kulakovskii, I. A. Shelykh, M. Kamp, S. Reitzenstein, A. Forchel, Y. Yamamoto, and S. Hofling. An electrically pumped polariton laser. *Nature*, 497 :348, 2013.

[22] Pallab Bhattacharya, Bo Xiao, Ayan Das, Sishir Bhowmick, and Junseok Heo. Solid state electrically injected exciton-polariton laser. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :206403, 2013.

[23] P. G. Savvidis, J. J. Baumberg, R. M. Stevenson, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker, and J. S. Roberts. Angle-resonant stimulated polariton amplifier. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :1547–1550, 2000.

[24] J. J. Baumberg, P. G. Savvidis, R. M. Stevenson, A. I. Tartakovskii, M. S. Skolnick, D. M. Whittaker, and J. S. Roberts. Parametric oscillation in a vertical microcavity : A polariton condensate or micro-optical parametric oscillation. *Phys. Rev. B*, 62 :R16247–R16250, 2000.

[25] A. Baas, J.-Ph. Karr, M. Romanelli, A. Bramati, and E. Giacobino. Optical bistability in semiconductor microcavities in the nondegenerate parametric oscillation regime : Analogy with the optical parametric oscillator. *Phys. Rev. B*, 70 :161307, 2004.

[26] A. Amo, J. Lefrere, S. Pigeon, C. Adrados, C. Ciuti, I. Carusotto, R. Houdre, E. Giacobino, and A. Bramati. *Nature Physics*, 5 :805, 2009.

[27] K. G. Lagoudakis, T. Ostatnický, A. V. Kavokin, Y. G. Rubo, R. André, and B. Deveaud-Pledran. Observation of half-quantum vortices in an exciton-polariton condensate. *Science*, 326(5955) :974–976, 2009.

[28] KG Lagoudakis, B Pietka, M Wouters, Régis André, and Benoit Deveaud-Plédran. Coherent oscillations in an exciton-polariton josephson junction. *Physical review letters*, 105(12) :120403, 2010.

[29] R. Hivet, H. Flayac, D. D. Solnyshkov, D. Tanese, T. Boulier, D. Andreoli, E. Giacobino, J. Bloch, A. Bramati, G. Malpuech, and A. Amo. Half-solitons in a polariton quantum fluid behave like magnetic monopoles. *Nat Phys*, 8(10) :724–728, 2012.

[30] T. Gao, P. S. Eldridge, T. C. H. Liew, S. I. Tsintzos, G. Stavrinidis, G. Deligeorgis, Z. Hatzopoulos, and P. G. Savvidis. Polariton condensate transistor switch. *Phys. Rev. B*, 85 :235102, 2012.

[31] D. Ballarini, M. De Giorgi, E. Cancellieri, R. Houdre, E. Giacobino, R. Cingolani, A. Bramati, G. Gigli, and D. Sanvitto. All-optical polariton transistor. *Nature Communications*, 4 :1778, 2013.

[32] Alexey Kavokin and Bernard Gil. Gan microcavities : Giant rabi splitting and optical anisotropy. *Applied Physics Letters*, 72(22) :2880–2881, 1998.

[33] Guillaume Malpuech, Aldo Di Carlo, Alexey Kavokin, Jeremy J. Baumberg, Marian Zamfirescu, and Paolo Lugli. Room-temperature polariton lasers based on gan microcavities. *Applied Physics Letters*, 81(3) :412–414, 2002.

[34] Marian Zamfirescu, Alexey Kavokin, Bernard Gil, Guillaume Malpuech, and Mikhail Kaliteevski. Zno as a material mostly adapted for the realization of room-temperature polariton lasers. *Phys. Rev. B*, 65 :161205, 2002.

[35] N. Antoine-Vincent, F. Natali, D. Byrne, A. Vasson, P. Disseix, J. Leymarie, M. Leroux, F. Semond, and J. Massies. Observation of rabi splitting in a bulk gan microcavity grown on silicon. *Phys. Rev. B*, 68 :153313, 2003.

[36] F. Semond, I. R. Sellers, F. Natali, D. Byrne, M. Leroux, J. Massies, N. Ollier, J. Leymarie, P. Disseix, and A. Vasson. Strong light-matter coupling at room temperature in simple geometry gan microcavities grown on silicon. *Applied Physics Letters*, 87(2) :021102, 2005.

[37] J.-F. Carlin, J. Dorsaz, E. Feltin, R. Butté, N. Grandjean, M. Ilegems, and M. Laügt. Crack-free fully epitaxial nitride microcavity using highly reflective alinn-gan bragg mirrors. *Applied Physics Letters*, 86(3) :031107, 2005.

[38] E. Feltin, J.-F. Carlin, J. Dorsaz, G. Christmann, R. Butté, M. Laügt, M. Ilegems, and N. Grandjean. Crack-free highly reflective alinn-algan bragg mirrors for uv applications. *Applied Physics Letters*, 88(5) :051108, 2006.

[39] G. Christmann, D. Simeonov, R. Butté, E. Feltin, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. Impact of disorder on high quality factor iii-v nitride microcavities. *Applied Physics Letters*, 89(26) :261101, 2006.

[40] R. Butté, G. Christmann, E. Feltin, J.-F. Carlin, M. Mosca, M. Ilegems, and N. Grandjean. Room-temperature polariton luminescence from a bulk gan microcavity. *Phys. Rev. B*, 73 :033315, 2006.

[41] S. Christopoulos, G. Baldassarri Höger von Högersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Christmann, R. Butté, E. Feltin, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. Room-temperature polariton lasing in semiconductor microcavities. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :126405, 2007.

[42] G. Christmann, R. Butte, E. Feltin, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. Room temperature polariton lasing in a gan-algan multiple quantum well microcavity. *Appl. Phys. Lett.*, 93 :51102, 2008.

[43] Jacques Levrat, Raphaël Butté, Eric Feltin, Jean-Fran çois Carlin, Nicolas Grandjean, Dmitry Solnyshkov, and Guillaume Malpuech. Condensation phase diagram of cavity polaritons in gan-based microcavities : Experiment and theory. *Phys. Rev. B*, 81 :125305, 2010.

[44] P. Corfdir, J. Levrat, G. Rossbach, R. Butté, E. Feltin, J.-F. Carlin, G. Christmann, P. Lefebvre, J.-D. Ganière, N. Grandjean, and B. Deveaud-Plédran. Impact of biexcitons on the relaxation mechanisms of polaritons in iii-nitride based multiple quantum well microcavities. *Phys. Rev. B*, 85 :245308, 2012.

[45] G. Rossbach, J. Levrat, G. Jacopin, M. Shahmohammadi, J.-F. Carlin, J.-D. Ganière, R. Butté, B. Deveaud, and N. Grandjean. High-temperature mott transition in wide-band-gap semiconductor quantum wells. *Phys. Rev. B*, 90 :201308, 2014.

[46] F. Réveret, P. Disseix, J. Leymarie, A. Vasson, F. Semond, M. Leroux, and J. Massies. Influence of the mirrors on the strong coupling regime in planar gan microcavities. *Phys. Rev. B*, 77 :195303, 2008.

[47] R. Houdré, R. P. Stanley, and 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 :2711–2715, 1996.

[48] G. Christmann, R. Butté, E. Feltin, J.-F. Carlin, and N. Grandjean. Impact of inhomogeneous excitonic broadening on the strong exciton-photon coupling in quantum well nitride microcavities. *Phys. Rev. B*, 73 :153305, 2006.

[49] F. Réveret, P. Disseix, J. Leymarie, A. Vasson, F. Semond, and M. Leroux. Influence of optical confinement and excitonic absorption on strong coupling in a bulk gan microcavity grown on silicon. *Superlattices and Microstructures*, 52(3) :541 – 551, 2012.

[50] Benjamin Damilano, Stéphane Brochen, Julien Brault, Tasnia Hossain, François Réveret, Eric Frayssinet, Sébastien Chenot, Aimeric Courville, Yvon Cordier, and Fabrice Semond. Growth of nitride-based light emitting diodes with a high-reflectivity distributed bragg reflector on mesa-patterned silicon substrate. *physica status solidi (a)*, 212(10) :2297–2301, 2015.

[51] J. Zuniga-Perez, E. Mallet, R. Hahe, M. J. Rashid, S. Bouchoule, C. Brimont, P. Disseix, J. Y. Duboz, G. Gommé, T. Guillet, O. Jamadi, X. Lafosse, M. Leroux, J. Leymarie, Feng Li, F. Réveret, and F. Semond. Patterned silicon substrates : A common platform for room temperature gan and zno polariton lasers. *Applied Physics Letters*, 104(24) :241113, 2014.

[52] O. Jamadi, F. Réveret, E. Mallet, P. Disseix, F. Médard, M. Mihailovic, D. Solnyshkov, G. Malpuech, J. Leymarie, X. Lafosse, S. Bouchoule, F. Li, M. Leroux, F. Semond, and J. Zuniga-Perez. Polariton condensation phase diagram in wide-band-gap planar microcavities : Gan versus zno. *Phys. Rev. B*, 93 :115205, 2016.

[53] J.-Y. Duboz, L. Dua, G. Glastre, P. Legagneux, J. Massies, F. Semond, and N. Grandjean. Dielectric microcavity in gan/si. *physica status solidi (a)*, 183(1) :35–39, 2001.

[54] K. Bejtka, F. Réveret, R. W. Martin, P. R. Edwards, A. Vasson, J. Leymarie, I. R. Sellers, J. Y. Duboz, M. Leroux, and F. Semond. Strong light-matter coupling in ultrathin double dielectric mirror gan microcavities. *Applied Physics Letters*, 92(24) :241105, 2008.

[55] F. Réveret, K. Bejtka, P. R. Edwards, S. Chenot, I. R. Sellers, P. Disseix, A. Vasson, J. Leymarie, J. Y. Duboz, M. Leroux, F. Semond, and R. W. Martin. Strong light-matter coupling in bulk gan-microcavities with double dielectric mirrors fabricated by two different methods. *Journal of Applied Physics*, 108(4) :043524, 2010.

[56] K. S. Daskalakis, P. S. Eldridge, G. Christmann, E. Trichas, R. Murray, E. Iliopoulos, E. Monroy, N. T. Pelekanos, J. J. Baumberg, and P. G. Savvidis. All-dielectric gan microcavity : Strong coupling and lasing at room temperature. *Applied Physics Letters*, 102(10) :101113, 2013.

[57] R. Jayaprakash, F. G. Kalaitzakis, G. Christmann, K. Tsagaraki, M. Hocevar, B. Gayral, and N. T. Monroy, E.and Pelekanos. Ultra-low threshold polariton lasing at room temperature in a gan membrane microcavity with a zero-dimensional trap. *Scientific Reports*, 7 :5542, 2017.

[58] Renchun Tao, Munetaka Arita, Satoshi Kako, Kenji Kamide, and Yasuhiko Arakawa. Strong coupling in non-polar gan/algan microcavities with air-gap/iii-nitride distributed bragg reflectors. *Applied Physics Letters*, 107(10) :101102, 2015.

[59] Pallab Bhattacharya, Thomas Frost, Saniya Deshpande, Md Zunaid Baten, Arnab Hazari, and Ayan Das. Room temperature electrically injected polariton laser. *Phys. Rev. Lett.*, 112 :236802, 2014.

[60] Benoit Deveaud. Comment on “room temperature electrically injected polariton laser”. *Phys. Rev. Lett.*, 117 :029701, 2016.

[61] Masaaki Nakayama, Shingo Komura, Toshiki Kawase, and DaeGwi Kim. Observation of exciton polaritons in a zno microcavity with hfo2/sio2 distributed bragg reflectors. *Journal of the Physical Society of Japan*, 77(9) :093705, 2008.

[62] F. Médard, J. Zuniga-Perez, P. Disseix, M. Mihailovic, J. Leymarie, A. Vasson, F. Semond, E. Frayssinet, J. C. Moreno, M. Leroux, S. Faure, and T. Guillet. Experimental observation of strong light-matter coupling in zno microcavities : Influence of large excitonic absorption. *Phys. Rev. B*, 79 :125302, 2009.

[63] R. Shimada, J. Xie, V. Avrutin, Ü. Özgür, and H. Morkoč. Cavity polaritons in zno-based hybrid microcavities. *Applied Physics Letters*, 92(1) :011127, 2008.

[64] R. Schmidt-Grund, B. Rheinländer, C. Czekalla, G. Benndorf, H. Hochmuth, M. Lorenz, and M. Grundmann. Exciton–polariton formation at room temperature in a planar zno resonator structure. *Applied Physics B*, 93(2) :331–337, 2008.

[65] Jun-Rong Chen, Tien-Chang Lu, Yung-Chi Wu, Shiang-Chi Lin, Wei-Rein Liu, Wen-Feng Hsieh, Chien-Cheng Kuo, and Cheng-Chung Lee. Large vacuum rabi splitting in zno-based hybrid microcavities observed at room temperature. *Applied Physics Letters*, 94(6) :061103, 2009.

[66] T. Guillet, M. Mexis, J. Levrat, G. Rossbach, C. Brimont, T. Bretagnon, B. Gil, R. Butté, N. Grandjean, L. Orosz, F. Réveret, J. Leymarie, J. Zuniga-Pérez, M. Leroux, F. Semond, and S. Bouchoule. Polariton lasing in a hybrid bulk zno microcavity. *Applied Physics Letters*, 99(16) :161104, 2011.

[67] Helena Franke, Chris Sturm, Rüdiger Schmidt-Grund, Gerald Wagner, and Marius Grundmann. Ballistic propagation of exciton–polariton condensates in a zno-based microcavity. *New Journal of Physics*, 14(1) :013037, 2012.

[68] Tien-Chang Lu, Ying-Yu Lai, Yu-Pin Lan, Si-Wei Huang, Jun-Rong Chen, Yung-Chi Wu, Wen-Feng Hsieh, and Hui Deng. Room temperature polariton lasing vs. photon lasing in a zno-based hybrid microcavity. *Opt. Express*, 20(5) :5530–5537, 2012.

[69] Feng Li, L. Orosz, O. Kamoun, S. Bouchoule, C. Brimont, P. Disseix, T. Guillet, X. Lafosse, M. Leroux, J. Leymarie, G. Malpuech, M. Mexis, M. Mihailovic, G. Patriarche, F. Réveret, D. Solnyshkov, and J. Zuniga-Perez. Fabrication and characterization of a room-temperature zno polariton laser. *Applied Physics Letters*, 102(19) :191118, 2013.

[70] L. Orosz, F. Réveret, F. Médard, P. Disseix, J. Leymarie, M. Mihailovic, D. Solnyshkov, G. Malpuech, J. Zuniga-Pérez, F. Semond, M. Leroux, S. Bouchoule, X. Lafosse, M. Mexis, C. Brimont, and T. Guillet. Lo-phonon-assisted polariton lasing in a zno-based microcavity. *Phys. Rev. B*, 85 :121201, 2012.

[71] Feng Li, L. Orosz, O. Kamoun, S. Bouchoule, C. Brimont, P. Disseix, T. Guillet, X. Lafosse, M. Leroux, J. Leymarie, M. Mexis, M. Mihailovic, G. Patriarche, F. Réveret, D. Solnyshkov, J. Zuniga-Perez, and G. Malpuech. From excitonic to photonic polariton condensate in a zno-based microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :196406, 2013.

[72] Goro Oohata, Takashi Nishioka, Daegwi Kim, Hajime Ishihara, and Masaaki Nakayama. Giant rabi splitting in a bulk cucl microcavity. *Physical Review B*, 78(23) :233304, 2008.

[73] Masaaki Nakayama, Masanobu Kameda, Toshiki Kawase, and DaeGwi Kim. Control of rabi-splitting energies of exciton polaritons in cui microcavities. *The European Physical Journal B*, 86(2) :32, 2013.

[74] Masaaki Nakayama and Masafumi Ueda. Observation of diffusive and dispersive profiles of the nonequilibrium polariton-condensate dispersion relation in a cubr microcavity. *Physical Review B*, 95(12) :125315, 2017.

[75] Hai Son Nguyen, Zheng Han, Katia Abdel-Baki, Xavier Lafosse, Alberto Amo, J-S Lauret, Emmanuelle Deleporte, Sophie Bouchoule, and Jacqueline Bloch. Quantum confinement of zero-dimensional hybrid organic-inorganic polaritons at room temperature. *Applied Physics Letters*, 104(8) :081103, 2014.

[76] Rui Su, Carole Diederichs, Jun Wang, Timothy CH Liew, Jiaxin Zhao, Sheng Liu, Weigao Xu, Zhanghai Chen, and Qihua Xiong. Room-temperature polariton lasing in all-inorganic perovskite nanoplatelets. *Nano letters*, 17(6) :3982–3988, 2017.

[77] S Kéna-Cohen and SR Forrest. Room-temperature polariton lasing in an organic single-crystal microcavity. *Nature Photonics*, 4(6) :371, 2010.

[78] KS Daskalakis, SA Maier, Ray Murray, and Stéphane Kéna-Cohen. Nonlinear interactions in an organic polariton condensate. *Nature materials*, 13(3) :271, 2014.

[79] Johannes D Plumhof, Thilo Stöferle, Lijian Mai, Ullrich Scherf, and Rainer F Mahrt. Room-temperature bose–einstein condensation of cavity exciton–polaritons in a polymer. *Nature materials*, 13(3) :247, 2014.

[80] Tamsin Cookson, Kyriacos Georgiou, Anton Zasedatelev, Richard T Grant, Tersilla Virgili, Marco Cavazzini, Francesco Galeotti, Caspar Clark, Natalia G Berloff, David G Lidzey, et al. A yellow polariton condensate in a dye filled microcavity. *Advanced Optical Materials*, 5(18) :1700203, 2017.

[81] C. P. Dietrich, A. Steude, L. Tropf, M. Schubert, N. M. Kronenberg, K. Ostermann, S. Hofling, and M. C. Gather. *Science Advances*, 2 :1600666, 2016.

[82] Giovanni Lerario, Antonio Fieramosca, Fábio Barachati, Dario Ballarini, Konstantinos S Daskalakis, Lorenzo Dominici, Milena De Giorgi, Stefan A Maier, Giuseppe Gigli, Stéphane Kéna-Cohen, et al. Room-temperature superfluidity in a polariton condensate. *Nature Physics*, 13(9) :837, 2017.

[83] Daniele Bajoni, Pascale Senellart, Esther Wertz, Isabelle Sagnes, Audrey Miard, Aristide Lemaître, and Jacqueline Bloch. Polariton laser using single micropillar $gaas - gaalas$ semiconductor cavities. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :047401, 2008.

[84] Lydie Ferrier, Esther Wertz, Robert Johne, Dmitry D Solnyshkov, Pascale Senellart, Isabelle Sagnes, Aristide Lemaître, Guillaume Malpuech, and Jacqueline Bloch. Interactions in confined polariton condensates. *Physical Review Letters*, 106(12) :126401, 2011.

[85] A. Trichet, L. Sun, G. Pavlovic, N.A. Gippius, G. Malpuech, W. Xie, Z. Chen, M. Richard, and Le Si Dang. One-dimensional zno exciton polaritons with negligible thermal broadening at room temperature. *Phys. Rev. B*, 83 :041302, 2011.

[86] Qingqing Duan, Dan Xu, Wenhui Liu, Jian Lu, Long Zhang, Jian Wang, Yinglei Wang, Jie Gu, Tao Hu, Wei Xie, Xuechu Shen, and Zhanghai Chen. Polariton lasing of quasi-whispering gallery modes in a zno microwire. *Applied Physics Letters*, 103(2) :022103, 2013.

[87] Lambert K van Vugt, Sven Rühle, Prasanth Ravindran, Hans C Gerritsen, Laurens Kuipers, and Daniël Vanmaekelbergh. Exciton polaritons confined in a zno nanowire cavity. *Physical review letters*, 97(14) :147401, 2006.

[88] Jang-Won Kang, Bokyung Song, Wenjing Liu, Seong-Ju Park, Ritesh Agarwal, and Chang-Hee Cho. Room temperature polariton lasing in quantum heterostructure nanocavities. *Science advances*, 5(4) :eaau9338, 2019.

[89] Stefano Azzini, Dario Gerace, Matteo Galli, Isabelle Sagnes, Rémy Braive, Aristide Lemaître, Jacqueline Bloch, and Daniele Bajoni. Ultra-low threshold polariton lasing in photonic crystal cavities. *Applied Physics Letters*, 99(11) :111106, 2011.

[90] Long Zhang, Rahul Gogna, Will Burg, Emanuel Tutuc, and Hui Deng. Photonic-crystal exciton-polaritons in monolayer semiconductors. *Nature communications*, 9(1) :713, 2018.

[91] F. Réveret, L. Bignet, W. Zhigang, X. Lafosse, G. Patriarche, P. Disseix, F. Médard, M. Mihailovic, J. Leymarie, J. Zuniga-Pérez, and S. Bouchoule. High reflectance dielectric distributed bragg reflectors for near ultra-violet planar microcavities : sio_2/hfo_2 versus sio_2/sin_x. *Journal of Applied Physics*, 120(9) :093107, 2016.

[92] R. Johne, D. D. Solnyshkov, and G. Malpuech. Theory of exciton-polariton lasing at room temperature in zno microcavities. *Applied Physics Letters*, 93(21) :211105, 2008.

[93] Maxime Richard, Robert Romestain, Régis André, and Le Si Dang. Consequences of strong coupling between excitons and microcavity leaky modes. *Applied Physics Letters*, 86(7) :071916, 2005.

[94] Laurent Orosz, Francois Réveret, Sophie Bouchoule, Jésus Zuniga-Pérez, Francois Médard, Joel Leymarie, Pierre Disseix, Martine Mihailovic, Eric Frayssinet, Fabrice Semond, Mathieu Leroux, Meletios Mexis, Christelle Brimont, and Thierry Guillet. Fabrication and optical properties of a fully-hybrid epitaxial zno-based microcavity in the strong-coupling regime. *Applied Physics Express*, 4(7) :072001, 2011.

[95] V Savona and F Tassone. Exact quantum calculation of polariton dispersion in semiconductor microcavities. *Solid State Communications*, 95(10) :673 – 678, 1995.

[96] G. Panzarini, L.C. Andreani, A. Armitage, D. Baxter, M.S. Skolnick, V.N. Astratov, J.S. Roberts, A.V. Kavokin, M.R. Vladimirova, and M.A. Kaliteevski. *Phys. Rev. B*, 59 :5082, 1999.

[97] F. Réveret, F. Médard, P. Disseix, J. Leymarie, M. Mihailovic, A. Vasson, I.R. Sellers, F. Semond, M. Leroux, and J. Massies. Optical investigations of bulk and multi-quantum well nitride-based microcavities. *Optical Materials*, 31(3) :505 – 509, 2009. Proceedings of the French - Polish Symposium on Spectroscopy of Modern Materials in Physics, Chemistry and Biology.

[98] E. Mallet. *Etude des propriétés polaritoniques de ZnO et GaN. Application à l'étude de l'effet laser à polaritons dans une microcavité.* PhD thesis, Université Blaise Pascal, 2014.

[99] E. Mallet, P. Disseix, D. Lagarde, M. Mihailovic, F. Réveret, T. V. Shubina, and J. Leymarie. Accurate determination of homogeneous and inhomogeneous excitonic broadening in zno by linear and nonlinear spectroscopies. *Phys. Rev. B*, 87 :161202, 2013.

[100] E. Mallet, F. Réveret, P. Disseix, T. V. Shubina, and J. Leymarie. Influence of excitonic oscillator strengths on the optical properties of gan and zno. *Phys. Rev. B*, 90 :045204, 2014.

[101] Raphaël Butté, Jacques Levrat, Gabriel Christmann, Eric Feltin, Jean-Fran çois Carlin, and Nicolas Grandjean. Phase diagram of a polariton laser from cryogenic to room temperature. *Phys. Rev. B*, 80 :233301, 2009.

[102] N. Antoine-Vincent, F. Natali, M. Mihailovic, A. Vasson, J. Leymarie, P. Disseix, D. Byrne, F. Semond, and J. Massies. Determination of the refractive indices of aln, gan, and alxga1−xn grown on (111)si substrates. *Journal of Applied Physics*, 93(9) :5222, 2003.

[103] M. Wille, C. Sturm, T. Michalsky, R. Röder, C. Ronning, R. Schmidt-Grund, and M. Grundmann. Carrier density driven lasing dynamics in zno nanowires. *Nanotechnology*, 27 :225702, 2016.

[104] Pasquale Cilibrizzi, Alexis Askitopoulos, Matteo Silva, Faebian Bastiman, Edmund Clarke, Joanna M. Zajac, Wolfgang Langbein, and Pavlos G. Lagoudakis. Polariton condensation in a strain-compensated planar microcavity with ingaas quantum wells. *Applied Physics Letters*, 105(19) :191118, 2014.

[105] Ivan Pelant and Jan Valenta. *Luminescence spectroscopy of semiconductors.* Oxford press, 2012.

[106] J. Kasprzak, D. D. Solnyshkov, R. André, Le Si Dang, and G. Malpuech. Formation of an exciton polariton condensate : Thermodynamic versus kinetic regimes. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :146404, 2008.

[107] M. Maragkou, A. J. D. Grundy, T. Ostatnický, and P. G. Lagoudakis. Longitudinal optical phonon assisted polariton laser. *Applied Physics Letters*, 97(11) :111110, 2010.

[108] M O'Neill, M Oestreich, WW Rühle, and DE Ashenford. Exciton radiative decay and homogeneous broadening in cdte/cd 0.85 mn 0.15 te multiple quantum wells. *Physical Review B*, 48(12) :8980, 1993.

[109] DS Chemla, D Miller, P Smith, A Gossard, and William Wiegmann. Room temperature excitonic nonlinear absorption and refraction in gaas/algaas multiple quantum well structures. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 20(3) :265–275, 1984.

[110] Omar Jamadi. *Spectroscopie de condensat polaritoniques dans les microcavités et guides d'onde à base de GaN et ZnO.* PhD thesis, Université Clermont Auvergne, 2018.

[111] Richard M, Wouters M, and Dang L, S. *Optical Generation and Control of Quantum Coherence in Semiconductor Nanostructures.* edited by G. Slavcheva and P. Roussignol - Springer, New York, 2010.

[112] Esther Wertz, Lydie Ferrier, Dmitry D Solnyshkov, Pascale Senellart, Daniele Bajoni, Audrey Miard, Aristide Lemaître, Guillaume Malpuech, and Jacqueline Bloch. Spontaneous formation of a polariton condensate in a planar gaas microcavity. *Applied Physics Letters*, 95(5) :051108, 2009.

[113] Aurélien Trichet, Emilien Durupt, Fran çois Médard, Sanjoy Datta, Anna Minguzzi, and Maxime Richard. Long-range correlations in a 97condensate. *Phys. Rev. B*, 88 :121407, 2013.

[114] Aurélien Trichet, François Médard, J Zúñiga-Pérez, B Alloing, and Maxime Richard. From strong to weak coupling regime in a single gan microwire up to room temperature. *New Journal of Physics*, 14(7) :073004, 2012.

[115] Oliver Brandt, Jens Ringling, Klaus H Ploog, Hans-Jürgen Wünsche, and Fritz Henneberger. Temperature dependence of the radiative lifetime in gan. *Physical Review B*, 58(24) :R15977, 1998.

[116] GE Bunea, WD Herzog, MS Ünlü, BB Goldberg, and RJ Molnar. Time-resolved photoluminescence studies of free and donor-bound exciton in gan grown by hydride vapor phase epitaxy. *Applied physics letters*, 75(6) :838–840, 1999.

[117] Jun-Seok Hwang, Fabrice Donatini, Julien Pernot, Robin Thierry, Pierre Ferret, and Le Si Dang. Carrier depletion and exciton diffusion in a single zno nanowire. *Nanotechnology*, 22(47) :475704, 2011.

[118] Naoyuki Ino and Naoki Yamamoto. Low temperature diffusion length of excitons in gallium nitride measured by cathodoluminescence technique. *Applied Physics Letters*, 93(23) :232103, 2008.

[119] JY Duboz, F Binet, D Dolfi, N Laurent, F Scholz, J Off, A Sohmer, Olivier Briot, and Bernard Gil. Diffusion length of photoexcited carriers in gan. *Materials Science and Engineering : B*, 50(1-3) :289–295, 1997.

[120] Euan Hendry, Mattijs Koeberg, and Mischa Bonn. Exciton and electron-hole plasma formation dynamics in zno. *Physical Review B*, 76(4) :045214, 2007.

[121] Claus Klingshirn, Robert Hauschild, Johannes Fallert, and Heinz Kalt. Room-temperature stimulated emission of zno : Alternatives to excitonic lasing. *Phys. Rev. B*, 75 :115203, 2007.

[122] Marijn A. M. Versteegh, Tim Kuis, H. T. C. Stoof, and Jaap I. Dijkhuis. Ultrafast screening and carrier dynamics in zno : Theory and experiment. *Phys. Rev. B*, 84 :035207, 2011.

[123] S Hess, RA Taylor, JF Ryan, B Beaumont, and P Gibart. Optical gain in gan epilayers. *Applied physics letters*, 73(2) :199–201, 1998.

[124] F Binet, JY Duboz, J Off, and F Scholz. High-excitation photoluminescence in gan : Hot-carrier effects and the mott transition. *Physical Review B*, 60(7) :4715, 1999.

[125] Takehiko Nagai, Takeshi J Inagaki, and Yoshihiko Kanemitsu. Band-gap renormalization in highly excited gan. *Applied physics letters*, 84(8) :1284–1286, 2004.

[126] K Kyhm, RA Taylor, JFR Ryan, B Beaumont, and P Gibart. Electron-hole plasma mott transition and stimulated emission in gan. 2004.

[127] S Hess, RA Taylor, K Kyhm, JF Ryan, B Beaumont, and P Gibart. Femtosecond exciton dynamics and the mott transition in gan under resonant excitation. *physica status solidi (b)*, 216(1) :57–62, 1999.

[128] C Klingshirn, J Fallert, O Gogolin, M Wissinger, R Hauschild, M Hauser, H Kalt, and H Zhou. Linear and nonlinear optics, dynamics, and lasing in zno bulk and nanostructures. *Journal of Luminescence*, 128(5-6) :792–796, 2008.

[129] R Zimmermann. Nonlinear optics and the mott transition in semiconductors. *physica status solidi (b)*, 146(1) :371–384, 1988.

[130] Claus F Klingshirn. *Semiconductor optics*. Springer Science & Business Media, 2012.

[131] ZK Tang, George KL Wong, P Yu, M Kawasaki, A Ohtomo, H Koinuma, and Y Segawa. Room-temperature ultraviolet laser emission from self-assembled zno microcrystallite thin films. *Applied Physics Letters*, 72(25) :3270–3272, 1998.

[132] Yefan Chen, NT Tuan, Yusaburo Segawa, Hang-ju Ko, Soon-ku Hong, and Takafumi Yao. Stimulated emission and optical gain in zno epilayers grown by plasma-assisted molecular-beam epitaxy with buffers. *Applied Physics Letters*, 78(11) :1469–1471, 2001.

[133] Chi-Kuang Sun, Shih-Ze Sun, Kung-Hsuan Lin, Kenneth Yi-Jie Zhang, Hsiang-Lin Liu, Sai-Chang Liu, and Jih-Jen Wu. Ultrafast carrier dynamics in zno nanorods. *Applied Physics Letters*, 87(2) :023106, 2005.

[134] Nobuyuki Arai, Jun Takeda, Hang-Ju Ko, and Takafumi Yao. Dynamics of high-density excitons and electron–hole plasma in zno epitaxial thin films. *Journal of luminescence*, 119 :346–349, 2006.

[135] Elena Kammann, Hamid Ohadi, Maria Maragkou, Alexey V Kavokin, and Pavlos G Lagoudakis. Crossover from photon to exciton-polariton lasing. *New Journal of Physics*, 14(10) :105003, 2012.

[136] S Kalusniak, S Sadofev, S Halm, and F Henneberger. Vertical cavity surface emitting laser action of an all monolithic zno-based microcavity. *Applied Physics Letters*, 98(1) :011101, 2011.

[137] Thierry Guillet, Christelle Brimont, Pierre Valvin, Bernard Gil, Thierry Bretagnon, F Médard, Martine Mihailovic, Jesús Zúñiga-Pérez, Mathieu Leroux, F Semond, et al. Laser emission with excitonic gain in a zno planar microcavity. *Applied Physics Letters*, 98(21) :211105, 2011.

[138] Raphaël Butté, Gabriel Christmann, Eric Feltin, Antonino Castiglia, Jacques Levrat, Gatien Cosendey, Alexei Altoukhov, Jean-François Carlin, and Nicolas Grandjean. Room temperature polariton lasing in iii-nitride microcavities : a comparison with blue gan-based vertical cavity surface emitting lasers. In *Gallium Nitride Materials and Devices IV*, volume 7216, page 721619. International Society for Optics and Photonics, 2009.

[139] Joan M Redwing, David AS Loeber, Neal G Anderson, Michael A Tischler, and Jeffrey S Flynn. An optically pumped gan–algan vertical cavity surface emitting laser. *Applied physics letters*, 69(1) :1–3, 1996.

[140] Takao Someya, Ralph Werner, Alfred Forchel, Massimo Catalano, Roberto Cingolani, and Yasuhiko Arakawa. Room temperature lasing at blue wavelengths in gallium nitride microcavities. *Science*, 285(5435) :1905–1906, 1999.

[141] Tsu-Chi Chang, Shuo-Yi Kuo, Ehsan Hashemi, Åsa Haglund, and Tien-Chang Lu. Lasing action in gan-based vcsels with top high-contrast grating reflectors. In *2018 IEEE International Semiconductor Laser Conference (ISLC)*, pages 1–2. IEEE, 2018.

[142] Jiang-Yong Zhang, Li-E Cai, Bao-Ping Zhang, Shui-Qing Li, Feng Lin, Jing-Zhi Shang, Du-Xiang Wang, Ke-Chuang Lin, Jin-Zhong Yu, and Qi-Ming Wang. Blue-violet lasing of optically pumped gan-based vertical cavity surface-emitting laser with dielectric distributed bragg reflectors. *Journal of Lightwave Technology*, 27(1) :55–59, 2009.

[143] Y-K Song, H Zhou, M Diagne, AV Nurmikko, RP Schneider Jr, CP Kuo, MR Krames, RS Kern, C Carter-Coman, and FA Kish. A quasicontinuous wave, optically pumped violet vertical cavity surface emitting laser. *Applied Physics Letters*, 76(13) :1662–1664, 2000.

[144] Hailong Zhou, M Diagne, E Makarona, AV Nurmikko, JUNG Han, KE Waldrip, and JEFFREY J Figiel. Near ultraviolet optically pumped vertical cavity laser. *Electronics Letters*, 36(21) :1777–1779, 2000.

[145] C-K Sun, S Keller, G Wang, MS Minsky, JE Bowers, and SP DenBaars. Radiative recombination lifetime measurements of ingan single quantum well. *Applied physics letters*, 69(13) :1936–1938, 1996.

[146] M Shahmohammadi, W Liu, G Rossbach, L Lahourcade, A Dussaigne, Catherine Bougerol, R Butté, N Grandjean, B Deveaud, and G Jacopin. Enhancement of auger recombination induced by carrier localization in ingan/gan quantum wells. *Physical Review B*, 95(12) :125314, 2017.

[147] C Sturm, D Tanese, HS Nguyen, H Flayac, E Galopin, A Lemaître, I Sagnes, D Solnyshkov, A Amo, G Malpuech, et al. All-optical phase modulation in a cavity-polariton mach–zehnder interferometer. *Nature communications*, 5 :3278, 2014.

[148] D. D. Solnyshkov, H. Tercas, and G. Malpuech. Optical amplifier based on guided polaritons in gan and zno. *Appl. Phys. Lett.*, 105 :231102, 2014.

[149] L. Orosz. *Etude des microcavités planaires ZnO dans le régime de couplage fort*. PhD thesis, Université Blaise Pascal, 2013.

[150] Omar Jamadi, François Réveret, Pierre Disseix, François Medard, Joël Leymarie, et al. Edge-emitting polariton laser and amplifier based on a zno waveguide. *Light : Science & Applications*, 7(1) :82, 2018.

[151] P. M. Walker, L. Tinkler, D. V. Skryabin, A. Yulin, B. Royall, I. Farrer, D. A. Ritchie, M. S. Skolnick, and D. N. Krizhanovskii. Ultra-low-power hybrid light–matter solitons. *Nature Communications*, 6 :8317, 2015.

[152] Tal Ellenbogen and Kenneth B. Crozier. Exciton-polariton emission from organic semiconductor optical waveguides. *Phys. Rev. B*, 84 :161304, 2011.

[153] P. M. Walker, L. Tinkler, M. Durska, D. M. Whittaker, I. J. Luxmoore, B. Royall, D. N. Krizhanovskii, M. S. Skolnick, I. Farrer, and D. A. Ritchie. Exciton polaritons in semiconductor waveguides. *Appl. Phys. Lett.*, 102 :012109, 2013.

[154] J. Ciers, J. G. Roch, J.-F. Carlin, G. Jacopin, R. Butté, and N. Grandjean. Propagating polaritons in iii-nitride slab waveguides. *Phys. Rev. Applied*, 7 :034019, 2017.

[155] P. M. Walker, L. Tinkler, B. Royall, D. V. Skryabin, I. Farrer, D. A. Ritchie, M. S. Skolnick, and D. N. Krizhanovskii. Dark solitons in high velocity waveguide polariton fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 119 :097403, 2017.

[156] SL Chuang and CS Chang. kp method for strained wurtzite semiconductors. *Physical Review B*, 54(4) :2491, 1996.

[157] J. Zuniga-Perez, L. Kappei, C. Deparis, F. Reveret, M. Grundmann, E. de Prado, O. Jamadi, J. Leymarie, S. Chenot, and M. Leroux. Homoepitaxial nonpolar (10-10) zno/znmgo monolithic microcavities : Towards reduced photonic disorder. *Appl. Phys. Lett.*, 108 :251904, 2016.

[158] O Jamadi, F Réveret, D Solnyshkov, P Disseix, J Leymarie, L Mallet-Dida, Christelle Brimont, Thierry Guillet, X Lafosse, S Bouchoule, et al. Competition between horizontal and vertical polariton lasing in planar microcavities. *Physical Review B*, 99(8) :085304, 2019.