

# SPECTROSCOPIE EN ESPACE RÉCIPROQUE DE POLARITONS CONFINÉS DANS UNE MICROCAVITÉ SEMICONDUCTRICE

THÈSE N° 3473 (2006)

PRÉSENTÉE À LA FACULTÉ SCIENCES DE BASE

Laboratoire d'optoélectronique quantique

SECTION DE PHYSIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

PAR

**Reda IDRISSI KAITOUNI**

Ingénieur physicien diplômé EPF  
et de nationalité marocaine

acceptée sur proposition du jury:

Prof. H. Brune, président du jury  
Prof. B. Devaud-Plédran, directeur de thèse  
Dr J. Bloch, rapporteur  
Dr D. Le Si Dang, rapporteur  
Prof. V. Savona, rapporteur



ÉCOLE POLYTECHNIQUE  
FÉDÉRALE DE LAUSANNE

Lausanne, EPFL

2006



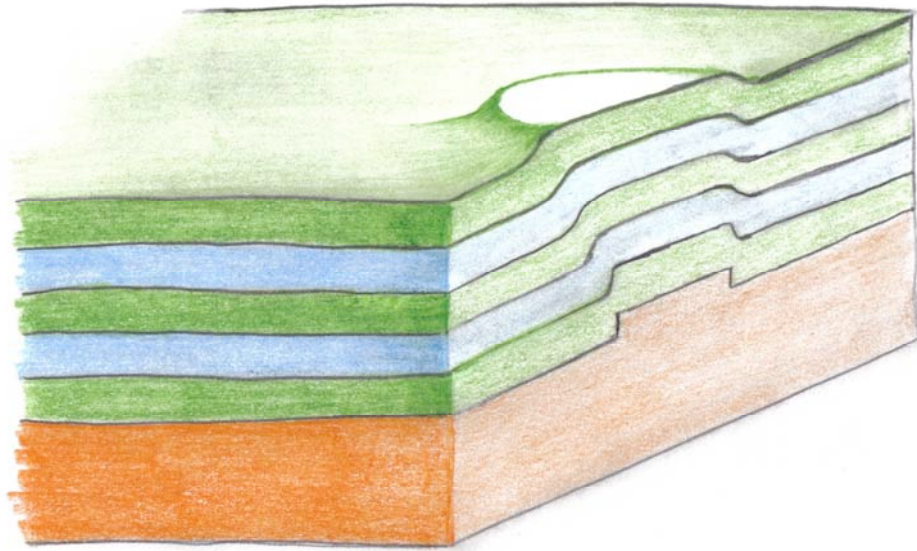
# Spectroscopie en espace réciproque de polaritons confinés dans une microcavité semiconductrice

Thèse de doctorat présentée par M. Reda Idrissi Kaitouni

À l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne

Sous la direction du Prof. Benoît Deveaud-Plédran

Lausanne, le 9 février 2006



\* Dessin de Vincenzo Savona



*À mon père,  
ma mère,  
ma soeur,  
et mon frère.*

*Avec la plus profonde des gratitudes.*



À la regrettée *Stéphanie*  
(01/07/1979 – 05/01/2006)

Merci pour ta valeureuse amitié.  
Nous ne t'oublierons jamais.





# Remerciements

En premier lieu, et au-delà des conventions, je souhaite remercier mon directeur de thèse, le Prof. Benoît Deveaud-Plédran, auprès duquel, et sous sa bienveillante supervision, j'ai pu effectuer ce modeste travail. Je réalise combien il est agréable d'avoir un directeur de thèse qui parvient toujours à trouver les financements nécessaires à la réalisation d'un tel projet. Par ailleurs, lorsque le directeur thèse dispose de la connaissance rigoureuse, et étendue, du domaine dans lequel le sujet de thèse est situé, cela représente un avantage certain au bon déroulement du travail.

En second lieu, je souhaite remercier deux personnes qui ont particulièrement contribué à la bonne marche de ce travail : le Dr. Jean-Daniel Ganière et le Prof. Vincenzo Savona. Le premier a su m'initier aux méthodologies expérimentales rigoureuses qui ont conduit à la haute qualité de mes résultats expérimentaux. De plus, je le remercie pour les nombreuses fois où il m'a dépanné au laboratoire, et pour les innombrables jetons de café qu'il m'a offerts. Son soutien fut à bien des égards précieux, notamment lors des moments de vif découragement. Le second a su me conduire dans les mesures expérimentales à effectuer et dans l'interprétation rigoureuse des résultats. Par ailleurs, il est à l'origine de la théorie présentée dans ce manuscrit. Je le remercie pour les nombreux instants, forts agréables, que nous avons passés à la cafétéria et dans son bureau, fussent-ils pour parler de physique, de politique italienne ou de la vie en général. Sa courtoisie, sa gentillesse et son honnêteté intellectuelle représentent autant de qualités humaines que j'ai apprécées lors de notre collaboration.

Il va de soi que je remercie l'ensemble de mes collègues pour leur collaboration à ce travail. Je pense particulièrement à Ounsi, Maxime, Stefan, Samuel, Jean, Christian, Andrea Crottini, Pierre Renucci, Pierre Lugan, Jean-Louis Staehli, Marcia, Marc-André, Claire-Lyse. . . Je n'oublie évidemment pas les membres techniques du groupe, notamment Roger Rochat et Hans-Jorg pour la réalisation des pièces de laboratoire, ainsi que François pour la croissance

de l'échantillon. Il serait fastidieux de citer l'ensemble des personnes avec lesquelles j'ai collaboré de près ou de loin, et avec lesquelles j'ai partagé de bons moments autres qu'exclusivement professionnels. Je remercie donc l'ensemble des membres du groupe (LOEQ) et de l'institut (IPEQ), ainsi que ceux de la section de physique. Je pense, notamment, au Prof. Libero Zuppiroli que je remercie pour son soutien moral et pour la joie qu'il a pu me procurer à de maintes reprises lors de nos discussions sur autant de sujets personnels qu'intellectuels (histoire des sciences, politique de l'enseignement, philosophie. . .). Je remercie aussi le Dr. François Reuse dont les hautes exigences intellectuelles quant aux concepts et à la rigueur ne furent pas pour me déplaire durant nos discussions, bien que je fusse souvent en peine de porter si haut le discours. Je remercie aussi le Dr. Romual Houdré pour nos longues discussions sur l'état du monde et la politique internationale.

Évidemment, mes amis intimes m'ont soutenu durant toutes ces années. Je tiens à les en remercier. Je ne ferai pas de liste exhaustive, mais je remercie quand même en vrac (en espérant n'oublier personne, car je suis pressé de conclure!) Linda, Amine, Alex, Alexa, Arnaud, Miriam, Dragana, Nenad, Stéphane, Manu, Brahim, Philippe G., Philippe B., Marie, Gilles, Fabien, Céline, Raphaël, Laurent, Pierre, Richard, Séverine, Serge, Leonor, Mounir, Fred, Aïda, Jean-Guillaume, Clemens, Mehdi E. O., Thomas, Mehdi B., Kenza. . . et plein d'autres (milles pardons à ceux que j'ai oubliés). J'ai une pensée toute particulière pour Stéphanie dont le décès tragique à quelques jours du rendu de ma thèse m'a profondément bouleversé. Son amitié me fut précieuse ces huit dernières années. Je regrette qu'elle ne puisse voir l'aboutissement de ce travail alors qu'elle a suivi tout mon parcours.

Il va sans dire que les deux personnes déterminantes, auxquelles je dois ce que je suis, et où j'en suis, sont mes parents. Je leur exprime ma profonde gratitude pour leur aide, leur soutien et leurs encouragements toutes ces années durant. Je remercie surtout mon père qui a su me conduire et m'aiguiller dans mes choix tout en respectant ma liberté et mon autonomie. Avec tout l'amour filial, je les remercie. Je remercie aussi mon frère et ma soeur auxquels j'exprime tout mon amour fraternel, et je n'ignore pas toute la considération et l'affection qu'ils me portent. Enfin, je remercie l'ensemble de ma grande famille, notamment, Najim de m'avoir parfois conseillé dans mes affaires universitaires. Je remercie aussi Omar, ainsi que Ouafae, dont l'arrivée tardive en Suisse a représenté pour moi un petit peu de mon Maroc en Suisse, notamment, lors de la rédaction de ma thèse.

# Version abrégée

Les polaritons sont des quasi-particules constituées de photons et d'excitons. Ils représentent l'excitation électronique fondamentale d'un cristal en interaction avec le champ électromagnétique.

Dans des microcavités semiconductrices, les polaritons sont confinés dans une direction de l'espace, et peuvent être décrits comme des quasi-particules bidimensionnelles de faible masse effective –  $10^{-5}$  fois la masse de l'électron libre. Par le fait de leur grande vitesse de groupe, leur confinement spatial s'impose comme un défi pour leur étude. Par ailleurs, les piéger spatialement serait de tout bénéfice pour l'observation de la condensation de Bose-Einstein des polaritons telle que déjà réalisée pour les atomes alcalins.

Dans ce travail de thèse, nous rapportons la première conception d'un piège spatial pour les polaritons, au moyen de petites variations circulaires, et micrométriques, de l'épaisseur d'une microcavité. À cause de leur légère masse, les polaritons confinés manifestent des niveaux d'énergies quantifiées qui sont délocalisées dans l'espace réciproque, et ceci, pour des dimensions de confinement de plusieurs microns.

Nous avons étudié ces différents états discrets de polariton grâce à une expérience de photoluminescence résolue en angle et en énergie. L'élaboration d'un modèle théorique permet de donner à l'interprétation des résultats expérimentaux une plus grande acuité. Cette nouvelle structure est très efficace pour le confinement spatial, et ouvre de nombreuses perspectives à la fabrication de microdispositifs usants de nouvelles propriétés physiques telles que les phénomènes collectifs.

**Mots-clés** : polaritons, excitons, microcavité, confinement spatial



# Summary

Polaritons are hybrid quasi-particles made of photons and excitons. They represent the fundamental electronic excitations of an insulator interacting with the electromagnetic field.

In planar semiconductor microcavities, polaritons are confined along one spatial direction and can be described as two-dimensional quasi-particles possessing a very light effective mass of the order of  $10^{-5}$  times the free electron mass. Their spatial confinement in the two lateral directions is a challenging task because of the large group velocity. On the other hand, spatial trapping would be beneficial for the long sought phenomenon of polariton Bose-Einstein Condensation, as it proved to be for BEC of alkali atoms.

Here, we report on the first realization of a spatial trap for polaritons through local variations of a microcavity thickness, within micrometer sized circular regions. Due to their very light mass, confined polaritons display quantized energy levels that are delocalized in reciprocal space, already when trapped within a spatial region of several microns.

We characterize these levels using angle-resolved emission spectroscopy and in comparison with a theoretical model. This novel structure proves very effective in producing spatial confinement and opens the way for the realization of mesoscopic devices showing quantum collective phenomena.

**Keywords** : polaritons, excitons, microcavity, spatial confinement



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>15</b>
<b>1 Confinement spatial de polaritons dans une microcavité semi-conductrice</b>	<b>19</b>
1.1 Les polaritons d'une microcavité semiconductrice . . . . .	20
1.1.1 L'exciton . . . . .	20
1.1.2 La microcavité ou le confinement photonique . . . . .	25
1.1.3 L'interaction entre les excitons et les photons . . . . .	32
1.1.4 Les polaritons de microcavité et quelques unes de leurs propriétés . . . . .	36
1.2 Le confinement spatial des polaritons . . . . .	39
1.2.1 L'idée du confinement . . . . .	39
1.2.2 Le principe d'une microcavité à plots . . . . .	41
1.2.3 L'échantillon d'une microcavité semiconductrice à plots . . . . .	42
<b>2 Spectroscopie en espace réciproque de la photoluminescence d'une microcavité</b>	<b>47</b>
2.1 Imagerie optique . . . . .	47
2.1.1 Formation d'images en optique géométrique . . . . .	48
2.1.2 Formation d'images en optique ondulatoire (ou optique de Fourier) . . . . .	55
2.1.3 Système d'imagerie des espaces direct et réciproque . . . . .	60
2.2 Spectroscopie en photoluminescence . . . . .	62
2.2.1 Principe d'un monochromateur . . . . .	62
2.2.2 Imagerie avec un monochromateur . . . . .	65
2.2.3 Détection avec une caméra CCD . . . . .	75
2.3 Montage expérimental . . . . .	77
2.3.1 Excitation optique . . . . .	77
2.3.2 Cryostat à fenêtre optique . . . . .	79
2.3.3 Symétrie du plan de Fourier . . . . .	80

<b>3</b>	<b>Photoluminescence d'un système de polaritons étendus (2D) et confinés (0D)</b>	<b>83</b>
3.1	Les nouveaux modes de polaritons . . . . .	83
3.1.1	Les modes confinés et étendus du champ électromagnétique dans une microcavité à plots . . . . .	84
3.1.2	Densité optique des modes propres d'une microcavité à plots : les <i>polaritons 0D &amp; 2D</i> . . . . .	87
3.2	Photoluminescence d'une microcavité à plots en couplage fort	93
3.2.1	Le spectre PL discret des polaritons confinés . . . . .	96
3.2.2	Thermodynamique et relaxation dans le piège . . . . .	100
3.3	Photoluminescence en forte densité d'excitation . . . . .	104
	<b>Conclusion</b>	<b>109</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>113</b>



# Introduction

Tout au long du demi-siècle écoulé, les *matériaux semiconducteurs* ont fait l'objet de larges études en physique de la matière condensée, notamment quant à leurs propriétés optiques et la mobilité de leurs charges. Hormis leurs applications électroniques et optiques dans le domaine technologique en général, et dans celui des télécommunications en particulier, les semiconducteurs ont présenté – et présentent toujours – un grand attrait pour la recherche fondamentale [Weisbuch & Winter (1991)]. Plus particulièrement, les semiconducteurs dits à "gap direct", notamment ceux à base d'Arséniure de Gallium (GaAs), ont été étudiés pour l'efficacité de leur interaction avec la lumière et l'ultrarapidité de la dynamique de leurs électrons [Shah (1996)].

En physique, l'état électronique fondamental d'un semiconducteur est caractérisé par son niveau de Fermi, lequel est situé dans la bande d'énergies interdites  $E_g$  – nommée "gap" –, c'est-à-dire entre la bande de valence et la bande de conduction [Bassani (1975)]. En d'autres termes, les électrons emplissent tous les états des bandes de valence, tandis que les bandes de conduction demeurent libres. L'état électronique fondamental peut alors être excité par un champ électromagnétique qui porte un électron de la bande de valence à la bande de conduction. On dit ainsi qu'un électron de valence manque, ou de façon équivalente, qu'un *trou*, de charge opposée à celle de l'électron, a été créé (concept mathématique formel découlant de la théorie à plusieurs corps en l'absence d'interaction). Ce processus décrit la création d'une paire électron-trou par l'*absorption d'un photon*. En négligeant l'interaction entre les porteurs (électrons et trous), on s'attendrait à ce que cette création ne se produise qu'au moyen d'un photon d'énergie supérieure à l'énergie du gap.

Cependant, l'expérience montre que, sous certaines conditions, une ou plusieurs résonances optiques se produisent à des énergies inférieures à  $E_g$ . Ces résonances discrètes sont le résultat de l'attraction de Coulomb entre l'électron et le trou chargé positivement. Cette paire liée électron-trou est

appelée *exciton*, et son *énergie de liaison*  $E_b$  est responsable de l'absorption d'un photon d'énergie  $\hbar\omega = E_g - E_b$  inférieure à celle du gap. Si l'analogie avec l'atome d'hydrogène est évidente, les échelles physiques y sont néanmoins différentes. La légèreté des *masses effectives* des porteurs, et l'écrantage diélectrique de l'interaction coulombienne, font que l'énergie de liaison de l'exciton est de plusieurs ordres de grandeur inférieure à celle de l'atome d'hydrogène. Par exemple, dans les semiconducteurs III-V, celle-ci n'est que de quelques meV, soit  $10^{-4}$  fois plus petite que le Rydberg d'un atome. Dès lors, il devient évident que le rôle des excitons ne peut prévaloir dans des conditions où l'ionisation thermique est dominante, comme, par exemple, à température ambiante –  $T = 300$  K soit  $k_B T \approx 25$  meV. Cependant, de nouveaux matériaux, comme les semiconducteurs organiques et les alliages II-VI, où les excitons survivent à des températures élevées, ont été développés. Ils permettront probablement de rendre la physique des excitons utile aux conceptions technologiques futurs, et, ainsi, ne pas la cantonner uniquement à la recherche fondamentale.

Grâce aux grandes avancées technologiques dans les méthodes de croissance des cristaux, une grande variété de phénomènes a été découverte dans les structures semiconductrices de basses dimensions [Bastard (1991)]. Aujourd'hui, il est possible de confiner à la fois les électrons et les photons en deux, une ou zéro dimension [Weisbuch & Winter (1991)]. Ce confinement permet d'agir sur l'*interaction lumière-matière* et de modifier profondément les propriétés radiatives qui découlent des excitations électroniques. Dans cette thèse, on s'intéresse à deux structures de basses dimensions : un *puits quantique* où les excitons sont confinés dans une dimension de l'espace (caractère 2D), et une *microcavité planaire* contenant des *plots* où les photons sont confinés dans une dimension de l'espace pour certains (caractère 2D) et dans toutes pour les autres (caractère 0D). Les microcavités semiconductrices sont des résonateurs optiques de haute finesse à l'origine des lasers à émission verticale (VCSEL : Vertical Cavity Surface Emitting Laser). Ceux-ci sont aujourd'hui massivement employés dans les télécommunications pour leurs tailles micrométriques et la grande qualité de leurs faisceaux. Malgré leurs performances exceptionnelles, il n'en demeure pas moins que la physique sous-jacente y est tout à fait ordinaire : le peuplement du système se fait au moyen d'un plasma dense et faiblement corrélé de paires électron-trou où les excitons ne jouent aucun rôle. Néanmoins, sous certaines conditions, de nouveaux phénomènes peuvent y trouver place et offrir ainsi à ces structures un intérêt pour l'étude d'une physique fondamentale : la physique des *systèmes confinés*.

La physique des systèmes bidimensionnels est assez spécifique. Contrairement au cas d'un semiconducteur massif (3D), les excitons de puits quantiques [Agranovitch (1966), Deveaud *et al.* (1991)] ont un temps de vie radiative intrinsèque qui est la conséquence directe de la *brisure de l'invariance par translation du cristal* dans le sens du confinement. En d'autres termes, l'exciton bidimensionnel est couplé à un champ électromagnétique qui, lui, est tridimensionnel. Le taux d'émission spontanée d'un exciton dépend de la *densité d'états photoniques* allouée [Purcell (1946)], laquelle peut être variée en modifiant, comme dans une microcavité, l'environnement diélectrique du système. L'émission spontanée peut être ainsi soit augmentée soit inhibée comme prédit par Purcell en 1946. Lorsque l'interaction lumière-matière devient assez conséquente, le système ne peut plus être décrit de manière perturbative au moyen de la règle d'or de Fermi : on passe d'un régime dit de *couplage faible* à un régime dit de *couplage fort*. Dans ce dernier, l'interaction exciton-photon n'est plus perturbative et de nouvelles quasi-particules apparaissent [Weisbuch *et al.* (1992)]. Les *modes propres* de la microcavité ne sont ni des excitons ni des photons, mais une juxtaposition des deux modes non couplés. De telles quasi-particules mi-matière mi-lumière portent comme dénomination : *les polaritons de microcavité* [Savona *et al.* (1999), Khitrova (1999)].

*Les polaritons* [Hopfield (1958)] *représentent en règle générale l'excitation électronique fondamentale d'un cristal en interaction avec un champ électromagnétique*. Plus particulièrement, les polaritons de microcavité sont des quasi-particules bidimensionnelles présentant des caractéristiques qui leurs sont propres. Grâce à la transmission non nulle des *miroirs de Bragg* de la microcavité, ceux-ci peuvent être couplés à un champ électromagnétique externe et être excités de manière résonante par un processus d'absorption de photon. Ceci les distingue des polaritons tridimensionnels qui ont besoin de canaux dissipatifs supplémentaires – par exemple, via des impuretés ou des phonons – pour être générés. Contrairement aux excitons dans un puits quantique nu, les polaritons de microcavité ont une *forte dispersion en énergie* [Houdré *et al.* (1994)] due à la légère "masse" de leur composante photonique. Mais aussi, et distinctement des photons de microcavité, ils manifestent un fort comportement non linéaire par leur composante excitonique qui les autorise à interagir mutuellement. Ainsi, les microcavités semiconductrices permettent la création d'un système bidimensionnel de quasi-particules de très faible masse - jusqu'à  $10^{-5}$  fois la masse de l'électron libre - qui soient accessibles par un faisceau laser à la fois en énergie et en *espace réciproque*.

Cette structure représente donc un bon outil pour l'étude de la dynamique de particules interagissantes dans un régime de densité d'excitation

modérée. En effet, dans une limite de faible excitation, les polaritons sont des *bosons*, et cette caractéristique demeure tant que leur densité reste inférieure à la densité de saturation des excitons – *i.e.* quand, à cause du principe d'exclusion de Pauli et de l'interaction de Coulomb, la force d'oscillateur des excitons devient nulle. En principe, des effets de *stimulation* et de *condensation* de Bose-Einstein devraient être permis sous de pareilles conditions, et des observations de condensat de Bose aussi spectaculaires que celles obtenues au moyen d'atomes alcalins piégés et refroidis [Dalfovo *et al.* (1999)] seraient possibles. Cependant, le court temps de vie radiative des polaritons de microcavité – une dizaine de picosecondes – contrevient à l'obtention de densités suffisantes et confère au système un état d'équilibre métastable : le système est dès lors intrinsèquement *hors équilibre thermodynamique*. De plus, la grande vitesse de groupe des polaritons, due à leur légère masse, leur donne une mobilité balistique [Sermage *et al.* (2001), Langbein (2002)] qui représente autant de pertes de population contrevenantes à l'accès aux densités nécessaires à un condensat.

L'objet de ce travail de thèse est donc d'étudier une microcavité semi-conductrice où l'on parvient à créer un piège spatial destiné aux polaritons, avec l'ambition de les y faire relaxer et de les y contenir. Ce piège consiste en un confinement dans les directions latérales de la microcavité, c'est-à-dire dans le plan où les polaritons demeurent libres de se mouvoir, et ceci, en agissant uniquement sur leur partie photonique (chapitre 1). L'étude expérimentale de ce nouveau système est faite au moyen d'une spectroscopie en espace réciproque (chapitre 2) qui informe sur les caractéristiques spectrales et angulaires d'un tel confinement des polaritons. Un modèle théorique semi-classique permet de mieux appréhender les enjeux dévoilés par les résultats expérimentaux (chapitre 3). Enfin, une conclusion résume le caractère novateur d'une telle démarche, ainsi que les multiples opportunités et perspectives qu'ouvre ce nouveau système à l'étude des phénomènes collectifs et cohérents en physique quantique, et à la réalisation de microdispositifs semiconducteurs basés sur de nouvelles propriétés physiques.

# Chapitre 1

## Confinement spatial de polaritons dans une microcavité semiconductrice

En électrodynamique quantique, l'interaction d'un système atomique à deux niveaux avec un champ électromagnétique externe dépend fortement de la densité d'états photoniques allouée à la transition optique entre les deux états de l'atome [Cohen-Tannoudji (1998)]. Si cette densité d'états est discrète, des oscillations de Rabi peuvent apparaître entre l'état fondamental et l'état excité du système [Rabi (1936)] : c'est le *régime de couplage fort*. Ce régime a comme propriété remarquable que la transition optique est un processus réversible. Un tel régime peut être observé en plaçant un atome dans une cavité où les modes stationnaires du champ électromagnétique sont discrets [Kaluzny *et al.* (1983)].

Dans les semiconducteurs, c'est l'*exciton* qui joue le rôle d'un système atomique à deux niveaux. Cependant, contrairement à un atome, l'exciton est (théoriquement) délocalisé dans l'espace, et parfaitement défini par son vecteur d'onde du fait de l'invariance par translation du cristal. Dans les matériaux massifs ("bulk"), l'interaction exciton-photon crée deux nouveaux états propres appelés *polaritons*. Le couplage fort qui préside à la création de ces nouvelles quasi-particules rend réversible le processus de transition optique. Dans les *puits quantiques*, l'invariance par translation n'étant plus conservée dans le sens de la croissance, l'exciton se couple à un ensemble continu de modes de photons. La transition optique est alors irréversible et confère à l'exciton un temps de vie radiatif qui lui est propre [Agranovitch (1966), Deveaud *et al.* (1991)].

Néanmoins, le régime de couplage fort pour l'exciton peut se réaliser lorsqu'on dispose un ou plusieurs puits quantiques à l'intérieur d'un résonateur de Fabry-Pérot. Celui-ci permet la création d'une densité discrète d'états photoniques dans le sens de son épaisseur. Le couplage fort pouvant à nouveau se réaliser, on assiste à l'apparition de deux états propres mixtes exciton-photon appelés *polaritons de microcavités*. L'observation principale du régime de couplage fort est l'apparition d'un *anti-croisement* entre les deux modes de polaritons, notamment quand le mode du résonateur et la transition optique de l'exciton entrent en résonance [Weisbuch *et al.* (1992)].

## 1.1 Les polaritons d'une microcavité semiconductrice

### 1.1.1 L'exciton

Avant d'aller plus en avant dans le descriptif du travail de thèse, nous allons rappeler quelques notions élémentaires sur les excitons dans les semi-conducteurs que nous avons utilisés (InGaAs). Ceux-ci sont de la famille des semi-conducteurs III-V selon le tableau périodique des éléments.

#### Le matériau massif

Les semi-conducteurs III-V sont des cristaux constitués de deux réseaux cubiques à faces centrées imbriqués l'un dans l'autre. La maille élémentaire du cristal est faite de deux atomes et huit électrons. La périodicité des mailles élémentaires de ce cristal permet de décrire le mouvement de l'électron au moyen d'une fonction d'onde périodique, dite fonction d'onde de Bloch.

Cette fonction d'onde a la périodicité du cristal et répond à l'équation de Schrödinger. Le traitement de la solution de cette équation au moyen de la périodicité du potentiel cristallin a pour résultat essentiel l'apparition d'une gamme d'énergies interdites aux électrons, appelée *gap*.

Cette bande d'énergies interdites sépare ce que l'on nomme les bandes de valence et de conduction, lesquelles représentent les énergies que peuvent prendre les électrons suivant les conditions thermodynamiques du cristal. En première approximation, dans l'espace réciproque du cristal, au centre de la zone de Brillouin ( $k = 0$ ), ces bandes ont une dispersion en énergie qui peut être vue comme une parabole pour les semi-conducteurs à gap direct.

L'interaction entre ces bandes donnent lieu à des états électroniques auxquels on peut associer une masse effective différente de celle de l'électron libre. Par exemple, dans du GaAs massif, la masse de l'électron peut atteindre 0.066 fois celle de l'électron libre (0.08 pour le trou léger).

### Un hydrogénoïde : l'exciton

L'état fondamental du cristal est celui où tous les électrons se trouvent dans la bande de valence. Lorsque le système acquiert de l'énergie et se trouve dans son premier état excité, un électron passe à la bande de conduction. Au moyen de l'interaction coulombienne, celui-ci interagit avec les  $n - 1$  électrons qu'il a abandonnés dans la bande de valence.

Ce problème à  $n$ -corps est réductible à une forme plus simple qui consiste à dire que l'électron dans la bande de conduction interagit avec la "place libre" qu'il a cédée dans la bande de valence. Cette place de libre est appelée *trou*, et on lui confère les caractéristiques opposées d'un électron tel que :

- sa charge vaut l'opposé de celle d'un électron ( $q_h = -e$ ),
- son vecteur d'onde est l'opposé de celui de l'électron ( $\mathbf{k}_h = -\mathbf{k}_e$ )
- ainsi que sa masse effective ( $m_h = -m_e$ ).

Le problème étant réduit à deux particules fermioniques en attraction coulombienne, la solution est analogue à celle de l'atome d'hydrogène. On nomme cette nouvelle quasi-particule *exciton*. Dès lors, des états liés (ou états excitoniques) se forment en dessous de l'énergie du gap tel que :

$$E_n(\mathbf{k}) = E_g - \frac{R}{n^2} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_X}$$

où  $m_x = m_e + m_h$  est la masse de l'exciton et  $R$  est lié au Rydberg  $R_y$  de l'atome d'hydrogène par la relation suivante :

$$R = \frac{\mu}{m_0 \epsilon_r^2} R_y = \frac{\hbar^2}{2\mu a_B^2}$$

tel que  $\mu^{-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$  est la masse réduite de l'exciton,  $m_0$  la masse de l'électron libre,  $\epsilon_r$  la constante diélectrique du matériau et  $a_B$  le rayon de Bohr de l'exciton.

Pour du GaAs massif, le Rydberg de l'exciton est quatre ordres de grandeur inférieur à celui de l'hydrogène, soit 4.8 meV. Quant au rayon de Bohr

de l'exciton (120 Å), celui-ci est 200 fois plus grand que celui de l'atome d'hydrogène. La légère masse des électrons de conduction et la forte constante diélectrique du GaAs confèrent à l'exciton une faible énergie de liaison comparativement à celle de l'atome d'hydrogène.

Une quantité caractéristique de l'exciton est sa *force d'oscillateur*. Celle-ci rend compte de l'"intensité" d'une transition entre l'état initial (tous les électrons sont dans la bande de valence) et l'état final (état d'exciton). La force d'oscillateur, donnée par unité de volume, est proportionnelle au carré de l'élément de la matrice dipolaire entre la bande de conduction et la bande de valence, et inversement proportionnelle à l'énergie de transition. C'est elle aussi qui définit que seuls les états  $ns$  ( $n = 1, 2, 3, \dots$ ) de l'exciton sont optiquement actifs.

### Les polaritons 3D

L'interaction des excitons avec les photons dans un semi-conducteur massif peut être réalisée dans un régime de couplage fort, vu que les deux particules interagissantes ont la même dimensionalité. En effet, l'invariance par translation du cristal impose qu'un seul exciton de vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  soit couplé à un seul photon de même vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ . Ce couplage fort induit l'apparition de deux états propres que l'on nomme polaritons.

Pour un cristal infini, le polariton est un mode propre du système dont le temps de vie est infini. Cependant, un matériau semiconducteur a toujours une dimension finie par ses faces extérieures qui brisent l'invariance par translation. Le polariton possède ainsi un temps de vie radiatif qui est lié au temps qu'il met pour atteindre une surface.

Pour des énergies proches de la résonance (pour un certain vecteur d'onde  $\mathbf{k}_0$ ), un modèle simple à deux niveaux permet de décrire le couplage fort en introduisant un élément de constante de couplage défini par la relation suivante :

$$g_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{e^2 \hbar^2 k_0 f_{osc}}{\epsilon_0 \epsilon_r k m_0 V}}$$

où  $V$  est le volume du cristal et  $f_{osc}$  est la force d'oscillateur de l'exciton décrite précédemment.



Ainsi, les deux états de polariton sont des états mixtes photon-exciton tels que leur dispersion en énergie autour de la résonance s'écrit :

$$\begin{aligned} E_L(\mathbf{k}) &= \frac{E_X(\mathbf{k}) + E_{ph}(\mathbf{k})}{2} - \frac{1}{2}\sqrt{(E_{ph}(\mathbf{k}) - E_X(\mathbf{k}))^2 + g_{\mathbf{k}}^2} \\ E_U(\mathbf{k}) &= \frac{E_X(\mathbf{k}) + E_{ph}(\mathbf{k})}{2} + \frac{1}{2}\sqrt{(E_{ph}(\mathbf{k}) - E_X(\mathbf{k}))^2 + g_{\mathbf{k}}^2}. \end{aligned}$$

En particulier, à l'anticroisement, pour  $\mathbf{k} = \mathbf{k}_0$ , la séparation en énergie entre les deux polaritons vaut  $g_{\mathbf{k}_0}$  et est proportionnelle à  $\sqrt{f_{osc}/V}$ . Cette levée fondamentale de la dégénérescence des deux modes non couplés est la correspondante du dédoublement de Rabi observé en physique atomique. Dans le GaAs, ce dédoublement vaut 15.6 meV. Dans les microcavités, il est plus faible notamment à cause du petit recouvrement entre l'espace du milieu actif et celui du champ électromagnétique de la microcavité.

### Excitons de puits quantiques

Dans un puits quantique, les porteurs (les électrons et les trous) sont confinés dans une direction de l'espace, celle de la croissance (l'épaisseur). En général, les puits quantiques de semiconducteurs sont constitués d'un matériau dont le gap est plus petit que celui du matériau avoisinant qui forme les barrières du puits. Ces interfaces créent des discontinuités de potentiel qui confinent les porteurs et génèrent des sous-bandes de conduction et de valence (que l'on ne détaillera pas ici). Seule la première sous-bande de l'électron et du trou est considérée dans notre cas.

Désormais, seule la composante dans le plan du puits du vecteur d'onde ( $\mathbf{k}_{\parallel}$ ) nous sert à décrire les états électroniques du puits, étant donné qu'il n'y a plus d'invariance par translation dans la direction de confinement. La dispersion en énergie des électrons et des trous devient alors bidimensionnelle et s'approxime par une parabole faisant intervenir les masses effectives des porteurs.

La fonction d'onde des électrons (et des trous) dans le sens du confinement est concentrée dans la zone du puits avec une partie évanescence à l'extérieure. Ceci a de profondes conséquences sur l'énergie de liaison de l'exciton. Les états d'énergies sont alors donnés par la dispersion parabolique suivante :

$$E_n(\mathbf{k}_{\parallel}) = E_g + E_e + E_h - \frac{R}{(n - 1/2)^2} + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_x}$$

où  $E_e$  et  $E_h$  sont les énergies de confinement des électrons et des trous dans le puits ( $E_{gp} = E_g + E_e + E_h$  est le gap du puits), et  $\mathbf{k}_{\parallel}$  le vecteur d'onde de centre de masse de l'exciton - qui est forcément défini dans le plan du puits.

Alors, l'énergie de liaison de l'état fondamental de l'exciton dans le puits (transition  $1s$ ) est quatre fois plus grande que celle d'un exciton dans un semi-conducteur massif, et le rayon de Bohr est deux fois plus petit. En réalité, un puits parfait n'existe pas et les excitons ne sont vraiment ni tridimensionnels ni bidimensionnels, et leur énergie de liaison varie entre  $R$  et  $4R$ .

Dans les puits quantiques, la force d'oscillateur de l'exciton est proportionnelle à la surface et non plus au volume, vu que l'invariance par translation dans le sens du confinement est brisée. Cependant, elle est toujours dépendante du carré du couplage entre la bande de valence et la bande de conduction. Notons que, toujours à cause de l'absence de symétrie dans une direction, ce couplage inter-bande dépend quelque peu (négligeable dans la région énergétique d'intérêt) de la polarisation du champ électromagnétique pour des incidences obliques ( $k_{\parallel} \neq 0$ ). Dans le calcul de la force d'oscillateur, il faut aussi tenir compte du carré du recouvrement des fonctions d'onde des électrons et des trous qui est souvent inférieur à 1 dans les puits quantiques.

Le fait que les excitons soient confinés dans une direction de l'espace, et qu'ils aient donc un caractère bidimensionnel, influence directement le couplage au champ électromagnétique qui, lui, demeure encore tridimensionnel. Si le couplage d'un exciton au photon impose que  $\mathbf{k}_{\parallel}$  soit conservé pour les deux particules, il reste un continuum d'états possibles dans la direction du confinement pour les photons ( $k_z$  du photon peut prendre n'importe quelle valeur pour chaque  $\mathbf{k}_{\parallel}$ ). Donc, un exciton peut se coupler à un continuum d'états photoniques tel que la densité d'états finaux est donnée par :

$$\rho(\mathbf{k}_{\parallel}) = \frac{L_w n}{2\pi \hbar c} \frac{2k_0}{\sqrt{k_0^2 - k_{\parallel}^2}} \Theta(k_0 - k_{\parallel})$$

où  $L_w$  est l'épaisseur du puits et  $k_0 = nE_X(0)/c$ .

Il ressort de cette équation que seuls les excitons dont  $k_{\parallel}$  est inférieur à  $k_0$  sont radiatifs. Les autres excitons ( $k_{\parallel} > k_0$ ), non radiatifs, représentent alors un réservoir pour les excitons radiatifs.

La densité d'états finaux étant non nulle, l'exciton de puits quantiques possède un temps radiatif intrinsèque. Le temps de déclin de la transition

optique, contrairement aux polaritons 3D, est irréversible : c'est le régime de couplage faible. Grâce à la règle d'or de Fermi, le temps de vie radiative intrinsèque (ou temps de déclin) est dépendant de l'inverse de la force d'oscillateur tel qu'il s'écrit :

$$\tau_0 = \frac{n}{2\pi} \frac{4\pi\epsilon_0 m_0 c}{e^2} \frac{S}{f_{osc}} = \frac{\hbar}{\Gamma_0}.$$

Dans les matériaux III-V, l'exciton de puits quantiques a un temps de vie radiative intrinsèque de l'ordre de la dizaine de picosecondes.

Comme nous l'avons vu précédemment pour les polaritons 2D, le couplage fort entre les excitons et les photons implique que ceux-ci aient la même dimensionalité. Dans les puits quantiques, cette condition nécessaire n'est pas remplie, ce qui donne lieu à un régime de couplage faible.

Cependant, en réduisant la dimensionalité des photons dans la même direction que les excitons, on rétabli ce déséquilibre et l'on peut espérer obtenir un couplage fort. La méthode la plus répandue pour le confinement photonique est l'usage d'un résonateur de Fabry-Pérot qui confine le champ électromagnétique dans une direction, et le laisse libre dans les deux autres (dans le plan du résonateur).

L'idée est donc de placer le puits quantique (ou plusieurs puits quantiques) à l'intérieur de ce résonateur que l'on prend soin de réaliser pour que l'un de ses états stationnaires soit résonnant avec la transition optique de l'exciton (1s).

### 1.1.2 La microcavité ou le confinement photonique

Une microcavité n'est rien d'autre qu'un résonateur de Fabry-Pérot, c'est-à-dire deux miroirs parallèles, séparés d'une certaine distance, et entre lesquels la lumière subit plusieurs réflexions et rétro-réflexions.

Dans un tel résonateur, la fréquence (ou harmonique) fondamentale du champ électromagnétique stationnaire est déterminée par l'épaisseur séparant les deux miroirs qui le constituent. L'appellation "microcavité" vient du fait que l'épaisseur de la cavité est de l'ordre du micromètre, c'est-à-dire de la longueur d'onde d'émission du milieu actif qu'on y insère (un puits quantique). Contrairement à une cavité d'un laser pour laquelle on travaille autour de la millionième harmonique, ou même d'un laser semiconducteur qui travaille en général autour de l'harmonique 1000, dans une microcavité

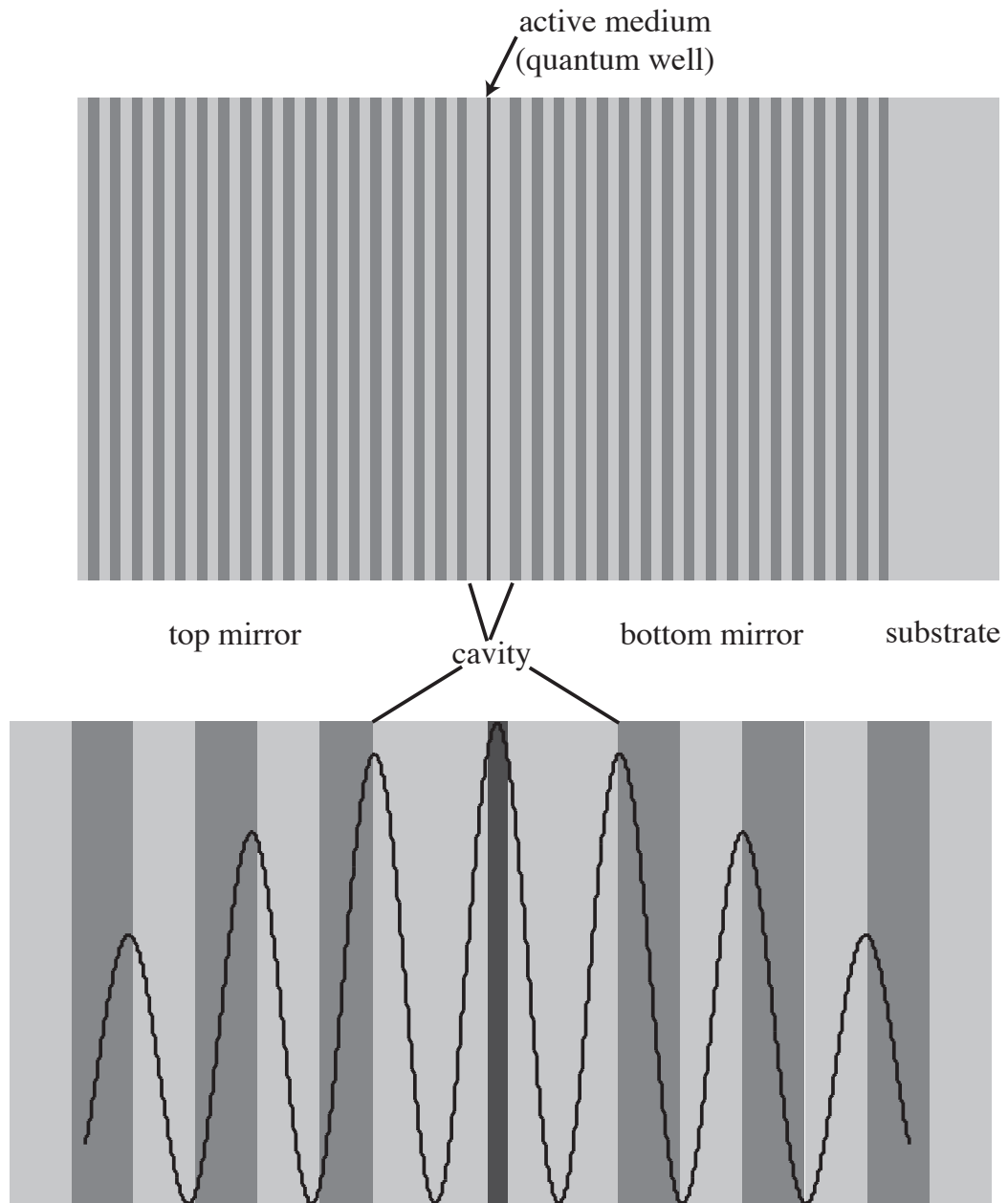


FIG. 1.1 – Schéma de la structure d'une microcavité (image du haut). Le corps de la cavité est de la dimension de la longueur d'onde (dans le matériau) de la transition optique du milieu actif. Schéma de l'oscillation de l'intensité du champ électrique à l'intérieur de la microcavité (image du bas) lorsque l'indice de réfraction du corps de la cavité est inférieur à celui de la première couche du miroir de Bragg. On remarque l'évanescence du champ électrique dans les miroirs de Bragg vers l'extérieur de la microcavité.

semiconductrice on utilise les premières harmoniques - souvent la première ( $\lambda/2$ ) ou la troisième ( $3\lambda/2$ ).

Les miroirs d'un résonateur de Fabry-Pérot peuvent être métalliques ou diélectriques. Les miroirs métalliques ont l'avantage d'avoir une réponse optique globalement indépendante de la longueur d'onde, mais on ne peut pas les utiliser lorsqu'on cherche, comme dans notre cas, à obtenir d'importants coefficients de réflexion. Par ailleurs, leur absorption dégraderaient sérieusement le facteur de qualité des cavités que l'on cherche à réaliser.

On leur préfère généralement des miroirs diélectriques qui présentent des avantages optiques incontestables tels qu'une meilleure réflectivité et une absorption résiduelle que l'on peut souvent négliger. Ces miroirs, nommés miroirs de Bragg, reposent sur le principe des interférences multiples de Bragg.

### Les miroirs de Bragg (DBR)

Un miroir de Bragg est constitué d'une superposition de couches périodiques dont chacune est l'empilement de deux couches semiconductrices d'indice fort et faible (figure 1.1). Les épaisseurs des couches sont choisies de sorte à ce que la microcavité s'accorde à la longueur d'onde d'émission de l'exciton fondamental du puits quantique. Contrairement aux miroirs métalliques, le miroir de Bragg possède une résonance qui doit être égale à celle de la cavité si l'on souhaite que la structure soit bien accordée [Savona *et al.* (1995), Savona *et al.* (1999)].

Ces conditions s'écrivent donc :

$$\begin{aligned} L_c &= m \frac{\lambda_c}{2n_c} \\ L_1 n_1 &= L_2 n_2 = \frac{\lambda_c}{4} \end{aligned}$$

où  $L_1$  et  $L_2$  sont les épaisseurs des couches semiconductrices d'indice de réfraction  $n_1$  et  $n_2$ ,  $L_c$  est l'épaisseur du corps de la microcavité ("spacer"), et  $\lambda_c$  la longueur d'onde (dans le vide) correspondant à la transition optique 1s de l'exciton dans le puits quantique ( $n_c$  : indice de réfraction de la cavité).

Une caractéristique importante d'un miroir de Bragg est la gamme de longueurs d'ondes à laquelle il travaille ("stop band") - zone d'énergies où les propriétés de haute réflectivité se réalisent. Celle-ci est donnée pour un

grand nombre de paires empilées par :

$$E_{\text{stopband}} = \frac{2E_c |n_1 - n_2|}{\pi n_{\text{eff}}}$$

où  $n_{\text{eff}}$  est l'indice effectif du miroir, donné comme une moyenne des indices  $n_1$  et  $n_2$ . Cette gamme d'énergies de haute réflectivité est néanmoins restreinte comparativement à un miroir métallique.

Cependant, les miroirs de Bragg ont l'avantage de pouvoir atteindre théoriquement une réflectivité absolue (si le nombre de paires est infini) contrairement aux miroirs métalliques. Au centre de la "stop band", cette réflectivité est donnée par :

$$R = 1 - 4 \frac{n_{\text{ext}}}{n_c} \left( \frac{n_1}{n_2} \right)^{2N}$$

où  $n_{\text{ext}}$  est l'indice extérieur (substrat ou air) et  $N$  le nombre de paires. L'ajout de quelques paires supplémentaires dans les miroirs du bas de la microcavité permet de compenser la différence d'indice entre l'air et le substrat (indice de réfraction autour de 3.57).

Une autre caractéristique des miroirs de Bragg qui les distingue des miroirs métalliques est la dépendance de la phase à la réflexion en fonction de l'énergie. Près de la résonance du miroir, cette dépendance s'écrit comme :

$$r = \sqrt{R} \cdot \exp(i \frac{n_c}{\hbar c} L_{DBR} (E - E_c)) = \sqrt{R} \cdot \exp(i\varphi)$$

où  $r$  est le coefficient de réflexion et  $L_{DBR}$  la pénétration du champ électromagnétique dans les miroirs (figure 1.1).

La réflectivité s'établissant par des interférences dans les miroirs,  $L_{DBR}$  exprime cette pénétration qui est de l'ordre de  $\lambda_c$ . Le champ électromagnétique oscille dans une enveloppe exponentielle dans les miroirs de Bragg sur une longueur typique  $L_{DBR}$  qui est donnée par :

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_c}{2} \frac{n_1 n_2}{n_c^2 (n_2 - n_1)}$$

Cette longueur déterminera par la suite l'épaisseur effective de la microcavité, et de là même le facteur de qualité de celle-ci.

### Propriétés optiques de la microcavité semiconductrice

Après avoir décrit le fonctionnement des miroirs de Bragg, nous nous intéressons à l'ensemble du résonateur utilisant ces miroirs. La condition de résonance dans une telle géométrie (figure 1.1) impose que le déphasage total de l'onde incidente effectuant un aller-retour dans la cavité soit un multiple de  $2\pi$ .

Cette condition s'exprime comme :

$$2\varphi_c + 2\varphi = 2m\pi$$

où  $\varphi_c$  est le déphasage de l'onde après un aller simple et  $\varphi$  le déphasage à la réflexion sur le miroir de Bragg. Le résultat sur l'énergie de résonance de la microcavité est alors :

$$E_{\text{microcavite}} = \frac{L_c E_c + L_{DBR} E_{\text{bragg}}}{L_{\text{eff}}}$$

où  $L_{\text{eff}} = L_{DBR} + L_c$  est la longueur effective de la microcavité. Toutefois, si les énergies des résonances des miroirs de Bragg et du corps de la cavité sont identiques, alors l'énergie de la cavité se confond avec celle de la microcavité.

Cette énergie discrète, associée au mode stationnaire de Fabry-Pérot, que l'on appelle aussi photon de cavité, a une largeur de raie finie  $\Gamma_c$  car les miroirs de Bragg ne sont jamais parfaits. Ceci se traduit par un temps de vie du photon de cavité, c'est-à-dire un temps pendant lequel il se trouve à l'intérieur de la microcavité :

$$\tau_c = \frac{n_c L_{\text{eff}}}{c(1 - \sqrt{R_{\text{inf}} R_{\text{sup}}})} = \frac{\hbar}{\Gamma_c}.$$

où  $R_{\text{inf}}$  et  $R_{\text{sup}}$  sont les réflectivités des miroirs du bas et du haut respectivement. On notera que cette situation est originale du fait que le temps de vie du photon de cavité est supérieur au cas où les miroirs seraient idéaux ( $L_{\text{eff}} = L_c$ ). Ceci témoigne tout simplement du fait que le photon est localisé et dans la cavité et dans les miroirs de Bragg (ce qui est consistant avec l'existence et le sens de  $L_{DBR}$ ).

Le confinement électromagnétique dans la direction de la croissance amplifie les modes photoniques tel que l'intensité du champ est donnée par une lorentzienne :

$$I \propto \frac{1}{(E - E_c)^2 + (\frac{E_c}{2Q})^2}$$

où  $Q = E_c/\Gamma_c$  est appelé le facteur de qualité de la microcavité ou finesse. L'intensité du champ électromagnétique est d'autant plus piquée autour de la résonance que la réflectivité est élevée (facteur de qualité  $Q$  élevé).

Cette quantité peut être interprétée comme le nombre de fois que la lumière subit des réflexions à l'intérieur de la microcavité avant d'en sortir. Elle dépend du contraste d'indice  $|n_1 - n_2|$  et du nombre de paires  $N$  utilisées dans les miroirs. Habituellement, dans de bonnes microcavités à base de GaAs,  $Q$  est supérieur à 10000 [Saba *et al.* (1999), Saba *et al.* (2000)].

Comme nous le verrons plus tard, pour qu'il y ait un couplage fort entre l'exciton du puits quantique et le photon de cavité, le temps de déphasage de l'exciton et le temps de vie du photon doivent être supérieurs aux oscillations de Rabi. Ceci explique l'importance d'avoir une microcavité de très haut facteur de qualité.

### La dispersion du photon de cavité

Le confinement du champ électromagnétique impose au photon de cavité une quantification de son vecteur d'onde dans le sens de la croissance tel que :  $k_z = m\pi/L_c$  (découle des conditions de résonance précédemment citées).

Le photon de cavité devient bidimensionnel au même titre que l'exciton. Seul ce photon peut se propager dans la microcavité (dans les limites de la "stop band") et prendre toutes les valeurs discrètes possibles de  $k_z$  quelque soit la valeur (continue) de  $\mathbf{k}_{\parallel}$  qu'il ait ( $k_{\parallel} = k_c \sin \theta$  où  $\theta$  est l'angle fait avec la normale). Ce photon de cavité a donc une dépendance (ou dispersion) angulaire que détermine  $\mathbf{k}_{\parallel}$ .

La dispersion du mode photonique de la microcavité s'écrit en toute généralité comme :

$$E_c(\mathbf{k}) = \hbar \frac{c}{n_c} \sqrt{k_{\parallel}^2 + k_z^2}.$$

Pour de petites valeurs de  $k_{\parallel}$ , et en tenant compte de la quantification de  $k_z$ , la dispersion du photon de cavité peut être vue comme une parabole (figure 1.2). On peut alors associer à ce photon de cavité une masse effective  $m_c$  dans le plan telle que :

$$E_c(\mathbf{k}) \approx \hbar v k_z + \frac{1}{2} \frac{c L_c}{n_c \pi \hbar} \hbar^2 k_{\parallel}^2 = E_c + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_c}.$$



Si l'énergie du mode optique de la microcavité est autour de 1.5 eV (GaAs), alors la "masse" effective du photon est de l'ordre de  $10 \text{ eV}/c^2$ , soit 5 ordres de grandeur plus petite que la masse de l'électron libre. Comme on peut le remarquer à la figure 1.2, la légèreté de la masse du photon de cavité confère une grande courbure à sa dispersion parabolique par rapport à celle, parabolique aussi, de l'exciton - que l'on pourrait presque considérer comme plate. Cette différence de masse aura de profondes conséquences.

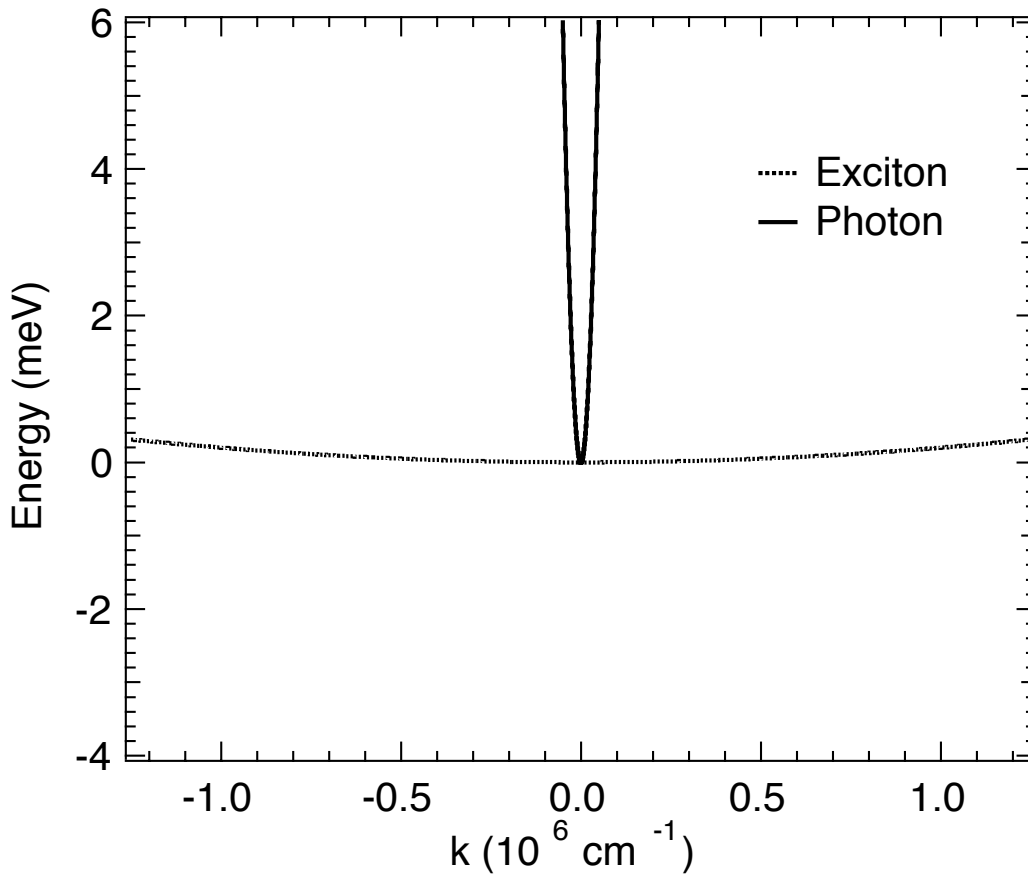


FIG. 1.2 – Dispersion de l'énergie des modes photonique et excitonique d'une microcavité en fonction du vecteur d'onde dans le plan, et calculées pour une transition optique autour de 1.5 eV (puits quantique à base de GaAs).

En résumé, la microcavité semiconductrice nous permet d'obtenir une densité d'états photoniques discrète qui rétablit l'égalité de la dimensionalité entre les photons et les excitons du puits quantiques en vue de leur couplage fort. Nous pouvons désormais déterminer chaque état d'exciton et chaque état de photon par un seul  $\mathbf{k}_{\parallel}$ , et procéder ainsi à leur interaction.

### 1.1.3 L'interaction entre les excitons et les photons

Le couplage fort dans les microcavités semiconductrices est souvent présenté comme l'analogie de celui d'atomes dans une cavité résonante. Si l'on considère la transition optique  $1s$  de l'exciton dans le puits quantique comme un système à deux niveaux, alors cette analogie est évidente.

Cependant, l'exciton de puits quantique présente de nombreuses différences avec un atome. En effet, bien qu'elle puisse être considérée comme plate, notamment dans sa zone radiative, la dispersion de l'exciton existe, et l'on ne peut pas en faire totalement abstraction. De plus, et contrairement aux électrons dans un atome, l'exciton peut acquérir un continuum (parabolique) d'énergies cinétiques grâce aux formes paraboliques des bandes de valence et de conduction.

Néanmoins, malgré ces différences qu'il ne faut pas perdre de vue, dans le cadre de l'illustration de ce que sont les régimes de couplage fort et faible dans l'interaction exciton-photon, nous allons considérer la transition  $1s$  de l'exciton de puits quantique comme un système atomique à deux niveaux. Cette simplification peut paraître très violente, cependant, elle permet d'appréhender toute une partie des spécificités des polaritons de microcavités, sans pour autant devoir se soumettre à un formalisme trop complexe, qui est, par ailleurs, déjà bien fourni dans la littérature des semiconducteurs.

L'état d'un système à deux niveaux s'écrit comme :

$$|\psi\rangle = a_1|1\rangle + a_2|2\rangle$$

où 1 et 2 décrivent respectivement l'état excité et l'état fondamental du système.

En mécanique quantique, un ensemble statistique est généralement décrit au moyen de la matrice de densité définie comme :

$$\rho_{ij} = a_i a_j^* |i\rangle\langle j|$$

où  $i$  et  $j$  font une itération sur tous les états possibles du système. Donc, pour un système à deux niveaux, la matrice de densité s'écrit :

$$\rho = \begin{bmatrix} |a_1|^2 & a_1 a_2^* \\ a_1^* a_2 & |a_2|^2 \end{bmatrix}.$$

Les termes diagonaux représentent l'occupation des états (lesquels sont pris comme base de description), et les termes non-diagonaux représentent les

interactions entre états. Si le système est fermé, on normalise le système à 1 tel que :  $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$ . La quantité  $n = \rho_{11} - \rho_{22}$  définit la fraction de la population du système qui se trouve dans l'état excité.

L'avantage d'une telle description vient du fait qu'elle permet d'obtenir le résultat de l'action d'un opérateur, sur un ensemble de systèmes à deux niveaux qui ne sont pas tous dans le même état, simplement en connaissant la valeur moyenne des éléments de la matrice de densité.

Dès lors, pour connaître l'évolution du système, il faut s'appliquer à résoudre l'équation de Liouville telle que :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H, \rho] \quad (1.1)$$

où  $H$  n'est autre que l'hamiltonien total du système qui s'écrit :

$$H = H_0 + H_{int} + H_{relax}.$$

$H_0$  est l'hamiltonien libre du système (diagonal) dont les éléments diagonaux représentent les énergies de l'état excité et de l'état fondamental. Il décrit le système comme si celui-ci était isolé.

$H_{int}$  décrit, quant à lui, l'interaction (dans l'approximation dipolaire) du système à deux niveaux avec un champ électrique, tel que :

$$H_{int} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$$

où  $\mathbf{d}$  est le moment dipolaire des deux états et  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  le champ électrique externe. Cette approximation est valable dans notre cas, vu que les transitions optiques de systèmes électroniques font généralement intervenir des dipôles de plusieurs ordres de grandeur plus petits que la longueur d'onde du champ électromagnétique.

Le champ électrique a pour fonction d'introduire une polarisation  $p$  entre l'état fondamental et l'état excité, tel que les éléments non diagonaux - les éléments diagonaux sont nuls ( $d_{11} = d_{22} = 0$ ) - décrivant l'interaction s'écrivent :

$$\begin{aligned} \Delta_{12} &= -d_{12} \cdot E_{ext}(t) = \frac{\hbar \Omega_R}{2} e^{-i\omega_p t} \\ \Delta_{21} &= \Delta_{12}^* \end{aligned}$$

où  $E_{ext}(t) = \epsilon_0 e^{-i\omega_p t}$  décrit un champ électrique externe, monochromatique, polarisé linéairement, et  $\hbar\Omega_R = -d_{12} \cdot \epsilon_0$  est l'énergie de Rabi définissant la force d'interaction entre la lumière et le système à deux niveaux.

Quant à  $H_{relax}$ , il s'écrit de manière phénoménologique en considérant la relaxation du système au moyen de taux de perte de la polarisation  $p$  et de la population  $n$  par un échange d'énergie avec l'extérieur. Les éléments de cet hamiltonien peuvent s'écrire alors comme :  $R_{11} = -n/T_1$  et  $R_{22} = -p/T_2$ . C'est-à-dire que la décroissance de  $n$  et  $p$  sera exponentielle avec des temps caractéristiques constants  $T_1$  et  $T_2$ .

Deux équations différentielles couplées résultent de la solution de l'équation de Liouville (1.1) ; l'une pour la polarisation  $p$ , et l'autre pour la population  $n$  : ce sont les équations de Bloch optiques [Meystre & Sargent (1990)]. Ces équations décrivent très généralement tout système à deux niveaux en interaction avec un champ électromagnétique externe et s'écrivent :

$$\frac{\partial p(t)}{\partial t} = \frac{i}{\hbar}(E_X - \hbar\omega_p)p(t) + \frac{i}{\hbar} \frac{\hbar\Omega_R(t)}{2}(1 - 2n(t)) - \frac{p(t)}{T_2} \quad (1.2)$$

$$\frac{\partial n(t)}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} \left( \frac{\hbar\Omega_R(t)}{2} p^*(t) - \frac{\hbar\Omega_R^*(t)}{2} p(t) \right) - \frac{n(t)}{T_1} \quad (1.3)$$

où  $E_X$  est l'énergie de transition du système.

Le champ électrique excite le système en induisant un couplage entre l'état 2 (fondamental) et l'état 1 (excité), ce qui a pour conséquence de porter une population  $n$  vers l'état excité (équation 1.3). Cette population  $n$ , en retour, repousse la polarisation induite entre les deux états (équation 1.2). Les éléments de taux de perte dans les deux équations tendent, respectivement, à réduire à néant la population de l'état excité et la polarisation du système de sorte à ramener le système à son état fondamental. Les temps  $T_1$  et  $T_2$  sont nommés, respectivement, le temps de vie de la population et le temps de déphasage.

Deux régimes peuvent être distingués à partir des deux équations précédentes, suivant que les taux de perte ( $1/T_1$  et  $1/T_2$ ) dominent ou non l'interaction du système avec le champs électrique ( $\Omega_R$ ).

Lorsque les taux de perte dominent l'interaction, le système est dit en régime de *couplage faible*. D'ailleurs, c'est sous ce régime que Fermi dérive sa règle d'or par un traitement perturbatif du premier ordre dépendant du

temps. Si l'état de départ est l'état fondamental ( $n = 0$ ), alors, dans des temps courts, les termes de pertes sont négligeables étant donné qu'ils sont proportionnels à la population excitée. Le peuplement est alors constant dans le temps et n'est dépendant que de la densité d'états du milieu actif qui sont à disposition pour la transition optique (c'est la règle d'or de Fermi). Lorsque une part importante du système est excitée, alors les taux de pertes atténuent l'excitation de manière exponentielle.

La règle d'or de Fermi, dans les microcavités, a de profondes conséquences dues aux dispersions des photons et des excitons. Les excitons dans le puits quantique ne peuvent émettre de photons que ceux autorisés par la microcavité, et la probabilité d'émission est proportionnelle à la densité d'états photoniques.

Dès lors, à la résonance avec l'exciton, l'émission est normale à la microcavité vu que, plus les angles sont grands, plus l'énergie du photon s'éloigne de celle de l'exciton à cause de la différence de masse (figure 1.2). Donc, l'émission est directionnelle du fait que la densité d'état photonique devient très faible dès lors qu'on s'éloigne de la normale [Purcell (1946)].

La directionnalité de l'émission est à l'origine des lasers basés sur des microcavités : les VCSELs (Vertical Cavity Surface Emitting Lasers) [Sale (1995)]. En désaccordant négativement la microcavité - c'est-à-dire en réduisant l'énergie fondamentale du photon par rapport à celle de l'exciton -, toujours suivant la règle d'or de Fermi, l'émission peut être favorisée pour de plus grands angles. Alors, si tant est que la distribution des excitons soit constante le long de leur courbe de dispersion, un cône d'émission de lumière se produit.

Cependant, lorsque les taux de perte sont dominés par l'interaction du système avec le champ électrique, le système est dit en régime de *couplage fort*. Cette situation se produit dans des microcavités où le facteur de qualité est très élevé (le temps de vie du photon dans la cavité est assez long) avec une raie excitonique assez étroite (de longs  $T_1$  et  $T_2$ ) [Weisbuch *et al.* (1992)]. La force du couplage exciton-photon, mesurée directement par  $\Omega_R$ , augmente avec la finesse de la microcavité et la force d'oscillateur de l'exciton.

Si les termes de pertes sont négligeables dans les équations 1.2 et 1.3, alors l'énergie oscille entre la polarisation  $p$  et la population  $n$  avec une périodicité de  $2\pi/\Omega_R$ . Ces oscillations sont connus sous le nom d'oscillations de Rabi [Rabi (1936)]. Cet échange périodique de l'énergie est un phénomène cohérent qui préserve la phase de l'excitation. On l'observe dans plusieurs systèmes,

notamment dans les transitions atomiques.

L'interaction dipolaire lève la dégénérescence entre l'exciton et le photon, et induit une séparation en énergie entre les deux états propres appelés maintenant polaritons. On peut remarquer dans les équations optiques de Bloch que, même si  $n = 0$ , la différence en énergie entre l'état excité et l'état fondamental est modifiée par  $\hbar\Omega_R$ . Cette séparation en énergie correspond aux oscillations entre la polarisation  $p$  et la population  $n$ .

### 1.1.4 Les polaritons de microcavité et quelques unes de leurs propriétés

Comme vu précédemment, le couplage fort implique un échange permanent d'énergie entre l'exciton et le mode photonique jusqu'à ce que l'énergie s'échappe en dehors de la microcavité.

D'un point de vue de la mécanique quantique, les modes normaux (ou états stationnaires) ne sont ni des excitons ni des photons, mais une superposition des deux, appelée polariton.

Les deux états stationnaires, nommés polaritons du haut (UP) et polaritons du bas (LP), ont chacun des dispersions tel que :

$$E_{LP}(k_{\parallel}) = \frac{E_c(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} - \frac{1}{2}\sqrt{(E_c(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel}))^2 + 4|\hbar\Omega_R|^2}$$

$$E_{UP}(k_{\parallel}) = \frac{E_c(k_{\parallel}) + E_X(k_{\parallel})}{2} + \frac{1}{2}\sqrt{(E_c(k_{\parallel}) - E_X(k_{\parallel}))^2 + 4|\hbar\Omega_R|^2}$$

où  $\hbar\Omega_R$  est la fréquence de Rabi [Savona *et al.* (1995), Savona *et al.* (1999)].

Si  $|a_{\mathbf{k}}\rangle$  et  $|b_{\mathbf{k}}\rangle$  décrivent un photon de cavité et un exciton de vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , alors les états de polaritons s'écrivent :

$$|LP_{\mathbf{k}}\rangle = C_{k_{\parallel}}|a_{\mathbf{k}}\rangle + X_{k_{\parallel}}|b_{\mathbf{k}}\rangle$$

$$|UP_{\mathbf{k}}\rangle = X_{k_{\parallel}}|a_{\mathbf{k}}\rangle - C_{k_{\parallel}}|b_{\mathbf{k}}\rangle$$

où  $C_{k_{\parallel}}$  et  $X_{k_{\parallel}}$  sont les coefficients de Hopfield [Hopfield (1958)]. La somme de leurs carrés vaut 1 et ils représentent, respectivement, la part photonique et la part excitonique de chacun des polaritons. Ils s'expriment comme :

$$X_{k_{\parallel}} = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\hbar\Omega_R}{E_{LP}(k_{\parallel}) - E_c(k_{\parallel})}\right)^2}}$$

$$C_{k_{\parallel}} = -\frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{E_{LP}(k_{\parallel}) - E_c(k_{\parallel})}{\hbar\Omega_R}\right)^2}}.$$

Le couplage fort entre l'exciton et le photon sépare la partie réelle des énergies des deux modes normaux au moyen de la fréquence de Rabi, mais il produit aussi un effet de moyennement sur la partie imaginaire de l'énergie, laquelle représente les taux d'atténuation du système. Dès lors, les états de polaritons ont des largeurs de raies données par la moyenne des largeurs de raies de l'exciton et du mode photonique, pondérées par leurs poids respectifs [Savona *et al.* (1995), Savona *et al.* (1999)].

On peut aussi inclure dans ce traitement les états excités de l'exciton et les états du continuum, tout en tenant compte aussi de l'élargissement inhomogène de la raie excitonique dû aux désordres inhérents au puits quantique. La principale conséquence de cette inclusion serait l'élargissement spectral des polaritons, notamment celui du haut qui est le plus influencé par le déphasage rapide des états du continuum.

Comme il a été dit précédemment, la dispersion de l'énergie en fonction du vecteur d'onde dans le plan de la microcavité est à l'origine d'importantes différences avec un système atomique à deux niveaux. Le poids excitonique et photonique de chacune des deux branches de polaritons (UP & LP) varient avec la dispersion.

La simulation numérique présentée à la figure 1.3 témoigne de la forte dispersion des polaritons. La première observation de celle-ci fut faite en 1994 par Houdré *et al.* [Houdré *et al.* (1994)]. En augmentant le vecteur d'onde dans le plan - ce qui revient à augmenter l'angle d'émission - le polariton du bas (LP) tend à devenir entièrement de nature excitonique, alors que le polariton du haut (UP) devient photonique.

Les principales propriétés de non-équilibre thermodynamique des polaritons proviennent de la forme de la courbe de dispersion du polariton du bas (LP). Le couplage à la lumière de l'exciton ne modifie la dispersion de celui-ci que dans la zone radiative, laquelle est assez étroite et ne contient qu'un petit nombre d'états excitoniques. La séparation de Rabi des polaritons repousse ces états loin du reste de la dispersion excitonique, rendant ainsi la relaxation des polaritons difficile vers le fond de la courbe de dispersion.

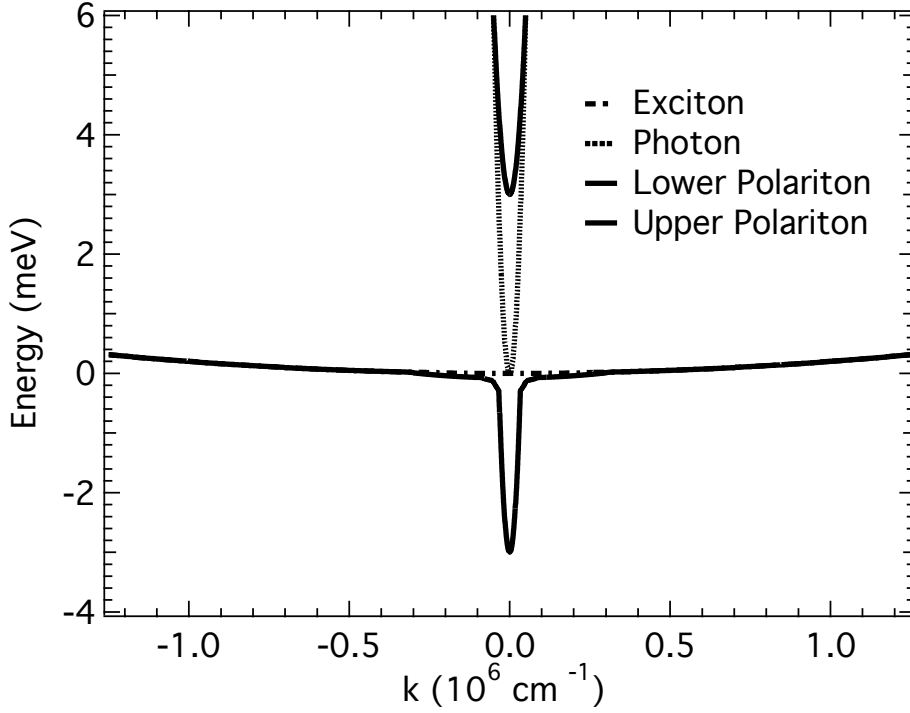


FIG. 1.3 – *Courbes de dispersion* de l'exciton, du photon de cavité et des polaritons à la résonance en  $k_{\parallel} = 0$ .

Ainsi, l'émission d'un phonon acoustique ne peut pas directement déplacer un exciton vers le fond de la courbe de dispersion, vu que le phonon acoustique, bien qu'il dispose d'un grand vecteur d'onde, n'a qu'une petite énergie insuffisante au regard des quelques meV nécessaires pour atteindre l'état fondamental de polariton. Bref, la dispersion des phonons acoustiques est trop plate pour permettre la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement lors de processus élastiques faisant intervenir les polaritons du bas, et de mener ainsi ces derniers dans la zone radiative, notamment jusqu'au fond de la courbe de dispersion polaritonique.

De même, l'interaction exciton-exciton ne permet pas de relaxation directe au fond de la courbe de dispersion, car, là aussi, la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie ne le permettrait pas - si ce n'est pour des excitons très loins de la zone radiative, c'est-à-dire les excitons de grandes valeurs de  $k_{\parallel}$ .



En excitation non résonante, ces processus provoquent un effet congestif (effet "bottleneck") dans le sens où il y a un engorgement des excitons dans la zone pré-radiative. Ceux-ci n'arrivent pas - si ce n'est pour de longs temps - à relaxer vers l'état fondamental. Cet engorgement explique la difficulté qu'il y a à peupler cet état [Tassone *et al.* (1997), Mueller *et al.* (2000), Tartakovskii *et al.* (2000)].

Il est à noter que si la population de la branche basse des polaritons est profondément hors équilibre, notamment à cause de la faible densité d'états polaritoniques dans la zone radiative, on s'attend néanmoins à des effets de stimulation, par l'état fondamental, dus au caractère bosonique des polaritons, qui équilibreraient la population avec celle des excitons dans la zone non radiative [Imamoglu *et al.* (1996)].

En effet, la faible densité d'états dans la zone radiative devraient permettre l'obtention de facteurs d'occupation supérieurs à l'unité pour des densités de population inférieures à celles nécessaires aux excitons d'un puits quantique nu. Ainsi, la relaxation des polaritons à grands vecteurs d'onde devraient être stimulée par les états polaritoniques du fond de la courbe de dispersion si ceux-ci atteignent une population supérieure à 1.

Cependant, le caractère bosonique des polaritons dépend de celui des excitons, lequel ne prévaut que pour de faibles densités de population. Donc, si l'on accroît la population de l'état polaritonique fondamental, il y a de fortes chances que le caractère bosonique des polaritons soit perdu. La non linéarité de l'émission consécutive à la stimulation peut alors être attribuée à une stimulation des photons par des paires électron-trou hors couplage fort, c'est-à-dire en régime de couplage faible, notamment dans les semiconducteurs III-V.

## 1.2 Le confinement spatial des polaritons

### 1.2.1 L'idée du confinement

Comme on l'a vu précédemment, la courbe de dispersion (figure 1.3) du polariton du bas représente une sorte de puits dans l'espace réciproque où l'état fondamental est très étroit en vecteur d'onde et se situe plusieurs meV en-dessous de l'énergie de l'exciton.

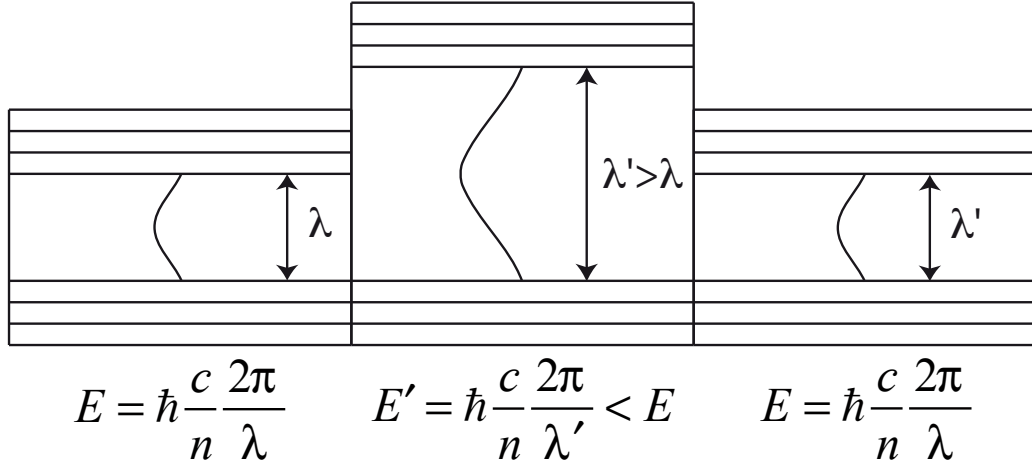


FIG. 1.4 – *Schéma de principe du confinement.* En augmentant localement l'épaisseur de la microcavité, on abaisse localement l'énergie fondamentale de la microcavité. On crée ainsi un puits de potentiel spatial qui confine latéralement les polaritons.

Cependant, la densité d'états  $y$  est très faible et les processus de relaxation permettant de peupler l'état du bas sont inefficaces. Ceci est notamment dû à la courbe de dispersion du polariton du bas (LP).

De plus, la très légère masse des polaritons (comparativement à l'électron libre) leur offre une capacité de diffusion balistique dans l'espace réel jusqu'à plusieurs dizaines de micromètres [Sermage *et al.* (2001), Langbein (2002)]. De ce fait, bien que l'on trouve moyen de les faire relaxer jusqu'à l'état fondamental, les polaritons peuvent toujours s'échapper et ainsi perdre du peuplement de l'état fondamental.

*L'idée est donc, comme dans l'espace réciproque, de créer un puits dans l'espace réel qui puisse contenir les polaritons.*

Il faut donc arriver à abaisser, dans une zone étroite de l'espace, l'énergie des polaritons de sorte à ce qu'ils restent dans cette portion de l'espace pendant que les processus de relaxation, libres ou induits, continuent de peupler l'état fondamental et atteindre de grandes densités de polaritons.

Pour cela, l'idée est de confiner les polaritons en agissant sur leur partie photonique. En effet, en augmentant l'épaisseur de la microcavité on réduit forcément l'énergie de son état fondamental (figure 1.4).

Cela se répercutera inéluctablement sur l'énergie du polariton en la diminuant. Donc, sur une petite portion de l'espace, une fois les polaritons dans l'état fondamental, ceux-ci ne pourront plus diffuser vers l'extérieur de ce puits, et y demeureront pendant tout leur temps de vie radiatif.

### 1.2.2 Le principe d'une microcavité à plots

L'idée du confinement des polaritons résidant dans le fait de créer un puits de potentiel circulaire pour les modes stationnaires du champ électromagnétique à l'intérieur de la microcavité semi-conductrice, il faudrait alors procéder à l'augmentation locale et circulaire de la longueur (ou épaisseur) effective  $L_{eff}$  de la microcavité, laquelle détermine l'état fondamental du champ électromagnétique et surtout le facteur de qualité. Ceci provoque à la surface de la microcavité une excroissance circulaire d'une certaine hauteur et de diamètre variable que l'on nomme *plot* (figure 1.5).

Habituellement, dans les microcavités semi-conductrices planaires classiques on utilise des miroirs de Bragg (DBR) pour constituer un résonateur de Fabry-Pérot. Ceux-ci ont la propriété principale de présenter une réflectivité supérieure à 99.9 % grâce à des phénomènes interférentiels, ce qui garantit un facteur de qualité  $Q$  suffisant pour asseoir les conditions d'un couplage fort entre le champ d'excitons et le champ électromagnétique.

De ce fait, et étant donné que la longueur efficace d'une microcavité dépend à la fois de l'épaisseur du corps de la microcavité  $L_c$  et de la longueur de pénétration du champ électromagnétique dans les miroirs de Bragg  $L_{DBR}$  ( $L_{eff} = L_c + L_{DBR}$ ), l'augmentation de  $L_{eff}$  doit inclure non seulement celle de  $L_c$ , mais aussi celle de  $L_{DBR}$ , et ceci tout en préservant un facteur de qualité suffisant.

Une autre exigence des microcavités vient du fait qu'il faut construire une résonance de la microcavité qui corresponde à celle du milieu actif que l'on souhaite y introduire (la transition  $1s$  de l'exciton d'un puits quantique), tout en veillant à ce que la distribution du champ électromagnétique soit à son maximum à l'endroit où se situe le milieu actif, donc au centre de la microcavité.

Cette condition étant cruciale à la réalisation d'un couplage fort, il faut donc s'assurer que lorsque l'on rehausse la longueur effective de la microcavité

dans la zone du plot, ceci ne déplace pas le maximum de distribution du champ électromagnétique en dehors du milieu actif.

Néanmoins, vu que la profondeur du puits de potentiel que l'on souhaite obtenir est autour de quelques meV, ceci se traduit dans les matériaux utilisés pour le corps de la microcavité (GaAs) par une augmentation de  $L_{eff}$  de quelques nanomètres qui ne représentent qu'une fraction négligeable de la résonance recherchée (autour de 250 nm) – les mesures effectuées sur l'échantillon révèlent une hauteur de 6 nm et une profondeur du puits de 9 meV, qu'un calcul au moyen de matrices de transfert confirme. Donc, le maximum de la distribution du champ électromagnétique à l'intérieur de la microcavité ne sera déplacé que de manière extrêmement négligeable.

Donc, en préservant un facteur de qualité suffisant lors de la croissance des miroirs de Bragg sur le plot, et en veillant à ce que le maximum de la distribution du champ électromagnétique relatif au plot se situe toujours au niveau du puits quantique, on garantit que la méthode des plots n'altèrent pas en elle-même les conditions de couplage fort nécessaire à l'étude des polaritons confinés.

### 1.2.3 L'échantillon d'une microcavité semiconductrice à plots

Pour procéder à la production de l'échantillon suivant l'idée et le principe présentés précédemment, on s'attache d'abord à fabriquer un masque sur lequel les plots seront représentés afin de pouvoir les imprimer sur la face supérieure du corps de la microcavité par un procédé de photo-lithographie lors de la croissance de l'échantillon.

C'est à cette étape que se fixe le diamètre des plots (19, 9 et 3  $\mu\text{m}$ ), lequel déterminera par la suite la taille de confinement des polaritons. On peut noter qu'il est tout à fait loisible de choisir les formes que l'on souhaite, des plus simples aux plus compliquées.

Pour la croissance de l'échantillon (figure 1.5), il existe deux étapes essentielles. La première consiste à faire croître les miroirs de Bragg inférieurs sur un substrat comme dans toute microcavité planaire classique. Précisément, on croît 22 paires de DBR (Distributed Bragg Reflectors) en AlAs/GaAs sur un substrat de GaAs.

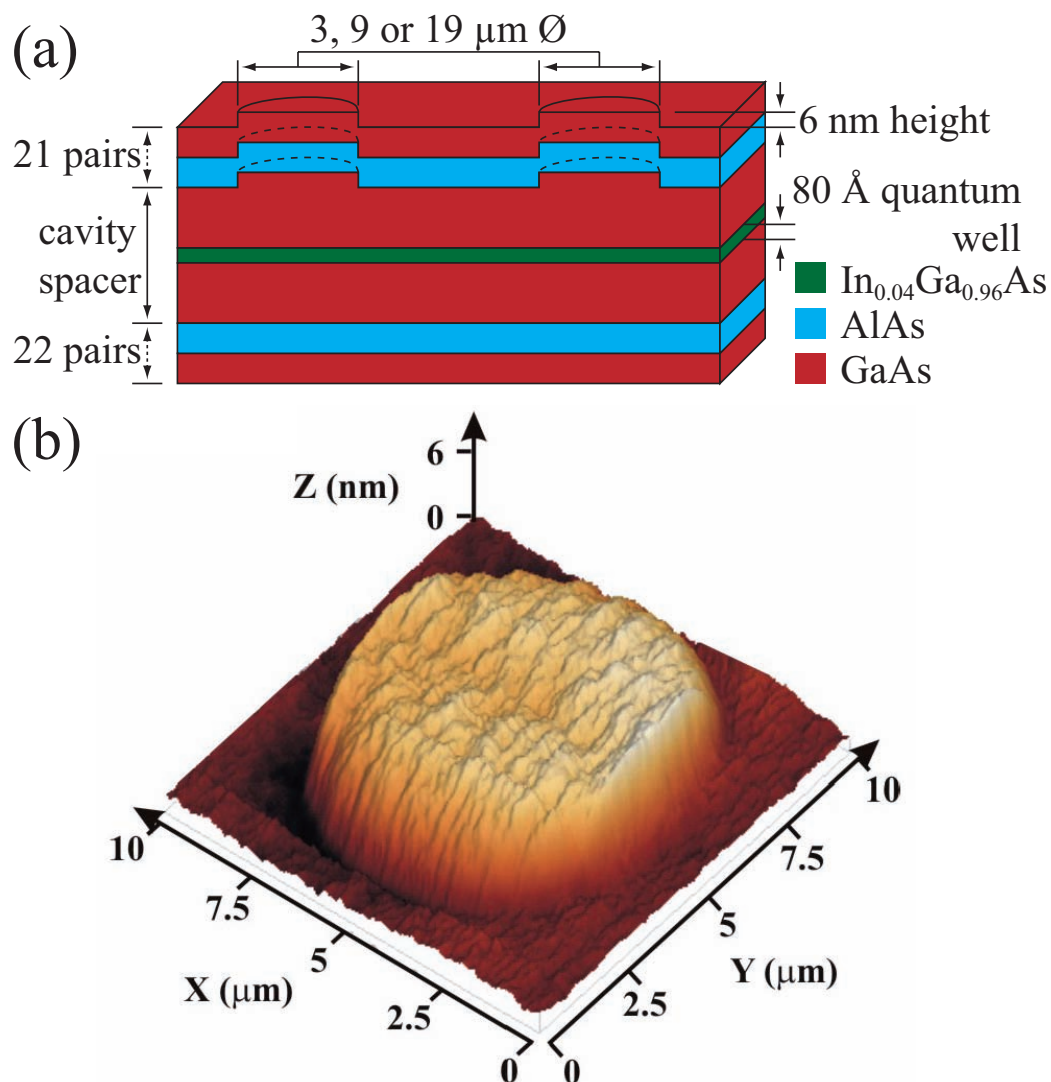


FIG. 1.5 – Schéma de la structure de la microcavité semiconductrice à plots (a). Une excroissance de 6 nm de hauteur est obtenue sur le corps de la microcavité par une attaque chimique. La recroissance des miroirs supérieurs suit le profil de l'excroissance et permet d'achever la construction des plots de la microcavité. Image par microscopie à force atomique sur la surface de l'échantillon pour un plot de 9  $\mu\text{m}$  de diamètre (b). La forme circulaire, le diamètre et la hauteur du plot sont préservés après la recroissance des miroirs supérieurs de la microcavité.

Sur cette première part de l'échantillon, on fait croître cette fois-ci le corps de la microcavité contenant le puits quantique. L'épaisseur de ce corps en GaAs est autour de 250 nm, correspondant ainsi à la transition  $1s$  de l'exciton dans un tel milieu réfractant.

Le puits quantique (QW) en InGaAs/GaAs est dopé à 4 % d'Indium et a une épaisseur de 80 Å. Le dopage en Indium a pour objectif de permettre éventuellement de procéder à des mesures en transmission à travers le substrat (en dessous du gap du GaAs).

Le corps de la cavité est crû de manière à imposer un dénivelé sur sa face supérieure, permettant ainsi de désaccorder la résonance de la microcavité à celle de l'exciton dans le puits quantique.

La seconde étape essentielle dans la production de l'échantillon est celle de la création des plots. On imprime d'abord les formes et les diamètres des plots sur le corps de la microcavité au moyen d'un procédé de photo-lithographie classique.

Puis, on procède à une attaque chimique pour fabriquer les 6 nm de hauteur des plots. C'est cette attaque chimique qui va déterminer cette fois-ci l'autre caractéristique géométrique des plots qui est leur hauteur, et dont dépendra la profondeur du puits spatial des polaritons.

Enfin, après un nettoyage *in situ* à l'Hydrogène, afin de garantir une bonne qualité de l'interface de recroissance, on procède, comme pour ceux du bas, à la croissance épitaxiale par jets moléculaires (MBE) des 21 paires supérieures de miroirs de Bragg.

Des mesures par microscopie à force atomique (AFM) sur la surface de l'échantillon permettent de s'assurer que les formes et les tailles des plots sont préservées jusqu'à la fin de la production de l'échantillon. Notamment, comme on peut le voir à la figure 1.5, la hauteur de 6 nm des plots est préservée jusqu'à la surface de l'échantillon après la recroissance des  $2.5 \mu\text{m}$  d'épaisseur des miroirs de Bragg supérieurs.

En conclusion, on obtient un échantillon d'une microcavité semiconductrice à plots de 6 nm de hauteur et de 3, 9 et  $19 \mu\text{m}$  de diamètre, où ceux-ci sont distribués le long du dénivelé de l'échantillon, permettant ainsi de désaccorder, autant pour la microcavité planaire que pour les plots, l'énergie du mode fondamental du champ électromagnétique à celle de l'exciton.

D'autres formes de plots peuvent être obtenues à volonté, mais elles n'ont pas été étudiées dans le cadre de la présente thèse, laquelle n'est qu'un prélude à l'étude des polaritons piégés dans les plots.





## Chapitre 2

# Spectroscopie en espace réciproque de la photoluminescence d'une microcavité

### 2.1 Imagerie optique

L'optique est un domaine de la physique divisé en sous-domaines. Un de ces sous-domaines est l'optique géométrique. Dans le cadre de l'optique géométrique, on considère que la lumière se propage sous forme de rayons lumineux ; ces rayons représentent alors la trajectoire de la lumière, c'est-à-dire qu'ils transportent la vibration électromagnétique.

On parle souvent d'approximation des rayons car cette notion n'est valable que dans certaines limites. En particulier, pour que la notion des rayons soit applicable, il faut que la longueur d'onde de la lumière soit très petite devant toutes les longueurs caractéristiques du milieu considéré.

Lorsque cette hypothèse n'est plus vérifiée, par exemple lorsque l'onde rencontre un obstacle dont la taille est comparable à sa longueur d'onde, des phénomènes typiquement vibratoires interviennent, comme la diffraction et les interférences. Ces phénomènes pour lesquels interviennent la nature vibratoire de la lumière et sa propagation par ondes se rattachent à l'optique ondulatoire.

### 2.1.1 Formation d'images en optique géométrique

#### Quelques notions élémentaires sur l'optique

La lumière est une onde électromagnétique caractérisée par un champ électrique  $\mathbf{E}$  et un champ magnétique  $\mathbf{B}$  dont le comportement spatio-temporel est régi par les équations de l'électromagnétisme de J. Maxwell (1860).

$$\operatorname{div} \mathbf{B} = 0 \quad (2.1)$$

$$\overrightarrow{\operatorname{rot}} \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.2)$$

$$\operatorname{div} \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (2.3)$$

$$\overrightarrow{\operatorname{rot}} \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (2.4)$$

Les densités  $\rho$  et  $\mathbf{j}$  sont appelées les sources du champ électromagnétique.  $\mu_0$  et  $\epsilon_0$  sont des constantes :  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$  SI est la perméabilité magnétique du vide et  $\epsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{-12}$  SI est la permittivité diélectrique du vide.

On démontre qu'en l'absence de sources, les champs magnétique et électrique sont des solutions de l'équation d'Alembert pour la propagation des ondes :

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \xi(x, t) - \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \xi(x, t) = 0$$

où  $v$  - la célérité d'une onde  $\xi$  dans un milieu donné - apparaît dans ce cas comme la vitesse de la lumière dans le vide :

$$v = c = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \epsilon_0}} \approx 3 \cdot 10^8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}.$$

La solution harmonique générale d'une onde électromagnétique se propageant dans la direction  $\mathbf{u}$  de l'espace peut s'écrire sous la forme d'une onde plane :

$$\xi(\mathbf{u}, t) = \xi_0 e^{ik(\mathbf{u} \cdot \mathbf{r} - vt)} = \xi_0 e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)}.$$

Dans cette expression,  $\omega = kv$  est la pulsation de l'onde et  $\mathbf{k}$  est le vecteur d'onde défini par la relation :

$$\mathbf{k} = k\mathbf{u} = \frac{2\pi}{\lambda} \mathbf{u}$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde. Le vecteur  $\mathbf{k}$  est toujours perpendiculaire au plan d'onde. Ce résultat peut être étendu aux ondes cylindriques et sphériques,

auquel cas, les rayons lumineux sont localement perpendiculaires aux surfaces d'onde. Le sens des rayons indique donc le sens de propagation de la lumière.

Dans un milieu quelconque, il est alors possible d'associer à une onde électromagnétique monochromatique, et donc à une onde lumineuse, trois grandeurs caractéristiques :

- une longueur d'onde  $\lambda$ ,
- une fréquence  $f$ ,
- une vitesse de propagation  $v$ .

Les ondes électromagnétiques couvrent une gamme de fréquences qui va de quelques hertz à  $10^{20}$  Hz mais la lumière visible pour l'homme ne couvre qu'une plage très limitée de fréquences allant de  $4 \cdot 10^{14}$  Hz à  $8 \cdot 10^{14}$  Hz. Dans le vide, la fréquence  $f$  et la longueur d'onde électromagnétique sont liées par la relation :

$$\lambda = \frac{c}{v}.$$

Dans un milieu transparent,  $v$  est toujours inférieure à la vitesse  $c$  dans le vide. Il est à noter que la fréquence  $f$  de l'onde est un invariant de la propagation : ainsi, lorsque l'onde lumineuse passe d'un milieu à l'autre, sa fréquence reste la même mais sa vitesse de propagation dépendant du milieu de propagation, et par conséquent sa longueur d'onde  $\lambda$  varie.

Un milieu de propagation est caractérisé par la vitesse de propagation  $v$  des ondes électromagnétiques. Mais il est plus usuel de caractériser un milieu par son indice optique, aussi appelé indice de réfraction :

$$n = \frac{c}{v} \geq 1.$$

En mécanique quantique, la solution de l'équation de Schrödinger pour un potentiel uniforme correspond à l'onde, dite de Broglie, associée à une particule libre. Cette onde subit une réfraction en accord avec la loi classique de la réfraction de l'optique quand elle passe d'une région de potentiel  $U_1$  dans une région de potentiel  $U_2$ . L'expression de l'indice optique est alors donnée par la relation :

$$n = \sqrt{(W - U_1)(W - U_2)}$$

où  $W$  représente l'énergie totale de la particule.

### Rappel des lois élémentaires de l'optique géométrique

On a vu que la lumière se propage en ligne droite dans un milieu homogène transparent. Les lois de Snell-Descartes sont probablement les plus utiles pour la plupart des problèmes classiques d'optique géométrique. Elles permettent de déterminer la trajectoire des rayons lumineux lors de la traversée d'une succession de milieux transparents et homogènes : ces lois décrivent le comportement d'un rayon lumineux au passage entre deux milieux. Ces lois se résument ainsi :

$$\begin{aligned} i' &= -i_1 \\ n_1 \sin i_1 &= n_2 \sin i_2 \end{aligned}$$

où  $i'$ , l'angle réfléchi à l'interface entre les deux milieux, est contenu avec l'angle incident  $i_1$  et l'angle réfracté  $i_2$  dans un plan unique normal à l'interface.

En somme, *lorsqu'un rayon lumineux passe d'un milieu moins (plus) réfringent à un milieu plus (moins) réfringent, i.e.  $n_1 < n_2$  ( $n_2 > n_1$ ) le rayon réfracté se rapproche (s'éloigne) de la normale à l'interface.* En général, les indices dépendent de la longueur d'onde  $\lambda$  : c'est le phénomène de dispersion. Cette dépendance de l'indice optique par rapport à la longueur d'onde est à l'origine des aberrations chromatiques que nous aborderons un peu plus loin.

Il n'est sans doute pas inutile de dire que les lois de la réfraction-réflexion peuvent être dérivées du principe de Fermat. La grande force de celui-ci est de donner une version unifiée de l'optique géométrique à partir d'une proposition très simple qui énonce que *le trajet effectivement suivi par la lumière pour aller d'un point A à un point B correspond à une valeur stationnaire du chemin optique par rapport aux trajets fictifs voisins allant de A à B.*

En substance, la lumière emprunte toujours le chemin le plus rapide. Ce principe permet aussi de retrouver immédiatement la propagation rectiligne des rayons dans un milieu homogène d'indice  $n$  - propriété la plus élémentaire de l'optique géométrique - en minimisant le chemin optique  $L_{AB}$  :

$$L_{AB} = \int_A^B n(M) dM.$$

Toutes ces lois et propriétés sont à la base de l'optique géométrique car elles permettent de prédire la trajectoire d'un rayon. C'est grâce à elles que l'on peut concevoir des systèmes et des instruments optiques pour faire de l'imagerie. Le reste n'est essentiellement que géométrie.

Dans la pratique, un point source n'émet pas qu'un rayon lumineux mais une infinité de rayons. Parmi ces rayons, certains parviennent à l'oeil d'un observateur, ce qui permet à l'objet d'être vu. Il existe plusieurs systèmes optiques pour construire l'image d'un objet en fonction de l'usage que l'on veut en faire.

Nous allons nous limiter dans notre cas à la construction d'images au moyen de lentilles minces convergentes, et à comprendre les ressorts de ce système pour justifier la méthodologie expérimentale utilisée et la validité des résultats expérimentaux.

### Les lentilles minces convergentes symétriques

Une lentille mince correspond à une lentille dont l'épaisseur maximum est très petite devant les rayons de courbure des deux dioptries qui la constituent. Les lentilles minces sont étudiées en général dans l'approximation de Gauss.

Dans le cadre de cette approximation, les points objets sont situés au voisinage de l'axe optique. De plus, les rayons considérés sont limités à ceux qui restent proches de l'axe (rayons paraxiaux). Enfin, tout point  $A$  admet un point conjugué  $A'$  par la *condition de stigmatisme*.

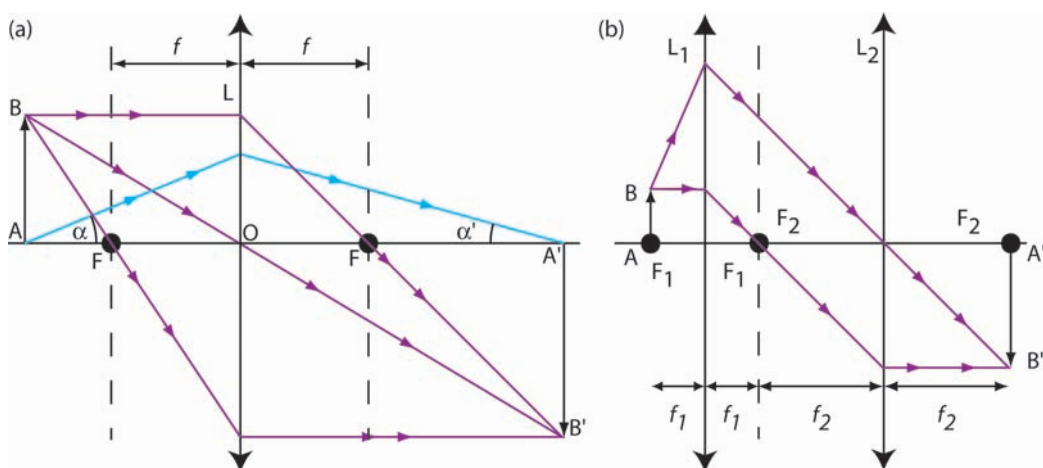


FIG. 2.1 – Construction d'une image par une seule lentille (a) et par la composition de deux lentilles (b). La première configuration est celle choisie pour imager l'espace réciproque, et la seconde, pour imager l'échantillon ainsi que le spot d'excitation laser.

Nous nous plaçons dans le cas d'une lentille mince, convergente et symétrique (*i.e.* le milieu qui baigne la lentille d'indice  $n$  est l'air ( $n = 1$ )). Les positions des points focaux objet et image sont donc symétriques par rapport à l'axe optique à une distance notée  $f$ .

Pour effectuer la construction de l'image d'un objet  $A$  à travers une lentille mince convergente, nous utilisons les propriétés de rayons particuliers :

- un rayon passant par le centre optique de la lentille n'est pas dévié ;
- un rayon incident parallèle à l'axe optique émerge de la lentille en passant par le point focal image ;
- un rayon incident passant par le point focal objet de la lentille émerge parallèle à l'axe optique.

Le plan focal image est le plan conjugué des points situés à l'infini. Un point  $A$  situé à l'infini sur l'axe optique forme son image  $A'$  au point focal image  $F'$  de la lentille. Inversement, un point situé dans le plan focal d'une lentille forme son image à l'infini. Le point objet  $A$  coïncidant avec le point focal objet forme son image à travers la lentille à l'infini sur l'axe optique.

Cependant, pour un point objet  $A$  distant de  $d_O$  du centre optique de la lentille, et situé hors de l'axe optique et du plan focal, le point image  $A'$  correspondant est formé dans un plan situé à une distance  $d_I$  du centre optique de la lentille (figure 2.1(a)), déterminée par la relation de conjugaison de Descartes :

$$\frac{1}{d_O} + \frac{1}{d_I} = \frac{1}{f}. \quad (2.5)$$

Un des objectifs courants de l'imagerie est d'obtenir des modifications géométriques de l'image. Celles-ci sont inhérentes aux systèmes optiques qui permettent leur création. On en distingue deux majeurs que sont le *grandissement*  $\gamma$  et le *grandissement angulaire*  $\theta$  définis comme suit :

$$\begin{aligned} \gamma &= -\frac{d_I}{d_O} \text{ (image inversée)} \\ \theta &= \frac{\alpha'}{\alpha} = \frac{1}{\gamma} \end{aligned}$$

où  $\alpha$  ( $\alpha'$ ) est l'angle que fait le rayon incident (transmis) avec l'axe optique.

Comme nous le verrons plus tard, ces deux modifications géométriques sont choisies de sorte à obtenir un agrandissement de la taille de l'espace réciproque (que nous verrons plus loin) tout en maintenant une ouverture angulaire suffisante pour les besoins de la résolution et l'imagerie spectrales *via* le monochromateur (figure 2.1(a)).

Quant à l'imagerie de l'échantillon et du spot d'excitation laser, nous utilisons une deuxième lentille pour former l'image, à son foyer, étant donné que l'objet est fixé dans le plan focal de la première lentille pour l'obtention de l'espace réciproque.

### Les aberrations

Il est nécessaire de mentionner deux limitations principales de la formation des images dont l'effet sur le résultat est déterminant :

- les *aberrations chromatiques*, dues à la dispersion ;
- les *aberrations géométriques*, dues à des écarts entre la réalité et la théorie de l'approximation des rayons paraxiaux.

Concernant les *aberrations chromatiques*, celles-ci sont liées à la dispersion, c'est-à-dire à la variation de l'indice optique  $n$  d'un milieu avec la longueur d'onde de la lumière  $\lambda$ . Ainsi, en lumière polychromatique, le trajet des rayons est-il différent en fonction de la longueur d'onde. La résolution des problèmes qui en découlent nécessite la connaissance du spectre de la lumière utilisée et de la courbe de dispersion des milieux constituant le système optique.

En particulier, pour des lentilles symétriques convergentes, la focalisation de rayons incidents rouge ou violet parallèles à l'axe optique ne se fait pas au même point focal. Le rouge se focalise plus loin que le violet et, suivant la dispersion  $n(\lambda)$  du milieu et la courbure de la lentille (donc la distance focale), cet écart peut être de l'ordre de plusieurs millimètres.

Par exemple, dans notre cas, il nous est difficile d'utiliser la même lentille pour l'excitation optique avec le vert (532 nm) et la détection optique dans le proche infrarouge (830 nm), car il est impossible d'être à la fois focalisé pour l'excitation et la détection.

Toute fois, il existe un moyen de contourner les problèmes d'aberrations chromatiques au moyen de ce que l'on nomme les *doublets achromatiques*.

L'imbrication de deux lentilles par deux faces de même courbure (mais évidemment l'une convexe et l'autre concave), mais d'indice de réfraction différents judicieusement choisis, permet de diminuer sensiblement les aberrations chromatiques.

Quant aux *aberrations géométriques*, celles-ci sont dues au fait que les conditions d'utilisation courante des instruments optiques sont souvent éloignées des limites de validité de la théorie des rayons paraxiaux (par exemple de grands objets), et font donc intervenir les ordres supérieurs du développement limité du chemin optique.

On distingue trois types d'aberrations géométriques (que nous retrouverons d'ailleurs dans le cadre de l'imagerie dans les monochromateurs) :

- aberration sphérique ;
- coma ;
- astigmatisme.

Dans notre cas, c'est la grande ouverture numérique des optiques utilisées qui limite la validité du modèle des rayons paraxiaux (conditions de Gauss), et impose de tenir compte des aberrations sphériques. Ces aberrations de sphéricité ont pour conséquence de faire perdre au plan de Fourier les hautes fréquences spatiales (que nous verrons plus loin).

On peut démontrer que la géométrie idéale de la surface d'une lentille qui minimise ces problèmes de sphéricité est l'hyperbole, d'où le nom de *lentille asphérique*. Néanmoins, les problèmes d'aberrations chromatiques demeurent.

Cependant, les développements des instruments optiques d'imagerie, notamment en microscopie optique et en photographie, ont évolué vers des systèmes complexes qui corrigent la plupart de ces aberrations. Les objectifs de microscope ou d'appareil photographique sont constitués d'une multitude de lentilles qui, tout en garantissant des ouvertures numériques élevées, nous permettent de travailler dans des conditions agréables dans la gamme de longueur d'onde qui nous importe (du visible jusqu'au proche infrarouge).



### 2.1.2 Formation d'images en optique ondulatoire (ou optique de Fourier)

#### Principe de Abbe

Dans la réalité, la notion de point en optique géométrique ne permet pas d'expliquer en détails la formation des images. Un objet est en fait considéré comme une superposition de réseaux élémentaires diffractants d'une certaine périodicité (*principe d'Abbe*). Chaque réseau diffracte la lumière dans une direction qui dépend de son orientation et de son pas.

Les faisceaux diffractés sont assimilés à des ondes planes et convergent pour former une figure de diffraction dans le plan focal de la lentille ; la forme de la figure de diffraction étant déterminée par l'ouverture de la lentille. Les différents points de la figure de diffraction agissent comme des sources de lumière, au sens de Huygens, et les ondelettes se propagent en direction du plan image où elles interfèrent pour former une image de l'objet.

#### Principe de l'optique de Fourier

L'optique de Fourier est l'étude des conséquences ondulatoires de la lumière. Elle repose sur le théorème de Fourier qui permet de considérer un signal lumineux - mais pas seulement lumineux, il peut être électrique ou de toute autre nature physique - comme une superposition de signaux harmoniques lumineux. La réponse d'un système quelconque au passage de l'onde lumineuse peut être donc vu comme l'influence exercée par ce système sur chacun des signaux élémentaires.

Une des conséquences principales de la nature ondulatoire de la lumière sur la formation des images est *la diffraction*. Il existe deux cas de figures extrêmes, jamais réalisables dans la pratique, qui sont simples à traiter, le cas d'un émetteur parfaitement cohérent, et celui d'un émetteur parfaitement incohérent.

Dans le cas incohérent, l'absence totale de relation de cohérence entre divers émetteurs permet d'obtenir directement l'image résultante par l'addition des intensités. A l'inverse, dans le cas cohérent, où les relations de phase sont parfaitement définies, il convient de prendre en compte les amplitudes complexes des champs secondaires ; l'intensité résultante n'étant alors que le champ élevé au carré.

Suivant le principe de décomposition de Fourier, toute onde électromagnétique en propagation dans l'espace libre, quelle que soit sa forme, cylindrique, sphérique, plane ou autre, peut être décomposée en une somme d'ondes planes en introduisant les variables  $p_x$ ,  $p_y$  et  $p_z$  appelées *fréquences spatiales* :

$$\begin{aligned}\xi(x, y, z) &= \xi_0 e^{i(k_x x + k_y y + k_z z)} = \xi_0 e^{i2\pi(p_x x + p_y y + p_z z)} \\ k &= \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + k_z^2} = \frac{2\pi}{\lambda} \\ p_x &= \frac{k_x}{2\pi}; \quad p_y = \frac{k_y}{2\pi}; \quad p_z = \sqrt{\frac{1}{\lambda^2} - p_x^2 - p_y^2}\end{aligned}$$

avec des angles de propagation correspondants à :

$$\sin \theta_x = \frac{k_x}{k} = \lambda p_x \quad (2.6)$$

$$\sin \theta_y = \frac{k_y}{k} = \lambda p_y \quad (2.7)$$

de sorte que l'on puisse écrire :

$$\begin{aligned}\hat{\xi}(p_x, p_y) &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \xi(x, y) e^{-i2\pi(p_x x + p_y y)} dx dy \\ \xi(x, y, z) &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\xi}(p_x, p_y) e^{i2\pi(p_x x + p_y y)} e^{ik_z z} dp_x dp_y\end{aligned}$$

où  $k_z = 2\pi \sqrt{\frac{1}{\lambda^2} - p_x^2 - p_y^2}$ .

### Transformée de Fourier par l'effet d'une lentille mince

Une onde d'intensité quelconque dans un plan d'entrée peut être vue comme une série de composantes harmoniques avec des fréquences spatiales données. Chacune de ses composantes est une onde plane se propageant dans une direction imposée par les fréquences spatiales du plan d'entrée (équations 2.6 et 2.7), et avec une amplitude fixée par le coefficient de la transformée de Fourier de la fonction d'entrée.

*On peut donc utiliser une lentille pour réaliser la transformée de Fourier du champ dans le plan d'entrée.*

En effet, une lentille mince de focale  $f$  transforme une onde plane incidente en une onde paraboloidale focalisée en un point du plan focal déterminé simplement par la direction de propagation de l'onde plane : à chaque direction  $(\theta_x, \theta_y)$  correspond un point  $(x = f\theta_x, y = f\theta_y)$  dans le plan focal (dans

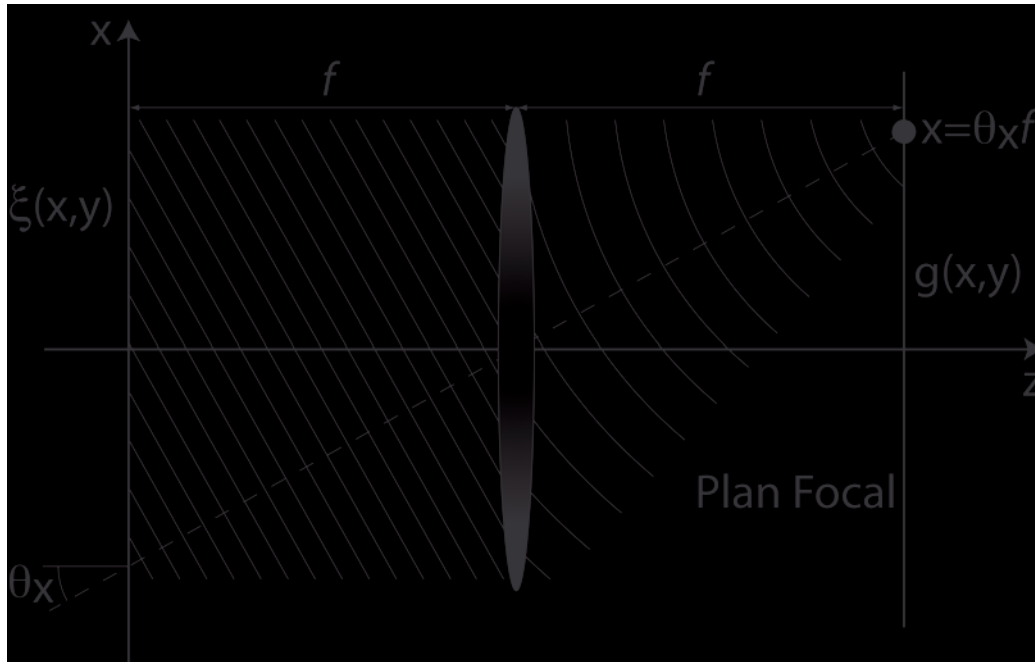


FIG. 2.2 – *Transformée de Fourier par une lentille.* La composante harmonique de fréquence spatiale  $(p_x, p_y)$  de  $\xi(x, y)$  se propage comme une onde plane de direction  $(\theta_x = \lambda p_x, \theta_y = \lambda p_y)$ . Puis, elle est focalisée par la lentille au point  $(x, y) = (f\theta_x, f\theta_y) = (\lambda f p_x, \lambda f p_y)$  du plan focal de la lentille. La distribution du champ  $g(x, y)$  dans le plan focal est alors proportionnelle à la transformée de Fourier  $\hat{\xi}(p_x, p_y)$  de  $f(x, y)$ .

le cadre de l'approximation paraxiale  $\sin \theta_{x,y} \approx \theta_{x,y}$ ). On peut donc séparer dans le plan focal de la lentille la contribution de chacune des ondes planes et obtenir un plan, appelé *plan de Fourier*, contenant les fréquences spatiales du signal d'entrée (figure 2.2).

Lorsque le plan d'entrée est à la focale de la lentille, les amplitudes complexes des fréquences spatiales dans le plan de Fourier sont distribuées comme suit :

$$g(x, y) \propto \hat{\xi}(p_x, p_y)$$

et leurs intensités sont donc données par :

$$I(x, y) = \frac{1}{(\lambda f)^2} |\hat{\xi}(p_x, p_y)|^2.$$

Par voie de conséquence, et en tenant compte des propriétés mathématiques de la transformée de Fourier, on peut construire un système d'imagerie par la simple application de deux transformées de Fourier successives à un objet.

En fait, il suffit de replacer le plan de Fourier (ou plan de l'espace réciproque) généré par la première lentille à la focale d'une deuxième lentille mince pour reconstituer fidèlement (aux aberrations optiques et limite de diffraction près) l'image de l'objet (figure 2.1(b)).

La deuxième lentille mince produit une transformée de Fourier inverse sur un système de coordonnées en fréquences spatiales  $(p_x, p_y)$ , et dont le résultat est la fonction d'entrée  $\xi(x, y)$  dans un système de coordonnées directes, mais inversées - c'est-à-dire que  $(x, y)_{image} = -\frac{f_2}{f_1}(x, y)_{objet}$ .

### Ouverture numérique et limite de diffraction

En règle générale, les lentilles minces ont une symétrie de révolution cylindrique et une dimension finie : elles ont donc un diamètre. Ainsi, suivant la courbure de ses faces (donc de sa focale), une lentille de diamètre donné ne pourra agir que sur une portion angulaire (ou un domaine fini de fréquences spatiales).

De ce fait, on introduit une quantité propre à la géométrie de la lentille appelée *ouverture numérique* et définie comme le rapport de son diamètre sur sa distance focale :

$$N.A. = \frac{D}{f}$$

telle que l'angle maximal permis par la lentille soit donné par :

$$\theta_{max} = \tan^{-1}\left(\frac{D}{2f}\right) = \tan^{-1}\left(\frac{1}{2}N.A.\right)$$

où  $\theta_{max}$  est le demi-angle (par rapport à l'axe optique de la lentille) maximal issu du point focal que peut contenir la lentille.

La première conséquence de la dimension finie d'une lentille mince sur l'espace réciproque, c'est que celui-ci devient aussi de dimension finie (figure 2.3). La réduction du domaine des fréquences spatiales réduit aussi

l'étendue du plan de Fourier à la dimension du diamètre de la lentille. L'espace réciproque est alors un disque de diamètre  $D$  normal à l'axe optique et centré dessus, dont le bord représente les fréquences spatiales correspondantes aux angles  $\theta_{max}$ .

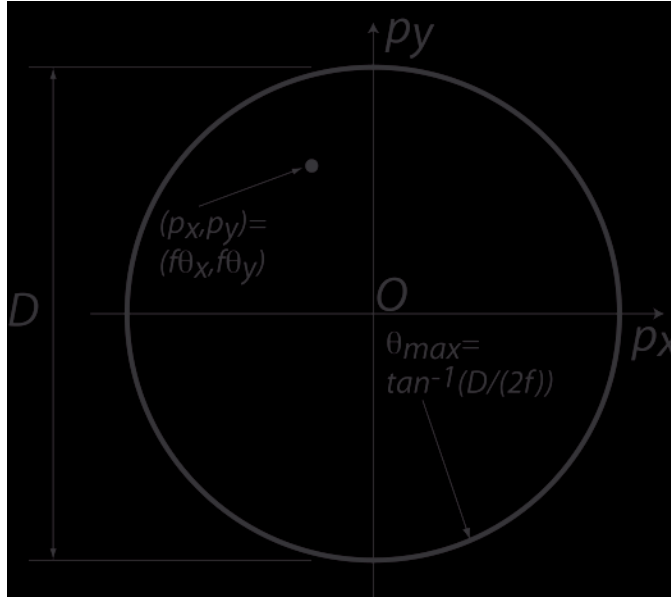


FIG. 2.3 – *Espace réciproque* (ou plan de Fourier) obtenu grâce à une lentille mince de symétrie cylindrique, de diamètre  $D$  et de distance focale  $f$ . L'amplitude complexe du champ dans cet espace est donnée par  $\hat{\xi}(p_x, p_y) = \hat{\xi}(f\theta_x, f\theta_y)$ . Le bord circulaire de cet espace est donné par  $\sqrt{p_x^2 + p_y^2} = f\theta_{max} = f \tan^{-1}(\frac{D}{2f}) = f \tan^{-1}(\frac{1}{2}N.A.)$ .

La seconde conséquence de la dimension finie d'une lentille mince est la limite de diffraction. En effet, le fait qu'une lentille cylindrique ait un diamètre fini  $D$  revient à considérer qu'une onde plane incidente sur celle-ci se comporte comme si elle rencontrait une ouverture circulaire de diamètre  $D$  avant d'atteindre une lentille infiniment grande.

Dans l'approximation de Fraunhofer, c'est-à-dire lorsque l'observation se fait suffisamment loin par rapport à la propagation (champ lointain), on peut démontrer que, dans le plan focal de la lentille, la distribution d'intensité résultant de l'onde plane incidente convoluée à l'ouverture circulaire de diamètre  $D$  vaut :

$$I(x, y) \propto \left[ \frac{2J_1\left(\frac{\pi D \rho}{\lambda f}\right)}{\frac{\pi D \rho}{\lambda f}} \right]^2$$

où  $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$  et  $J_1(\cdot)$  la fonction de Bessel de premier ordre. C'est cette dernière qui détermine la figure de diffraction par une ouverture circulaire, plus connue sous figure de Airy, et qui consiste en un disque central entouré d'anneaux. On peut déduire de cette formule que la taille de la focalisation d'un pinceau lumineux (laser par exemple), se propageant perpendiculairement à la lentille et emplissant son diamètre, est donnée par :

$$\rho_s = 1.22\lambda \frac{f}{D} = 1.22 \frac{\lambda}{N.A.}$$

où  $\rho_s$  est le rayon du disque central de la figure de diffraction.

Mais surtout, la dépendance de l'intensité suivant la fonction de Bessel du premier ordre introduit la notion de résolution spatiale de la lentille (ou limite de diffraction). Pour distinguer deux objets, ceux-ci doivent être séparés d'au moins une distance fixée par les premiers zéros de la fonction de Bessel du premier ordre (ou le premier anneau noir de la figure de Airy) : c'est le *critère de Rayleigh*.

### 2.1.3 Système d'imagerie des espaces direct et réciproque

L'objectif étant de faire de la spectroscopie en imagerie réciproque, on génère grâce à une première lentille ( $L_1$ ) l'information sur les fréquences spatiales dans le plan de Fourier de  $L_1$  (figure 2.4). Le choix de la première lentille se fait essentiellement sur le critère de l'ouverture numérique (1.15) pour accéder à de grands angles ( $\pm 30^\circ$ ). En fait, notre choix s'est porté sur un objectif de microscope, mais on se limitera à ce stade de la description à une lentille mince quelconque (voir le paragraphe 2.3.1 sur l'excitation optique et les avantages d'un objectif de microscope au lieu d'une lentille).

Puis, on cherche à agrandir la taille de l'espace réciproque à la dimension que l'on souhaite (grandissement de 2) au moyen de l'équation de Descartes (équation 2.5). C'est la fonction de la deuxième lentille ( $L_2$ ) qui est un doublet achromatique de grand diamètre (75 mm) et dont l'ouverture numérique est faible (0.375) pour pouvoir limiter les aberrations hors axe lors de l'agrandissement du plan de Fourier. On obtient donc l'espace réciproque à la dimension souhaitée pour pouvoir en faire de la spectroscopie.

Le séparateur de faisceau ( $S$ ) permet de réfléchir un peu de lumière (4%) vers un deuxième doublet achromatique ( $L_3$ ) pour faire une image directe (ou réelle). Celle-ci sert à s'assurer de la bonne focalisation de l'échantillon sur  $L_1$  et d'observer la taille du spot ainsi que la zone de luminescence.

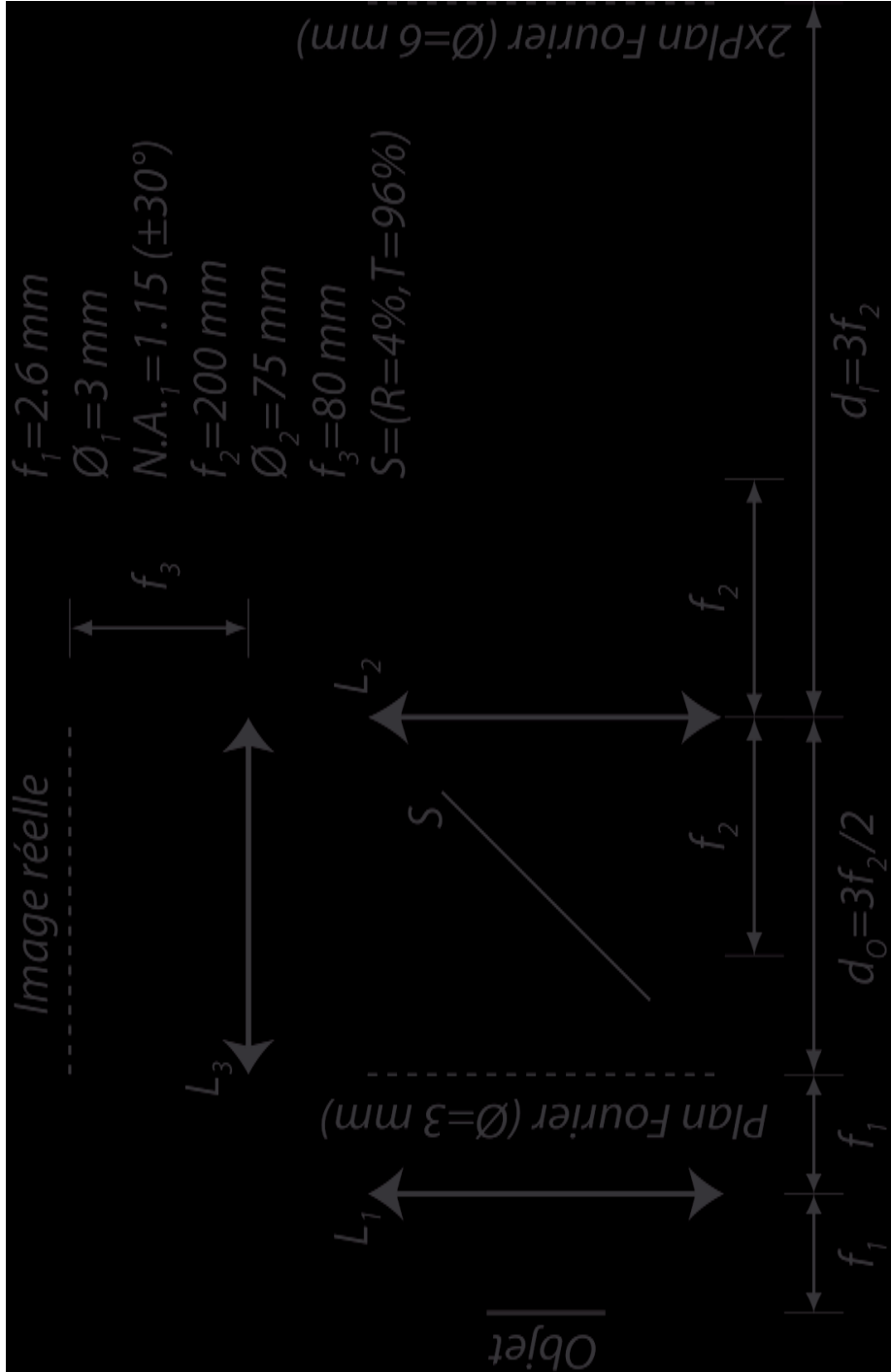


FIG. 2.4 – Schéma optique. L'accessibilité angulaire de l'échantillon est de  $\pm 30^\circ$ . L'image réciproque est agrandie 2 fois. L'image directe permet d'observer la surface de l'échantillon et le spot d'excitation.

## 2.2 Spectroscopie en photoluminescence

### 2.2.1 Principe d'un monochromateur

#### Fonction d'un monochromateur

Le spectre de lumière issu d'une source est caractérisé par une fonction  $L(f)$  appelée *luminance* ; de même qu'un spectre d'absorption est caractérisé par une fonction  $A(f)$  qui représente le facteur d'*absorption*  $A$  du milieu traversé par une lumière de fréquence  $f$ .

Le rôle des spectromètres (des appareils dispersifs en général) est de déterminer les fonctions  $L(f)$  et  $A(f)$  avec la plus grande précision possible. Il est difficile de mesurer directement la fréquence d'une vibration lumineuse. C'est pourquoi on utilise plutôt la longueur d'onde  $\lambda$  qui est directement mesurable pour caractériser une onde électromagnétique donnée.

#### Définition du pouvoir de résolution

Pour déterminer avec la plus grande précision la fonction  $L(\sigma)$ , un appareil dispersif doit découper le spectre de la source en de petits intervalles spectraux de largeur  $\Delta\sigma$ , et fournir finalement un signal proportionnel à la luminance pour chacun d'entre eux. Plus  $\Delta\sigma$  est petit, plus le spectre est finement résolu ; c'est pourquoi  $\Delta\sigma$  est appelé l'élément spectral résolu. A la place de  $\Delta\sigma$ , on considère souvent la *résolvance*  $\mathfrak{R}$  ou *pouvoir de résolution*. Cette grandeur est définie par l'expression :

$$\mathfrak{R} = \frac{\sigma}{\Delta\sigma} = \frac{\lambda}{\Delta\lambda}$$

où  $\sigma$  est le nombre d'onde défini comme  $\sigma = \frac{f}{c}$ .

Les performances d'un appareil dispersif ne sont pas uniquement fonction de sa plus ou moins grande résolvance. Il doit aussi fournir, pour chaque élément spectral résolu, un signal d'amplitude suffisant et proportionnel à la luminance de la source. C'est une qualité essentielle du système dispersif qui n'est en général pas indépendante du pouvoir de résolution.

#### Diffraction dans un monochromateur

La résolvance  $\mathfrak{R}$  d'un appareil dispersif (à prismes ou à réseaux) est limitée de manière fondamentale par les phénomènes de diffraction à une valeur



maximale  $\mathfrak{R}_0$ . Cette valeur limite est appelée *résolvance intrinsèque* (ou théorique) du disperseur. Si les aberrations du système sont négligeables, et si la fente est infiniment fine et éclairée de manière monochromatique, la répartition de l'éclairement dans le plan  $P$  est régie uniquement par les lois de la diffraction à l'infini (diffraction de Fraunhofer).

On supposera, comme c'est le cas dans tous les appareils bien conçus, que l'étendue du faisceau est déterminée par le disperseur (s'il a une taille plus petite que l'ouverture numérique). Du point de vue de la diffraction, le disperseur joue le rôle d'un diaphragme de champ (comme la dimension finie d'une lentille vue précédemment).

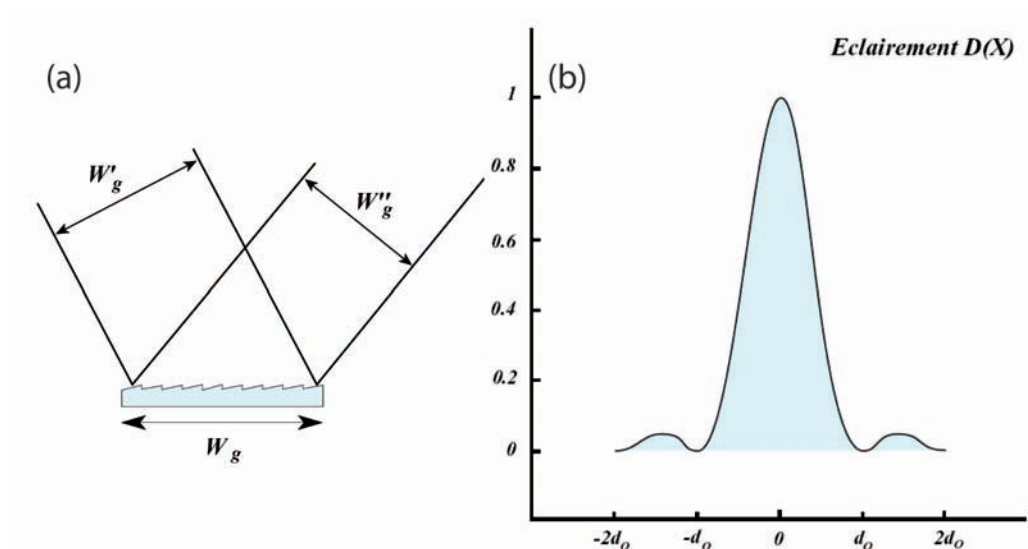


FIG. 2.5 – Géométrie de diffraction sur un réseau (a) et figure de diffraction d'une fente infiniment fine éclairée par une lumière monochromatique (b).

Le disperseur est souvent de forme géométrique rectangulaire (figure 2.5(a)). On admettra pour simplifier que la projection de ce contour dans un plan perpendiculaire au faisceau émergent est un rectangle. Si on note  $w_g''$  la projection de ce dernier dans une direction qui suit la dispersion, c'est-à-dire perpendiculaire à la fente, la distribution de l'éclairement  $D(x)$  dans le plan  $P$  est donnée par :

$$D(x) = \frac{\sin^2\left(\pi \frac{x}{d_0}\right)}{\left(\pi \frac{x}{d_0}\right)^2}$$

où  $d_0 = f \frac{\lambda}{w_g''}$ . (On notera que  $D(x)$  est la transformée de Fourier d'une fonction rectangulaire qui représente une fente, ce qui est consistant avec

la diffraction de Fraunhofer vue précédemment dans le cadre de l'optique ondulatoire et diffractive).

On a l'habitude de caractériser la largeur de la partie centrale par  $d_0$ . Il faut être attentif au fait que  $d_0$  représente en fait la distance entre le maximum central et le premier minimum et non pas la largeur à mi-hauteur de la courbe (figure 2.5(b)).

### Limite de résolution spectrale

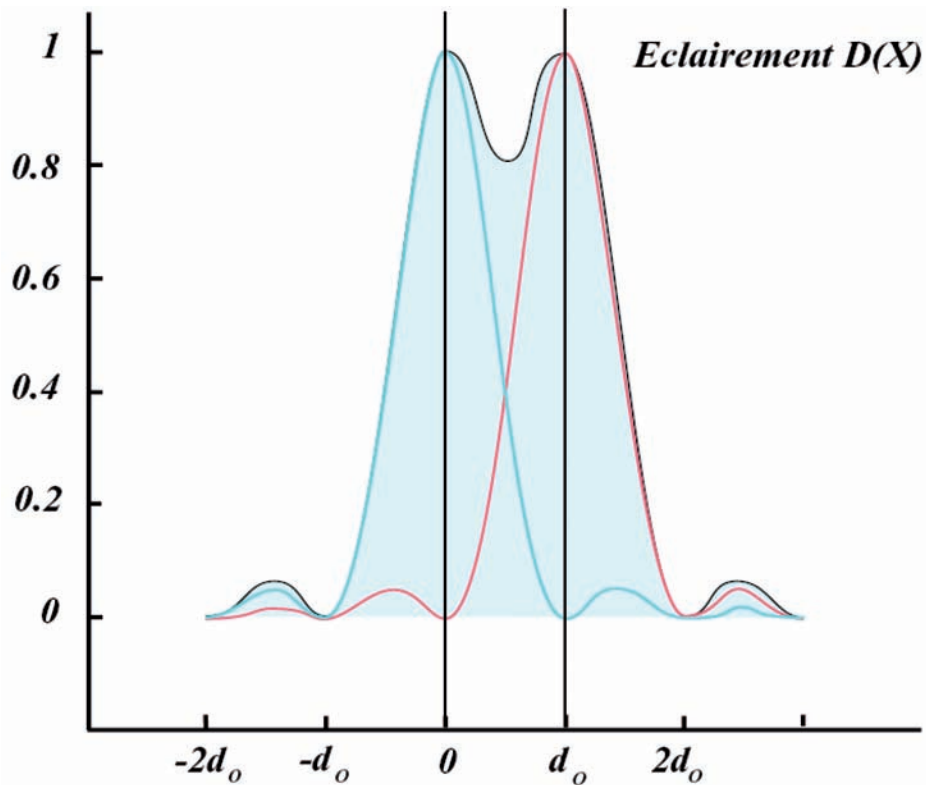


FIG. 2.6 – *Critère de Rayleigh*. Pour pouvoir distinguer deux images de diffraction il faut que leurs centres soient distants d'au moins  $d_0$ .

Supposons que la fente, toujours infiniment étroite, soit illuminée par deux radiations de même amplitude et dont les longueurs d'onde sont  $\lambda$  et  $\lambda + \Delta\lambda$  respectivement. On admet généralement que les deux images monochromatiques de la fente seront séparées (c'est-à-dire résolues) dans le plan  $P$  lorsque les centres de leur figure de diffraction sont séparés d'au moins  $d_0$

(figure 2.6) ; cette condition est connue sous le nom de *critère de Rayleigh* (le même que vu précédemment pour les lentilles).

Lorsqu'on applique ce critère on fait l'hypothèse que le fente est éclairée de manière incohérente (on additionne les intensités dans le plan de  $P$ ). Dans le cas cohérent, les choses se passent différemment et la distribution d'éclairement dans le plan  $P$  est proportionnelle au carré de la somme des amplitudes ; le critère de Rayleigh n'est alors plus applicable.

Pour deux radiations, dont les longueurs d'onde différent de  $\Delta\lambda$ , correspondant à deux figures de diffraction dans le plan  $P$  dont les centres sont distants de  $\Delta x$ , on démontre que la résolution théorique ou intrinsèque du disperseur s'écrit :

$$\mathfrak{R}_0 = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} = w_g'' \cdot \frac{d\beta}{d\lambda}$$

où  $d\beta$  représente la séparation angulaire par le disperseur entre deux longueurs d'onde séparées de  $d\lambda$ .  $\mathfrak{R}_0$  caractérise les propriétés spectrales d'un monochromateur et donc sa capacité à fournir la résolution spectrale souhaitée pour une mesure expérimentale donnée.

## 2.2.2 Imagerie avec un monochromateur

### Les réseaux plans en réflexion

L'étude complète de la diffraction de la lumière par un réseau pose un problème très difficile. En particulier, il est impossible de négliger la nature vectorielle des ondes électromagnétiques et il faut tenir compte de toutes les caractéristiques du réseau.

Les réseaux les plus utilisés sont de deux types :

- les réseaux gravés mécaniquement à l'aide d'outils diamantés sur des substrats plans ou concaves.
- les réseaux holographiques produit en exposant un substrat recouvert d'une pellicule photosensible à la figure d'interférence produite par deux faisceaux lasers. Les substrats peuvent à priori être de forme quelconque.

C'est ce dernier type de réseau que nous utilisons car il limite certaines aberrations ainsi que les "ghosts" qui apparaissent plus importants pour de grandes densités de lignes lorsqu'on cherche à obtenir de hautes résolutions

spectrales. En imagerie, les "ghosts" doivent être évités car ils sont des répliques d'images souvent difficiles à distinguer d'une vraie information. Ce phénomène intervient dans les réseaux gravés par le fait que se superpose une seconde périodicité de lignes qu'il est techniquement difficile d'éviter lors de la gravure à de hautes densités de lignes ( $> 600$  lignes/mm).

Nous avons donc opté pour un réseau holographique carré de  $10 \times 10$  cm, non-blazé et de 1800 lignes/mm. En effet, l'angle de Blaze ne nous est pas indispensable vu que le signal est souvent intense dans notre système.

Comme nous le verrons plus tard, la densité élevée de lignes n'a pas pour objectif une plus grande résolution spectrale ; mais plutôt la possibilité d'utiliser une moindre ouverture numérique du monochromateur pour minimiser les aberrations géométriques tout en éclairant un nombre de lignes suffisant pour ne pas perdre de la résolution spectrale.

### La géométrie d'un monochromateur

Sans entrer dans les calculs, l'équation de base qui définit le fonctionnement d'un monochromateur est basée sur l'interférence constructive de deux faisceaux diffractés - c'est-à-dire que le déphasage soit égal à un nombre entier de longueur d'onde - de sorte qu'elle s'exprime comme suit :

$$\sin \alpha + \sin \beta = 2 \cdot \sin\left(\frac{\alpha + \beta}{2}\right) \cos\left(\frac{\beta - \alpha}{2}\right) = nk\lambda$$

où  $n$  est la densité de surface de lignes et  $k$  l'ordre de diffraction.

Dans la plupart des dispositifs pratiques les positions des fentes d'entrée et de sortie sont fixes, de telle sorte que l'angle de déviation  $D_V = \beta - \alpha$  est constant (figure 2.7). De cette géométrie vont dépendre les avantages ou les inconvénients de l'imagerie par le fait que certaines aberrations seront augmentées alors que d'autres seront diminuées.

Dans notre cas, on a  $D_V = 20^\circ$ ,  $\alpha = -39.33^\circ$  et  $\beta = 59.33^\circ$  (notons que  $|\alpha| \neq |\beta|$ , ce qui ne sera pas anodin dans la suite). Avec notre réseau holographique de haute densité ( $n = 1800$  lignes/mm), il nous est suffisant de travailler à l'ordre un de la diffraction du réseau ( $k = 1$ ) pour avoir la résolution spectrale désirée. Nous travaillons toujours dans le proche infrarouge autour de 830 nm ( $\lambda = 830$  nm).

### Les grandeurs caractéristiques

On définit deux quantités dont les dépendances angulaires définissent la résolution spectrales mais dont le choix est important pour combattre la limitation imposée par les aberrations pour faire de l'imagerie spectrale : la dispersion angulaire et la dispersion linéaire. La première s'exprime en radians/nm et s'écrit :

$$\frac{d\beta}{d\lambda} = \frac{nk}{\cos\beta}$$

où  $d\beta$  est la séparation angulaire entre les longueurs d'onde  $\lambda$  et  $\lambda + d\lambda$ . la deuxième s'exprime nm/mm et définit l'étendue du spectre dans un plan perpendiculaire au faisceau diffracté telle que :

$$\frac{d\lambda}{dx} = \frac{\cos\beta}{nkL_B} \approx 1.15 \text{ nm/mm} \quad (2.8)$$

où  $L_B$  est la distance séparant le plan considéré du réseau et que l'on nomme *distance focale* du spectromètre et qui est de 245.761 mm dans notre cas.

Dans ce cas, la résolution intrinsèque du monochromateur peut s'écrire après des calculs géométriques adaptés comme suit :

$$\mathfrak{R}_0 = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} = w_g'' \cdot \frac{nk}{\cos\beta} = W_g nk = NK \quad (2.9)$$

où  $N$  est le nombre de lignes qui interviennent dans la diffraction.

La résolution intrinsèque d'un réseau, ou pouvoir résolvant, ne doit pas être confondue avec la résolution de l'instrument. La résolution de l'instrument ou bande passante est la capacité de ce dernier à séparer deux bandes spectrales adjacentes, en tenant compte des aberrations, des largeurs de fentes, etc ...

Dans un cas réel, la géométrie est fixée ( $D_V = cste$ ) ; c'est pourquoi on exprime souvent la résolution intrinsèque d'un réseau de manière légèrement différente :

$$\mathfrak{R}_0 = W_g \cdot \frac{\sin\alpha + \sin\beta}{\lambda}$$

On peut ainsi affirmer que la résolution intrinsèque d'un réseau dépend de :

- la géométrie du système utilisé
- la longueur d'onde

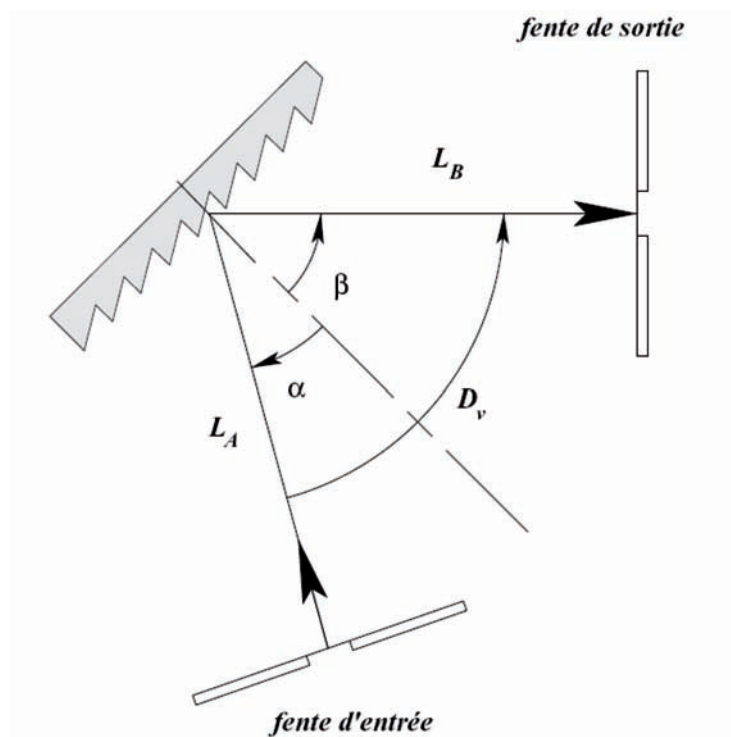


FIG. 2.7 – Géométrie de diffraction dans un monochromateur à réseau.

– des dimensions du réseau (ou la taille de l'illumination).

Dans notre cas précis,  $W_g$  est donné par l'ouverture maximale du monochromateur ; c'est-à-dire par le diamètre du miroir concave d'entrée (figure 2.8), d'où  $W_g = 60$  mm. On peut alors vite calculer que, dans notre configuration, à 830 nm, la résolvanse de notre monochromateur est de  $\mathfrak{R}_0 \approx 16361$ . Ceci correspond à une surface d'éclairage de notre réseau de 1800 lignes/mm de près de 9 mm selon l'équation 2.9. Il ressort donc que nous pouvons n'utiliser que 15% de l'ouverture numérique du monochromateur sans pour autant altérer la résolution spectrale.

### La configuration Czerny-Turner

De nombreuses configurations ont été proposées. Généralement, on distingue les configurations à réseaux plans non-correctés (PGS pour Planar Grating System) et les systèmes à réseaux correctés (ACGH pour Aberration Corrected Holographic Grating systèmes). Les configurations PGS les plus connues sont celles proposées par Fastie-Ebert et par Czerny-Turner. Quant aux configurations ACGH, elles sont généralement à la base des systèmes fonctionnant avec des réseaux concaves. Dans notre cas, nous nous limite-

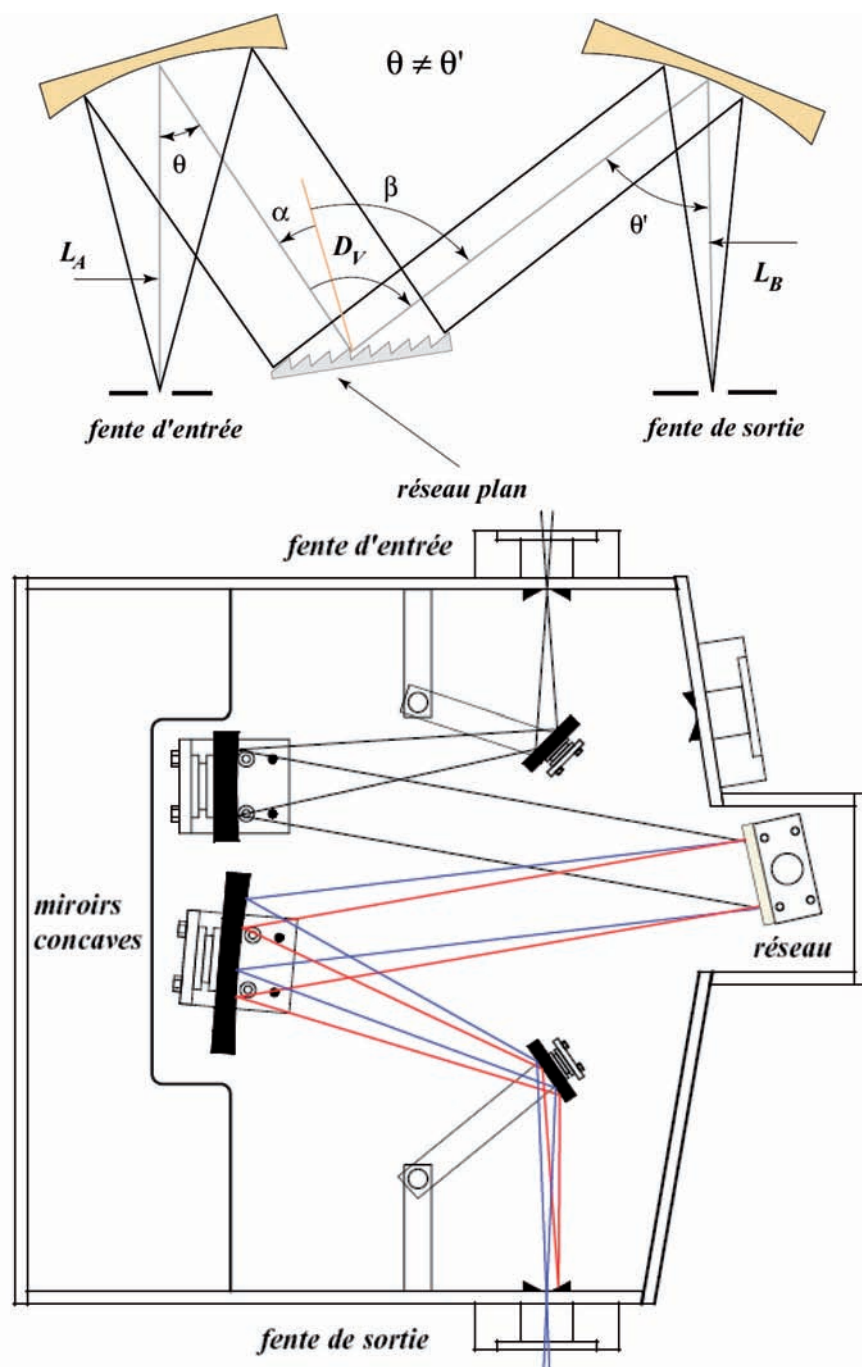


FIG. 2.8 – Monochromateur à réseau du type Czerny-Turner. Le schéma présenté est toujours valable. On remarquera que, dans ce cas, les optiques d'entrée et de sortie sont des optiques à miroir (qui sont par définition achromatiques). Les deux miroirs plans de renvoi (retractables), à l'entrée et à la sortie, ne sont pas vraiment nécessaires, mais permettent l'utilisation du système sur deux bras de mesures et avec deux types de détecteurs différents.

rons à la configuration Czerny-Turner que nous avons utilisée (après en avoir exploré d'autres) et qui est illustrée à la figure 2.8.

C'est la configuration la plus répandue. Le système est constitué de deux miroirs concaves et d'un réseau. On peut démontrer qu'il est possible de corriger la coma avec une configuration asymétrique, à une longueur d'onde donnée. Les systèmes Czerny-Turner sont donc plus appropriés pour le design de spectrographe. Un autre avantage est qu'il est possible d'utiliser des optiques de grande taille (et donc de grande ouverture) sans que cela ne pose trop de problèmes.

### Les aberrations géométriques d'un monochromateur

Les systèmes Czerny-Turner présentent des aberrations qui, finalement, sont à l'origine d'une dégradation des performances du système, telles que la résolution spectrale, la résolution spatiale, l'imagerie, le rapport signal sur bruit. Parmi les aberrations les plus communes on peut citer :

- la *défocalisation* : généralement la fente d'entrée est imagée sur une surface qui n'est pas plane. Il n'y a pas de problème lorsqu'on travaille avec deux fentes. En revanche, en mode spectrographe cela se traduit, dans le plan du détecteur, par une mise au point qui n'est pas uniforme dans le plan image.
- la *coma* : directement liée au fait que dans les systèmes PGS on travaille hors axe. La coma varie avec le cube de l'ouverture numérique du système. Cette aberration est totalement corrigible, à une longueur d'onde, dans un système Czerny-Turner asymétrique.
- l'*aberration sphérique* : elle ne peut se corriger qu'avec l'aide d'une optique asphérique et elle varie avec la quatrième puissance de l'ouverture numérique.
- l'*astigmatisme* : il est lié à la géométrie hors axe des systèmes PGS. Il ne peut se corriger qu'avec l'aide d'une optique asphérique, il varie avec le carré de l'ouverture et avec le carré de l'angle.

Dans notre cas, le fait que nous pouvons n'utiliser que 15% de l'ouverture de notre monochromateur sans perdre de résolution spectrale est un très bon atout pour combattre ces aberrations. En effet, notre petite ouverture numérique nous assure de travailler dans l'axe des optiques du monochromateur, ce qui limite de manière drastique les aberrations sphériques et l'astigmatisme.

Généralement dans les systèmes à réseau, la fente d'entrée n'est pas imagée 1 pour 1, on dit que le système est anamorphique. Une des premières



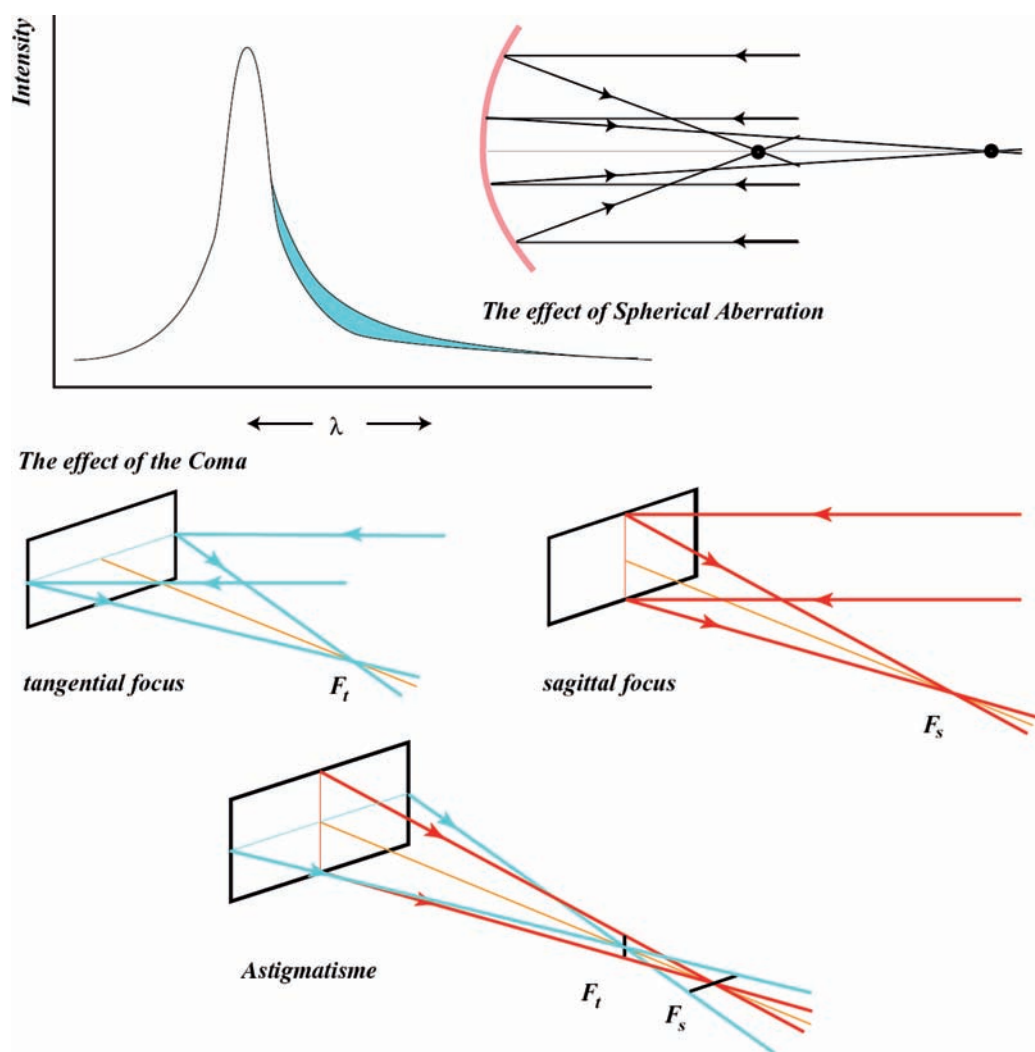


FIG. 2.9 – Les différentes aberrations géométriques dans un monochromateur.

conséquences est que, contrairement à une idée répandue, pour utiliser de manière optimum un système, les fentes d'entrée et de sortie ont généralement des valeurs différentes. On peut démontrer alors que le grandissement latéral est donné par :

$$\frac{w'}{w} = \frac{\cos \alpha}{\cos \beta} \cdot \frac{L_B}{L_A}$$

où  $w$  et  $w'$  sont les dimensions des fentes latérales d'entrée et de sortie (ou image de fente) respectivement. On a donc un grandissement latéral de près de 1.5 et de près de 1 pour le grandissement vertical ( $L_A = 250$  mm et

$L_B = 245.761$  mm).

### La fonction de transfert d'un monochromateur et sa calibration

La largeur de bande et la résolution sont des notions utilisées pour caractériser la capacité de l'instrument à séparer deux lignes spectrales voisines. Si on imagine que la fente d'entrée de l'instrument est illuminée par une source parfaitement monochromatique, de longueur d'onde  $\lambda_0$ , on devrait recueillir, dans le plan image d'un instrument parfait, un signal qui est la réplique du signal d'entrée ; c'est-à-dire un "Dirac" centré sur la longueur d'onde  $\lambda_0$ . Pratiquement, on observe un signal élargi qui est caractéristique du système, c'est-à-dire qu'il tient compte des aberrations, des largeurs de fente, de la lumière parasite, etc ...

Les monochromateurs étant, comme la majorité des instruments d'optique des systèmes linéaires et invariants, on peut écrire la réponse à un signal quelconque sous la forme d'une convolution :

$$F(\lambda) = B(\lambda) \otimes P(\lambda)$$

où  $B(\lambda)$  est le spectre du signal d'entrée,  $P(\lambda)$  le profil de l'instrument (qui dépend notamment des largeurs des fentes d'entrée et de sortie, ainsi que de l'influence de la diffraction et des aberrations) et  $F(\lambda)$  le signal observé à sa sortie.

Il est donc très important de connaître le profil de l'instrument  $P(\lambda)$  pour apprécier la validité des mesures expérimentales et, au besoin, déconvoluer ce profil de la réponse  $F(\lambda)$  pour obtenir avec le plus de précision possible l'information recherchée.

### Calibration d'un monochromateur

De ce fait, on utilise une méthode de calibration qui suit tout le trajet optique, depuis l'échantillon jusqu'au détecteur à la sortie du monochromateur. A la place de l'échantillon, on dispose une croix (superposition d'une fente horizontale et une fente verticale de  $60 \mu\text{m}$  de large chacune) qu'on l'éclaire avec un laser ( $\lambda = 830$  nm) au moyen d'un collimateur. On constitue, ainsi que décrit précédemment dans le paragraphe 2.1.3, sa figure de diffraction dans l'espace réciproque (ou plan de Fourier) que l'on agrandi sur la fente d'entrée du monochromateur.

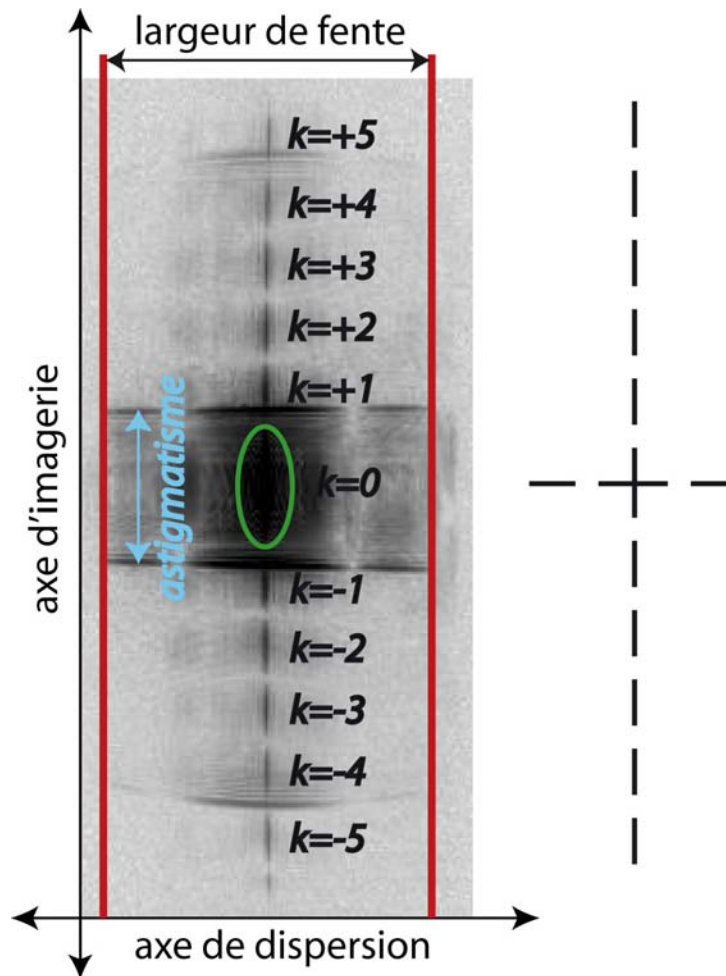


FIG. 2.10 – Image de la figure de diffraction d'une croix (transformée de Fourier d'une croix) prise à la sortie d'un monochromateur, à l'ordre 1 de diffraction du réseau, et illuminée par un laser à 830 nm. A droite, un schéma conceptuel de la diffraction d'une croix que l'on observe dans le plan focal d'une lentille et que l'on souhaite retrouver à la sortie d'un monochromateur.

Après avoir disposé le réseau à l'angle correspondant au premier ordre de diffraction pour la longueur d'onde de 830 nm, il est alors possible de suivre le trajet des rayons à l'intérieur du monochromateur et de s'assurer ainsi que la surface éclairée du réseau est suffisante ( $> 9$  mm).

Puis, à l'aide du détecteur (caméra CCD) on prend l'image faite par le monochromateur (figure 2.10). Étant donné que l'on éclaire la croix avec une lumière monochromatique très fine spectralement (inférieure à la résolution

spectrale du monochromateur), l'image obtenue n'est pas dispersée par le réseau, mais subit toutes les modifications géométriques et spectrales inhérentes au monochromateur (surtout l'astigmatisme).

Connaissant parfaitement les caractéristiques géométriques de l'image d'entrée (figure de diffraction de la croix calculable par sa transformée de Fourier), on peut la comparer à l'image de sortie, et obtenir ainsi la fonction de transfert du monochromateur et sa caractérisation totale à la longueur d'onde de travail (figure 2.10). On peut donc aisément déduire la calibration spectrale (1.14 nm/mm ce qui est très consistant avec la valeur théorique obtenue à l'équation 2.8) et les correspondances angulaires (les fréquences spatiales de l'espace réciproque) sur l'image finale.

En effet, comme on peut le voir à la figure 2.10, dans l'axe d'imagerie, c'est-à-dire le long de la fente d'entrée du monochromateur (verticale dans l'image), sont disposés les ordres de diffraction de la *fente horizontale* de la croix. On peut facilement les identifier. Sachant qu'à chaque ordre de diffraction correspond un angle de diffraction (donné par la largeur de la fente de diffraction et la longueur d'onde utilisée : loi classique de la diffraction), il est donc aisé de calibrer les correspondances angulaires sur l'image de sortie.

On remarque aussi la finesse spectrale de ces ordres de diffraction. Elle correspond à la largeur spectrale limite ( $80 \mu\text{eV}$ ) que le monochromateur peut fournir, vu que la lumière monochromatique qui éclaire la croix est infiniment étroite spectralement (caractéristique d'un laser).

Cependant, on observe que les ordres de diffraction disposés horizontalement dans l'espace réciproque, et qui correspondent à l'effet de la fente verticale de la croix, ne sont pas focalisés sur l'image : c'est l'*astigmatisme du monochromateur*. Ce plan horizontal non focalisé correspond au plan de dispersion du réseau et n'est pas celui dans lequel on cherche à faire de l'imagerie, vu qu'il est consacré à l'information spectrale.

En effet, cela n'aurait aucun sens vu que la conjugaison du plan d'entrée au plan de sortie dans un monochromateur ne se fait qu'à une dimension spatiale, la verticale, alors que la seconde dimension, l'horizontale, sert, à travers la largeur de la fente d'entrée, à la résolution spectrale.

Pour cette raison, quand on utilise un monochromateur, on travaille avec une fente d'entrée presque fermée (une dizaine de micromètres dans notre cas) pour obtenir une information spectrale optimale. L'image serait alors

uniquement constituée des ordres de diffractions verticaux de l'image à la figure 2.10. Alors que la mise au point est parfaite dans le plan vertical, nous réduisons l'astigmatisme dans le plan horizontal vu que la fente est presque fermée et que l'on n'est donc plus hors axe (source de l'astigmatisme).

En conclusion, *l'image à la sortie du monochromateur est la dispersion spectrale de chacun des "points" disposés le long de la fente d'entrée, c'est-à-dire des fréquences spatiales correspondant aux angles parallèles au plan vertical du monochromateur.*

### 2.2.3 Détection avec une caméra CCD

Cependant, on souhaite obtenir une image planeaire, c'est-à-dire tridimensionnelle : une dimension consacrée aux fréquences spatiales contenues dans l'espace réciproque, une dimension consacrée à la dispersion spectrale et une dimension consacrée à l'intensité de chacun des points de l'image.

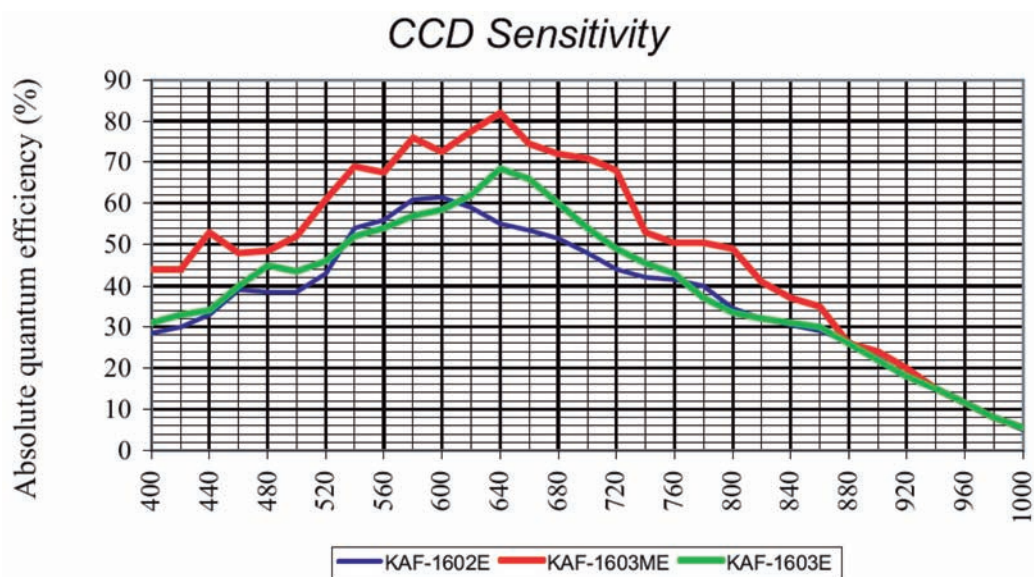


FIG. 2.11 – *Efficacité quantique* d'une caméra CCD en fonction de la longueur d'onde. Dans le cas présent, c'est le modèle en silicium (Si) KAF-1603ME (courbe rouge) qui offre une efficacité de 38% à 830 nm.

Pour obtenir cette dernière, on utilise une caméra CCD bidimensionnelle (un chip rectangulaire de 16.61 mm de diagonale) dont on s'assure que la taille de ses pixels (carrés de  $9 \mu\text{m}$ ) ne compromet pas la résolution spectrale

du monochromateur ( $80 \mu\text{eV}$ ) et la dispersion linéaire sur le plan de sortie ( $1.14 \text{ nm/mm}$ ). On obtient alors une fenêtre spectrale de  $15.9 \text{ nm}$  qui est suffisante pour l'analyse spectrale en imagerie.

Un monochromateur doit fournir, pour chaque élément spectral résolu, un signal d'amplitude suffisant et proportionnel à la luminance de la source. De ce fait, on s'assure que la distribution de l'intensité lumineuse sur le plan de sortie est homogène en éclairant uniformément, avec une lampe blanche, la fente d'entrée du monochromateur et en observant la réponse de la caméra CCD. On peut ainsi parfaire la connaissance de la fonction de transfert du monochromateur sous tous ses aspects, notamment à propos de l'effet de celui-ci sur la répartition de l'intensité lumineuse.

<b>CCD</b>	Kodak KAF-1602E, 1603E, 1603ME
<b>Array Size (pixels)</b>	1536 x 1024
<b>Pixel size</b>	9 x 9 microns
<b>Imaging area</b>	13.82 x 9.22 mm ( $127.4 \text{ mm}^2$ )
<b>Imaging diagonal</b>	16.61 mm
<b>Linear Full Well (typ.)</b>	100,000 $e^-$
<b>Dynamic Range</b>	76 dB

FIG. 2.12 – Paramètres de la caméra CCD. La dimension du chip et la taille des pixels ne doit pas limiter la résolution spectrale du monochromateur. La dynamique est utile pour observer des rapports de signaux faibles et forts qui soient importants.

Le logiciel qui permet de contrôler la caméra CCD est développé pour l'imagerie en astronomie, ce qui offre un large panel de calibrations pour parfaire la qualité de l'image finale dans le respect de paramètres objectifs comme le bruit électronique, le temps d'exposition, l'uniformité de la réponse des pixels, etc ...

Parmi les paramètres cruciaux qu'il faut choisir se trouvent :

- l'*efficacité quantique* à la longueur d'onde souhaitée ( $830 \text{ nm}$ ) et qui est définie comme le nombre de photoélectrons créés pour chaque photon incident (38% dans le cas présent avec un chip de silicium)
- la *dynamique* (76 dB) qui permet d'avoir le rapport maximal entre le signal détectable le plus faible et le plus élevé (hors saturation). La présence d'un pelletier permet de refroidir jusqu'à  $50^\circ \text{ C}$  au-dessous de l'ambiante, réduisant ainsi le bruit de plusieurs ordres de grandeur ; ce

qui est utile lors de longues expositions.

La spécificité de la caméra CCD choisie dans le cas présent vient des micro-lentilles asphériques déposées sur le chip. Celles-ci permettent d'éliminer les problèmes d'interférences qui existent inévitablement dans le plan de sortie d'un monochromateur et, contrairement à la spectroscopie classique, dégradent sérieusement la qualité de l'image en spectroscopie d'imagerie.

## 2.3 Montage expérimental

### 2.3.1 Excitation optique

Dans le cas présent, on utilise, au lieu de la première lentille (figure 2.4), un objectif de microscope (d'équivalence géométrique) corrigé pour l'infrarouge et à grande ouverture numérique  $N.A. = 1.15$  ; ce qui correspond à un demi-angle maximal de  $30^\circ$ . Ce choix n'est pas anodin.

En effet, la première raison qui impose l'usage d'un objectif de microscope vient des aberrations sphériques qui deviennent très importantes pour d'aussi grandes ouvertures numériques. Une ouverture numérique aussi élevée imposerait donc l'usage d'une lentille asphérique. Cependant, vu que l'on utilise la même optique pour la détection et l'excitation comme indiqué à la figure 2.13, se poserait alors le problème des aberrations chromatiques, lesquelles sont très prononcées et ne peuvent être corrigées dans le cas des lentilles asphériques (pour des raisons d'incompatibilités géométriques avec les surfaces d'un doublet achromatique).

On ne pourrait donc pas à la fois focaliser la lentille sur l'échantillon pour le vert, et l'utiliser aussi pour la détection dans le proche infrarouge car elle ne serait plus focalisée pour ces dernières longueurs d'onde. L'espace réciproque ne serait plus contenu dans le plan de Fourier qui, lui-même, serait réduit et courbe. Donc, seul un système complexe de compositions de plusieurs lentilles peut à la fois corriger les aberrations chromatiques et les aberrations sphériques : c'est ce que fait un objectif de microscope. Cependant, il faut veiller à ce que l'objectif de microscope soit aussi corrigé à l'infini et contre la coma, si l'on souhaite imager avec un agrandissement et sur de longues distances (1 m) le plan de Fourier.

Une autre raison majeure qui fait de l'objectif de microscope un bon candidat est la limite de diffraction à laquelle on peut focaliser un laser

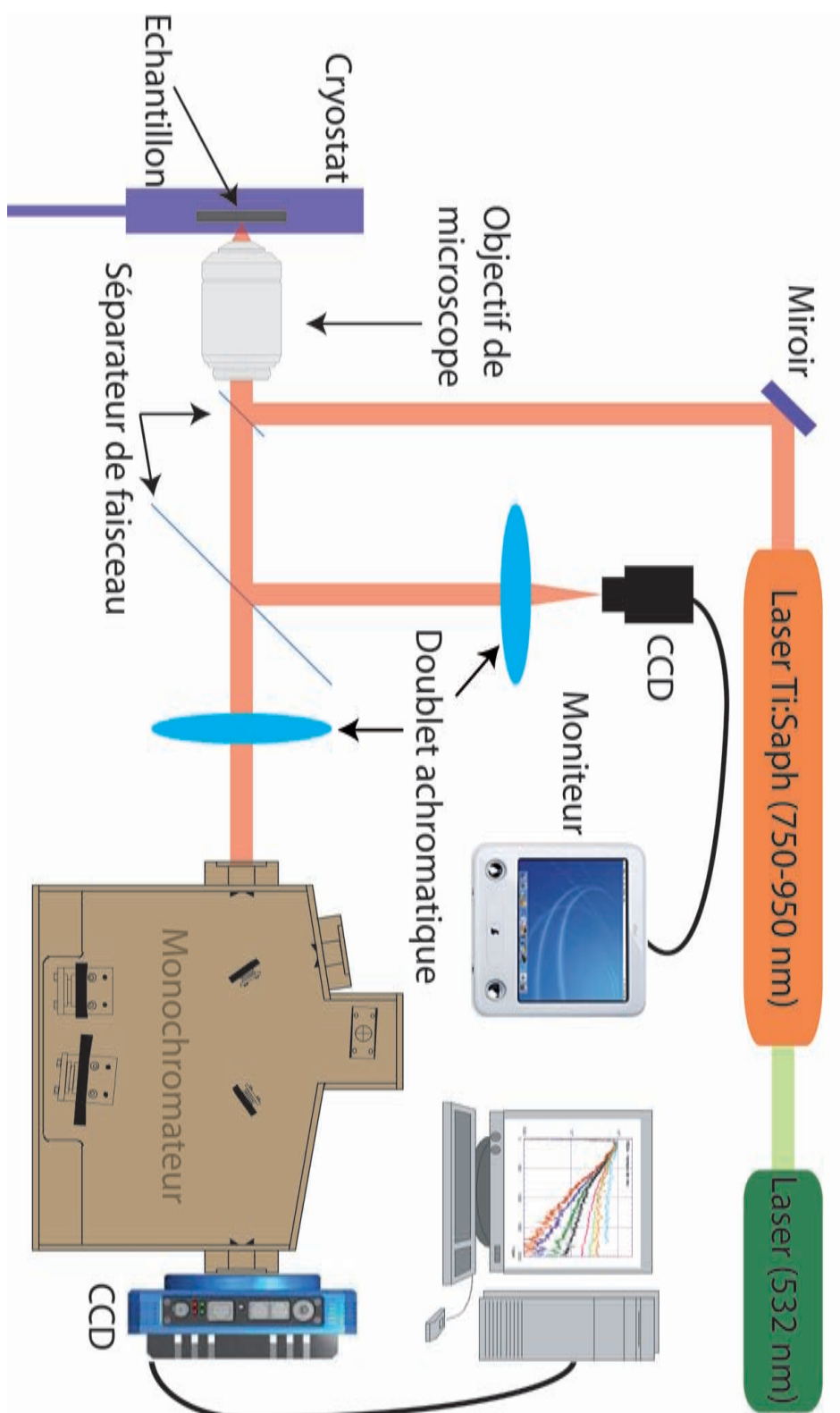


FIG. 2.13 – Schéma général du montage expérimental.



d'excitation. Il est utile dans le cas présent de pouvoir obtenir une taille du diamètre du spot d'excitation qui ne soit pas plus grande que  $3 \mu\text{m}$  vu les surfaces auxquelles l'on s'intéresse (la taille des plots varie entre 20 et  $3 \mu\text{m}$  de diamètre). En emplissant toute l'ouverture numérique de l'objectif de microscope, on obtient une taille du diamètre du spot d'excitation de  $2.3 \mu\text{m}$  à 830 nm. On s'en assure au moyen de l'observation de l'image réelle agrandie créée sur une caméra CCD (figure 2.13). De plus, le pouvoir de résolution est de  $1 \mu\text{m}$  à cette même longueur d'onde, ce qui permet de résoudre avec plus de précision les sources émettrices de l'échantillon, et donc la bonne définition de l'information spectrale contenue dans l'espace réciproque.

Enfin, le choix de l'objectif de microscope prend aussi en compte la distance de travail (10.6 mm). Celle-ci est en général fortement réduite lorsque les ouvertures numériques sont grandes, ce qui peut entraver la bonne focalisation sur l'échantillon se trouvant dans le cryostat.

### 2.3.2 Cryostat à fenêtre optique

Pour les besoins de la physique détaillée précédemment dans le chapitre 1, l'échantillon est refroidi dans un cryostat à flux d'hélium liquide. Son support en cuivre est en contact dynamique avec ce flux. Les températures obtenues (mesurées au moyen d'un thermocouple) vont jusqu'à 4K.

Néanmoins, la difficulté vient des fenêtres optiques du cryostat. Il est nécessaire de trouver un compromis entre l'isolation thermique pour les besoins de la cryogénie et les distances de travail permises pour la configuration de l'imagerie optique souhaitée. Au regard de la distance de travail de l'objectif de microscope, il est impératif que l'échantillon ne soit pas trop éloigné de la fenêtre ( $< 5 \text{ mm}$ ).

Par ailleurs, lorsqu'on souhaite travailler avec de grandes ouvertures angulaires, il faut s'assurer de l'effet de réfraction optique sur les fenêtres pour la bonne interprétation des résultats. L'idéal serait d'avoir des fenêtres sphériques dont le centre soit situé sur la zone de l'échantillon qui intéresse. Ce cas de figure, bien que longuement expérimenté, est extrêmement difficile à réaliser.

On utilise alors des fenêtres plates, mais le problème de réfraction demeure important aux grands angles. En choisissant une épaisseur minimale des fenêtres ( $500 \mu\text{m}$ ), on réduit le trajet des rayons lumineux dans le verre, et on minimise ainsi sensiblement la variation angulaire des faisceaux aux

grands qui sortent du cryostat. Ainsi, la variation qui reste se traduit aussi faiblement dans l'espace réciproque, en deçà de la limite de diffraction de Fraunhofer, qu'elle ne pose plus de problèmes.

Une méthode de calibration analogue à celle utilisée pour le monochromateur dans le paragraphe 2.2.2 peut aider à déconvoluer cet effet des résultats s'il devient important (au-delà de  $40^\circ$ ). Il existe aussi des lames de verre courbées et très fines qui servent à cette correction optique en dehors du cryostat.

### 2.3.3 Symétrie du plan de Fourier

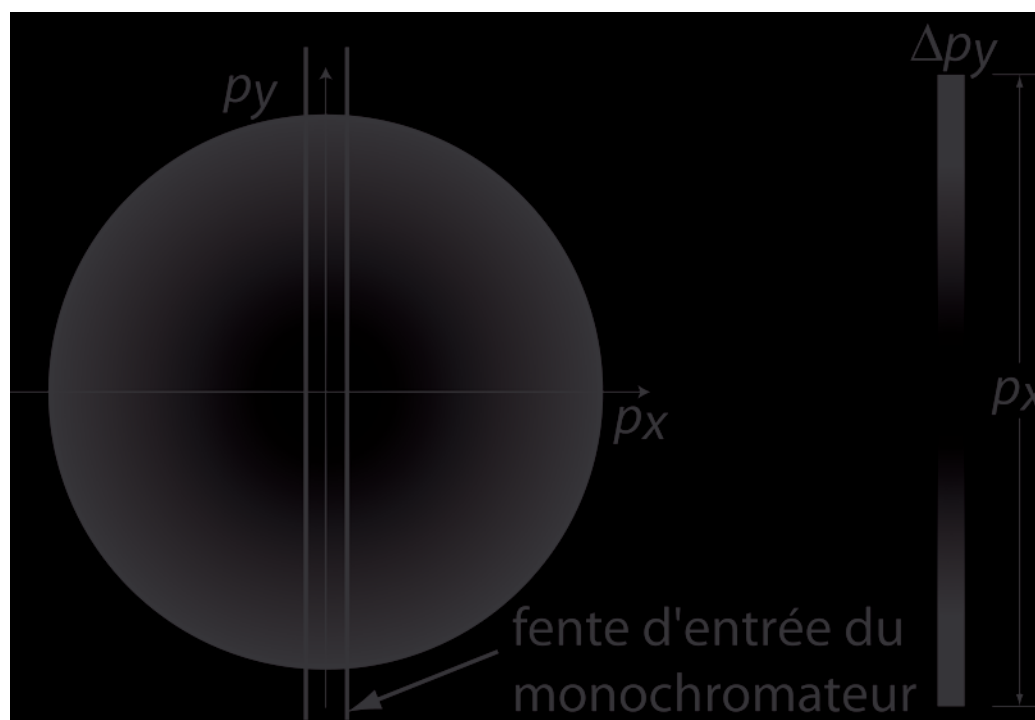


FIG. 2.14 – *Symétrie du plan de Fourier*. La symétrie circulaire imposée par le système étudié permet de ne faire la spectroscopie que de la tranche centrale de l'espace réciproque pour obtenir toute l'information spectrale sur l'ensemble des fréquences spatiales.

Comme décrit précédemment au chapitre 1, le système étudié présente une symétrie cylindrique dont la conséquence dans l'espace réciproque est un disque de symétrie circulaire. Cette symétrie représente un avantage majeur pour la méthodologie expérimentale.

En effet, le plan de Fourier est bidimensionnel, et on a vu qu'en spectroscopie d'imagerie, seule une dimension peut être réservée à une information spatiale (la longueur de la fente d'entrée du monochromateur), étant donné que l'autre dimension est réservée à la dispersion spectrale (l'intensité lumineuse représente la troisième dimension d'une image planeaire).

Il est possible de faire la spectroscopie de tout le plan de Fourier en le décomposant en plusieurs parts. Il suffirait de le déplacer sur la fente d'entrée du monochromateur à un pas donné, et prendre les images spectrales correspondantes.

Néanmoins, grâce à la symétrie circulaire, il est suffisant de placer le centre du disque représentant l'espace réciproque sur la fente d'entrée du monochromateur et prendre l'image conséquente. Ainsi, l'image obtenue donne la caractérisation spectrale de tout le plan de Fourier.



# Chapitre 3

## Photoluminescence d'un système de polaritons étendus (2D) et confinés (0D)

### 3.1 Les nouveaux modes de polaritons

Dans le cadre de l'échantillon décrit dans le chapitre 1, il est nécessaire de reprendre les calculs descriptifs du système dans cette nouvelle structure afin d'être à même de comprendre en détail les observations.

Usuellement, dans une microcavité semiconductrice planaire, on calcule les modes du champ électromagnétique pouvant se propager dans une cavité Fabry-Pérot planaire. Puis, on introduit l'interaction résonante avec le milieu actif représenté par le niveau excitonique du puits quantique situé au centre de la microcavité. On peut alors obtenir les modes propres du système que sont les polaritons (superposition linéaire d'un état cohérent du champ électromagnétique et d'un état excitonique).

Dans le cas présent, le puits ne subit aucun changement qui nécessiterait un nouveau traitement par le calcul. La seule modification par rapport à une microcavité classique provient du confinement photonique dû à l'effet des plots dans l'échantillon. Les plots affectent les modes du champ électromagnétique pouvant exister dans cette structure.

En effet, la variation locale de l'épaisseur effective de la microcavité change l'énergie et la distribution (ou forme) des modes possibles du champ électromagnétique à l'intérieur du système. Cette modification impose donc

de calculer à nouveau les états du champ électromagnétique en cherchant les solutions des équations de Maxwell (2.1-2.4) adaptées à cette nouvelle configuration.

Une fois les états du champ électromagnétique caractérisés, il suffit d'introduire l'interaction en couplage fort avec le niveau excitonique  $1s$  du puits pour obtenir les nouveaux états de polaritons.

### 3.1.1 Les modes confinés et étendus du champ électromagnétique dans une microcavité à plots

L'hypothèse majeure effectuée dans le calcul des nouveaux modes du champ électromagnétique provient de la dimension du plot comparativement au reste de la microcavité.

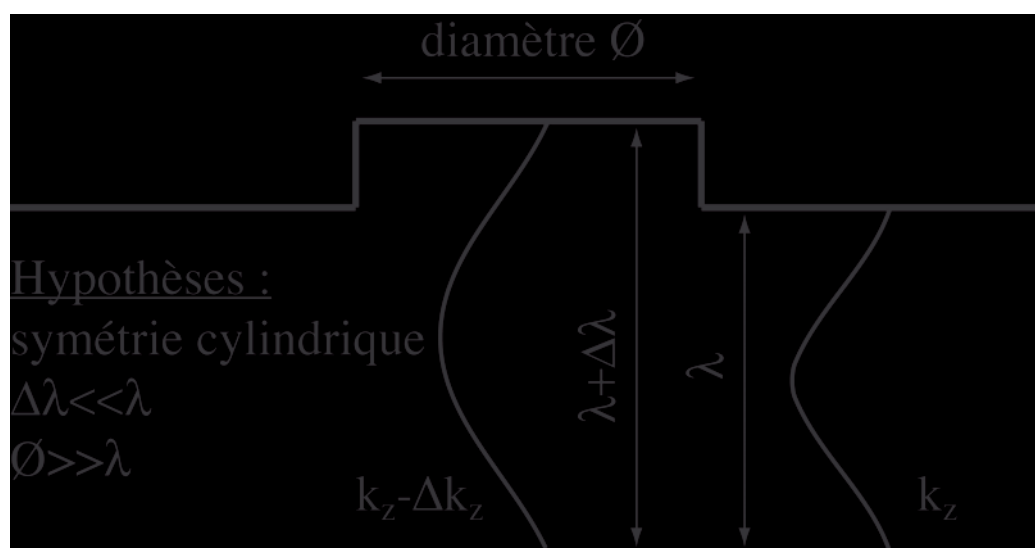


FIG. 3.1 – Schéma des approximations faites pour le calcul des modes électromagnétiques. La faible hauteur des plots (6 nm), ainsi que leurs grands diamètres (de 19 jusqu'à 3  $\mu\text{m}$ ), comparativement au 250 nm d'épaisseur de la cavité, permettent de supposer que le champ est localement équivalent à l'intérieur et à l'extérieur des plots. La distribution du champ électrique au centre de la cavité (où se trouve le puits quantique) n'est que faiblement perturbée et déplacée par l'excroissance du plot.

En effet, la hauteur (ou épaisseur) de 6 nm du plot est considérée comme une petite fraction (négligeable) de l'épaisseur caractéristique de la microcavité qui se situe autour de 250 nm (c'est-à-dire la résonance de la cavité).

Par ailleurs, le rayon des plots varie entre 10 et 1.5  $\mu m$  ce qui est suffisamment grand si on le compare à la longueur d'onde. On peut dès lors faire l'approximation que les modes électromagnétiques sont localement équivalents à ceux de la microcavité planaire.

Donc, pour résoudre l'équation de Maxwell, on introduit l'Ansatz suivant :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(\boldsymbol{\rho}) \exp(ik_z(\boldsymbol{\rho})z)$$

où  $k_z(\boldsymbol{\rho})$  est une fonction constante par morceaux qui caractérise la marche du plot. En négligeant les effets de bord sur le contour du plot, les équations de Maxwell se réduisent à une équation de Helmholtz similaire à celle de Schrödinger (équation aux valeurs propres) :

$$-\nabla_{\boldsymbol{\rho}}^2 \mathbf{E}(\boldsymbol{\rho}) + V(\boldsymbol{\rho})\mathbf{E}(\boldsymbol{\rho}) = 0 \quad (3.1)$$

où, dans la norme CGS,  $V(\boldsymbol{\rho}) = k_z^2(\boldsymbol{\rho}) - \epsilon_0 \omega^2 / c^2 = k_z^2(\boldsymbol{\rho}) - k_0^2$  et  $\epsilon_0$  la constante diélectrique du spacer en GaAs ( $\Delta V = -2k_z \Delta k_z$ ).

Dès lors, en procédant à une séparation des variables dans un repère de coordonnées cylindriques ( $E(\boldsymbol{\rho}) = Q(\varphi)U(\rho)$ ), et en tenant compte de l'hypothèse sur la symétrie cylindrique des plots, on obtient les solutions des modes propres électromagnétiques de l'équation 3.1 en terme de fonctions de Bessel du premier ordre :

$$E_{mn}^c(\boldsymbol{\rho}) = U_{mn}(\rho)e^{im\varphi}$$

où  $n = 0, 1, \dots$  et  $m = -n, \dots, n$  sont respectivement les nombres des modes radiaux et angulaires du champ électrique  $\mathbf{E}$ .

Ainsi, dans l'espace réciproque, les solutions du champ électromagnétique (s'écrivant au moyen de la transformée de Fourier) sont elles aussi régies par les fonctions de Bessel du premier ordre tel que :

$$\tilde{E}_{mn}^c(\mathbf{k}_{\parallel}) = i^m 2\pi e^{im\varphi_{\mathbf{k}}} \tilde{U}_{mn}(k_{\parallel}) \quad (3.2)$$

où  $\tilde{U}_{mn}(k_{\parallel}) = \int U_{mn}(\rho) J_m(k_{\parallel}\rho) \rho d\rho$ .

Ce calcul permet, une fois l'ensemble élevé au carré, d'obtenir la représentation graphique de la figure 3.2. En supposant un spectre lorentzien de

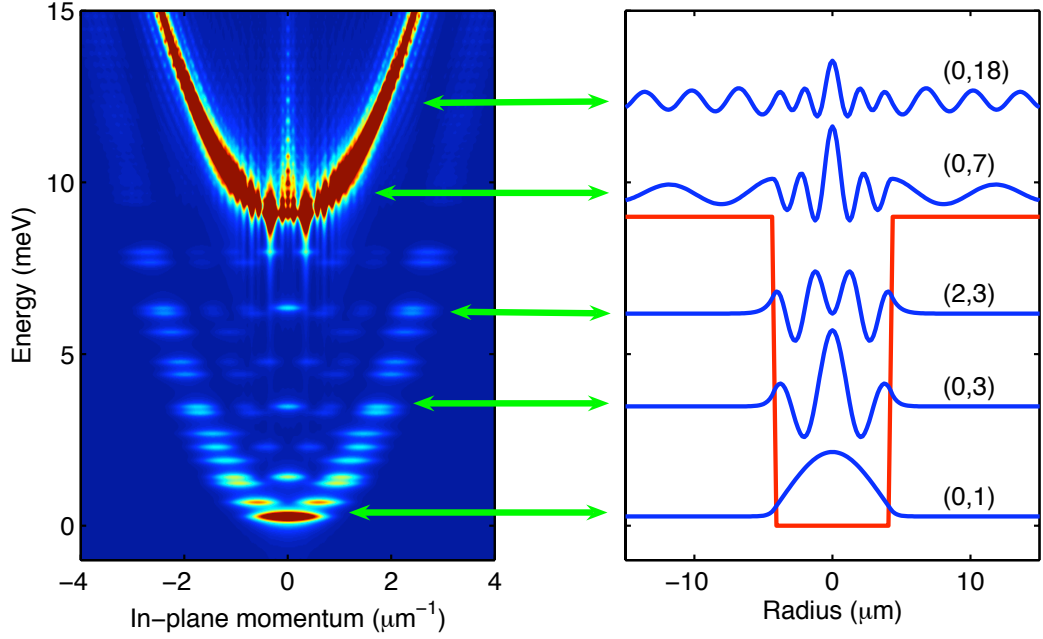


FIG. 3.2 – Les modes électromagnétiques d’une microcavité à plots de  $8.6 \mu\text{m}$  de diamètre dans l’espace réciproque (à gauche  $I^c(\omega, k_{\parallel})$ ) et certaines de leurs fonctions radiales correspondantes dans l’espace réel (à droite  $U_{mn}(\rho)$ ). On peut observer la coexistence dans ce système de modes électromagnétiques dits *étendus* (exemple : (0,7) et (0,18)) et d’autres à plus basses énergies dits *confinés* (exemple : (0,1) et (2,3)). La dispersion des modes étendus rappelle clairement le continuum de ceux d’une microcavité planaire vers laquelle le système tend lorsque le diamètre des plots devient infiniment grand. À droite, la courbe en rouge, centrée sur un plot de  $8.6 \mu\text{m}$  de diamètre, illustre le puits de potentiel auquel sont soumis les photons par l’effet de la différence de marche entre le plot et le reste de la cavité (la courbe est donnée par les résonances d’un plot de  $6 \text{ nm}$  de hauteur et de la cavité adjacente).

largeur de raie  $\gamma_{mn}^{(c)}$  pour chaque état d’énergie  $\omega_{mn}^{(c)}$ , la densité optique correspondant aux modes photoniques est alors donnée par :

$$I^c(\omega, k_{\parallel}) = \sum_{mn} I_{mn}^c(\mathbf{k}_{\parallel}) \cdot \frac{\gamma_{mn}^{(c)}}{(\omega - \omega_{mn}^{(c)})^2 + (\gamma_{mn}^{(c)})^2}$$

où  $I_{mn}^c(\mathbf{k}_{\parallel}) = |\tilde{E}_{mn}^c(\mathbf{k}_{\parallel})|^2 = 4\pi^2 |\tilde{U}_{mn}(k_{\parallel})|^2$ .

À l’extérieur d’un plot, on obtient la résonance fondamentale d’un Fabry-Pérot classique :  $k_z = 2\pi/\lambda_c$ . À l’intérieur du plot, il est possible de relier la



différence  $\Delta k_z$  à la différence d'énergie (mesurable)  $E_c$  entre les états fondamentaux du plot et de la cavité planaire tel que :  $\Delta k_z = \sqrt{\epsilon_0} \Delta E^c / (\hbar c)$ .

La figure 3.2 montre l'existence d'un système où coexistent :

- des modes du champ électromagnétique qui sont à la fois confinés et discrets à l'intérieur du plot
- et des modes étendus formant un continuum d'états électromagnétiques qui sont ceux que l'on retrouve dans une microcavité planaire classique

Donc, le milieu actif représenté par la transition excitonique  $1s$  dans le puits quantique situé au centre de la microcavité trouve à sa disposition une multitude d'états du champ électromagnétique - dont de nouveaux états dus à l'effet du plot - avec lesquels il peut être en couplage fort.

Vu que le puits ne subit aucun changement, contrairement à la cavité, on peut s'attendre à ce que le couplage fort avec les états étendus du champ reproduise les mêmes caractéristiques que celles connues pour les microcavités planaires classiques. Cependant, les états confinés du champ électromagnétique devraient offrir de nouvelles caractéristiques.

### 3.1.2 Densité optique des modes propres d'une microcavité à plots : les *polaritons 0D* et *2D*

Maintenant que les modes électromagnétiques du système sont caractérisés, il est possible d'introduire leur couplage avec le champ des excitons dans le puits situé au centre de la cavité.

Pour cela, on exprime la fonction d'onde de centre de masse de l'exciton de la même manière que pour les modes électromagnétiques ; c'est-à-dire dans un repère de coordonnées cylindriques au moyen de fonctions de Bessel du premier ordre.

On introduit alors le champ d'exciton en seconde quantification tel que :

$$\hat{\psi}_X(\boldsymbol{\rho}) = \sum_{mn} (\hat{B}_{mn} \frac{J_m(\kappa_{mn}^X \rho)}{\sqrt{\pi R^2 J_{m+1}(\kappa_{mn}^X)}} e^{im\varphi} + c.c.) = \sum_{mn} (\psi_{mn}^{(X)}(\boldsymbol{\rho}) \hat{B}_{mn} + c.c.)$$

où  $\kappa_{mn}^X$  et  $\hat{B}_{mn}$  sont respectivement le moment propre et l'opérateur annihilation du mode  $(m, n)$  de l'exciton.  $R$  est quant à lui le rayon qui limite la taille de l'ensemble du système comprenant le plot et la cavité adjacente

(dans les simulations  $R=80 \mu\text{m}$ ). L'opérateur annihilation  $\hat{B}_{mn}$  du mode excitonique  $(m, n)$  répond aux règles de commutation bosoniques tel que :  $[\hat{B}_{mn}, \hat{B}_{m'n'}^\dagger] = \delta_{mm'}\delta_{nn'}$ .

Pour poursuivre le calcul, il faut passer en description de seconde quantification pour le champ de photons de sorte qu'il s'écrive :

$$\hat{\psi}_c(\boldsymbol{\rho}) = \sum_{mn} (\hat{A}_{mn} U_{mn}(\boldsymbol{\rho}) e^{im\varphi} + c.c.) = \sum_{mn} (\psi_{mn}^{(c)}(\boldsymbol{\rho}) \hat{A}_{mn} + c.c.)$$

avec  $[\hat{A}_{mn}, \hat{A}_{m'n'}^\dagger] = \delta_{mn}\delta_{m'n'}$  comme condition de commutation pour l'opérateur annihilation  $\hat{A}_{mn}$  du mode électromagnétique  $(m, n)$ .

Dès lors, il est possible de calculer l'hamiltonien d'interaction linéaire photon-exciton :

$$H_I = \Omega_R \int d^2\boldsymbol{\rho} \hat{\psi}_c^\dagger(\boldsymbol{\rho}) \hat{\psi}_X(\boldsymbol{\rho})$$

où  $\Omega_R$  est la séparation de Rabi pour la microcavité planaire.

En tenant compte des règles de commutation et de la conservation du nombre angulaire  $m$  imposée par la symétrie (cylindrique) du système, l'hamiltonien total du système se réduit à :

$$\begin{aligned} H &= \sum_m \left[ \sum_n E_{mn}^{(c)} \hat{A}_{mn}^\dagger \hat{A}_{mn} + \sum_n E_{mn}^{(X)} \hat{B}_{mn}^\dagger \hat{B}_{mn} + \sum_{nn'} \Omega_{nn'}^{(m)} \hat{A}_{mn}^\dagger \hat{B}_{mn'} + c.c. \right] \\ &= \sum_m H_I^{(m)} \end{aligned}$$

où les coefficients  $\Omega_{nn'}^{(m)}$  s'expriment en terme de la séparation de Rabi  $\Omega_R$  de la microcavité planaire et du recouvrement des intégrales photon-exciton tel que :

$$\Omega_{nn'}^{(m)} = 2\pi\Omega_R \int \rho d\rho U_{nm}^*(\rho) N_{n'm} J_m(\kappa_{n'm}\rho)$$

avec  $N_{n'm}$  la constante de normalisation de chaque fonction de Bessel associée à un mode d'exciton  $(n', m)$ .

On voit bien dans l'expression de l'hamiltonien total  $H$  que le nombre angulaire  $m$  est conservé dans le couplage linéaire photon-exciton comme cela est requis par la symétrie cylindrique du système. Contrairement à une géométrie planaire où la conservation de la quantité de mouvement implique un

couplage un pour un entre les modes excitoniques et photoniques, il n'existe aucune règle de sélection sur le nombre radial  $n$ .

On peut alors prendre des nombres  $N_c$  et  $N_X$  de modes photoniques et excitoniques pour chaque valeur de  $m$  – approximation due à l'étalement en énergie des états de photons que l'on néglige. Pour obtenir les énergies des modes de polaritons, il suffit alors de diagonaliser la matrice  $(N_c + N_X) \times (N_c + N_X)$  obtenue de l'hamiltonien  $H_I^{(m)}$  pour chaque valeur de  $m$  :

$$H_I^{(m)} = \left[ \begin{array}{cc|cc} \hbar(\omega_{mn}^{(c)} - i\gamma_{mn}^{(c)}) & 0 & & \Omega_{n'n}^{(m)} \\ 0 & \ddots & & \\ \hline \Omega_{n'n}^{(m)} & & \hbar(\omega_{mn}^{(X)} - i\gamma_{mn}^{(X)}) & 0 \\ & & 0 & \ddots \end{array} \right]$$

où  $\gamma_{mn}^{(c)}$  et  $\gamma_{mn}^{(X)}$  sont des termes de dissipation représentant respectivement les largeurs de raies de chacun des modes  $(m, n)$  des états photoniques et excitoniques. Les opérateurs de polaritons s'écrivent alors :

$$\hat{P}_{mn} = \sum_{n'} X_{mn}^{n'} \hat{B}_{mn'} + \sum_{n''} W_{mn}^{n''} \hat{A}_{mn''}$$

où  $X_{mn}^{n'}$  et  $W_{mn}^{n''}$  sont respectivement les pondérations excitoniques et photoniques du mode de polariton  $(m, n)$ , analogues aux coefficients de Hopfield dans une microcavité planaire classique.

En supposant un spectre lorentzien pour chaque mode  $(m, n)$  de polariton, le spectre de la densité optique (figure 3.3) des états de polaritons  $I^p(\omega, k_{\parallel})$  est donné comme :

$$I^p(\omega, k_{\parallel}) = \sum_{mn} I_{mn}^p(\mathbf{k}_{\parallel}) \cdot \frac{\gamma_{mn}^{(p)}}{(\omega - \omega_{mn}^{(p)})^2 + (\gamma_{mn}^{(p)})^2} \quad (3.3)$$

où  $I_{mn}^p(\mathbf{k}_{\parallel}) = | \langle \mathbf{k}_{\parallel} | \hat{P}_{mn}^{\dagger} | 0 \rangle |^2 = | \sum_{n''} W_{mn}^{n''} \tilde{E}_{mn''}^c(\mathbf{k}_{\parallel}) |^2 = I_{mn}^p(k_{\parallel})$  grâce à la conservation du nombre angulaire  $m$ .

On voit bien dans l'équation 3.3 que l'intensité radiative  $I_{mn}^p(\mathbf{k}_{\parallel})$  de chaque mode de polariton  $(m, n)$  est dépendante de l'ensemble des modes du champ électromagnétique  $\tilde{E}_{mn''}^c(\mathbf{k}_{\parallel})$ , pondérés par les  $W_{mn}^{n''}$ . Ceci explique les formes (lobes, oscillations dans l'espace réciproque, extensions angulaires, etc ...) des états dans la densité optique à la figure 3.3.

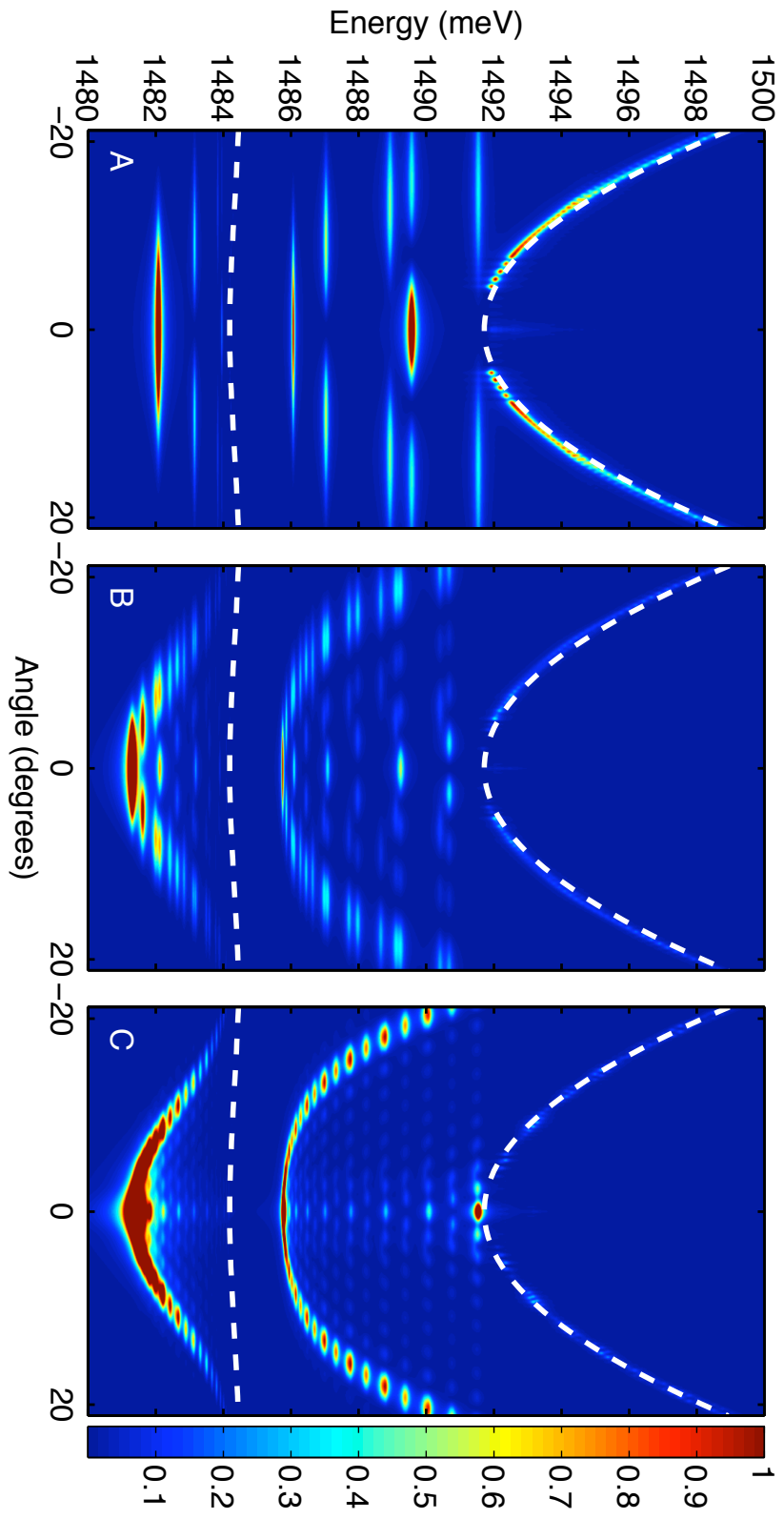


FIG. 3.3 – Densité optique des modes de polaritons dans l'espace réciproque pour des plots de 3, 9 et 19  $\mu\text{m}$  de diamètre (de gauche à droite).

Les courbes en traits-tillés représentent les polaritons étendus du haut et du bas, qui sont les polaritons 2D d'une microcavité planaire classique. Le désaccord de la microcavité planaire par rapport au plot étant si élevé ( $\Delta E_c = +9$  meV) que le désaccord absolu de la cavité ( $\delta = +8$  meV) devient positif par rapport à celui du plot ; ceci a pour conséquence que les courbes en traits-tillés tendent vers la dispersion du champ électromagnétique d'une microcavité bi-dimensionnelle  $E^c(k_{\parallel} = 0) = 1490.4$  meV (courbe du haut) et celle d'un exciton dans un puits quantique  $E^X(k_{\parallel} = 0) = 1484.7$  meV (courbe du bas). La séparation de Rabi  $\Omega_R$  pour la microcavité planaire considérée dans ce calcul est de 3.8 meV.

Cependant, il est utile de voir quel effet se produit sur la partie excitonique des polaritons lors du couplage fort entre les états électromagnétiques et les états excitoniques qui, eux, ne sont pas altérés par la présence du plot.

On peut donc calculer et représenter (figure 3.4) la partie excitonique  $\xi_{mn}(\boldsymbol{\rho})$  de la fonction d'onde de centre de masse d'un mode de polariton  $(m, n)$  tel que :

$$\begin{aligned} \xi_{mn}(\boldsymbol{\rho}) &= \sum_{n'} X_{mn}^{n'} \psi_{mn'}^{(X)}(\boldsymbol{\rho}) \\ &= \sum_{n'} X_{mn}^{n'} \frac{J_m(\kappa_{mn'}^X \rho)}{\sqrt{\pi R^2 J_{m+1}(\kappa_{mn'}^X)}} e^{im\varphi}. \end{aligned}$$

On observe bien à la figure 3.4 que la part excitonique des polaritons dits confinés (aussi bien ceux du bas que du haut) est, elle aussi, confinée à l'intérieur du diamètre du plot contrairement aux polaritons dits étendus. Ce résultat est important car, bien qu'à l'origine le plot ne fait que permettre l'existence d'états confinés et étendus du champ électromagnétique sans influencer directement les excitons dans le puits, la composante excitonique des polaritons se trouve, elle aussi, confinée à l'intérieur du puits de potentiel spatial imposé aux photons par le plot.

Ceci montre que le couplage fort est à l'origine du confinement des éléments électroniques des polaritons et, donc, que le plot constitue autant un piège spatial pour les photons que pour les polaritons (photons + excitons). *Les polaritons sont donc confinés et piégés dans le plot dans toutes leurs composantes, qu'elles soient photoniques ou électroniques.*

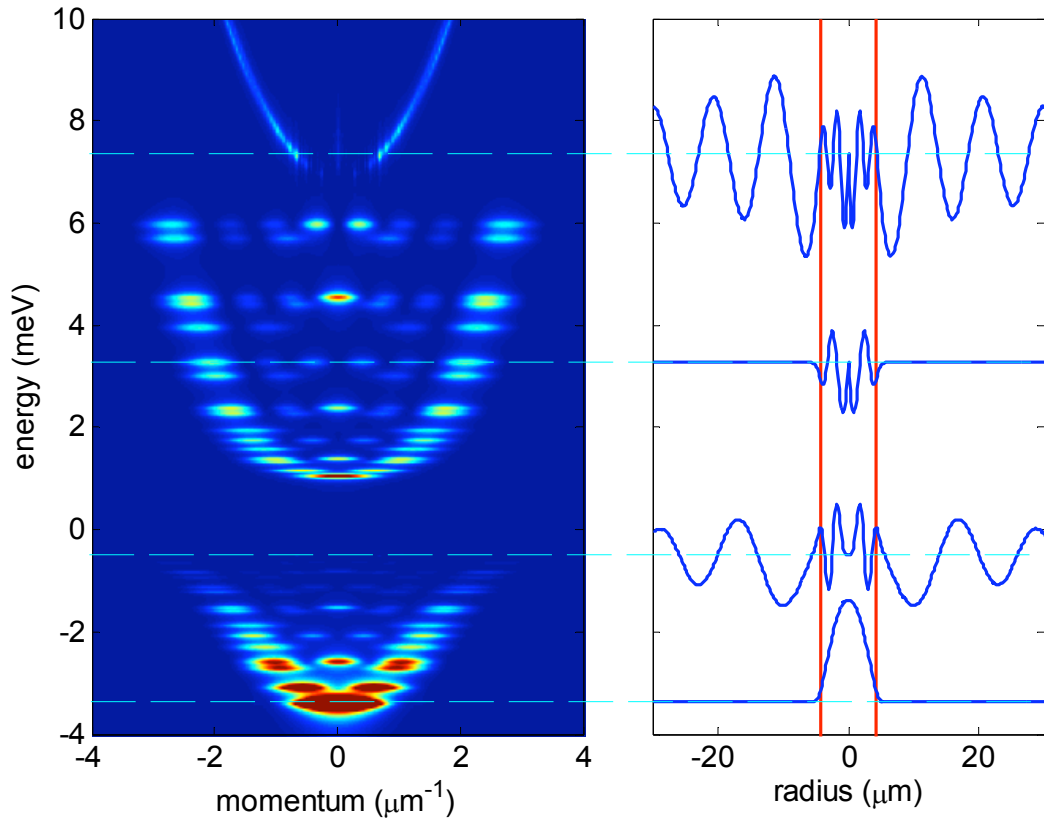


FIG. 3.4 – *Fonction d'onde du centre de masse  $\xi_{mn}(\rho)$  de la partie excitonique de polaritons confinés et étendus.* A gauche, la dispersion des états de polariton dans l'espace réciproque d'une microcavité à plots de  $10 \mu\text{m}$  de diamètre. A droite, la correspondance en espace réel de la partie excitonique de la fonction d'onde du centre de masse d'un polariton du bas confiné, d'un polariton du bas étendu, d'un polariton du haut confiné et d'un polariton du haut étendu dans cette même microcavité. Bien que seuls les modes électromagnétiques aient été altérés par la présence du plot, et ceci à la différence des excitons dans le puits quantique, on voit bien que le couplage fort induit un confinement spatial de la quasi-particule (polariton) dans toutes ses composantes, y compris la partie excitonique de celle-ci.

## 3.2 Photoluminescence d'une microcavité à plots en couplage fort

Maintenant que le traitement théorique est achevé, qu'en est-il de l'étude expérimentale de ce nouveau système de polaritons ? Les résultats expérimentaux confirment-ils le modèle théorique ?

Pour le savoir, on procède donc à la spectroscopie en espace réciproque de l'échantillon dont la description est faite au chapitre 1 ; et ceci au moyen du montage expérimental dédié et décrit au chapitre 2.

Le niveau excitonique  $1s$  du puits quantique de  $80 \text{ \AA}$  de  $\text{In}_{0.04}\text{Ga}_{0.96}\text{As}$  se situe à une énergie de  $1.484 \text{ eV}$  comme indiqué par la courbe du bas en traits-tillés sur chacune des images de la figure 3.5.

Le dénivelé le long de la microcavité ( $2.4 \text{ meV/mm}$ ) permet de choisir le désaccord entre les modes électromagnétiques de la microcavité totale (microcavité plane + plots) et la transition  $1s$  de l'exciton dans le puits quantique.

Il n'est pas possible d'obtenir un choix de désaccord continu entre les modes électromagnétiques confinés et les modes excitoniques vu que les plots sont par définition et par utilité des marches locales de potentiel. Leur distribution tous les  $125 \text{ }\mu\text{m}$  le long de la microcavité impose donc des limitations pratiques sur le choix de la résonance avec le puits.

Les images de la figure 3.5 correspondent au désaccord le plus proche possible de zéro pour chacun des plots. L'existence d'un dénivelé latéral de l'échantillon empêche d'obtenir un désaccord exactement similaire entre les plots de  $3$ ,  $9$  et  $19 \text{ }\mu\text{m}$  de diamètre.

Cependant, les trois images ont été prises dans les mêmes conditions de température ( $4 \text{ K}$ ) et d'excitation optique pulsée hors-résonante ( $1.63 \text{ eV}$ ). Le laser accordable en longueur d'onde ( $700\text{-}1000 \text{ nm}$ ) permet une grande liberté dans le choix de la nature de l'excitation optique.

La longueur d'onde de l'excitation optique est choisie pour être à la fois non-résonante avec les états de polariton mais néanmoins absorbable par la structure au travers du premier mode de fuite de la microcavité ; c'est-à-dire là où les miroirs diélectriques de Bragg ont une réflectivité presque nulle.

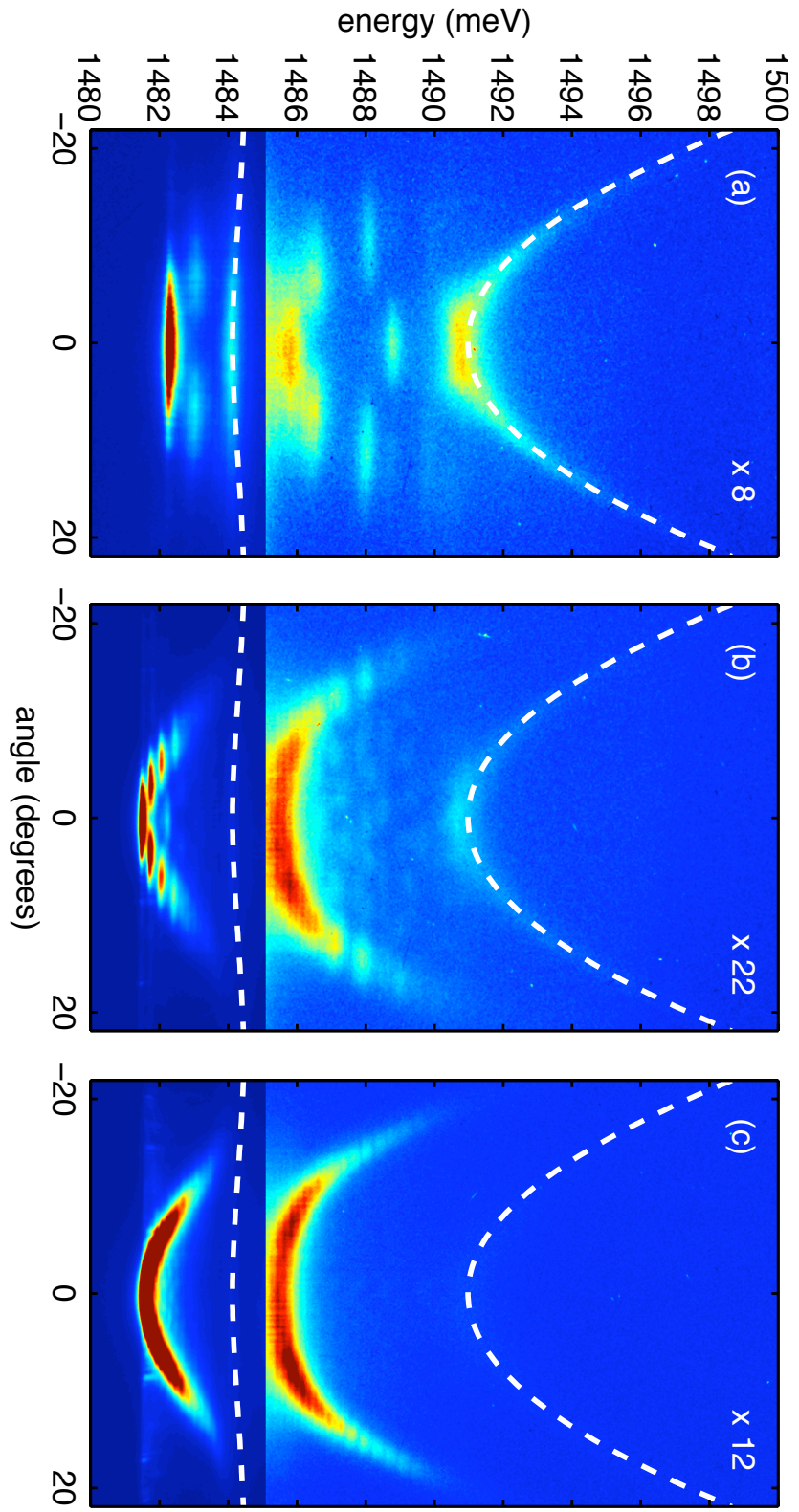


FIG. 3.5 – Photoluminescence d'une microcavité à plot dans l'espace réciproque pour des plots de 3, 9 et 19  $\mu\text{m}$  de diamètre (de gauche à droite).



La lumière d'excitation est ainsi efficacement transmise à l'intérieur de la microcavité, ce qui permet de travailler à de faibles densités d'excitation et de minimiser l'échauffement de l'échantillon.

Le fait que l'excitation optique soit pulsée n'a pas de justification physique en soi, mais plutôt expérimentale : le laser accordable à disposition est un laser picoseconde. Contrairement à un laser femtoseconde, le laser picoseconde offre un élargissement spectral suffisamment négligeable pour ne pas contrevenir à la mesure.

Cependant, bien que l'excitation optique soit hors-résonante, le fait qu'elle soit pulsée pourrait influencer sur la dynamique de relaxation du système dont il faut donc tenir compte dans l'interprétation des résultats. Effectivement, à haute densité d'excitation, il est possible d'observer sur une même image intégrée dans le temps la coexistence d'un régime de couplage fort et d'un régime de couplage faible. Ceci s'explique par la haute densité d'un pulse qui, lors de son temps de montée, brise le couplage fort avant que celui-ci ne se reconstitue entre deux pulses successifs. Le résultat dans une mesure intégrée dans le temps devient une superposition de la photoluminescence relative aux deux régimes fort et faible.

Néanmoins, la très faible densité d'excitation optique ( $5 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ ), et sa propriété de non-résonance, permettent de faire l'hypothèse réaliste que le système réagi comme s'il était soumis à une excitation continue. Cette hypothèse est d'autant plus valable que l'on s'assure durant la mesure que *le système est en régime linéaire*.

La faible densité d'excitation - qui a non seulement comme objectif de rester dans les limites d'une excitation optique similaire à une excitation continue mais aussi de s'assurer une réponse linéaire du système - a pour inconvénient de fournir une faible intensité de photoluminescence, ce qui explique le temps d'intégration de 15 minutes de la caméra CCD pour chacune des images de la figure 3.5.

### 3.2.1 Le spectre PL discret des polaritons confinés

Les mesures en photoluminescence de la microcavité dans des régions sans plots révèle une séparation de Rabi de 3.8 meV. Les largeurs homogènes de l'exciton et du mode de cavité planaire sont respectivement de 500 et 190  $\mu\text{eV}$ .

Les mesures, cette fois-ci sur le plot, révèlent que le mode fondamental du champ électromagnétique confiné dans le plot se trouve à 9 meV en dessous de l'énergie du mode fondamental de la microcavité planaire dite étendue. Cette mesure est consistante avec le calcul en matrices de transfert pour un plot d'une hauteur de 6 nm [Savona *et al.* (1995)].

*Un plot de 6 nm de hauteur représente donc un piège spatial de 9 meV de profondeur sur un diamètre de 3, 9 ou 19  $\mu\text{m}$ .*

Lorsque le spot d'excitation de 3  $\mu\text{m}$  de diamètre se trouve sur un plot, l'image de la photoluminescence en espace réciproque (figure 3.5) témoigne de la présence dans le spectre d'étroites raies discrètes correspondant à la lumière émise précisément par le plot.

On peut aussi observer dans les images de la figure 3.5 une photoluminescence résiduelle de très faible intensité correspondant aux états étendus du système (courbes en traits-tillés). Pour autant que le désaccord sur la microcavité planaire soit conservé, cette luminescence suit exactement la même dispersion en espace réciproque, et à la même énergie, que dans une région sans plots. Ce sont les polaritons étendus du bas (presque entièrement exciton) et du haut (presque entièrement photon) de la microcavité planaire pour un désaccord positif de 6.4 meV. *Le système présente donc une coexistence d'états de polariton 2D et 0D*, ce qui est tout à fait original.

L'aspect principal des images de la figure 3.5 est la présence d'états de "formes similaires" au-dessus et au-dessous de l'énergie de l'exciton. Plus précisément, l'image relative au plot de 3  $\mu\text{m}$  de diamètre (figure 3.5 (a)) montre l'existence de fines raies discrètes qui s'étendent sur de larges régions angulaires avec, entre elles, une séparation d'énergie de l'ordre du meV.

Le plot de 10  $\mu\text{m}$  de diamètre (figure 3.5 (b)) manifeste quant à lui un plus grand nombre de fines raies discrètes, plus proches spectralement les unes des autres, et avec de moindres extensions angulaires.

Enfin, le plot de  $19 \mu\text{m}$  de diamètre (figure 3.5 (c)) perd ces caractéristiques, et s'approche d'un spectre quasiment continu où l'on observe des élargissements angulaires qui s'amenuisent davantage. La dispersion devient quasi-quadratique et manifeste un anti-croisement témoignant du couplage fort [Savona *et al.* (1996), Houdré *et al.* (1994)].

Cette observation se résume ainsi : *plus le diamètre des plots augmente, plus l'émission angulaire s'affine et la séparation en énergie se réduit entre les états de polaritons.* Cette observation est faite quelque soit le désaccord entre la cavité et le niveau excitonique.

Le confinement spatial suffit à expliquer cette observation. En effet, le confinement induit une quantification des niveaux d'énergie et une localisation des fonctions d'onde dans l'espace réel. Cette localisation se répercute dans l'espace réciproque par une extension de l'émission angulaire. *Les plots agissent donc comme un piège spatial pour les polaritons.*

Ces états sont ils réellement des états de polaritons, c'est-à-dire : sont-ils une superposition linéaire d'excitons et de photons de cavité ? Pour des polaritons étendus, la preuve du régime de couplage fort est donnée par l'anti-croisement entre les deux branches de la dispersion de chacune des deux "particules" (photons et excitons) dans l'espace réciproque.

Pour les états confinés, le spectre discret rend l'anti-croisement assez difficile à caractériser. Néanmoins, dans le cas des plots de  $9$  et  $19 \mu\text{m}$  de diamètre, l'anti-croisement s'observe à un angle de  $15$  degrés (figure 3.5 (b) et (c)) avec une séparation de Rabi de  $3.8 \text{ meV}$  ; laquelle est similaire à la valeur mesurée pour les états étendus. Ceci démontre l'existence du couplage fort pour les états discrets du plot.

Pour le plot de  $3 \mu\text{m}$  de diamètre, l'anti-croisement est difficile à observer. Cependant, on remarque dans la figure 3.5 (a) que les deux états d'énergies situées en dessous de l'énergie de l'exciton (courbe du bas en traits-tillés), à  $1482.5$  et  $1483 \text{ meV}$ , présentent une même distribution angulaire que les deux états d'énergies situées au-dessus de l'exciton, à  $1485.5$  et  $1486 \text{ meV}$ . Ceci suggère clairement que ces états sont respectivement les états de polariton confinés du bas et du haut.

Cette suggestion se renforce et devient une évidence d'autant plus que cette observation est faite quelque soit le désaccord (positif ou négatif). Notamment, sachant dans la calibration de l'échantillon que le mode électro-

magnétique fondamental est à la résonance de l'exciton, on voit cet état se dédoubler au-dessus et au dessous de l'exciton (de même pour le premier état excité du champ électromagnétique à deux lobes) une fois le système en régime de couplage fort.

Ces observations permettent de conclure que *le couplage fort est préservé par le confinement spatial et que les états radiatifs sont des états mixtes (ou superposition linéaire) de photons et d'excitons.*

Une autre preuve de l'existence du couplage fort dans les états confinés par les plots vient de la comparaison avec la théorie qui tient compte du couplage fort (figure 3.6).

En effet, en incorporant dans les calculs présentés précédemment les valeurs expérimentales de la séparation de Rabi  $\Omega_R$ , du désaccord et de la profondeur du puits de potentiel spatial ( $\Delta E^c = 9$  meV), on arrive à reproduire fidèlement le spectre du système, autant les positions en énergie que les extensions angulaires des différents états de polariton.

Le modèle théorique présenté ne tenant pas compte de la statistique du système et de sa relaxation, la comparaison avec les résultats expérimentaux ne doit pas se faire sur la base des intensités.

A partir d'un calcul au moyen de matrice de transfert, on trouve que les 9 meV expérimentaux de profondeur du puits de potentiel spatial sont consistants avec les 6 nm de hauteur des plots. Les valeurs des indices de réfraction et de largeurs de raies utilisées sont les valeurs phénoménologiques reconnues pour ce type de matériaux.

Les simulations les plus fidèles sont obtenues pour des plots de diamètre 3.46, 8.6 et 19  $\mu\text{m}$  ce qui est en très bon accord avec les 3, 9 et 19  $\mu\text{m}$  nominaux et mesurés par AFM.

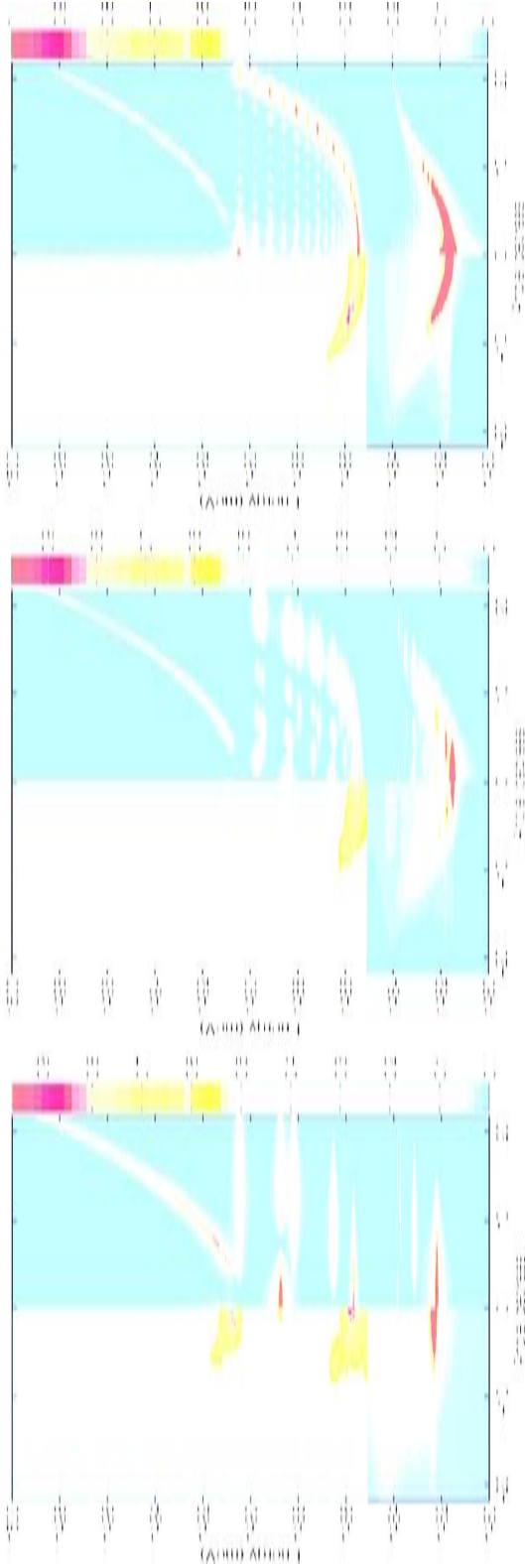


FIG. 3.6 – Comparaison entre la simulation théorique et les mesures expérimentales de photoluminescence d'une microcavité à plot dans l'espace réciproque pour des plots de 3, 9 et 19  $\mu\text{m}$  de diamètre (de gauche à droite). La simulation ne tient pas compte de la relaxation et, donc, les intensités ne doivent pas être comparées. Les paramètres expérimentaux introduits dans la simulation sont la séparation de Rabi de la microcavité planaire  $\Omega_R$ , le désaccord et la profondeur du puits de potentiel spatial ( $\Delta E^c = 9$  meV). Le meilleur accord se fait pour des diamètres de 3.48, 8.6 et 19  $\mu\text{m}$ , ce qui est consistant avec les valeurs attendues de 3, 9 et 19  $\mu\text{m}$ .

### 3.2.2 Thermodynamique et relaxation dans le piège

Cependant, bien que le modèle théorique dont on dispose ne tienne pas compte de la relaxation et de la thermodynamique statistique du système, il est possible d'effectuer une discussion qualitative sur ces aspects du système de polaritons 2D et 0D à partir des mesures expérimentales de photoluminescence en espace réciproque.

La distribution de l'intensité des états de polariton témoigne du peuplement de chacun de ces états. Effectivement, à des facteurs près (relativement négligeables dans le cas présent), celle-ci est proportionnelle au nombre de polaritons par état d'énergie dans le spectre [Savona *et al.* (1996)]. Son étude revient donc à celle de la statistique du système et de ses processus de relaxation.

On observe à la figure 3.5 que cette distribution d'intensité devient plus intense quand on s'approche de l'état fondamental du système, ce qui laisse présager d'une relaxation thermique des polaritons [Tassone *et al.* (1997)]. Ceci justifie, par ailleurs, le fait que l'on n'ait pas tenu compte des coefficients photoniques de la luminescence (coefficients de Hopfield) pour donner directement la distribution de la population polaritonique, car cela reviendrait à diviser une exponentielle par une droite (résultat de calculs), ce qui ne changerait pas qualitativement le caractère thermique de la distribution, mais augmenterait seulement la température effective du système de quelques degrés Kelvin.

En effet, les images présentées à la figure 3.5 sont obtenues par la dispersion spectrale d'un fin diamètre du disque de l'espace réciproque (voir chapitre 2). En intégrant la luminescence de ces images sur l'ensemble de ce disque, tout en tenant compte de la symétrie cylindrique du système, il est possible d'obtenir la distribution de l'intensité de la photoluminescence par état d'énergie de l'ensemble du système (figure 3.7).

L'analyse de cette distribution d'intensité montre que, pour le système d'une microcavité à plots de  $19\ \mu\text{m}$  de diamètre et à désaccord presque nul, la distribution est du type de Boltzmann. Il est alors possible d'y associer une température effective de thermalisation qui est de  $14,5\ \text{K}$ .

L'interprétation découlant de cette observation est parfaitement plausible au vu de ce qui a été observé précédemment, à savoir l'aspect quasi-continu et bidimensionnel des plots à  $19\ \mu\text{m}$  de diamètre.

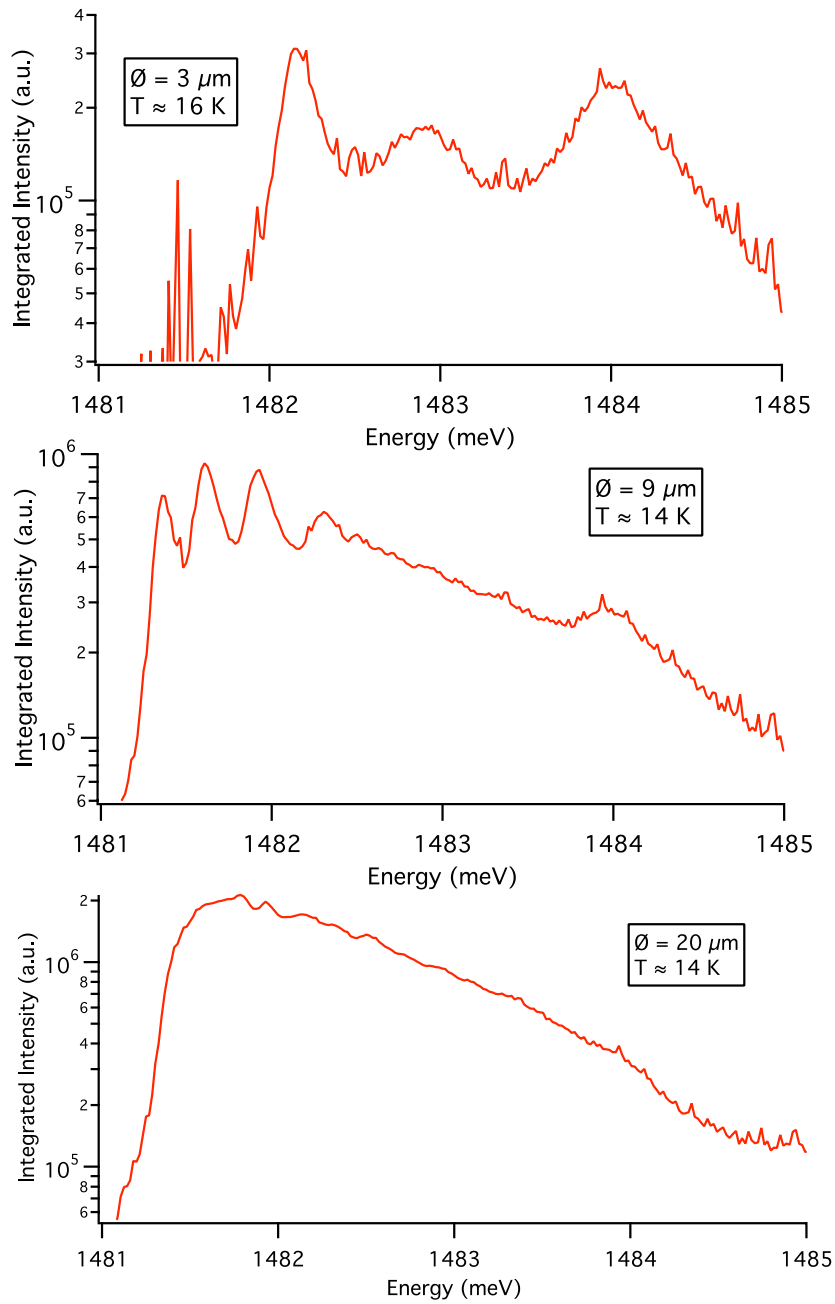


FIG. 3.7 – Intensité intégrée sur tout l'espace réciproque de la photoluminescence des états de polaritons du bas, en dessous de l'énergie de l'exciton (1484 meV), pour des plots de 3, 9 et 19  $\mu\text{m}$  de diamètre (de haut en bas) à désaccord presque nul et à faible densité d'excitation optique ( $5 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ ).

En effet, l'espace de phase à disposition pour la relaxation est très important si l'on tient compte de la multitude et de la quasi-continuité des états de polaritons confinés du bas qui joignent l'état fondamental à l'exciton.

Celui-ci représente un réservoir infini à disposition pour la relaxation des polaritons vers l'état fondamental, à travers, notamment, son temps de vie très long (plusieurs 100 ps) comparativement à celui des polaritons (10 ps).

Cependant, le concept de température doit être considéré avec précaution vu que le système n'est pas forcément à l'équilibre au sens thermodynamique. En effet, le temps de vie court (10 ps) du polariton du bas ne garanti pas forcément que le système soit à l'équilibre, bien au contraire.

D'ailleurs, cette précaution devient d'autant plus valable lorsque l'on analyse la distribution d'intensité de la luminescence d'une microcavité à plots de 9  $\mu\text{m}$  ou 3  $\mu\text{m}$  de diamètre.

Dans le cas des plots de 9  $\mu\text{m}$  de diamètre, l'intensité de photoluminescence semble poursuivre une distribution boltzmannienne entre l'exciton et le deuxième état excité. On peut y associer, comme il a été fait précédemment, une température effective de 14 K qui est similaire à celle trouvée pour les plots de 20  $\mu\text{m}$  de diamètre.

Cependant, entre l'état fondamental et les premiers états excités, la distribution de Boltzmann ne convient plus. Et il en va de même pour les plots de 3  $\mu\text{m}$  de diamètre où l'existence de seulement deux états ne permet pas de statuer sur le caractère thermal de la relaxation. Néanmoins, en faisant cette hypothèse-ci, on pourrait associer une température effective de 16 K qui serait cohérente avec les valeurs précédentes.

Malgré tout, il est indubitable que dans une microcavité à plots, de 19, 9 ou 3  $\mu\text{m}$  de diamètre, la relaxation des polaritons est efficace jusqu'à l'état fondamental, contrairement à ce que l'on s'attendrait si l'on considérait une relaxation assistée par des phonons acoustiques (effet "bottleneck" ou effet congestif). Néanmoins, les différences décrites précédemment peuvent trouver des explications plausibles au regard de la littérature du domaine des semiconducteurs et des microcavités en particulier.

La première explication que l'on peut avancer pour expliquer ces différences vient d'une observation faite précédemment : avec la réduction du



diamètre des plots, le nombre d'états (discrets) de polariton diminue, et les écarts en énergie s'agrandissent. Par conséquent, l'espace de phase se réduit et les taux de relaxation diminuent.

Ceci explique par ailleurs la différence qui existe entre les importantes largeurs de raies des polaritons confinés du haut et l'étroitesse de celles des polaritons du bas, notamment dans les spectres relatifs aux plots de 9 et 3  $\mu\text{m}$  de diamètre.

En effet, les polaritons confinés du haut trouvent dans les états "noirs" (non radiatifs) des excitons un réservoir infini vers lequel ils peuvent relaxer. La forte dispersion de l'exciton dans les zones non radiatives de l'espace réciproque représente une continuité d'états qui, au moyen de phonons acoustiques (importante quantité de mouvement et petite énergie de l'ordre du meV), sont autant de possibilités de relaxation.

Cependant, les largeurs de raies ont une partie inhomogène dont il faut tenir compte. Les polaritons confinés du haut subissent l'effet du désordre provenant à la fois du puits quantique et de celui des miroirs de Bragg. Les polaritons confinés du bas ne subissent quant à eux que l'effet du désordre photonique étant donné qu'ils se situent à plus basse énergie que celle de l'exciton. Les effets de désordre participent ainsi aux élargissements des raies, et ceci de manière plus remarquable pour les polaritons confinés du haut que pour ceux du bas.

Une autre hypothèse de relaxation vers l'état fondamental qu'il est possible d'avancer est elle aussi spécifique à ce système de polaritons confinés. En effet, l'aspect discret des états de polariton et leurs extensions angulaires n'imposent plus la conservation de la quantité de mouvement lors de processus de relaxation par chocs élastiques entre polaritons (relaxation paramétrique) [Porras *et al.* (2002), Ciuti *et al.* (2003)]. Ce type de relaxation pourrait être celui qui entre en compétition avec la relaxation thermique dans les plots à 9  $\mu\text{m}$  de diamètre, et qui expliquerait la distribution d'intensité entre l'état fondamental du polariton confiné et ses deux premiers états excités (figure 3.7).

Seule l'énergie dans ce genre de processus est conservée, ce qui ouvre plusieurs canaux de relaxation qui étaient limités auparavant dans des microcavités planaires classiques. Il est à noter que ce processus de relaxation n'abaisse en rien l'énergie totale du système, et ne le refroidit donc pas, vu que l'énergie est conservée ; mais il permet de faciliter le peuplement de l'état

fondamental du système (ou de tout autre état permettant ce processus avec ses voisins).

Enfin, il est possible d'envisager une relaxation des polaritons vers l'état fondamental au moyen d'électrons [Malpuech *et al.* (2002)]. En effet, les impuretés situées à l'intérieur du puits quantique peuvent représenter une source d'électrons résiduels qui seraient à même d'échanger de l'énergie avec des polaritons confinés, leur permettant ainsi de relaxer vers l'état fondamental.

### 3.3 Photoluminescence en forte densité d'excitation

Dans l'étude préliminaire en forte densité d'excitation, faite au moyen d'un laser continu cette fois-ci (532 nm, soit en dehors de la "stop band" des miroirs et profondément hors résonance), il a été difficile d'observer un régime non-linéaire dans lequel le couplage fort est maintenu entre les modes photoniques du plot et les excitons (figure 3.8). Cette observation est faite sur les trois diamètres de plots, et sur la microcavité étendue (zones sans plots), quelques soient les désaccords positifs ou négatifs. On se bornera, donc, à discuter cet effet uniquement pour un plot de  $9 \mu\text{m}$  de diamètre en désaccord négatif par rapport à l'exciton, car cette configuration illustre très bien l'ensemble des observations faites en forte densité d'excitation.

On peut observer, dans l'image de gauche de la figure 3.8, représentant la photoluminescence en régime linéaire, les propriétés de couplage fort, notamment l'anti-croisement et la séparation de rabi entre les polaritons du haut et ceux du bas de part et d'autre de la raie excitonique.

Dans l'image du milieu, à une densité d'excitation  $10^3$  fois supérieure, et sans transition d'un régime linéaire à un régime non-linéaire, on observe la perte du couplage fort qui se manifeste par un déplacement énergétique de l'état fondamental vers les hautes énergies, et d'une courbe de dispersion quasi-parabolique qui passe, sans anti-croisement, à travers l'exciton, et qui rappelle la dispersion d'un photon 2D d'une microcavité.

Dans l'image de droite, à très forte densité d'excitation, les modes photoniques du plot, hors couplage fort, redeviennent apparents, et sont identifiables par leur quantification et leur dispersion énergétiques. L'état fondamental continue à se déplacer vers les hautes énergies, mais demeure inférieur

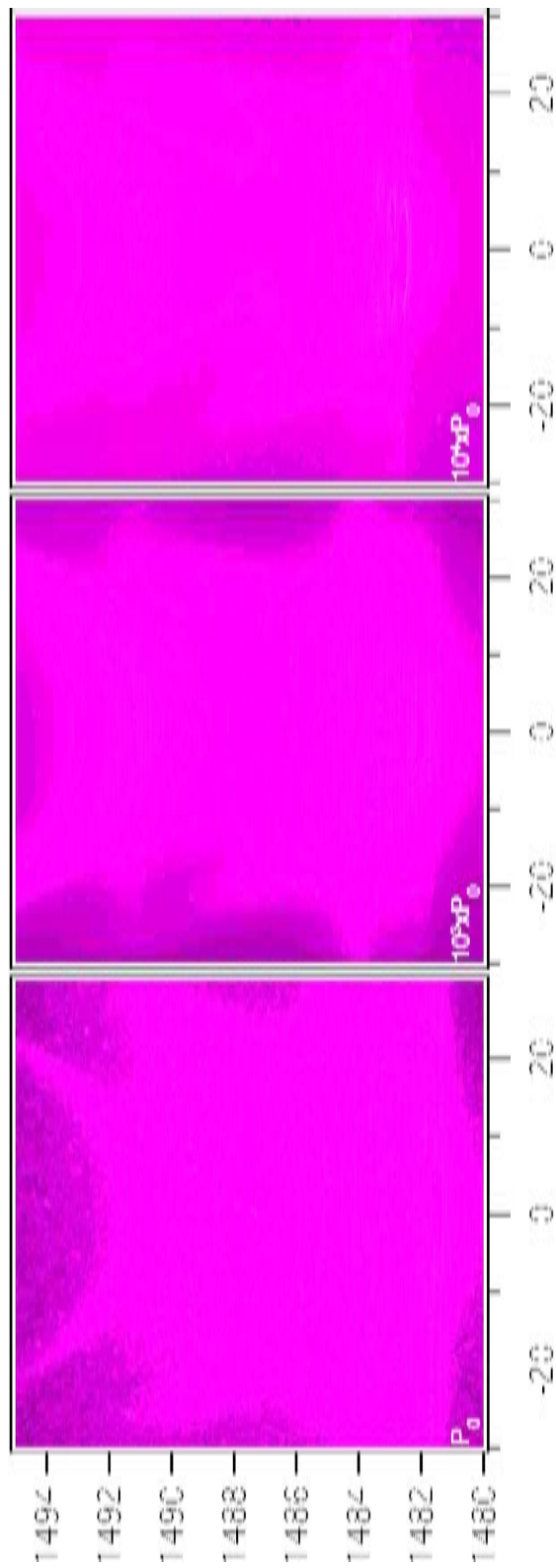


FIG. 3.8 – *Perte du régime de couplage fort en forte densité d'excitation* pour un plot de  $9 \mu\text{m}$  de diamètre à désaccord négatif. Les caractéristiques du couplage fort (anti-croisement et séparation de Rabi) ne s'observent plus à mesure que l'on augmente la densité d'excitation, et ceci, sans que le système ne passe, tout en demeurant en couplage fort, d'un régime linéaire à un régime quadratique ou à un régime de stimulation. Les intensités des différentes images sont indépendantes les unes des autres pour plus de clarté dans l'illustration de la perte de couplage fort.

à celle de l'exciton, confirmant ainsi le désaccord négatif qui existe entre les modes photoniques du plot et la raie excitonique.

La première hypothèse que l'on peut avancer provient des rapports de largeurs de raies entre l'exciton et les modes photoniques. En effet, ceux-ci ne représentent qu'un dixième (50 à 70  $\mu\text{eV}$ ) de la largeur spectrale de la raie excitonique (500  $\mu\text{eV}$ ). Ceci peut laisser supposer que seule une partie des excitons se couple fortement aux photons des plots. Ainsi, lorsque la densité de polaritons augmente, la densité de saturation excitonique est déjà atteinte, ce qui affaiblit la force d'oscillateur de l'exciton, et réduit la séparation de Rabi, entraînant ainsi la perte du couplage fort.

Une autre explication peut être donnée en tenant compte de la dynamique des processus de relaxation et des temps de vie. Effectivement, l'exciton non couplé a un temps de vie de plusieurs centaines de picosecondes, voire même de quelques nanosecondes, ce qui tranche avec la dizaine de picosecondes de temps de vie du polariton. Ceci a pour effet d'accumuler plus d'excitons non couplés que de polaritons, contribuant ainsi à la saturation de la densité excitonique, et, donc, à la perte de couplage fort.

Par ailleurs, alors que nous avons remarqué une thermalisation des polaritons à basse densité d'excitation et en régime linéaire (distribution quasi-boltzmannienne de 15 K au graphe du haut à la figure 3.9), celle-ci disparaît lorsqu'on perd le couplage fort en augmentant la densité d'excitation, et la distribution des paires électron-trou couplées au champ électromagnétique devient alors quasiment plate (graphe du centre à la figure 3.9) : la perte de la thermalisation rend compte de celle du couplage fort. Ceci s'explique par l'augmentation des collisions entre les excitons avec l'augmentation de la densité d'excitation. Le déphasage n'en devient que plus rapide, et entraîne un élargissement des raies qui finissent par se recouvrir les unes les autres, les rendant ainsi indistinctes à l'image du centre de la figure 3.8.

En augmentant davantage la densité d'excitation, les états du système redeviennent bien résolus en angle et en énergie (image du bas de la figure 3.8). Ceci est caractéristique du rétrécissement spectral de l'effet laser dû à une stimulation sur les premiers états électroniques couplés aux modes photoniques du plot, pour des densités de paires électron-trou en dessous de la transition de Mott des excitons [Ding *et al.* (1993)]. Le gain optique est assuré par l'élargissement inhomogène de l'exciton, et par l'interaction entre les excitons et le bain de phonons. Le graphe du bas à la figure 3.9 dénote que cet effet laser est plus favorable pour les trois premiers états de photon.

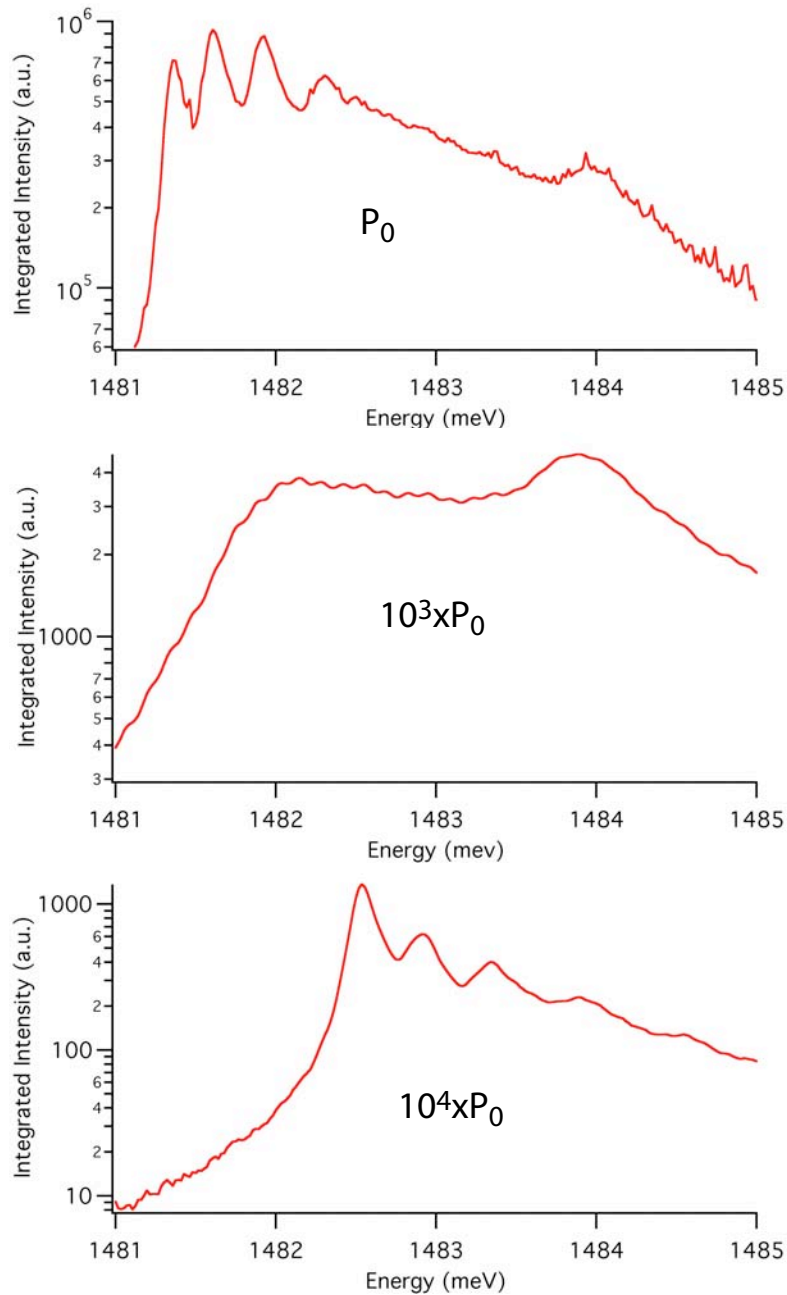


FIG. 3.9 – Évolution de l'intensité intégrée en fonction de la densité d'excitation  $P_0$  (relative aux images de la figure 3.8). La thermalisation des états électroniques couplés au champ de photons disparaît lorsqu'on augmente la densité d'excitation (distribution quasi-plate de l'intensité à la figure du centre). Un effet laser apparaît lorsqu'une stimulation sur les premiers états est engagée (figure du bas).

Bref, plusieurs explications peuvent être avancées pour expliquer la saturation de la densité excitonique avant qu'un quelconque phénomène quadratique ou un effet de stimulation n'apparaissent. Il faudrait dans ce cas songer à augmenter la force de couplage pour contrebalancer cet effet compétitif qu'est la saturation excitonique.

Par exemple, pour augmenter la force d'oscillateur de l'exciton dont dépend le couplage fort, il est possible de songer à l'usage de matériaux de la famille des II-VI. Un autre moyen de contrer cet effet serait de faire l'usage de plusieurs puits quantiques pour répartir la densité excitonique, augmenter le couplage fort (en  $\sqrt{n}$ , où  $n$  est le nombre de puits quantiques), et saturer moins vite le système. Enfin, une qualité de croissance exceptionnelle pourrait permettre d'obtenir des largeurs de raies excitoniques comparables à celles des modes photoniques ( $< 80 \mu\text{eV}$ ).

Ces propositions devraient permettre l'obtention d'un échantillon sur lequel une étude des propriétés non linéaires de polaritons confinés serait possible, notamment des effets de stimulation caractéristiques de la nature bosonique des polaritons, et ceci, tout en demeurant dans le cadre conceptuel du confinement spatial assisté par les plots.

# Conclusion

Durant ce travail de thèse, nous nous sommes attachés à élaborer et à étudier une structure semiconductrice dans laquelle il serait possible de confiner spatialement les polaritons. Rappelons d'abord comment nous avons été conduits à développer cette idée.

Grâce à l'extrême légèreté de la masse des polaritons, on s'attend à ce que la discrétisation de leurs énergies – conséquence directe de leur confinement en mécanique quantique – se produise pour des distances de confinement de l'ordre de plusieurs micromètres, ce qui représenterait, le cas échéant, une situation unique dans des structures semiconductrices.

La conséquence principale serait alors de pouvoir peupler un seul état de plusieurs polaritons, tout en assurant un régime de faible densité dans lequel la nature bosonique du système serait préservée. Ceci est rendu possible par le fait qu'un état confiné de polariton demeure toujours constitué de plusieurs états différents de paires électron-trou. Cette caractéristique tranche avec le cas des boîtes quantiques semiconductrices où un état confiné ne peut être occupé que par deux paires électron-trou conformément au principe d'exclusion de Pauli, et où, donc, la nature bosonique de l'excitation est perdue.

De ces hypothèses fondées sur la mécanique quantique, nous avons élaboré une microcavité semiconductrice contenant un piège spatial. Le point de départ est le confinement de la partie photonique des polaritons qui se fait au moyen d'un abaissement local de l'énergie du mode optique fondamental de la microcavité : les plots. Ces derniers assurent une série discrète d'états d'énergie du champ électromagnétique (photons 0D) à l'intérieur de la microcavité, et qui vient s'ajouter au continuum d'énergies du photon 2D de la cavité planaire déjà présent. Le puits quantique, quant à lui, ne subit aucune modification, et les excitons s'y comportent de manière identique à un puits quantique habituel : les excitons conservent leur faculté à se mouvoir dans le plan de la microcavité et préservent leur caractère bidimensionnel.

La spectroscopie en espace réciproque de cette structure nous a assuré de l'existence du couplage fort entre le milieu actif et le champ électromagnétique, et a révélé l'existence d'états d'énergie discrets pour les polaritons confinés. Cette caractéristique spectrale, où la séparation énergétique des raies est supérieure à leurs largeurs, témoigne du confinement des polaritons et leur confère un caractère zéro-dimensionnel.

Une autre caractéristique – conséquence directe du confinement des polaritons – que l'étude en espace réciproque a permis de révéler, est l'extension angulaire des états d'énergie discrets des polaritons confinés. En effet, l'extension spatiale de la fonction d'onde dans l'espace réel va en inverse dans l'espace réciproque ; et cette observation expérimentale donne davantage d'acuité à la confirmation du confinement spatial des polaritons.

Par delà l'extension angulaire, la méthode expérimentale employée a permis d'accéder à la structure même de la fonction d'onde des polaritons par l'observation des lobes et oscillations constituant les états d'énergie discrets des polaritons confinés. Ceci a permis de comprendre comment procède le couplage fort dans ce système confiné, notamment par la confrontation des résultats expérimentaux à un modèle théorique adapté au cas spécifique des plots.

Bien qu'à l'origine, la seule modification structurelle soit celle appliquée par les plots au champ électromagnétique, et non pas directement aux puits quantique, ce modèle théorique a permis de mettre en évidence que le confinement spatial des polaritons se fait forcément dans toutes leurs composantes, non seulement photoniques, mais aussi excitoniques. Cette démonstration vient consacrer le succès du confinement spatial des polaritons par la méthode employée, à savoir celle des plots, et ceci, sur des distances de plusieurs microns.

Cependant, si l'originalité de notre méthode permet l'obtention de polaritons confinés spatialement, un autre aspect remarquable de notre microstructure vient de la coexistence dans un même système de polaritons zéro-dimensionnels et bidimensionnels. Ceci donne plus de consistance à l'analogie avec l'image conventionnelle en mécanique quantique d'états confinés et étendus d'une particule soumise à un puits de potentiel.

Le continuum de polaritons étendus représente un réservoir thermodynamique à disposition pour un échange adiabatique avec les polaritons confi-



nés. Ainsi, en analogie avec le refroidissement par évaporation des atomes alcalins [Ketterle (2002)], qui utilise l'échange de particules avec un réservoir externe, l'interaction adiabatique avec des polaritons étendus permet le refroidissement du gaz de polaritons confinés.

Par ailleurs, ce trait de caractère confère à notre système un intérêt supérieur par rapport aux précédentes tentatives d'obtenir des polaritons confinés dans des micropiliers [Dasbach *et al.* (2001)] par la découpe d'un cylindre à travers tout le corps de la microcavité. En effet, dans une telle structure, il n'est pas possible d'obtenir des états étendus de polariton, et le fait de couper dans le puits quantique ouvre des canaux latéraux pour la recombinaison des excitons, ce qui réduit sensiblement le temps de vie des polaritons.

Bien que l'étude en densité n'ait pas permis d'observer un effet de stimulation par l'état fondamental et l'obtention d'un condensat de Bose, notamment à cause de la saturation de la densité excitonique, les résultats expérimentaux dénotent de l'existence d'un mécanisme très efficace de relaxation de l'énergie vers l'état fondamental du système. Ceci est la conséquence des grandes densités des états étendus de polariton, où les temps de vie radiative sont longs, et qui représentent un grand réservoir de polaritons dans lequel les différents processus de relaxation peuvent puiser.

La croissance d'échantillons de plus grande qualité, et, surtout, contenant plusieurs puits quantiques, devrait permettre l'observation de régimes non linéaires. En effet, la multiplication des puits permet, d'une part, de répartir la densité des excitons sur plusieurs surfaces, diminuant ainsi leur saturation, et, d'autre part, augmente le couplage fort, permettant ainsi l'obtention de confinement plus profonds.

Enfin, un dernier trait de caractère original de cette nouvelle structure vient de la brisure de symétrie du système dans toutes les directions de l'espace. Ceci a pour conséquence intéressante le fait que la quantité de mouvement des polaritons ne nécessite plus d'être conservée, et contribue ainsi à l'efficacité des processus dynamiques de relaxation. Notamment, par les processus paramétriques, une telle microstructure devrait permettre plus efficacement l'obtention et l'étude de paires intriquées de polaritons. Un brevet sur cette idée est en cours d'enregistrement.

Bref, nous sommes parvenus à créer un piège spatial de polaritons dans lequel ceux-ci relaxent efficacement. La grande facilité de production et de reproduction de ces pièges micrométriques rend cette méthode des plots at-

trayante à bien des égards. Les caractéristiques qu'elle offre, et son analogie avec les méthodes de refroidissement et de piégeage magnéto-optique requis pour la condensation de Bose-Einstein des atomes alcalins, font des microcavités à plots de bonnes candidates à l'obtention de la condensation de Bose-Einstein dans les semiconducteurs – indirectement observée, contrairement aux atomes alcalins (à paraître prochainement des observations plus directes dans une microcavité semiconductrice II-VI).

Si la facilité avec laquelle il est possible d'obtenir ces pièges à polaritons peut être intéressante pour des applications technologiques et industrielles, il n'en demeure pas moins que plusieurs aspects de la physique fondamentale peuvent y trouver un certain intérêt. Le simple fait que l'on puisse choisir à souhait les tailles, les formes et les dispositions de ces pièges peut rendre facilement réalisable des configurations géométriques dans lesquelles il serait possible et favorable d'observer différents phénomènes collectifs, comme l'interférence de deux condensats, les oscillations de Josephson ou encore des effets de superfluidité ou des vortex d'un condensat. Ainsi, ce travail de thèse constitue une contribution initiale à une vaste étude future de cette nouvelle génération prometteuse de microcavités semiconductrices à plots.

# Bibliographie

- [Agranovitch (1966)] Agranovitch, V. M. & Dubowskii, A. O. Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. *JETP Letters* **3**, 345 (1966).
- [Alivisatos (1996)] Alivisatos, A. P. Semiconductor clusters, nanocrystals, and quantum dots. *Science* **271**, 933-937 (1996).
- [Bassani (1975)] Bassani, F. & Pastori Parravicini, G. Electronic States and Optical Transitions in Solids. *Pergamon Press*, Oxford (1975).
- [Bastard (1990)] Bockelmann, U. & Bastard, G. Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases. *Phys. Rev. B* **42**, 8947-8951 (1990).
- [Bastard (1991)] Bastard, G. Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures. *Paperback John Wiley & Sons*, (1991).
- [Benisty *et al.* (1999)] Benisty, M., Gérard, J. M., Houdré, R., Rarity, J. & Weisbuch, C. *Confined Photon Systems*, Hardcover (Springer, 1999).
- [Biolatti *et al.* (2000)] Biolatti, E., Iotti, R. C., Zanardi, P. & Rossi, F. Quantum information processing with semiconductor macroatoms. *Physical Review Letters* **85**, 5647-5650 (2000).
- [Bimberg *et al.* (1999)] Bimberg, D., Grundmann, M. & Ledentsov, N. N. *Quantum Dot Heterostructures*, Hardcover (John Wiley & Sons, 1999).
- [Bimberg *et al.* (2001)] Heitz, R., Born, H., Guffarth, F., *et al.* Existence of a phonon bottleneck for excitons in quantum dots. *Phys. Rev. B* **64**, 241305 (2001).
- [Ciuti *et al.* (2003)] Ciuti, C., Schwendimann, P. & Quattropani, A. Theory of polariton parametric interactions in semiconductor microcavities. *Semiconductor Science and Technology* **18**, S279-S293 (2003).
- [Cohen-Tannoudji (1998)] Cohen-Tannoudji, C., Dupont-Roc, J. & Grynberg, G. *Atom-Photon Interactions : Basic Processes and Applications*, Paperback (John Wiley & Sons, 1998).
- [Dalfovo *et al.* (1999)] Dalfovo, F., Giorgini, S., Pitaevskii, L. P. & Stringari, S. Theory of Bose-Einstein Condensation in trapped gases. *Review of Modern Physics* **71**, 463 (1999).

- [Dang *et al.* (1998)] Dang, L. S., Heger, D., Andre, R., Boeuf, F. & Romestain, R. Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity. *Physical Review Letters* **81**, 3920-3923 (1998).
- [Dasbach *et al.* (2001)] Dasbach, G., Schwab, M., Bayer, M. & Förschel, A. Parametric polariton scattering in microresonators with three-dimensional optical confinement. *Phys. Rev. B* **64**, 201309(R) (2001).
- [Deng *et al.* (2002)] Deng, H., Weihs, G., Santori, C., Bloch, J. & Yamamoto, Y. Condensation of semiconductor microcavity exciton polaritons. *Science* **298**, 199-202 (2002).
- [Deng *et al.* (2003)] Deng, H., Weihs, G., Snoke, D., Bloch, J. & Yamamoto, Y. Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **100**, 15318-15323 (2003).
- [Deveaud *et al.* (1991)] Deveaud, B., Clérot, F., Roy, N., Satzke, K., Sermage, B. & Katzer, D. S. Enhanced Radiative Recombination of Free Excitons in GaAs Quantum Wells. *Physical Review Letters* **67**, 2355 (1991).
- [Ding *et al.* (1993)] Ding, J., Hagerott, M., Jeon, H. & Nurmikko, A. V. (Zn,Cd)Se/ZnSe Quantum Well Lasers - Excitonic Gain in an Inhomogeneously Broadened Quasi-2-Dimensional System. *Physical Review B* **47**, 10528 (1993).
- [Frenkel (1931)] Frenkel, J. On the transformation of light into heat in solids. *Physical Review* **37**, 17 (1931).
- [Gérard *et al.* (1998)] Gérard, J. M., Sermage, B., Gayral, B., *et al.* Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1110-1113 (1998).
- [Hartmann *et al.* (2000)] Hartmann, A., Ducommun, Y., Kapon, E., Hohe- nester, U. & Molinari, E. Few-particle effects in semiconductor quantum dots : Observation of multicharged excitons. *Physical Review Letters* **84**, 5648-5651 (2000).
- [Hess *et al.* (1994)] Hess, H. F., Betzig, E., Harris, T. D., Pfeiffer, L. N., West, K. W. Near-Field Spectroscopy of the Quantum Constituents of a Luminescent System. *Science* **264**, 1740-1745 (1994).
- [Hopfield (1958)] Hopfield, J. J. Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals, *Physical Review* **112**, 1555 (1958).
- [Houdré *et al.* (1994)] Houdré, R. *et al.* Measurement of Cavity-Polariton Dispersion Curve from Angle-Resolved Photoluminescence Experiments. *Physical Review Letters* **73**, 2043 (1994).

- [Imamoglu *et al.* (1996)] Imamoglu, A., Ram, R. J., Pau, S. & Yamamoto, Y. Nonequilibrium condensate and lasers without inversion : exciton-polariton lasers. *Physical Review A* **53**, 4250 (1996).
- [Kaluzny *et al.* (1983)] Kaluzny, Y., Goy, P., Gross, M., Raimond, J. M. & Haroche, S. Observation of Self-Induced Rabi Oscillations in Two-Levels Atoms Excited Inside a Resonant Cavity. *Physical Review Letters* **51**, 1175 (1983).
- [Keeling *et al.* (2004)] Keeling, J., Eastham, P. R., Szymanska, M. H. & Littlewood, P. B. Polariton condensation with localized excitons and propagating photons. *Physical Review Letters* **93**, art. no.-226403 (2004).
- [Ketterle (2002)] Ketterle, W. Nobel lecture : When atoms behave as waves : Bose-Einstein condensation and the atom laser. *Reviews of Modern Physics* **74**, 1131-1151 (2002).
- [Khitrova (1999)] Khitrova, G., Gibbs, H. M., Jahnke, F., Kira, M., & Koch, S. W. Nonlinear optics of normal-mode-coupling semiconductor microcavities. *Reviews of Modern Physics* **71**, 1591 (1999).
- [Langbein (2002)] Langbein, W. in Proceedings of the 26th International Conference on the Physics of Semiconductors (Institute of Physics Publishing, Edinburgh, Scotland, United Kingdom, 2002).
- [Malpuech *et al.* (2002)] Malpuech, G., Kavokin, A., Di Carlo, A. & Baumberg, J. J. Polariton lasing by exciton-electron scattering in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **65**, art. no.-153310 (2002).
- [Meystre & Sargent (1990)] Meystre, P. & Sargent, M. Elements of Quantum Optics, *Springer Series*, Berlin (1990).
- [Mueller *et al.* (2000)] Mueller, M., Bleuse, J. & André, R. Dynamics of the cavity polariton in CdTe-based semiconductor microcavities : evidence for a relaxation edge. *Physical Review B* **62**, 16886 (2000).
- [Obert *et al.* (2004)] Obert, M., Renner, J., Forchel, A., *et al.* Nonlinear emission in II-VI pillar microcavities : Strong versus weak coupling. *App. Phys. Lett.* **84**, 1435-1437 (2004).
- [Peter *et al.* (2005)] Peter, E., Senellart, P., Martrou, D., Lemaitre, A., Hours, J., Gerard, J. M. & Bloch, J. Exciton-photon strong-coupling regime for a single quantum dot embedded in a microcavity. *Physical Review Letters* **95**, (2005).
- [Porrás *et al.* (2002)] Porrás, D., Ciuti, C., Baumberg, J. J. & Tejedor, C. Polariton dynamics and Bose-Einstein condensation in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **66**, art. no.-085304 (2002).

- [Purcell (1946)] Purcell, E. M. Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies. *Phys. Rev.* **69**, 681 (1946).
- [Quochi *et al.* (1998)] Quochi, F., Bongiovanni, G., Mura, A. *et al.* Strongly Driven Semiconductor Microcavities : From the Polariton Doublet to an ac Stark Triplet. *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4733-4736 (1998).
- [Rabi (1936)] Rabi, I. I. On the process of space quantization. *Physical Review* **49**, 324 (1936).
- [Reithmaier *et al.* 2004)] Reithmaier, J. P., Sek, G., Löffler, A., *et al.* Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system. *Nature* **432**, 197-200 (2004).
- [Saba *et al.* (1999)] Saba, M., Quochi, F., Ciuti, C., Bongiovanni, G., Mura, A., Oesterle, U., Staehli, J. L. & Deveaud, B. Intrinsic non-linearities in exciton-cavity-coupled systems. *Physica B* **272**, 472 (1999).
- [Saba *et al.* (2000)] Saba, M., Quochi, F., Oesterle, U., Staehli, J. L., Deveaud, B., Bongiovanni, G. & Mura, A. The importance of disorder in very high quality semiconductor microcavities. *Physica Status Solidi (a)* **178**, 149 (2000).
- [Saba *et al.* (2002)] Saba, M., Ciuti, C., Bloch, J., *et al.* High temperature ultrafast polariton parametric amplification in semiconductor microcavities. *Nature* **414**, 731-734 (2002).
- [Sale (1995)] Sale, T. E. Vertical Cavity Surface Emitting Lasers, *Wiley* (1995).
- [Savona *et al.* (1995)] Savona, V., Andreani, L. C., Schwendimann, P. & Quattropani, A. Quantum-Well Excitons in Semiconductor Microcavities - Unified Treatment of Weak and Strong-Coupling Regimes. *Solid State Communications* **93**, 733-739 (1995).
- [Savona *et al.* (1996)] Savona, V., Tassone, F., Piermarocchi, C., Quattropani, A. & Schwendimann, P. Theory of polariton photoluminescence in arbitrary semiconductor microcavity structures. *Physical Review B* **53**, 13051-13062 (1996).
- [Savona *et al.* (1999)] Savona, V., Piermarocchi, C., Quattropani, A., Schwendimann, P and Tassone, F. Optical properties of microcavity polaritons. *Phase Transitions* **68**(1), 169-279 (1999).
- [Savona & Sarchi (2005)] Savona, V. & Sarchi, D. Bose-Einstein condensation of microcavity polaritons. *Physica Status Solidi B-Basic Solid State Physics* **242**, 2290-2301 (2005).
- [Sermage *et al.* (2001)] Sermage, B., Malpuech, G., Kavokin, A. V. & Thierry-Mieg, V. Polariton acceleration in a microcavity wedge. *Physical Review B* **6408**, art. no.-081303 (2001).

- [Shah (1996)] Shah, J. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Microstructures*. Springer Series, Berlin (1996).
- [Skolnick *et al.* (1998)] Skolnick, M. S., Fisher, T. A. & Whittaker, D. M. Strong coupling phenomena in quantum microcavity structures. *Semicond. Sci. Technol.* **13**, 645-669 (1998).
- [Snoko & Negoita (2000)] Snoko, D. W. & Negoita, V. Pushing the Auger limit : Kinetics of excitons in traps in  $\text{Cu}_2\text{O}$ . *Phys. Rev. B* **61**, 2904-2910 (2000).
- [Snoko (2002)] Snoko, D. Spontaneous Bose coherence of excitons and polaritons. *Science* **298**, 1368-1372 (2002).
- [Snoko *et al.* (2002)] Snoko, D., Denev, S., Liu, Y., Pfeiffer, L. & West, K. Long-range transport in excitonic dark states in coupled quantum wells. *Nature* **418**, 754-757 (2002).
- [Tartakovskii *et al.* (2000)] Tartakovskii, A. I., Emam-Ismaïl, M., Stevenson, R. M., Skolnick, M., Astratov, V. N., Whittaker, D. M., Baumberg, J. J., & Roberts, J. S. Relaxation bottleneck and its suppression in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **62**, R2283 (2000).
- [Tassone *et al.* (1997)] Tassone, F., Piermarocchi, C., Savona, V., Quattropani, A. & Schwendimann, P. Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons. *Physical Review B* **56**, 7554 (1997).
- [Wannier (1937)] Wannier, G. H. The structure of electronic excitation levels in insulating crystals. *Physical Review* **52**, **191** (1937).
- [Weisbuch & Winter (1991)] Weisbuch, C. & Winter, C. *Quantum Semiconductor Structures : Fundamentals and applications*. Academic Press, San Diego (1991).
- [Weisbuch *et al.* (1992)] Weisbuch, C., Nishioka, M., Ishikawa, A. & Arakawa, Y. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3314-3317 (1992).
- [Woggon (1996)] Woggon, U. *Optical Properties of Semiconductor Quantum Dots*, (Springer, 1996).
- [Yoshie *et al.* (2004)] Yoshie, T. *et al.*, Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity. *Nature* **432**, 200-203 (2004).