HAL
open science

Etude par spectroscopie optique de la dynamique de spins dans les nanostructures CdMnTe

Thomas Clement

To cite this version:

Thomas Clement. Etude par spectroscopie optique de la dynamique de spins dans les nanostructures CdMnTe. Physique [physics]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2009. Français. NNT : . tel-00466012

HAL Id: tel-00466012

https://theses.hal.science/tel-00466012

Submitted on 22 Mar 2010

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

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

École Doctorale de Physique, Grenoble
UFR de Physique

Etude par spectroscopie optique de la dynamique de spins dans les nanostructures CdMnTe

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le : 6 juillet 2009

pour l'obtention du

Doctorat de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1
(spécialité Physique)

par

Thomas CLEMENT

Composition du jury

Président :	X. Marie
Rapporteurs :	D. Scalbert C. Testelin
Examinateurs :	J. Fernàndez-Rossier X. Marie
Directeur de thèse :	Henri Mariette
Co-directeur de thèse :	David Ferrand

Équipe mixte CNRS/CEA/UJF "Nano-Physique et Semi-Conducteurs"
Institut Néel - Département nanosciences.

Mis en page avec la classe thloria.

Table des matières

Introduction **1**

Partie I Cadre théorique et expérimental de ce travail **5**

Chapitre 1
Considérations générales sur les semi-conducteurs et semi-conducteurs magnétiques dilués

1.1 Semi-conducteurs de la famille des tellurures 8
1.1.1 Qu'est-ce qu'un semi-conducteur ? 8
1.1.2 Structure cristalline 9
1.1.3 Structure de bande 10
1.1.4 Principe de la photoluminescence 13
1.2 Nanostructures 14
1.2.1 Nanostructures idéales 14
1.2.2 Nanostructures plus réalistes 15
1.2.3 Conséquences sur l'étude optique 18
1.3 Semi-conducteurs magnétiques dilués 19
1.3.1 Semi-conducteurs sous champ magnétique : effet Zeeman 19
1.3.2 Insertion d'ions magnétiques manganèses 20
1.3.3 DMS sous champ magnétique : effet Zeeman géant 22

Chapitre 2
Mise en oeuvre expérimentale

2.1 Réalisation des échantillons 26
2.1.1 La MBE : qu'est-ce que c'est ? 26
2.1.2 Puits quantiques 27
2.1.3 Puits quantiques contraints 27
2.1.4 Boîtes quantiques 28

2.2 Dispositif expérimental 29
2.2.1 Comment sonder une boîte individuelle ? 29
2.2.2 Le montage optique 31

Partie II Dynamique des spins de Mn dans les boîtes quantiques 35

Chapitre 1
Première approche et résultats préliminaires

1.1 Identification des différents complexes excitoniques 40
1.1.1 Identification de l'exciton X et du biexciton XX par des montées en puissances 40
1.1.2 Identification de l'exciton chargé positivement X^+ par application d'un champ électrique 41
1.1.3 Comportement attendu identique sous champ magnétique pour l'exciton X et le biexciton XX 43
1.2 Observe-t-on des polarons magnétiques ? 44
1.2.1 Qu'est-ce qu'un polaron magnétique ? 44
1.2.2 Dépendance en champ magnétique observée dans nos structures . . . 45
1.2.3 La formation de polarons magnétiques peut-elle expliquer nos mesures ? 46

Chapitre 2
Equilibre dynamique des spins de Mn

2.1 Equilibre dynamique contrôlé par le champ magnétique : interprétation qualitative du phénomène 56
2.1.1 Une dépendance en champ magnétique inattendue et singulière 56
2.1.2 Explication qualitative : quatre idées clefs ! 58
2.2 Modélisation théorique et numérique : compréhension quantitative 64
2.2.1 Modélisation théorique du système 65
2.2.2 Résolution numérique 78
2.2.3 Analyse et discussions des simulations numériques 80
2.3 Equilibre dynamique contrôlé par d'autres paramètres : température, puissance, concentration en Mn 87
2.3.1 Compréhension du rôle théorique des différents paramètres via la modélisation numérique 87
2.3.2 Contrôle expérimental de l'effet d'équilibre dynamique des Mn 93
2.4 Expériences complémentaires confirmant le modèle 97

2.4.1 Chauffage des spins de Mn dans un puits fin 97
2.4.2 Disparition du chauffage des spins de Mn en excitation quasi-résonante ? 100
2.5 Au-delà du modèle 102
2.5.1 Les hypothèses essentielles du modèle 102
2.5.2 Mécanisme de chauffage indirect des spins de Mn 104
2.5.3 La boîte quantique : une sonde locale... mais pas seulement ! 105

Chapitre 3
Résultats complémentaires, questions en suspens et perspectives

3.1 Evolution des largeurs de raie en fonction du champ magnétique 110
3.1.1 Largeurs de raie dans l'échantillon M1736 110
3.1.2 Largeurs de raie dans l'échantillon M2116 112
3.1.3 Largeurs de raie dans l'échantillon M2114 113
3.1.4 Conclusion 114
3.2 Questions non résolues 115
3.2.1 Reproductibilité de la transition "chaud"/"froid" dans les échantillons de boîtes ? 115
3.2.2 Evolution de l'exciton chargé X^+ sous champ magnétique 117
3.3 Quelques perspectives intéressantes 118
3.3.1 Finalisation d'études entreprises 118
3.3.2 Réalisation d'un échantillon de boîtes sans couche de mouillage 119
3.3.3 Mesure expérimentale des dynamiques Mn-réseau et Mn-porteurs . . . 119

Partie III Dynamique des spins de Mn dans les puits quantiques sous "fort" champ magnétique pulsé 121

Chapitre 1
Mise en oeuvre du champ magnétique pulsé : un défi expérimental ?

1.1 La micro-bobine 126
1.1.1 Développement des micro-bobines 126
1.1.2 Face arrière 126
1.1.3 Face avant 127
1.1.4 Conclusion 127
1.2 Le montage mécanique 128
1.2.1 Réalisation d'un support rigide et prise des contacts 128
1.2.2 Positionnement micrométrique 130

1.3 Le développement électronique 131
1.3.1 Nappe de courant basse impédance 131
1.3.2 Cartes électroniques 132
1.3.3 Isolation électrique et compatibilité électromagnétique 134
1.4 La détection optique 134
1.4.1 Alignement à froid 134
1.4.2 Collection des photons utiles à la mesure 135

Chapitre 2
Application à l'étude de la dynamique de spin dans les puits quantiques

2.1 Principe de la mesure et calibration du champ pulsé 138
2.1.1 Principe de la mesure 138
2.1.2 Calibration du champ pulsé 142
2.2 Influence de la relaxation spin-réseau dans nos mesures 145
2.2.1 La relaxation spin-réseau 145
2.2.2 Quelle dynamique observons-nous ? 146
2.2.3 Insuffisance du spin-réseau pour expliquer les dynamiques observées . 148
2.3 Influence de l'évolution "adiabatique" dans nos mesures 150
2.3.1 Différentes explications de l'évolution "adiabatique" des Mn 150
2.3.2 Les dynamiques observées peuvent-elles s'expliquer par une évolution "adiabatique" ? 153
2.3.3 Conclusion 154
2.4 Quelques indices sur l'origine de l'évolution "adiabatique" 155
2.4.1 Etude sur un puits standard 155
2.4.2 Etude sur un puits contraint 159
2.4.3 Comparaison des deux études 159
2.5 Conclusion et perspectives 162
2.5.1 Conclusion 162
2.5.2 Perspectives 162

Conclusion **165**

Annexes

Annexe A
Rappel des caractéristiques des échantillons utilisés

Annexe B
Calcul de W^- et W^+ en tenant compte des quasi-niveaux de Fermi des porteurs

Bibliographie **173**

Introduction

Les matériaux semi-conducteurs, parce qu'ils permettent de moduler et de contrôler le nombre de porteurs de charges, ont permis l'essor de toute l'électronique et l'opto-électronique moderne. En effet, dans les métaux, les porteurs sont en nombre tellement important qu'ils écrantent les champs électriques qui permettraient une manipulation efficace de ces porteurs tandis que dans les isolants, les porteurs sont tout simplement absents. L'invention du transistor en 1947, qui a valu le prix Nobel à J. Bardeen, W. Shockley et W. Brattain, a ainsi consitué une avancée déterminante sans laquelle l'électronique et l'informatique ne possèderaient pas leurs formes actuelles.

L'avènement des techniques d'épitaxie par jets moléculaires dans les années 70, et les progrès rapides des techniques de micro-fabrication depuis les années 80, ont ensuite permis d'ouvrir la voie au développement des hétéro et nanostructures. Ces objets ont permis de moduler encore plus finement les propriétés des semi-conducteurs et de décupler leur champ d'application. Ils permettent ainsi de localiser spatialement les porteurs dans des volumes nanométriques, mais aussi de façonner, presqu'à loisir, les états énergétiques du sytème ; ce qui a valu aux boîtes quantiques, parmi les dernières-nées des nanostructures, leur surnom d'"atomes artificiels". Les études sur les nanostructures ont ainsi débouché sur des découvertes majeures en physique fondamentale, illustrées par les prix Nobels décernés à K.V. Klitzing en 1985 puis à H.L. Störmer, R.B. Laughlin et D. Tsui en 1998 pour leurs découvertes respectives des effets Hall quantiques entier et fractionnaire, qui ont eu et ont encore des répercussions considérables, en métrologie par exemple. Par ailleurs, l'utilisation des propriétés des nanostructures semi-conductrices dans des dispositifs comme les diodes lasers ou les transistors à haute mobilité démontre leur impact sur les récents développements micro et opto-électroniques. Un prix Nobel est également venu récompenser H. Kroemer et Z.I. Alferov pour leurs contributions dans ce domaine.

La multiplicité des matériaux semi-conducteurs est une autre source de richesse. Parmi les différentes familles de semi-conducteurs, celle des II-VI présente des caractéristiques très intéressantes. Les énergies de liaison importantes entre les électrons et les trous dans ces matériaux ont notamment permis la première observation d'un nouveau complexe excitonique : le trion [1] ; et la robustesse de ces complexes a également permis de générer des photons uniques à des températures bien plus élevées que celles atteintes avec les semi-conducteurs III-V [2, 3]. Enfin, c'est en parti parce que ces complexes sont fortement liés et présentent donc de faibles rayons de Bohr, que la condensation de polaritons a pu être mise en évidence dans les II-VI [4] ; ce qui représente à ce jour la démonstration la plus probante de l'observation de la condensation de Bose-Einstein dans l'état solide. Par ailleurs, les II-VI restent des matériaux de pointe dans le domaine des applications : en effet, une centrale solaire de 40 MW est actuellement en construction en Allemagne, avec des cellules à base de CdTe installées sur $2km^2$.

Un autre intérêt majeur des II-VI est la possibilité de pouvoir y insérer des impuretés ma-

gnétiques, en l'occurence des Mn, de manière isoélectronique. CdMnTe s'est ainsi révélé comme le matériau modèle pour l'étude optique des semi-conducteurs magnétiques dilués (DMS), dont le champ d'investigation est par ailleurs plus large [5]. L'insertion d'impuretés magnétiques dans les DMS autorise le jumelage, au sein d'un même matériau, de propriétés électroniques et de propriétés magnétiques, ce qui ouvre d'immenses perspectives. En effet, si on pense que dans l'électronique et l'informatique actuelles, l'information est d'une part traitée et véhiculée par les charges, et d'autre part stockée par l'aimantation, on comprend que parvenir à marier les deux techniques constituerait une révolution : c'est ce que propose l'électronique de spin [6]. Une telle électronique cherche à jouer non plus seulement sur le degré de liberté de charge des particules, mais aussi sur leur degré de liberté de spin ; et dans ce domaine le matériau CdMnTe a démontré qu'il avait d'importants atouts. L'un des résultats marquants est l'obtention, dans des puits, d'une phase ferromagnétique des spins de Mn, médiée par les porteurs. Il a ainsi été démontré que l'on pouvait contrôler cette transition paramagnétique/ferromagnétique par l'intermédiaire d'un champ électrique qui, suivant sa valeur, permet aux porteurs d'interagir ou non avec les Mn [7]. Une autre avancée impressionnante est la capacité à adresser optiquement un unique spin de Mn dans une boîte quantique CdMnTe, et à manipuler son état quantique [8, 9]. Ceci permet par exemple d'envisager de l'utiliser comme un qubit dans le domaine de l'information quantique.

A travers ces deux exemples, on se rend compte des opportunités qu'offre l'étude des nanostructures CdMnTe pour la physique du spin ; et en les confrontant, on s'aperçoit que dans le premier cas, les études sont réalisés dans des puits 2D pour des concentrations en Mn relativement importantes, tandis que dans le second cas, elles ont été réalisées dans des boîtes 0D à des concentrations bien plus faibles. On se pose alors naturellement la question de savoir ce qui se passe dans ce matériau à des concentrations en Mn intermédiaires ou lorsqu'on modifie la dimensionnalité du système. D'autre part, ces deux études modèles semblent dessiner l'image de systèmes bien définis où tous les paramètres sont parfaitement contrôlés. Or, il est bien connu qu'en physique du solide, l'image simple d'un système isolé est souvent abusive, et que son interaction avec l'environnement joue un rôle central [10]. L'enjeu des études présentées dans ce manuscrit sera donc d'explorer la physique des spins de Mn, et notamment leur dynamique, dans des puits et des boîtes CdMnTe à concentration en Mn intermédiaire, tout en s'attachant à démontrer les effets du couplage de ces spins avec les différentes excitations du solide.

Ce manuscrit se divise en trois parties, chacune d'elles étant subdivisée en chapitres :

Dans la première, on présentera le contexte générale de l'étude. Le premier chapitre permettra d'introduire le contexte théorique, en passant en revue les propriétés qui font de nos matériaux des candidats idéaux pour des études optiques, puis en insistant sur les propriétés magnéto-optiques spécifiques que confère à nos matériaux l'insertion d'impuretés magnétiques dans la matrice semi-conductrice. Le second chapitre, axé sur le contexte expérimental, expliquera la manière de parvenir à réaliser de tels échantillons, avant de détailler le montage de micro-spectroscopie magnéto-optique qui nous permet de les étudier.

La seconde partie s'attachera à démontrer le rôle de l'environnement sur les spins de Mn dans des boites quantiques. Après avoir présenté un effet magnéto-optique nouveau, le premier chapitre s'évertuera à le comparer aux effets magnéto-optiques habituellement observés, notammant à l'effet Zeeman géant et au polaron magnétique, et à démontrer en quoi il est tout à fait différent de ces derniers. Le second chapitre présentera une explication qualitative de l'effet observé puis en proposera une modélisation théorique détaillée, démontrant ainsi le rôle extrêmement important

joué par les porteurs photocréés au voisinage des boîtes sur la dynamique des Mn. On démontrera alors comment parvenir à contrôler au mieux ce mécanisme, notamment en expliquant sa dépendance en fonction de la concentration en Mn et de la dimensionnalité du système. Dans le troisième chapitre, on détaillera comment l'étude des largeurs de raies pourrait nous permettre d'accéder à une compréhension encore plus poussée de ce mécanisme, avant d'aborder les points mal compris de ces expériences et les perspectives qu'elles ouvrent.

Enfin, la troisième partie sera dédiée à l'étude de la dynamique de spin des Mn dans des puits quantiques, par l'intermédiaire d'une technique de "fort" champ magnétique pulsé. Le premier chapitre expliquera en détail les difficultés expérimentales inhérentes à la mise en place d'une telle technique pour l'étude de nanostructures, et la manière dont elles ont été surmontées. Dans le second chapitre, on présentera les premières études réalisées grâce à cette technique, ce qui nous permettra de mettre en évidence et de distinguer deux dynamiques différentes des spins de Mn au voisinage du champ nul. On montrera que la première, lente, est le résultat de l'interaction spin-réseau puis on essaiera de déterminer si la seconde, rapide, est plutôt le résultat des interactions spin-spin entre Mn, ou bien la conséquence du comportement intrinsèque d'un Mn unique en présence de l'interaction hyperfine et des contraintes.

Première partie

Cadre théorique et expérimental de ce travail

Chapitre 1

Considérations générales sur les semi-conducteurs et semi-conducteurs magnétiques dilués

Sommaire

1.1 Semi-conducteurs de la famille des tellurures 8
1.1.1 Qu'est-ce qu'un semi-conducteur ? 8
1.1.2 Structure cristalline 9
1.1.3 Structure de bande 10
1.1.4 Principe de la photoluminescence 13
1.2 Nanostructures 14
1.2.1 Nanostructures idéales 14
1.2.2 Nanostructures plus réalistes 15
1.2.3 Conséquences sur l'étude optique 18
1.3 Semi-conducteurs magnétiques dilués 19
1.3.1 Semi-conducteurs sous champ magnétique : effet Zeeman 19
1.3.2 Insertion d'ions magnétiques manganèses 20
1.3.3 DMS sous champ magnétique : effet Zeeman géant 22

Le but ici n'est évidemment pas de faire un cours exhaustif sur un sujet aussi vaste que les semi-conducteurs, ni même "simplement" sur les semi-conduteurs magnétiques dilués. On essaiera plutôt de donner, d'une part un aperçu du contexte scientifique général dans lequel se situe ce travail, et d'autre part de se restreindre aux notions physiques qu'il faut nécessairement avoir intégrées pour comprendre le travail que nous présenterons dans ce manuscrit. On présentera donc dans un premier temps les propriétés principales des semi-conducteurs avant d'expliquer comment on peut les utiliser pour en faire de nouveaux objets : les nanostructures. Et enfin, on expliquera les spécificités d'un semi-conducteur magnétique dilué.

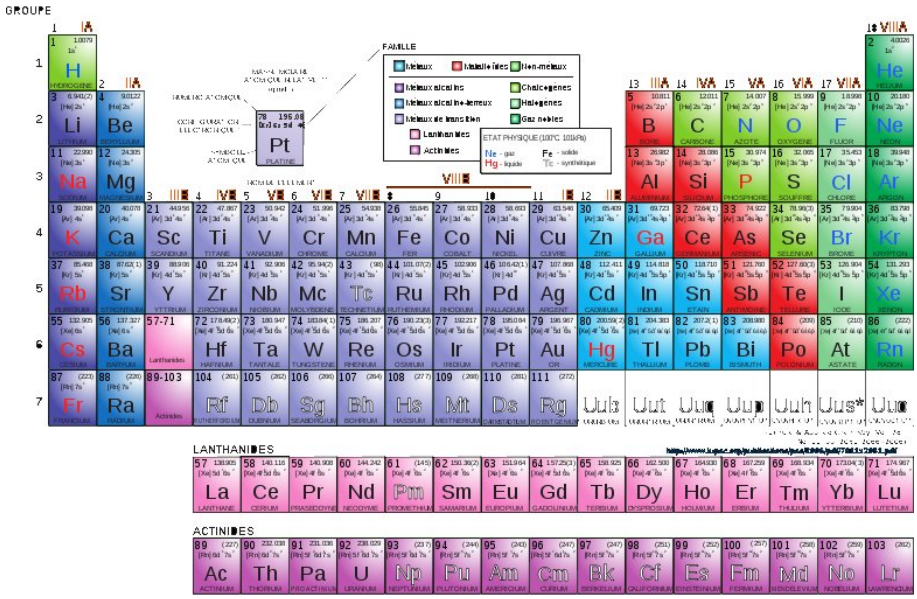

FIG. 1.1 – Classification périodique de Mendeleïev.

1.1 Semi-conducteurs de la famille des tellurures

1.1.1 Qu'est-ce qu'un semi-conducteur ?

La physique du solide a pour objet d'étude la compréhension des propriétés fondamentales des matériaux solides, amorphes ou cristallins [11]. Pour le physicien cette compréhension passe bien souvent par la capacité à relier les propriétés macroscopiques d'un solide à ces propriétés microscopiques. Partant, la physique du solide va s'appuyer entre autres sur les outils théoriques de la physique quantique -qui décrit bien le monde aux échelles microscopiques- et de la physique statistique -qui permet de prendre en compte le nombre macroscopique d'atomes ou de molécules contenues dans un solide-. Il existe des tas de matériaux solides aux propriétés très différentes, constituant autant de domaines d'étude qui se juxtaposent et se complètent : les métaux, les isolants, les verres de spin, les supra-conducteurs, les super-solides, les piezo-électriques, les semi-métaux, les ferro-magnétiques... Ceux qui vont nous intéresser dans ce travail sont les semi-conducteurs.

Un semi-conducteur peut dans un premier temps se définir comme n'étant ni un métal, ni un isolant mais un matériau "'intermédiaire"'. En effet, il est isolant à basse température mais conduit le courant à plus forte température. La distinction relativement rigoureuse que l'on peut opérer entre métaux, isolants et semi-conducteurs se base sur la structure de bande des solides dont on parlera plus loin (cf.1.1.3), c'est à dire sur la répartition des électrons sur les différents états d'énergie du matériau. Dans les semi-conducteurs, à la base de toute l'électronique et l'opto-électronique moderne, on peut distinguer plusieurs catégories : les IV-IV -composés uniquement d'éléments chimiques de la colonne IV dans la classification périodique de Mendeleïev (cf. figure 1.1)- comme le silicium (de loin le plus utilisé dans les applications actuelles) ou le germanium. Mais il existe aussi les III-V -composés d'un élément de la colonne III et d'un élément de la colonne V- comme l'Arsenure de Gallium ou d'Aluminium, les II-VI et même les I-VII...

Les semi-conducteurs étudiés dans ce travail sont des semi-conducteurs II-VI, plus spécifiquement de la famille des tellurures, que nous allons décrire plus en détail.

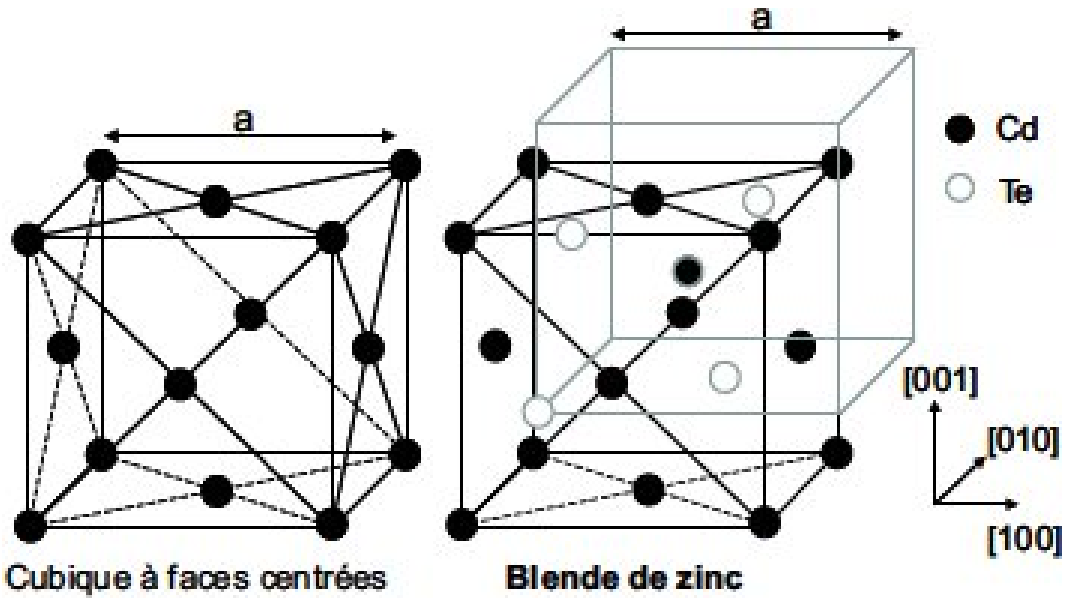

FIG. 1.2 – Structure cristalline du CdTe dite Blende de Zinc et de paramètre de maille $a = 6,48\ A$

1.1.2 Structure cristalline

Les semiconducteurs II-VI sont composés d'un élément de la colonne II, à savoir le cadmium, le zinc, le manganèse ou le magnésium (ou même le mercure) et d'un élément de la colonne VI, le tellure, pour la famille des tellurures qui nous intéresse. L'élément II fournit 2 électrons de valence (provenant d'une orbitale s) et l'élément VI en fournit 6 (2 d'une orbitale s et 4 d'une orbitale p) ce qui fait 8 électrons pour chaque couple d'élément comme pour tous les semiconducteurs (IV-IV, III-V, II-VI). Les orbitales atomiques vont alors s'hybrider pour former des liaisons inter-atomiques de type sp^3 : chaque cation se trouve au centre d'un tétraèdre d'anions et réciproquement.

La structure cristalline du tellurure de cadmium (CdTe), du tellurure de zinc (ZnTe) ainsi que des alliages ternaires $Cd_{1-x}Zn_xTe$ obtenus à partir de ces deux composés binaires en faisant varier la composition x en cation est une structure blende de zinc (cf.figure 1.2). Elle est constituée de deux sous-réseaux cubiques à faces centrées décalés l'un par rapport à l'autre d'un quart de la grande diagonale [111] du cube. Le premier sous-réseau est occupé par les cations de la colonne II tandis que l'autre est occupé par les anions de la colonne VI (ici Te). Les alliages $Cd_{1-x}Mg_xTe$ et $Cd_{1-x}Mn_xTe$ cristallisent aussi dans la structure blende de zinc pour des compositions x inférieures à 0.3 et 0.75 respectivement ou bien à condition d'être épitaxiés sur substrat $Cd_{1-x}Zn_xTe$ ce qui sera notre cas. Les paramètres de maille de ces matériaux sont [5] :

$$\begin{aligned} a_{CdTe} &= 6,481\ A \\ a_{ZnTe} &= 6,1037\ A \\ a_{MgTe} &= 6,42\ A \\ a_{MnTe} &= 6,337\ A \end{aligned} \tag{1.1}$$

Le paramètre de maille d'un alliage ternaire dépend de sa composition x et s'obtient par interpolation linéaire des paramètres de maille des deux alliages binaires dont il provient. C'est la loi de Vegard [5].

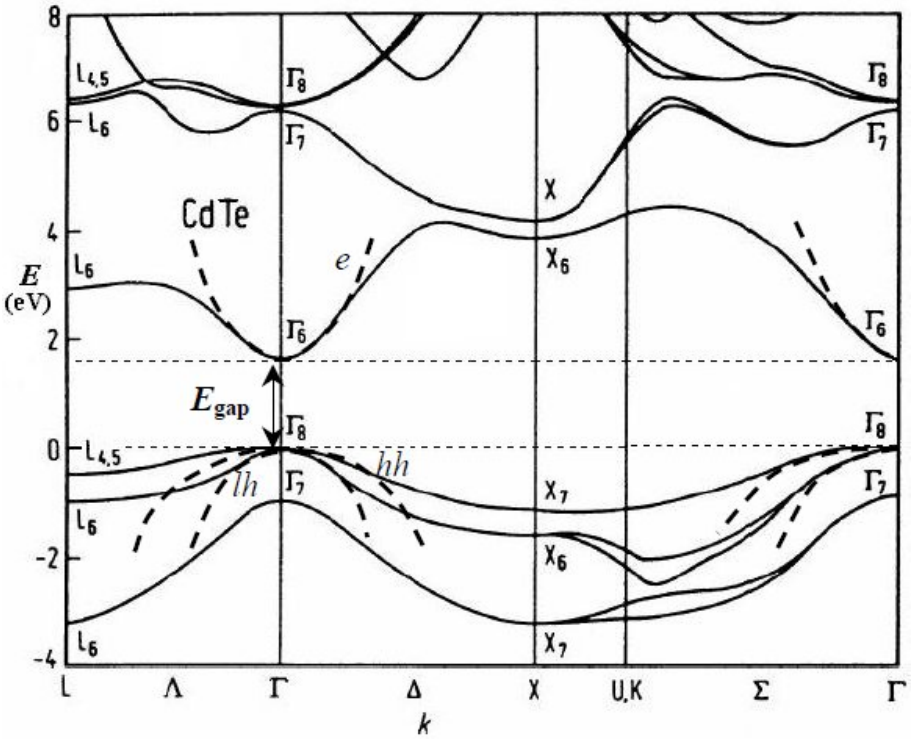

FIG. 1.3 – Structure de bande électronique du matériau massif CdTe. La bande interdite est matérialisée par les deux lignes pointillées horizontales. En centre de zone de Brillouin, au point Γ, on peut se placer dans l'approximation parabolique.

1.1.3 Structure de bande

En physique du solide, dans l'hypothèse d'un cristal parfait et infini, on peut décrire les niveaux d'énergie par des états de Bloch rassemblés en bandes : c'est la théorie des bandes. On peut s'en faire une idée relativement intuitive. En mécanique classique, si l'on couple deux oscillateurs identiques, possédant donc initialement deux fréquences de résonance identiques, on obtient deux fréquences de résonance distinctes pour le système couplé. On a levé la dégénérescence ! Dans un solide c'est la même chose : les orbitales de chaque atome individuel sont au départ toutes dégénérées mais le fait de coupler les atomes entre eux entraîne l'hybridation de ces orbitales et simultanément la levée de la dégénérescence. Etant donné le très grand nombre d'atomes en présence (quelques 10^{23}), on obtient une structure énergétique où les états quantiques du système couplé (le solide) sont répartis sur une large plage énergétique tout en restant très proches les uns des autres. C'est ce continuum d'états de Bloch que l'on nomme une bande. On obtient autant de bandes que l'atome de départ a d'orbitales atomiques.

Dans les semiconducteurs, on forme donc 8 orbitales. Les 4 orbitales liantes (1 orbitale s et 3 orbitales p), de plus basse énergie, sont occupées par les 8 électrons de valence de départ et forment la bande de valence. Les 4 orbitales antiliantes (1 orbitale s et 3 orbitales p) sont intrinsèquement non peuplées et forment la bande de conduction. Plus exactement, on appelle respectivement bande de valence et bande de conduction les trois orbitales p liantes et l'orbitale s antiliante. Une description des calculs exacts de structure de bande dans l'approximation $\vec{k} \cdot \vec{p}$ peut être consultée en [12] et le résultat d'un tel calcul pour CdTe est présenté en figure 1.3. Les semi-conducteurs que nous étudions dans ce manuscrit sont à bande interdite directe, c'est

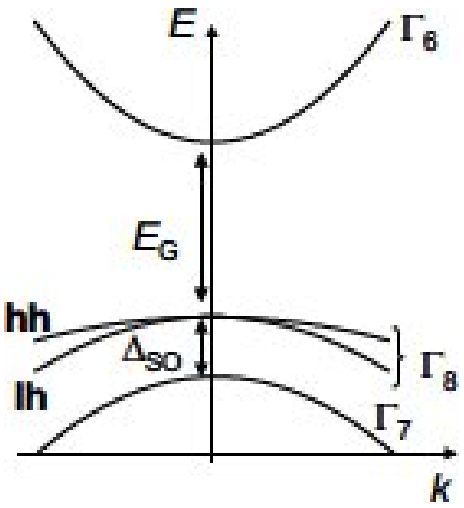

FIG. 1.4 – Schéma de la structure de bande du CdTe en centre de zone de Brillouin.

à dire que les bandes de conduction et de valence présentent respectivement un minimum et un maximum d'énergie en centre de zone de Brillouin en $\vec{k} = \vec{0}$ (point Γ sur la figure 1.3). C'est cette propriété qui nous permet de coupler les photons à ces matériaux et donc de faire de l'optique. Toujours parce que les transitions optiques se font verticalement en centre de zone, on peut se restreindre à étudier la structure de bande au voisinage de $\vec{k} = \vec{0}$. L'orbitale s liante est assez profonde pour qu'on puisse l'oublier dans la suite et les 3 orbitales p antiliantes ont une énergie suffisamment élevée pour ne pas modifier les propriétés optiques. La bande de conduction (orbitale s anti-liante), de symétrie Γ_6, est deux fois dégénérée (spin $\sigma_z = \pm\frac{1}{2}$). Elle est séparée de la bande de valence par une bande d'énergie interdite notée E_G. La bande de valence de symétrie Γ_8 est séparée de la bande de valence de symétrie Γ_7 par le couplage spin-orbite Δ_{SO}. Dans CdTe, $\Delta_{SO} = 0.9\ eV$ si bien que la bande Γ_7 peut également être négligée. Γ_8, quatre fois dégénérée en $\vec{k} = \vec{0}$, se compose de deux sous-bandes : une de trous lourds (hh) décrite par un moment cinétique $J = \frac{3}{2}$ et sa projection $j_z = \pm\frac{3}{2}$ et une de trous légers (lh) décrite par la projection $j_z = \pm\frac{1}{2}$. Toute cette description est résumée dans la figure 1.4).

L'approximation parabolique, également appelée approximation de la masse effective, consiste en un développement à l'ordre 2 en k qui permet de rendre compte des courbures de bande au voisinage du centre de zone. Ainsi la courbe de dispersion des bandes est décrite par une relation du type :

$$E(\vec{k}) = E(\vec{k} = \vec{0}) + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \tag{1.2}$$

où m^* désigne la masse effective. Pour la bande de conduction, la masse effective des électrons est isotrope et vaut (en notant m_0 la masse des électrons libres) :

$$m_e^* = 0,1 m_0 \tag{1.3}$$

En revanche, il est plus difficile de décrire la bande de valence. Dans l'approximation de la masse effective, on obtient d'une part une masse effective différente pour les trous lourds et pour les trous légers, et d'autre part une masse qui n'est plus isotrope et dépend de la direction de $\vec{k}$. Dans la direction [001] (celle qui nous intéressera dans ce manuscrit), les masses effectives des trous lourds et des trous légers dans CdTe sont :

$$m_{hh}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 - 2\gamma_2} = 0,633 m_0 \text{ et } m_{lh}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 + 2\gamma_2} = 0,135 m_0 \tag{1.4}$$

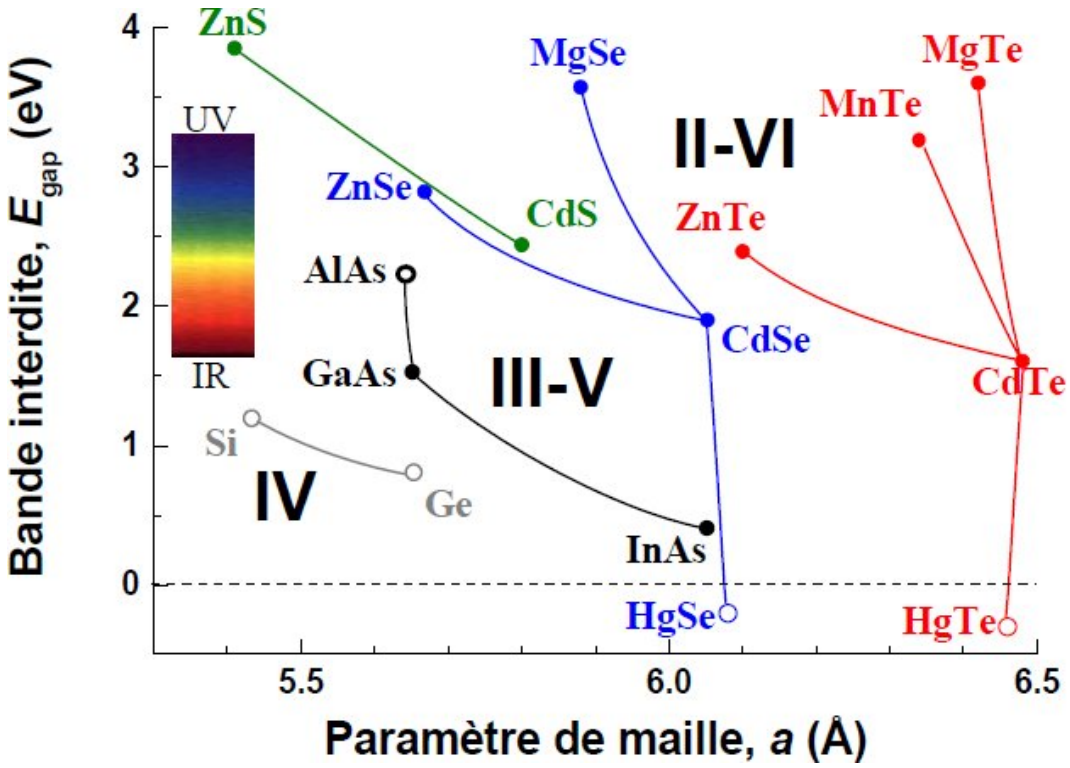

FIG. 1.5 – Energie de bande interdite à $T = 4K$ en fonction du paramètre de maille pour différents semi-conducteurs. Les symboles pleins et creux se rapportent respectivement aux semi-conducteurs à bande interdite directe et indirecte.

Ces expressions découlent du hamiltonien de Luttinger [13], qui est un hamiltonien effectif introduit sur des considérations de symétrie de la maille cristalline. Ce hamiltonien permet, via l'introduction de trois paramètres γ_1, γ_2 et γ_3, de décrire correctement la bande de valence de symétrie Γ_8 au voisinage du centre de zone. Les paramètres γ_1, γ_2 et γ_3 dépendent de chaque matériau. Dans le cas de CdTe $\gamma_1 = 4,5$ et $\gamma_2 = 1,46$. Le modèle de la masse effective permet donc, entre autres, de rendre compte du fait que la bande de valence est quatre fois dégénérée en $\vec{k} = \vec{0}$, tandis que la dégénérescence est levée en $\vec{k} \neq \vec{0}$ (cf. figure 1.4). Ceci est vrai dans le matériau massif, mais on verra que la situation est différente dans les nanostructures.

Enfin, on donne ci-dessous les largeurs de bande interdite E_G pour les semi-conducteurs II-VI utilisés dans ce travail [5]. Il est bien connu que ces valeurs dépendent fortement de la température et elles sont ici données pour une température de $T = 2K$:

$$\begin{aligned} E_G(CdTe) &= 1606\ meV \\ E_G(ZnTe) &= 2391\ meV \\ E_G(MgTe) &= 3600\ meV \\ E_G(MnTe) &= 3198\ meV \end{aligned} \tag{1.5}$$

Pour les alliages ternaires du type $A_{1-x}B_xTe$, la largeur de la bande interdite E_G (ainsi que le paramètre de maille a) varie continument de $E_G(ATe)$ à $E_G(ATe)$ lorsque la composition x varie de 0 à 1 comme on peut le voir sur la figure 1.5 ou dans les expressions ci-dessous (toujours

valable à $2K$) [5] :

$$\begin{aligned} E_G(Cd_{1-x}Zn_xTe) &= 1606 + 525x + 260x^2\ meV \\ E_G(Cd_{1-x}Mg_xTe) &= 1606 + 1700x + 300x^2\ meV \\ E_G(Cd_{1-x}Mn_xTe) &= 1606 + 1592x\ meV \end{aligned} \tag{1.6}$$

Cette possibilité de jouer sur les largeurs de bande interdite va être mise à contribution pour la réalisation d'hétérostructures comme présenté en 1.2.

1.1.4 Principe de la photoluminescence

La photoluminescence (PL) est un outil d'investigation des propriétés optiques des semi-conducteurs mais aussi de leurs propriétés intrinsèques qui sont alors sondées via l'optique. C'est la principale technique expérimentale que nous utiliserons et elle sera présentée en 2.2. Très schématiquement le principe de la PL est celui-ci (cf. figure 1.6) : un faisceau laser générant des photons dont l'énergie est supérieure à l'énergie de bande interdite est absorbé par le semi-conducteur ce qui induit la transition d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. L'absence d'un unique électron dans la bande de valence peut tout aussi bien se modéliser comme la présence d'un trou, une quasi-particule de charge positive, dans cette même bande de valence. Au lieu de parler de la transition d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction, on peut donc tout aussi bien parler de la création d'une paire électron-trou. L'électron et le trou vont alors relaxer respectivement vers le bas de la bande de conduction et le bas de la bande de valence via l'interaction avec le réseau cristallin (les phonons) pour alors se recombiner radiativement. Ces photons émis par le semi-conducteur sont collectés et analysés. Ils constituent le signal de PL. Notons pour finir qu'en raison de l'interaction coulombienne qui lie

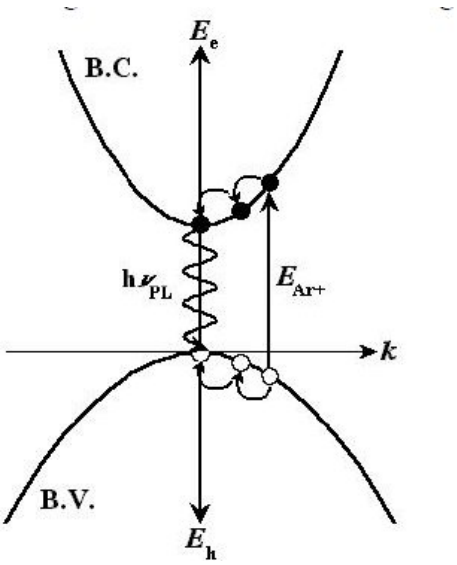

FIG. 1.6 – Principe de la photoluminescence : $\hbar\nu_{PL} \approx E_G$.

l'électron de charge négative et le trou de charge positive, l'énergie de recombinaison de la paire électron-trou, alors appelée exciton n'est plus tout à fait égale à celle de la bande interdite.

1.2 Nanostructures

Avec le développement de techniques de fabrication poussées, il est devenu possible d'associer des semi-conducteurs différents au sein d'un même cristal (i.e. en conservant la continuité du réseau cristallin), démultipliant ainsi les possibilités offertes par les semi-conducteurs. Ainsi, la réalisation de nanostructures permet non seulement de localiser les électrons dans une très petite région de l'espace mais également de façonner la structure des états énergétiques du matériau. On peut alors envisager de manipuler les états quantiques de ces nanostructures ce qui ouvre des perspectives immenses par exemple dans les domaines de la spintronique ou de l'information quantique.

1.2.1 Nanostructures idéales

Réaliser une nanostructure requiert deux choses distinctes. Premièrement de savoir fabriquer une hétérostructure, c'est à dire d'être capable de faire croître un semi-conducteur sur un autre. C'est en effet en enchâssant une couche de semi-conducteur de petit gap entre deux couches de semi-conducteurs de plus grand gap que l'on parvient à confiner les électrons dans une zone réduite de l'espace (cf. figure 1.7). Deuxièmement il faut maîtriser suffisamment finement cette

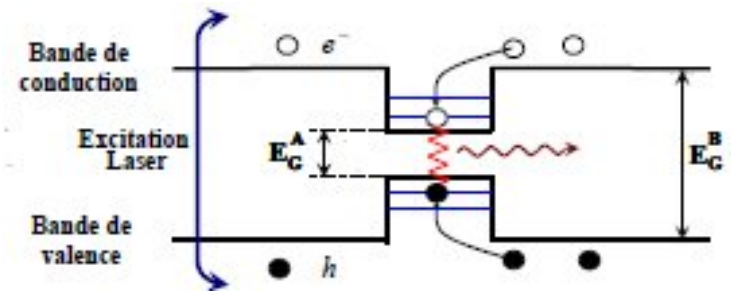

Fig. 1.7 – Principe d'un puits quantique : une fine couche de semi-conducteur A de petit gap est sandwichée entre deux couches de semi-conducteur B, de plus grand gap. Les porteurs, électrons et trous, sont générés par excitation optique dans le semi-conducteur barrière B. Ils relaxent alors vers le puits de potentiel que constitue le semi-conducteur A et peuvent alors se recombiner en émettant des photons.

croissance pour parvenir à un confinement de type quantique. Le confinement quantique survient lorsque l'une des dimensions L de l'espace dans lequel sont confinés les électrons devient de l'ordre de grandeur ou plus petite que la longueur d'onde de De Broglie des électrons λ_{DB}. λ_{DB} est typiquement de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres.

$$L \leq \lambda_{DB} = \frac{h}{p} = \frac{h}{\sqrt{2m^* E}} \tag{1.7}$$

Beaucoup de techniques différentes existent aujourd'hui pour réaliser de tels objets. Celle utilisée dans l'équipe est l'épitaxie par jets moléculaires (dite MBE et décrite en 2.1) qui après son avènement à la fin des années 1960 a permis pour la première fois d'observer les effets de confinement quantique et de réduction de la dimensionnalité [14]. Désormais, on sait réaliser des puits quantiques, des fils quantiques ou des boîtes quantiques [15], structures dans lesquelles les électrons sont respectivement confinés dans une, deux ou trois directions de l'espace. Ainsi dans un puits quantique, les électrons sont encore susceptibles de se mouvoir dans les deux directions orthogonales à la direction de confinement, c'est à dire dans le plan du puits.

En plus de permettre le confinement spatial des porteurs, ces structures donnent la possibilité de discrétiser les niveaux d'énergie du solide dans les directions de confinement et donc d'accéder à leurs propriétés quantiques. Ainsi la boîte quantique, par un confinement dans les 3 directions de l'espace, permet de discrétiser entièrement les niveaux énergétiques et donc de retrouver une structure d'atome, modulable qui plus est : on parle d'atome artificiel ! La discrétisation progressive des états quantiques de la bande de conduction (il en va de même pour la bande de valence) lorsqu'on passe du semi-conducteur massif aux boîtes ainsi que la densité d'états pour chaque type de nanostructure sont illustrées en figure 1.8. Il est toutefois important de garder à

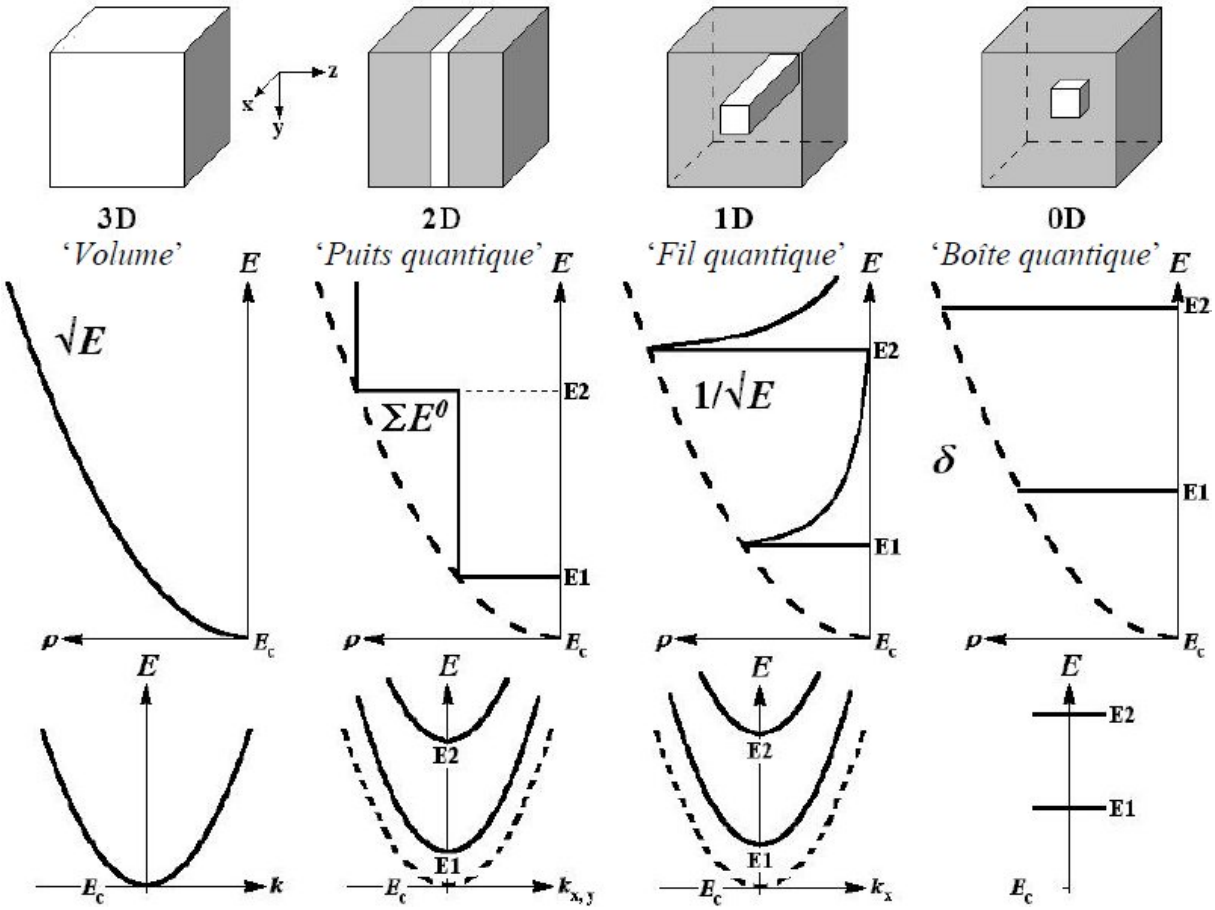

FIG. 1.8 – Représentation de la densité d'états et de la relation de dispersion pour un "volume", un puits, un fil et une boîte dans le cas idéal.

l'esprit que cette description n'est vrai que pour des nanostructures idéales, parfaites mais que leur réalisation expérimentale révèle quelques complexités supplémentaires.

1.2.2 Nanostructures plus réalistes

Nous nous limiterons à une description un peu plus avancée des puits et des boîtes seulement, puisque ce sont les deux types d'échantillon que nous avons étudiés dans ce travail. La première complexité supplémentaire (qui reste d'ailleurs vraie pour les fils) vient de la notion de décalage de bande de valence. La discontinuité chimique entre les deux matériaux d'une hétérostructure induit un décalage énergétique V_v entre les bandes de valence de ces deux matériaux (cf. figure

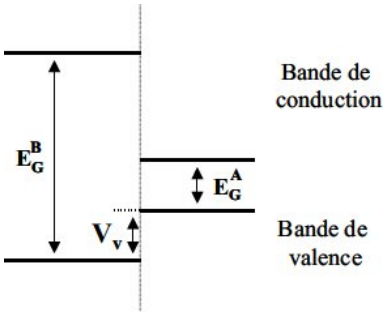

FIG. 1.9 – Décalage de la bande de valence.

1.9). Ce paramètre ainsi que la différence de gap entre les deux semi-conducteurs déterminent la profondeur du puits de potentiel des électrons et de celui des trous. L'une ou l'autre des deux espèces peut parfois même ne pas être confinée du tout. Ce sont les structures de type II [16]. Les échantillons que nous avons étudiés sont tous de type I : électrons et trous sont confinés dans le puits (ou la boîte). Dans nos puits CdTe/CdMgTe, le décalage de bande V_v représente environ 30% de la différence de gap [17]. Nos boîtes ou nos puits contraints CdTe/ZnTe -bien qu'il soit théoriquement prévu qu'ils soient légèrement de type II [17, 18]- sont expérimentalement de type I avec $V_v \approx 10\%$ [19]. Cette différence est due à l'attraction coulombienne entre l'électron et le trou qui tend à confiner ce dernier au voisinage de l'électron [20], effet qui n'était pas pris en compte en [17, 18]. Au final, le confinement est donc très bon pour les électrons mais beaucoup moins bon pour les trous.

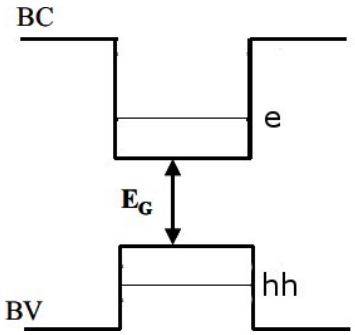

FIG. 1.10 – Dans les nanostructures, le confinement et les contraintes permettent de lever la dégénérescence entre trous lourds et trous légers en centre de zone de Brillouin. On peut alors, dans la plupart des études optiques, modéliser notre structure (puits ou boîte) comme un simple système à deux niveaux.

D'autre part, pour les puits comme pour les boîtes, la dégénérescence entre trous lourds et trous légers en $\vec{k} = \vec{0}$ (qui existe dans le massif) est levée. Ceci a deux origines différentes : le confinement et les contraintes. La levée de dégénérescence dû au confinement provient tout simplement du fait que les trous lourds, qui ont une masse effective plus importante (cf. 1.1.3), sont confinés à plus basse énergie (en énergie de trous). Quant aux contraintes, elles sont induites lors de la croissance, par la différence de paramètre de maille entre les différents semi-conducteurs d'une hétérostructure. L'effet des contraintes est décrit par le hamiltonien de Bir et Pikus [21], qui est, tout comme celui de Luttinger, un hamiltonien effectif introduit sur des considérations de symétrie. Dans le cas simple d'une contrainte biaxiale, la dégénérescence entre trous lourds

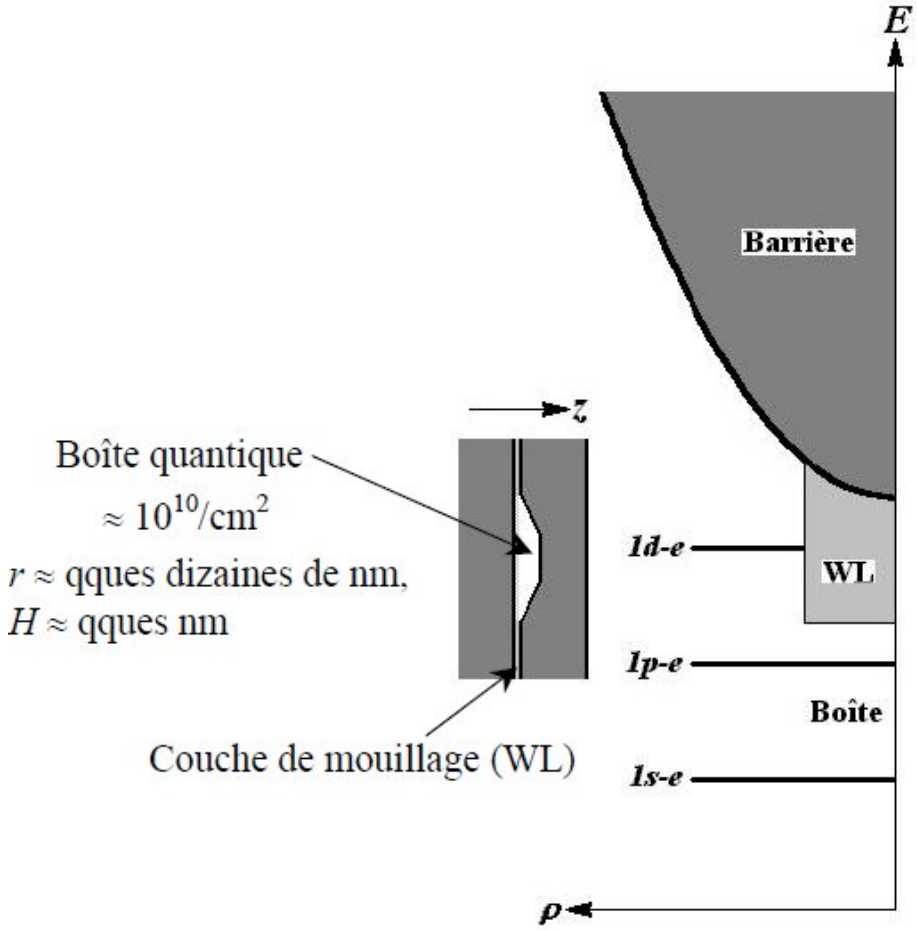

FIG. 1.11 – Description plus réaliste de la forme géométrique et de la densité d'états d'une boîte quantique auto-assemblée.

et trous légers en $\vec{k} = \vec{0}$ est levée et l'état fondamental correspond à l'état de trous lourds. Dans la suite, on pourra donc modéliser les hétérostrutures de puits (en $\vec{k} = \vec{0}$) ou de boîtes que l'on étudiera, par un système simple à deux niveaux (cf. figure 1.10) : un niveau d'électrons, deux fois dégénéré en spin et dont les projections sont $\sigma_z = \pm\frac{1}{2}$; et un niveau de trous lourds, lui aussi deux fois dégénéré en spin mais dont les projections sont $j_z = \pm\frac{3}{2}$. Notons que ceci implique que le trou est désormais bloqué et ne peut plus se retourner. On verra bien sûr que cette image simple d'un système à deux niveaux, bien que suffisante dans la plupart des cas, nécessite parfois d'être complétée. Enfin, précisons que l'ordre de grandeur typique de la levée de dégénérescence entre trous lourds et trous légers est de $20meV$ dans nos puits CdMnTe/CdMgTe alors qu'elle est bien supérieure dans nos boîtes ou nos puits contraints CdTe/ZnTe, puisqu'elle peut atteindre $300meV$ pour une couche complètement contrainte.

Dans la pratique ce sont les boîtes qui s'éloignent le plus de la description idéale que l'on a faite précédemment en 1.2.1. En effet, comme on le verra lors de la description des échantillons (cf. 2.1), la manière dont les boîtes se forment leur confère une forme plus proche de celle de la figure 1.11 que d'une boîte parfaitement cubique. En conséquence, on voit qu'au lieu de pouvoir simplement considérer une densité d'états entièrement discrète, il faudra aussi tenir compte d'un continuum d'états 2D dû à l'existence d'une couche de mouillage sur laquelle se forment les

boîtes, voire même d'un continuum 3D dû aux barrières. On verra notamment dans la partie II l'importance capitale que peut jouer la couche de mouillage. Une description plus détaillée du confinement de ces boîtes (confinement suivant z et confinement latéral) et de la manière de le modéliser au mieux pourra être consultée en référence [22].

1.2.3 Conséquences sur l'étude optique

Au final, pour interpréter nos expériences de photoluminescence (réalisées à des puissances d'excitation suffisamment faibles pour ne sonder que l'état fondamental et non les états excités) on pourra donc se contenter, pour les boîtes comme pour les puits, de la représentation de la figure 1.12 où l'on considère un seul niveau confiné pour les électrons et un seul pour les trous (qui sont des trous lourds). Puisqu'électrons et trous sont des fermions, il s'ensuit qu'on peut

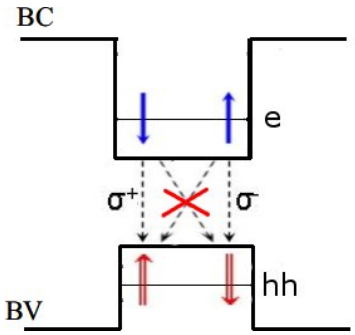

Fig. 1.12 – Les règles de sélection imposent qu'il existe seulement deux transitions radiatives permises : ce sont les excitons brillants qui se recombinent en émettant des photons de polarisation circulaire. Les deux autres transitions sont interdites. C'est pourquoi on qualifie les excitons correspondants de noirs.

mettre au plus deux électrons dans la bande de conduction et deux trous lourds dans la bande de valence, étant considéré que chaque état quantique est deux fois dégénéré à cause du spin. Ceci s'applique pour les boîtes, mais aussi pour les puits à condition de bien garder à l'esprit qu'en photoluminescence, on ne sonde que les minima de bande du puits en centre de zone (donc un seul état quantique : le fondamental). Par conséquent il existe quatre possibilités de recombinaison d'une paire électron-trou suivant que le spin de l'électron est $\pm\frac{1}{2}$ et celui du trou (plus exactement son moment cinétique) $\pm\frac{3}{2}$. Les règles de sélection imposent la conservation du moment cinétique total (pour des explications plus détaillées on consultera la référence [22]). Or le moment cinétique du photon émis après recombinaison de la paire électron-trou est ± 1 donc deux de ces quatre transitions sont radiativement permises et émettent des photons polarisés circulairement alors que les deux autres sont interdites et ne peuvent être que non radiatives (cf. figure 1.12).

Enfin, comme cela a déjà été évoqué en 1.1.4, l'interaction coulombienne qui lie la paire électron-trou va abaisser l'énergie de cette paire alors appelée exciton. De manière plus générale, on peut également observer des transitions de luminescence correspondant à des complexes faisant intervenir plus de deux porteurs [23] (cf. figure 1.13). L'énergie de la raie de luminescence dépend alors du nombre de porteurs en jeu et des matériaux composant la nanostructure. Ainsi dans nos échantillons de puits CdTe/CdMgTe on peut observer à la fois des excitons et des excitons chargés positivement ou négativement [24, 25]. C'est d'ailleurs dans ces structures que l'exciton chargé a été observé pour la toute première fois [1]. Et dans les boîtes CdTe/ZnTe étudiées, on peut observer la recombinaison d'excitons, d'excitons chargés, de biexcitons voire même de

multi-excitons [22]. Mais dans le cas des multi-excitons, non observés dans le cadre de ce travail, il faut bien entendu prendre en considération les niveaux d'énergie excités de la boîte et pas seulement le fondamental. Notons pour conclure que la notion d'exciton dans les boîtes n'est pas tout à fait identique à celle des puits ou du matériau massif dans la mesure où la localisation spatiale totale des porteurs empêche le centre de masse de l'exciton de se mouvoir dans quelque direction que ce soit.

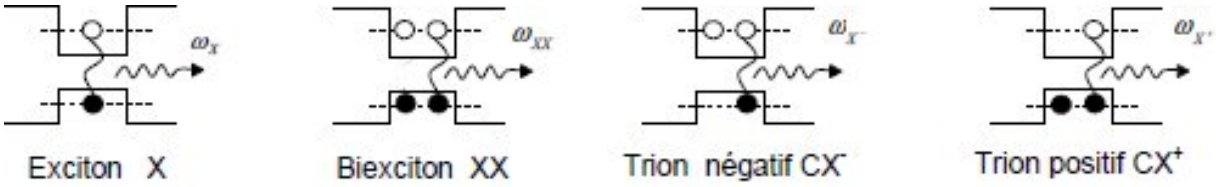

FIG. 1.13 – Représentation des différents états de charge observés dans un puits (le biexciton n'est pas observé dans un puits) ou dans une boîte qui donnent lieu à des énergies de luminescence différentes en raison des interactions coulombiennes entre porteurs.

1.3 Semi-conducteurs magnétiques dilués

Il apparaît comme une évidence que pour étudier les propriétés de spin des matériaux, ici des semi-conducteurs, il va être extrêmement intéressant de soumettre nos échantillons à l'application de divers champs magnétiques. Par conséquent les expériences de magnéto-optique vont se révéler être un outil indispensable et nous nous proposons de commencer par en expliquer les principes théoriques. Ensuite, puisque nos matériaux d'étude sont des semi-conducteurs magnétiques dilués, nous en expliquerons le principe avant de donner quelques explications sur leur comportement sous champ magnétique. Nous nous limiterons à l'exposé de ce qui nous semble nécessaire à la compréhension de ce travail. Notamment, on se placera systématiquement en configuration Faraday, c'est à dire que le champ magnétique est appliqué dans la même direction que celle dans laquelle on collecte les photons. Qui plus est, cette direction se trouve être la direction de croissance, perpendiculaire au plan de nos nanostructures (plan du puits ou plan des boîtes). On la désignera désormais comme l'axe z.

1.3.1 Semi-conducteurs sous champ magnétique : effet Zeeman

Comme on vient de le voir, le niveau fondamental d'un puits ou d'une boîte que l'on sonde en photoluminescence est deux fois dégénéré en spin. Par conséquent, l'application d'un champ magnétique va nous permettre de lever cette dégénérescence. Les hamiltoniens décrivant l'interaction du champ magnétique avec respectivement électrons et trous sont (en se limitant aux termes linéaires) :

$$H_e = g_e \mu_B \vec{B}\vec{\sigma} \text{ et } H_{hh} = g_{hh} \mu_B \vec{B}\vec{j} \tag{1.8}$$

$\vec{\sigma}$ et $\vec{j}$ désignent respectivement les opérateurs de spin des électrons de la bande de conduction et des trous de la bande de valence. Puisque l'on considère uniquement des trous lourds, la projection de spin des trous sera $\pm\frac{3}{2}$. g_e et g_{hh} désignent les facteurs de Landé associés aux électrons et aux trous lourds respectivement. $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_0}$ est le magnéton de Bohr. Dans les puits CdTe, on obtient expérimentalement $g_e = -1,4$ (alors que sa valeur dans le matériau volumique est $g_e = -1,6$ [1]) et $g_{hh} = -0,3$ [25]. En revanche dans les boîtes CdTe auto-organisées, on obtient $g_e \approx -0,4$ et

$g_{hh} \approx +0,4$. Ces deux dernières valeurs sont données à titre indicatif car elles varient beaucoup de boîte à boîte [19]. On obtient alors les levées de dégénérescence indiquées en figure 1.14 pour les électrons de la bande de conduction $\sigma_z = \pm\frac{1}{2}$ et pour les trous lourds $j_z = \pm\frac{3}{2}$ de la bande de valence. C'est l'effet Zeeman. Les deux transitions permises d'excitons brillants restent polarisées circulairement mais se produisent désormais à deux énergies différentes. L'ordre de grandeur de la séparation énergétique entre les deux sous niveaux Zeeman reste toutefois inférieure à $0,1meV/T$. On verra que c'est très faible devant les séparations énergétiques induites pas l'effet Zeeman géant et qu'on pourra alors négliger complètement l'effet Zeeman direct dans la suite de ce manuscrit.

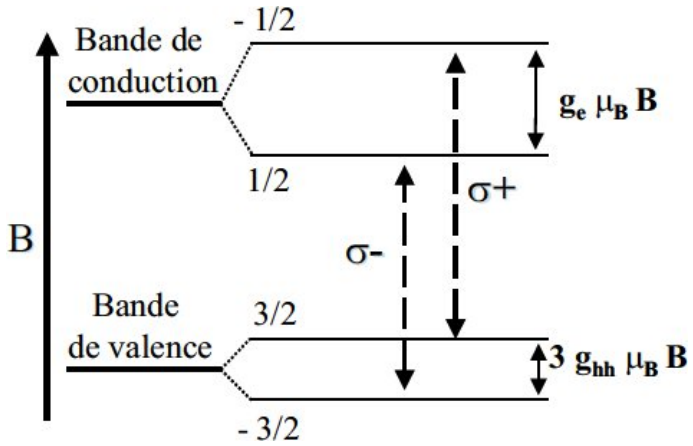

Fig. 1.14 – Effet Zeeman normal dans un puits quantique et règles de sélection optiques associées. La description est identique dans une boîte sauf qu'il faut inverser les deux états de trous lourds en raison du changement de signe de g_{hh} (mais ceci varie beaucoup d'une boîte à l'autre).

1.3.2 Insertion d'ions magnétiques manganèses

Les semi-conducteurs magnétiques dilués (DMS) [5] sont des semi-conducteurs dans lesquels on insère volontairement un certain nombre d'ions magnétiques (cf. figure 1.15). En particulier,

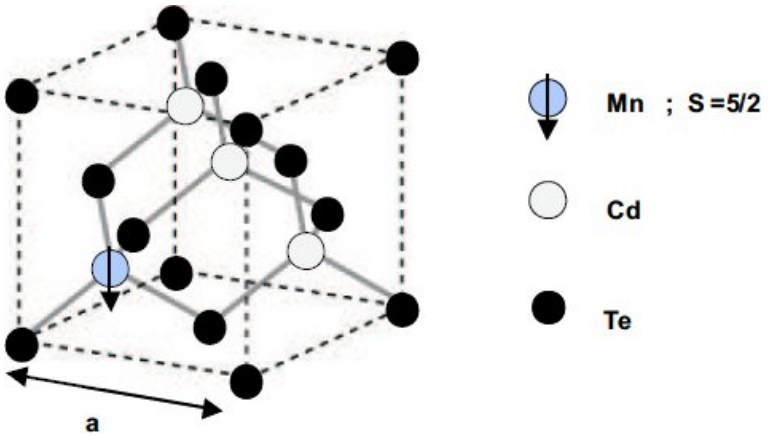

Fig. 1.15 – Représentation de la maille cristalline d'un semi-conducteur magnétique dilué, ici le CdMnTe. Les ions Mn sont aléatoirement répartis sur les sites cationiques en remplacement des ions Cd, créant ainsi des spins $S = \frac{5}{2}$ localisés dans la matrice semi-conductrice.

on peut substituer des ions manganèse aux cations de la colonne II dans les composés II-VI de manière isoélectronique, c'est à dire sans simultanément doper électriquement le matériau (à la différence des composés III-V). En effet, la structure électronique de l'atome de Mn est $[Ar]3d^5 4s^2$: en plus d'apporter deux électrons de valence comme n'importe quel atome de Cd, il possède également un spin localisé $S = \frac{5}{2}$ dû aux électrons de la couche d. Comme on le verra, ce spin va se coupler fortement avec les porteurs du matériau, lui conférant ainsi des propriétés nouvelles que l'on peut espérer utiliser aussi bien en spintronique qu'en information quantique.

Examinons tout d'abord comment vont se comporter ces ions Mn sous champ magnétique. Le hamiltonien d'interaction d'un Mn avec le champ est :

$$H_{1Mn} = -\vec{\mu}\vec{B} = g_{Mn}\mu_B \vec{B}\vec{S} = g_{Mn}\mu_B B S_z \tag{1.9}$$

$\vec{S}$ est l'opérateur de spin du Mn (et $\vec{\mu}$ son moment magnétique associé) et g_{Mn} est son facteur de Landé donné par l'équation de Landé :

$$g = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} \tag{1.10}$$

où $J = \frac{5}{2}$ est le moment cinétique de l'atome Mn, $L = 0$ son moment orbital et $S = \frac{5}{2}$ son spin. Ceci donne $g_{Mn} = 2$, ce qui est vérifié expérimentalement. Pour accéder à l'aimantation moyenne des Mn, on commence par calculer la valeur moyenne de la projection du spin d'un Mn suivant z, $\langle S_z \rangle$. En supposant que les Mn ont un comportement paramagnétique, le calcul des fonctions de partition statistiques permet aisément d'arriver au résultat :

$$\langle S_z \rangle = -\frac{5}{2} B_{\frac{5}{2}}\left(\frac{\frac{5}{2} g_{Mn}\mu_B B}{k_B T}\right) \tag{1.11}$$

où $B_J(x)$ désigne la fonction de Brillouin définie par :

$$B_J(x) = \frac{2J+1}{2J}\coth\left(\frac{2J+1}{2J}x\right) - \frac{1}{2J}\coth\left(\frac{1}{2J}x\right) \tag{1.12}$$

En écrivant que chacun des sites cationiques du réseau, repéré par la position $\vec{R_i}$, est soit occupé par un Mn (x_i=1) de spin S_i soit par un Cd (x_i=0), la projection sur z de l'aimantation totale de ce système de Mn est alors donnée par :

$$M_z(\vec{r}) = -\sum_i x_i \delta(\vec{r} - \vec{R_i}) g_{Mn}\mu_B S_{zi} \tag{1.13}$$

On utilise ensuite les approximations de champ moyen et du crital virtuel pour remplacer S_{zi} par $\langle S_z \rangle$ et x_i par x qui désigne le pourcentage moyen d'occupation des sites cationiques par les Mn puis on remplace la sommation sur les fonctions de Dirac par N_0 qui désigne la densité volumique de sites cationiques. Ce qui donne au final :

$$\langle M_z \rangle = g_{Mn}\mu_B x N_0 \frac{5}{2} B_{\frac{5}{2}}\left(\frac{\frac{5}{2} g_{Mn}\mu_B B}{k_B T}\right) \tag{1.14}$$

En réalité, les Mn n'ont pas tout à fait un comportement paramagnétique et ce pour deux raisons. Premièrement, les Mn en sites plus proches voisins sont couplés par interaction antiferromagnétique et ne participent donc pas aux propriétés du système dans nos conditions de travail usuelles ($T \approx 6K$ et $B \leq 11T$). On introduit donc une composition effective de Mn $x_{eff} < x$ (cf. figure 1.16). Deuxièmement, il existe aussi une interaction antiferromagnétique entre Mn plus

éloignés ce qui nécessite l'introduction d'une température antiferromagnétique T_{AF} (cf. figure 1.16) exprimant le fait que les Mn ne s'orientent pas aussi bien que s'ils étaient parfaitement paramagnétiques. Au final, l'aimantation du système de Mn est bien décrite par une fonction de Brillouin dite modifiée en raison de l'introduction des deux paramètres x_{eff} et T_{AF} [26] :

$$\langle M_z \rangle = g_{Mn}\mu_B x_{eff} N_0 \frac{5}{2} B_{\frac{5}{2}}\left(\frac{\frac{5}{2} g_{Mn}\mu_B B}{k_B(T+T_{AF})}\right) \tag{1.15}$$

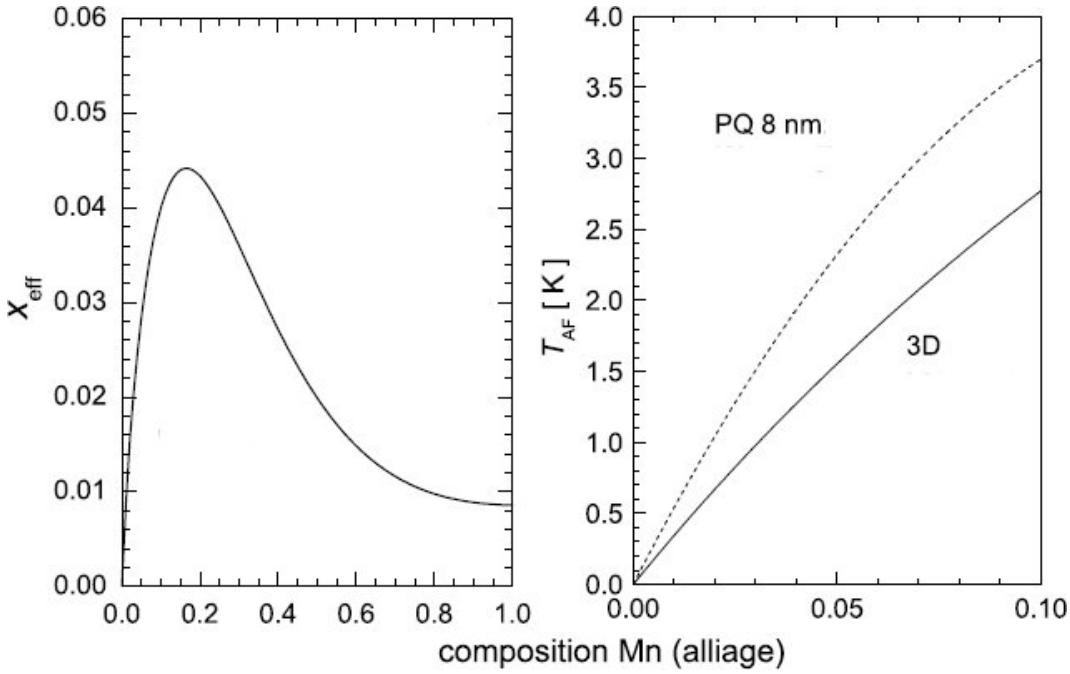

FIG. 1.16 – Variation de la composition effective x_{eff} (cf. référence [26, 27]) et de la température antiferromagnétique T_{AF} (référence [28]) en fonction de la composition réelle x en Mn.

1.3.3 DMS sous champ magnétique : effet Zeeman géant

Dans un semi-conducteur magnétique dilué, les porteurs sont non seulement soumis à l'interaction directe avec le champ magnétique exérieur (cf. 1.3.1) mais aussi à l'interaction avec les ions magnétiques (ici les Mn) eux mêmes aimantés sous l'action du champ magnétique extérieur : c'est ce qu'on appelle l'effet Zeeman géant. Il est dû à l'interaction d'échange entre les porteurs et les ions magnétiques Mn, communément appelée interaction $sp-d$. Les mécanismes gouvernant cette interaction entre les porteurs dans les bandes et les électrons $3d$ du Mn sont discutés en [5, 29]. L'hamiltonien d'échange entre un électron de spin $\vec{\sigma}$ en $\vec{r}$ et un Mn de spin $\vec{S_i}$ localisé sur le site cationique $\vec{R_i}$ est :

$$H_{e-1Mn} = -J_{s-d}\delta(\vec{r}-\vec{R_i})\vec{\sigma}\vec{S_i} \tag{1.16}$$

où J_{s-d} est l'intégrale d'échange entre les états $3d$ du Mn et les électrons s de la bande de conduction. On peut se ramener à un hamiltonien pur de spin, de type Heisenberg, en faisant la moyenne sur la partie orbitale de la fonction d'onde des électrons s de la bande conduction, notée $|s\rangle$. On pose $\alpha = \left\langle s \left| J_{s-d}\delta(\vec{r}-\vec{R_i}) \right| s \right\rangle$, où α est en quelque sorte une moyenne statistique

de l'interaction d'échange $s-d$. Sa valeur est tabulée pour chaque matériau [5]. Ceci mène à :

$$H_{e-1Mn} = -\alpha\vec{\sigma}\vec{S_i} \tag{1.17}$$

Puis en sommant sur l'ensemble des ions Mn et en utilisant les deux approximations de champ moyen et de cristal virtuel, on obtient :

$$H_{e-Mn} = -\alpha\vec{\sigma}x_{eff}N_0\left\langle\vec{S}\right\rangle = \alpha\vec{\sigma}\frac{\left\langle\vec{M}\right\rangle}{g_{Mn}\mu_B} \tag{1.18}$$

Etant donné que le champ magnétique est appliqué suivant z, on a :

$$H_{e-Mn} = -\alpha\sigma_z x_{eff}N_0\left\langle S_z\right\rangle = \alpha\sigma_z\frac{\left\langle M_z\right\rangle}{g_{Mn}\mu_B} \tag{1.19}$$

Pour les trous, on note β l'intégrale d'échange entre les états $3d$ du Mn et les trous p de la bande de valence. β est également tabulée dans [5]. β est définie en tenant compte de la convention suivante qui est d'utiliser l'opérateur pur de spin du trou lourd et sa projection $s_z = \pm\frac{1}{2}$ et non l'opérateur de moment cinétique total. Ceci nous conduit à :

$$H_{hh-Mn} = -\beta s_z x_{eff}N_0\left\langle S_z\right\rangle = \beta s_z\frac{\left\langle M_z\right\rangle}{g_{Mn}\mu_B} \tag{1.20}$$

D'après [5, 26], on voit que $\alpha N_0 = 220meV > 0$ et $\beta N_0 = -880meV < 0$, ce qui signifie que l'interaction électron-Mn est ferromagnétique tandis que l'interaction trou-Mn est antiferromagnétique. Au final, les équations 1.19 et 1.20 imposent la levée de dégénérescence des états électroniques et de trous lourds (cf. figure 1.17(a)). Les splittings des bandes de conduction (électrons) et de valence (trous lourds) sont respectivement donnés par :

$$\begin{aligned}\Delta_e &= \alpha\frac{\left\langle M_z\right\rangle}{g_{Mn}\mu_B} = \alpha\left\langle S_z^{tot}\right\rangle \\ \Delta_{hh} &= \beta\frac{\left\langle M_z\right\rangle}{g_{Mn}\mu_B} = \beta\left\langle S_z^{tot}\right\rangle\end{aligned} \tag{1.21}$$

où $S_z^{tot} = x_{eff}N_0S_z$ désigne la projection suivant z de l'ensemble des spins Mn. Tout ceci implique que les énergies des transitions optiques évoluent en fonction du champ magnétique comme des fonctions de Brillouin (cf. figure 1.17(b)). C'est la signature magnéto-optique de l'effet Zeeman géant que nous exploiterons tout au long de ce manuscrit.

Notons que cette description à l'aide des intégrales d'échange α et β n'a de sens que dans la limite statistique où le champ moyen est applicable. Il faut que les porteurs sondent un nombre suffisamment grand de Mn. Or l'interaction d'échange porteurs-Mn est une interaction de contact. Il faut donc que la fonction d'onde d'un porteur "recouvre" un nombre suffisamment grand de Mn. Par conséquent, on comprend aisément que cette description à l'aide de α et β perd tout son sens dans la limite où les porteurs interagissent avec un Mn unique dans une boîte par exemple. Dans le cas des boîtes, on utilisera alors la description alternative suivante, plus adaptée :

$$\begin{aligned}H_{e-1Mn} &= -I_e\vec{\sigma}\vec{S} \\ H_{hh-1Mn} &= -I_{hh}\vec{j}\vec{S}\end{aligned} \tag{1.22}$$

où les intégrales d'échange I_e et I_{hh} prennent en compte le fait que la probabilité d'interaction entre un porteur et un Mn dépend maintenant du confinement des porteurs et de la position

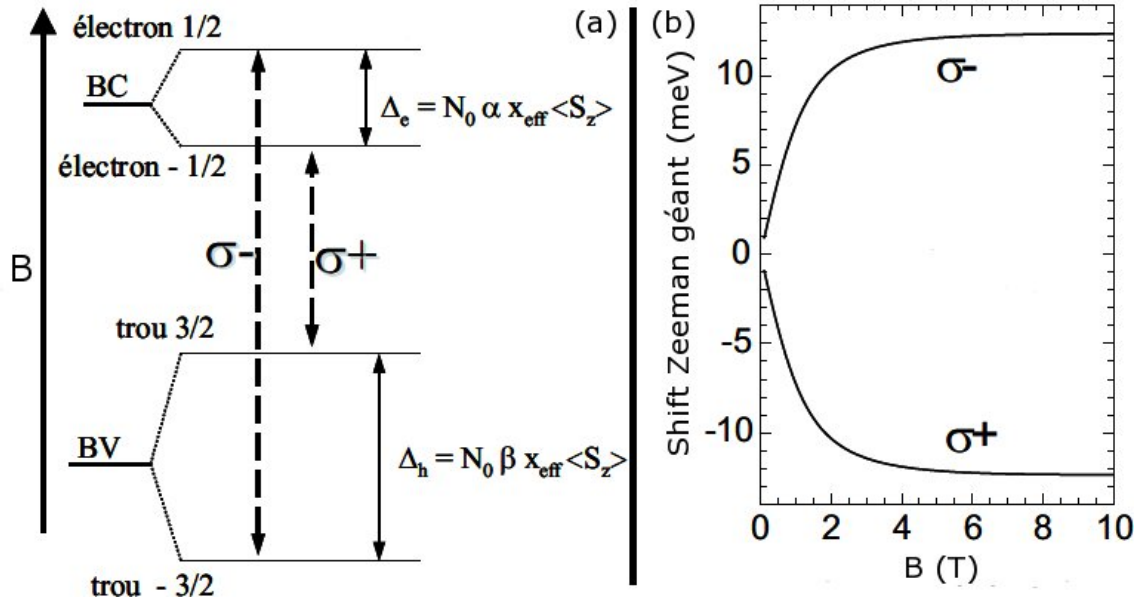

FIG. 1.17 – (a) Effet Zeeman géant dans un puits et règles de transition associées. Dans une boîte, on a l'exact équivalent à condition de remplacer α par I_e et β par $3I_h$. (b) Allure typique de la signature magnéto-optique de l'effet Zeeman géant à basse température. La polarisation σ^+ décroît en énergie avec le champ magnétique tandis que la polarisation σ^- croît ; et le shift énergétique peut se décrire comme une fonction de Brillouin modifiée.

des Mn. En effet la probabilité de présence des porteurs au niveau d'un Mn peut être accrue ou diminuée en fonction de ces paramètres. Ceci se décrit simplement par l'introduction du formalisme de la fonction enveloppe. I_e et I_{hh} sont ainsi définies par :

$$\begin{aligned} I_e &= \alpha \left|\chi_e(\vec{R})\right|^2 \\ I_{hh} &= \frac{\beta}{3} \left|\chi_{hh}(\vec{R})\right|^2 \end{aligned} \tag{1.23}$$

$\chi_e(\vec{R})$ et $\chi_{hh}(\vec{R})$ désignent les fonctions enveloppes de l'électron et du trou respectivement. C'est elles qui tiennent compte de la position du Mn dans la boîte c'est à dire par rapport au porteur. Le coefficient $\frac{1}{3}$ dans I_{hh} vient du fait que, dans l'équation 1.22, I_{hh} est par convention définie par rapport à l'opérateur de moment cinétique total $\vec{j}$ du trou lourd dont la projection vaut $\pm\frac{3}{2}$. Des valeurs expérimentales de I_e et I_{hh} dans le cas de boîtes quantiques avec un Mn unique sont données en [19] et une discussion sur les différents paramètres dont elles dépendent peut être trouvée en [30].

Enfin pour terminer, remarquons que les splittings à saturation induits par l'effet Zeeman géant sur les bandes de conduction et de valence sont respectivement de $\Delta_e = 1,1meV$ et $\Delta_{hh} = 4,4mev$ pour une composition en Mn de $0,2\%$, qui est de loin la composition la plus faible que nous avons eu à étudier. Par conséquent, dans notre étude, on pourra toujours négliger l'effet Zeeman normal devant l'effet Zeeman géant.

Chapitre 2

Mise en oeuvre expérimentale

Sommaire

2.1 Réalisation des échantillons 26
2.1.1 La MBE : qu'est-ce que c'est ? 26
2.1.2 Puits quantiques 27
2.1.3 Puits quantiques contraints 27
2.1.4 Boîtes quantiques 28
2.2 Dispositif expérimental 29
2.2.1 Comment sonder une boîte individuelle ? 29
2.2.2 Le montage optique 31

Nous allons maintenant décrire la mise en oeuvre expérimentale des études magnéto-optiques sur les semi-conducteurs magnétiques dilués. Dans un premier temps, nous expliquerons quelles techniques permettent de réaliser les nanostructures semi-magnétiques que nous allons utiliser et nous en profiterons pour donner les principales caractéristiques de nos échantillons qui seront utiles pour l'interprétation de leur étude optique. Dans un second temps, nous nous attacherons à expliquer quelles sont les méthodes et les outils qui permettent d'entreprendre l'étude optique de tels objets.

2.1 Réalisation des échantillons

Les nanostructures étudiées dans ce travail sont principalement de trois types : des puits quantiques, des puits quantiques contraints et enfin des boîtes quantiques. Nous allons décrire leur fabrication les unes après les autres. Toutes ces structures sont semi-magnétiques car dopées par des atomes de Mn. Les structures étudiées dans ce manuscrit ont été réalisées par épitaxie par jets moléculaires (MBE) par Laurent Maingault pour les premières [30], puis par Hervé Boukari jusqu'à aujourd'hui. Un rappel des principales caractéristiques de tous les échantillons étudiés dans ce travail pourra être consultée en annexe A.

2.1.1 La MBE : qu'est-ce que c'est ?

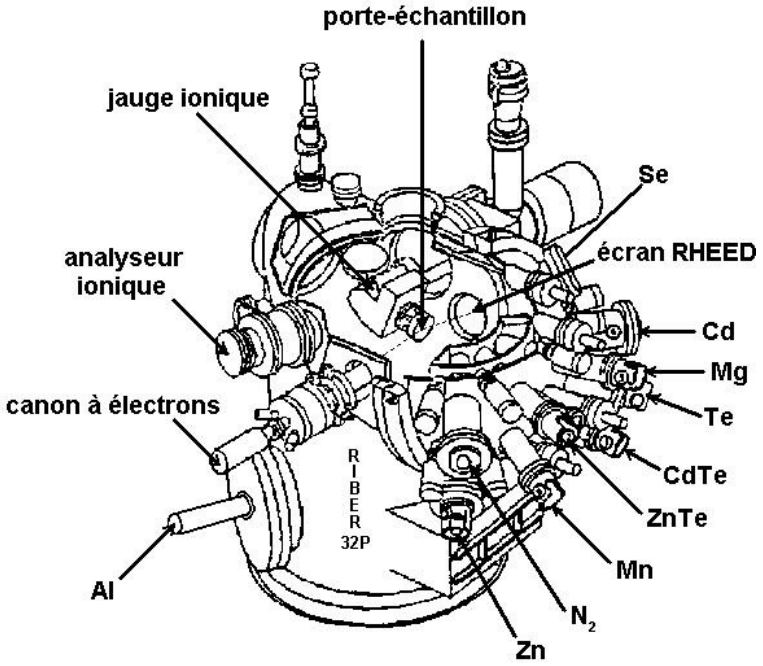

FIG. 2.1 – Chambre d'épitaxie Riber avec ses 10 cellules, utilisée pour faire la croissance d'échantillons dans l'équipe.

La MBE est une technique de dépôt d'un film cristallin sur un substrat cristallin similaire, apparue à la fin des années 1960. Ce dépôt est réalisé en soumettant le sustrat (dont la température peut être contrôlée) à des flux d'espèces atomiques (Cd, Zn, Mg) ou moléculaires (Te_2) provenant de cellules d'effusion. La composition et l'épaisseur de la couche sont déterminées par les flux relatifs des différentes espèces qui sont contrôlés quasi-instantanément par des caches mécaniques. La partie centrale de la machine MBE utilisée dans l'équipe est présentée en figure 2.1. Il existe deux grands types de techniques d'épitaxie : la CVD (Chemical Vapour Deposition : dépôt en phase vapeur par voie chimique) et la PVD (Physical Vapour Deposition : dépôt en phase vapeur par voie physique) dont la MBE fait partie. La MBE est une méthode de croissance qui présente de nombreux avantages. Parce que c'est une technique relativement lente ($\leq 1MC/s$), elle permet notamment de contrôler l'épaisseur des couches déposées à une couche atomique près, qui présentent qui plus est une excellente qualité cristalline. On peut de plus réaliser des interfaces très abruptes pour les nanostructures. La MBE nécessite également un vide poussé, de l'ordre

de $10^{-}11torr$, ce qui permet de faire croître des couches d'une grande pureté. Ceci est important puisque la présence de défauts dans les matériaux augmente la probabilité de recombinaisons non radiatives des excitons et nuit donc à la qualité du signal optique que nous étudions. Le vide poussé permet également la mise en place d'une technique d'observation in situ de l'évolution de la croissance des couches : le RHEED. Ceci aide grandement au contrôle de la croissance. Enfin la MBE peut permettre la fabrication d'alliages ternaires ou quaternaires dont la croissance ne serait pas possible à l'équilibre thermodynamique.

2.1.2 Puits quantiques

Commençons par décrire la croissance des puits quantiques. Dans une hétéroépitaxie, à l'interface de l'hétérostructure, les deux matériaux ont rarement le même paramètre de maille. Cependant le deuxième matériau va croître sur le premier en adaptant son paramètre de maille à celui du premier : on parle d'épitaxie cohérente. Evidemment cela engendre des contraintes dans le deuxième matériau qui peuvent relaxer au-delà d'une certaine épaisseur critique, notamment en formant des dislocations dans le matériau. Pour éviter ces dislocations qui seraient sources de désexcitation non radiative, il est très important dans la croissance d'un puits quantique d'adapter au maximum les paramètres de maille des matériaux successifs. C'est ce qui a été fait ici en faisant croître CdTe sur CdZnMgTe, en jouant sur les propriétés des alliages semi-conducteurs (cf. figure 1.5).

Le substrat et la croissance sont orientés dans l'axe [001]. Sur le substrat de $Cd_{88\%}Zn_{12\%}Te$, on fait croître une couche tampon (pour obtenir un état de surface idéal) de $Cd_{88\%}Zn_{12\%}Te$ ($\approx 100nm$) à une température de substrat de $340^{\circ}C$. La suite de la croissance est réalisée à $230^{\circ}C$. On réalise d'abord une première barrière de CdZnMgTe ($\approx 100nm$) dont la composition varie un peu suivant les structures. Puis on réalise le puits de $Cd_{1-x}Mn_xTe$ ($\approx 10nm$). La quantité de Mn insérée dans le puits est contrôlée par la température de la cellule de Mn, étalonnée au préalable. On reprend alors la croissance de la seconde barrière CdZnMgTe identique à la première (($\approx 100nm$)). Notons que les différentes épaisseurs sont données à titre indicatif et varient d'une structure à l'autre. Au final, on a bien réalisé un puits quantique puisqu'on a inséré un matériau de petit gap entre deux matériaux de grand gap. Ce puits peut également être dopé n ou p par l'ajout d'impuretés donneuses ou accepteuses d'électrons respectivement.

2.1.3 Puits quantiques contraints

Nous avons également été amenés à étudier des puits quantiques contraints. Pour leur fabrication, on va tirer parti de ce que l'on vient d'expliquer sur le désaccord de paramètre de maille entre les deux matériaux d'une hétérostructure. En l'occurence le désaccord de paramètre de maille entre CdTe et ZnTe est $\Delta a/a = 5,8\%$. Ainsi en faisant croître un puits de CdTe sur ZnTe, le puits CdTe sera contraint par l'épitaxie cohérente. En revanche, on ne peut pas réaliser de tels puits d'une épaisseur trop importante puisqu'il faut veiller à ne pas relaxer les contraintes, de quelque manière que ce soit.

L'échantillon est donc réalisé à partir d'un substrat ZnTe orienté dans la direction [001] comme la croissance. On commence par faire croître une couche tampon de ZnTe (environ $300nm$) à une température $T = 370^{\circ}C$ à $380^{\circ}C$. Puis on réalise le puits de $Cd_{1-x}Mn_xTe$ d'une épaisseur de $4MCs$ à $T = 280^{\circ}C$ avant de reprendre la croissance de ZnTe ($\approx 100nm$) sans modifier la température pour éviter l'interdiffusion Zn-Cd.

2.1.4 Boîtes quantiques

Enfin, nous avons étudiés des échantillons de boîtes quantiques. Il existe différents types de boîtes. Celles dont nous disposons sont des boîtes dites auto-organisées ou SK (Stranski-Krastanow). La formation de ce genre de structure tire à nouveau parti des contraintes emmagasinées dans une couche de CdTe 2D que l'on fait croître sur du ZnTe. Sous certaines conditions que nous allons détailler plus loin, ces contraintes peuvent relaxer non pas de manière plastique par la formation de dislocations mais de manière élastique par la formation de surfaces libres d'îlots 3D de CdTe [31], qui constituent les boîtes. C'est la transition 2D-3D de Stranski-Krastanow [32]. La méthode, d'abord existante pour les IV-IV ou les III-V, a été ensuite exportée au système CdTe/ZnTe. Le désaccord de paramètre de maille CdTe/ZnTe $\Delta a/a = 5,8\%$ est similaire à celui des systèmes InAs/GaAs ou CdSe/ZnSe et l'on s'attendait logiquement à un mécanisme similaire. Cependant, l'obtention de cette transition 2D-3D n'est pas évidente.

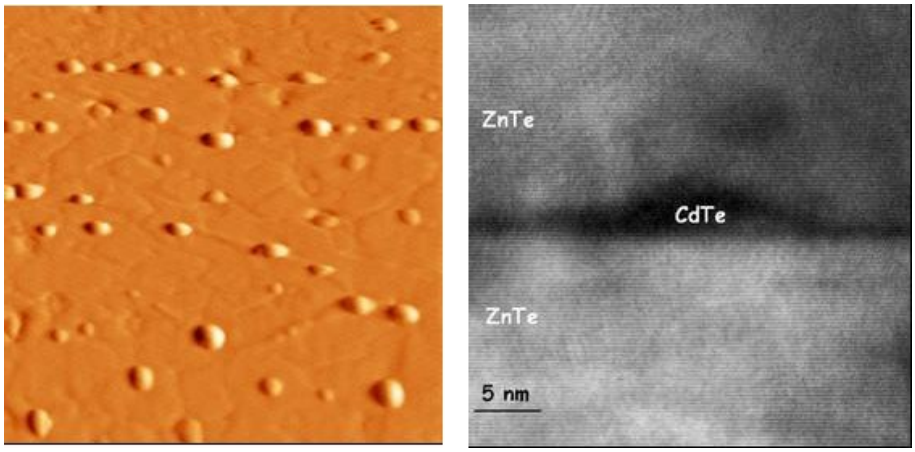

FIG. 2.2 – (a) Image de boites quantiques CdTe réalisée au microscope à force atomique (AFM). La densité de boîtes est de l'ordre de $10^{10} cm^{-2}$. (b) Image d'une de ces boîtes par microscopie électronique à transmission (TEM). On peut non seulement se faire une idée assez précise de leur taille et de leur forme mais on remarque également la présence d'une couche de mouillage 2D (WL) sous le plan de boîtes.

On montre en effet que par croissance MBE classique, la couche de CdTe contrainte relaxe par formation de dislocations au-delà d'une épaisseur critique de $3MCs$. En revanche, en ALE (Atomic Layer Epitaxy), un mode de croissance couche atomique par couche atomique qui permet donc un contrôle accrue du processus, la relaxation de la couche de CdTe par formation de dislocations est repoussée au-delà d'une épaisseur critique de $7MCs$. Et en croissance ALE, entre $3MCs$ et $7MCs$, la couche de CdTe se trouve dans un état métastable qui va transiter vers la formation d'îlots 3D sous l'action d'une perturbation extérieure [33, 34]. La croissance de la couche active de CdTe est donc stoppée à $6,5MCs$ pour effectuer un dépôt de Te amorphe (à $T = -15^{\circ}C$) qui joue le rôle de perturbation extérieure. Après la désorption du Te amorphe (à $T = 220^{\circ}C$), les boîtes sont formées [35, 36]. Elles sont alors encapsulées dans la seconde barrière de ZnTe.

La croissance se fait sur substrat de ZnTe [001] et la croissance a lieu dans la même direction. On dépose une couche tampon de ZnTe ($\approx 300nm$) à $T = 370^{\circ}C$,$380^{\circ}C$, puis $6,5MCs$ de $Cd_{1-x}Mn_xTe$ par 13 cycles successifs d'ALE à $T = 280^{\circ}C$. On réalise alors le dépôt de Te amorphe avant de le désorber et d'encapsuler les boîtes par du ZnTe ($\approx 100nm$), déposé à

$T = 280^{\circ}C$. Les boîtes quantiques consistent alors en des îlots de CdTe (petit gap) se trouvant au milieu de barrières de ZnTe (grand gap). Ces boîtes ont une densité surfacique d'environ $10^{10}cm^{-2}$ et ont approximativement la forme de disques plats d'environ $15nm$ de diamètre et $3nm$ de hauteur (cf.figure 2.2). Le confinement latéral est relativement faible (puisque le rayon de Bohr de l'exciton dans CdTe est de l'ordre de $7nm$) et c'est le confinement suivant z qui détermine principalement l'énergie d'émission d'une boîte. Ces boîtes présentant une dispersion importante en taille et en forme, vont également présenter une dispersion en énergie d'émission, entraînant un élargissement inhomogène de la raie de luminescence de l'ensemble des boîtes (cf. 2.2). Enfin, sur la figure 2.2, on distingue sur l'image TEM la présence d'une couche de mouillage sous le plan de boîtes. C'est la couche de mouillage à laquelle nous avons déjà fait allusion en 1.2.2. Nous verrons l'importance capitale que joue cette couche de mouillage dans certaines mesures optiques en partie II.

2.2 Dispositif expérimental

On présentera ici les caractéristiques du montage expérimental qui nous permet de réaliser les expériences classiques de micro-photoluminescence sur nos échantillons de puits ou de boîtes. En revanche, on ne présentera pas les montages un peu plus particuliers (notamment celui utilisé pour générer des champs magnétiques pulsés) qui seront présentés en début des chapitres dans lesquels ils sont utilisés.

2.2.1 Comment sonder une boîte individuelle ?

Commençons par préciser quelles sont les conditions nécessaires pour ne regarder qu'une seule boîte quantique à la fois, avant de revenir à la description commune du montage optique permettant l'étude non seulement des boîtes mais aussi des puits.

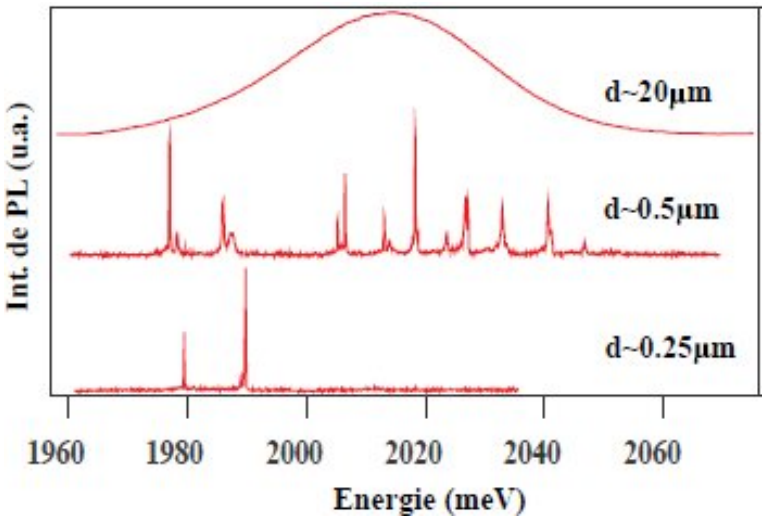

Fig. 2.3 – (en haut) Elargissement inhomogène de la raie de luminescence d'un ensemble de boîtes. (Au milieu et en bas) Une sélection spatiale de la luminescence, à travers des ouvertures de plus en plus petites, permet d'isoler des raies de boîtes uniques.

Les boîtes quantiques auto-assemblées émettent des photons à une énergie qui dépend de la taille et de la forme de celles-ci. Or comme nous venons de le voir, ces boîtes ont une dispersion

de taille et de forme importante, ce qui induit un élargissement inhomogène de la raie de luminescence de cet ensemble de boîtes. Pour s'affranchir de cet effet d'ensemble et parvenir à sonder une boîte quantique unique, ce qui apporte indéniablement plus d'informations physiques, nous utilisons un montage dit de micro-photoluminescence ou de micro-spectroscopie. Cette technique, désormais relativement commune, consiste à isoler l'émission d'une boîte quantique individuelle en combinant une sélection spatiale et une sélection spectrale. Dans un premier temps, on n'excite qu'une surface réduite de l'échantillon pour ne voir luminescer qu'une faible quantité de boîtes quantiques. C'est ce qu'on peut voir en figure 2.3 où le nombre de raies de luminescence diminue suffisamment pour parvenir à distinguer un grand nombre de raies individuelles au lieu d'une unique raie inhomogène très large masquant complètement les caractéristiques propres à chaque boîte. Dans un second temps, on réalise tout simplement une sélection spectrale à l'aide d'un spectromètre. On voit ainsi sur la figure 2.3 que sur une plage spectrale donnée, on peut arriver à n'obtenir qu'une seule raie de luminescence. Cette raie nous donne accès aux informations d'une boîte quantique individuelle.

La sélection spatiale permettant de n'exciter qu'un nombre restreint de boîtes quantiques consiste en la réalisation d'un masque Aluminium opaque percée d'ouvertures sub-microniques laissant passer la lumière. Ce masque est réalisé directement sur la surface de l'échantillon par lithographie électronique et attaque chimique. Cette technique est préférable à l'emploi d'une technique confocale qui comporte de grosses difficultés de stabilisation du faisceau laser à l'échelle du micron en présence d'Hélium gazeux et de champ magnétique. En outre, cette technique permet de se repérer à la surface de l'échantillon et de revenir étudier la même boîte quantique ultérieurement pour compléter une série d'expériences par exemple. Comparée à la gravure de mésas sur l'échantillon, cette technique de masquage présente l'avantage de ne pas générer de fluctuations de charges électriques supplémentaires et de ne pas risquer l'endommagement ou du moins la modification de la structure des boîtes. Enfin cette technique de masquage est compatible avec l'application d'un champ électrique sur l'échantillon pour le contrôle de la charge comme on le verra. Le masque lui-même est réalisé par le dépôt d'une couche d'Aluminium de $100nm$

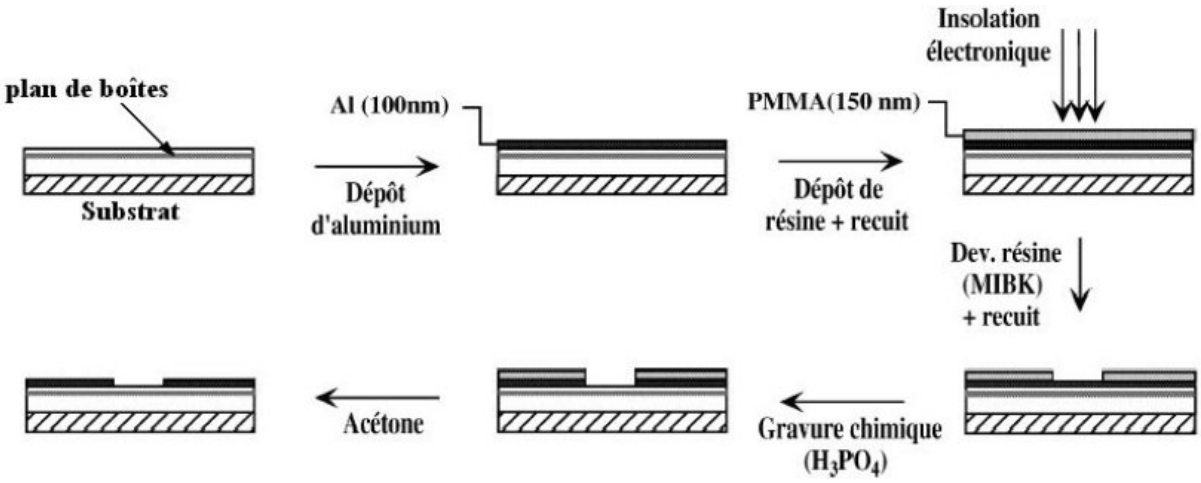

Fig. 2.4 – Procédure utilisée pour réaliser un masque à la surface de l'échantillon par lithographie électronique et attaque chimique.

d'épaisseur, suffisante pour assurer l'opacité optique à nos longueurs d'onde. Cette couche est ensuite recouverte d'une résine photosensible, elle-même insolée suivant le motif voulu par le faisceau d'électrons d'un microscope électronique à balayage (MEB) puis développée. Enfin, une

attaque acide permet de graver le motif dans l'aluminium avant de dissoudre la résine restante à l'acétone. L'ensemble de cette procédure de masquage est illustrée sur la figure 2.4.

Une photographie du masque utilisé à la surface de nos échantillons se trouve en figure 2.5. Les ouvertures les plus grosses, d'une taille de $10\mu m$, permettent de se repérer à la surface de l'échantillon tandis que les ouvertures plus petites, de $1\mu m$ à $100nm$, permettent la réalisation d'expériences de micro-PL.

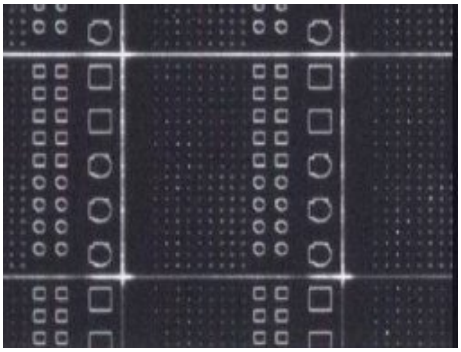

FIG. 2.5 – Photographie optique typique d'un masque lithographié utilisé pour la micro-spectroscopie.

Rappelons avant de poursuivre que cette partie masquage est évidemment spécifique aux boîtes quantiques et qu'elle ne concerne en aucun cas les puits.

2.2.2 Le montage optique

Notre montage peut schématiquement se scinder en trois parties que nous allons décrire les unes après les autres : la partie excitation optique, la partie échantillon et la partie détection. L'ensemble du montage est présenté en figure 2.6 et est utilisé indifféremment pour l'étude des puits ou des boîtes.

L'excitation optique

Nous disposons de différentes sources laser pour réaliser nos expériences de photoluminescence. Nous utilisons un laser Argon à $514nm$, substitué en fin de la thèse (pour cause de fin de vie) par un laser YAG $532nm$ pour les expériences d'excitation non résonantes continues. Alternativement, nous disposons également d'une diode laser à $405nm$ utilisée ponctuellement. Pour travailler à résonance, quasi-résonance ou faire de l'excitation de la photoluminescence (PLE), nous utilisons un laser à colorant. Celui-ci fonctionne avec de la rhodamine 6G si bien qu'il est accordable entre $570nm$ et $630nm$ environ. Pour les expériences résolues en temps nécessitant l'emploi d'une source laser pulsée, nous avons à notre disposition un laser Titane :Saphir femtoseconde dont le taux de répétition est de $80MHz$ environ. Sa plage d'accordabilité s'étend de $700nm$ à $1000nm$ à peu près. Et pour accéder à une gamme plus large de longueurs d'onde en excitation pulsée, nous utilisons un OPO (Oscillateur Paramétrique Optique) dont la plage d'accordabilité va de $550nm$ à $650nm$. La polarisation de ces lasers peut être contrôlée mais par défaut, elle est injectée linéaire dans l'échantillon.

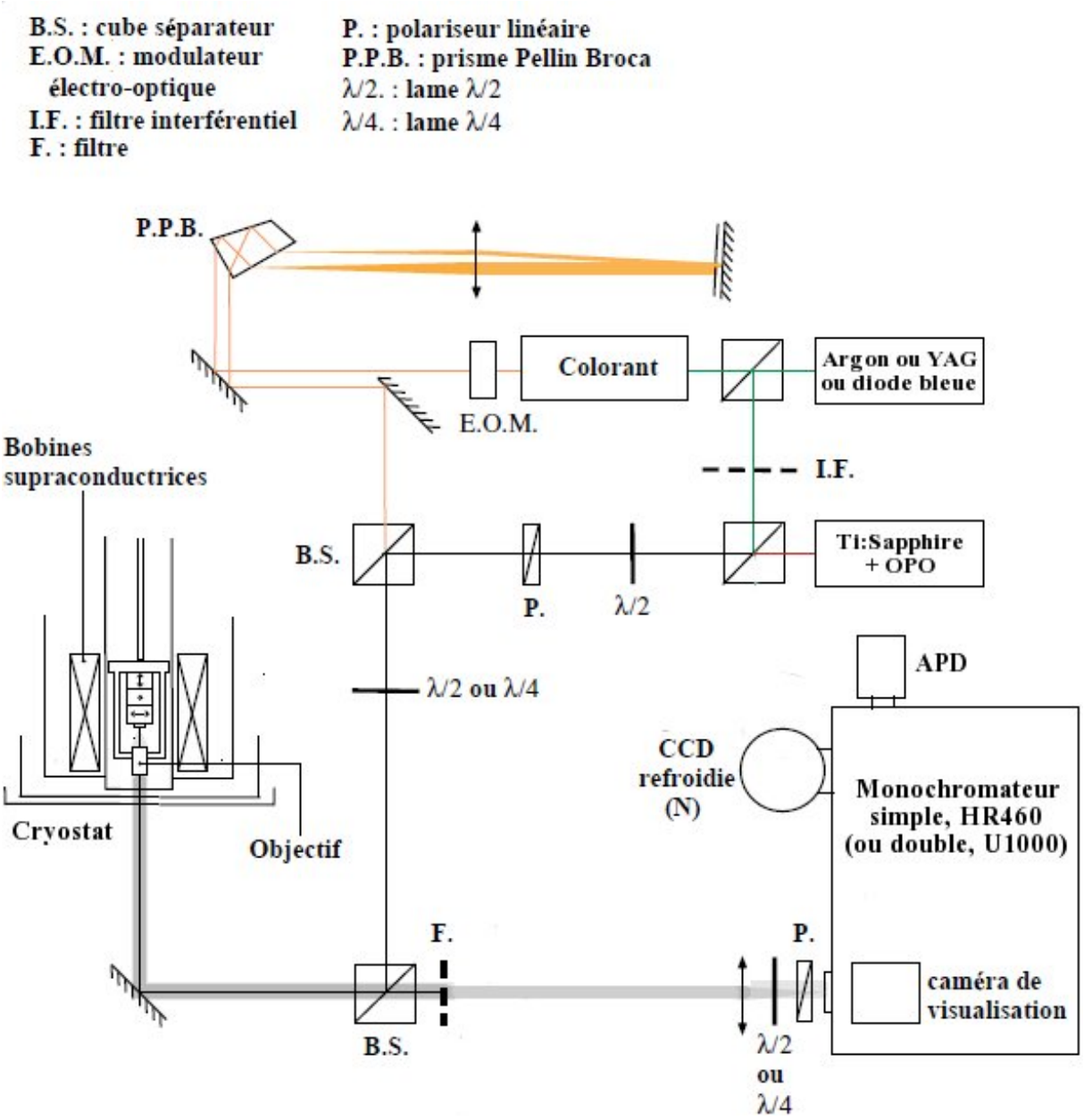

FIG. 2.6 – Schéma de principe de l'ensemble du dispositif expérimental de micro-spectroscopie magnéto-optique à basse température.

FIG. 2.7 – Photographie de la canne de micro-PL utilisée pour nos mesures.

L'échantillon

Le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon, placé à l'intérieur du cryostat grâce à une canne de micro-PL qui permet de placer l'ensemble du porte échantillon et de tout ce qu'il supporte au fond du cryostat (cf. figure 2.7). La focalisation du laser sur la surface de l'échantillon est réalisée par un objectif de microscope $\times 25$ de courte distance de travail $1,3mm$ et d'ouverture numérique $0,5$. Cet objectif est solidaire du porte échantillon ce qui réduit considérablement les dérives thermiques ou mécaniques. L'échantillon peut être déplacé sous l'objectif de microscope à l'aide de trois moteurs Attocube X, Y et Z, eux mêmes vissés sur le porte échantillon. Ces moteurs, basés sur l'effet piezo-électrique, permettent un déplacement sub-micrométrique dans les trois directions de l'espace tout en ayant une course totale de quelques millimètres. Ils permettent ainsi de se positionner sur l'ouverture désirée du masque d'un échantillon de boîtes ou bien de régler la focale pour l'ensemble des échantillons, puits ou boîtes. En effet, on verra par la suite que nous avons également utilisé ce montage de micro-PL pour les expériences sur les puits, soit pour accéder à des densités surfaciques de puissance laser importantes (cf. II), soit pour positionner la micro-bobine dans les expériences de champ pulsé (cf. III).

Le cyostat (modèle Oxford Spectromag) dans lequel est placé l'échantillon est un cryostat à bain d'hélium qui permet de contrôler la température de l'échantillon entre $T = 300K$ et $T = 4,2K$. Il est important de travailler à basse température car c'est là que les mécanismes de recombinaison des excitons deviennent principalement radiatifs. A plus haute température, la désexcitation non radiative est majoritaire et on perd la luminescence. On peut également, en pompant sur le bain d'hélium atteindre une température de $T = 1,6K$ mais ceci est bien plus contraignant et nous nous contenterons bien souvent de travailler à des températures voisines de $T = 6K$. Le cryostat est également pourvu d'une bobine supra-conductrice permettant d'appliquer des champs magnétiques statiques jusqu'à $B = 11T$ (éventuellement $B = 13T$) sur l'échantillon. Nous nous placerons uniquement en configuration Faraday dans le cadre de ce travail. Précisons aussi que nous pouvons générer un champ électrique dans l'échantillon par l'intermédiaire d'une tension appliquée aux bornes de l'échantillon.

La détection et l'analyse des photons

La luminescence est alors collectée (éventuellement à travers les ouvertures du masque pour les boîtes) via le même objectif que pour l'excitation puis focalisée sur les fentes d'entrée d'un spectromètre, le faisceau laser réfléchi étant au préalable éliminé par un filtre coloré. Pour parvenir proprement à ce réglage et notamment pour se placer sur l'ouverture choisie du masque pour les boîtes et ajuster la focale, nous disposons d'un système d'imagerie : nous pouvons éclairer la surface de l'échantillon en lumière blanche et collecter la réflexion de la lumière à la surface de l'échantillon pour en faire l'image sur une caméra amovible se trouvant juste derrière les fentes d'entrée du spectromètre. Nous pouvons ainsi nous repérer exactement à la surface de l'échantillon. Ce système d'imagerie permet également de faire l'image du faisceau laser ce qui permet de le superposer aux ouvertures du masque puis de parfaire le réglage du spot de luminescence afin de collecter au mieux les photons.

Pour analyser aussi proprement que possible les polarisations (circulaires le plus souvent) de la luminescence, la lame séparatrice utilisée pour injecter le faisceau laser ne fait qu'un angle de quelques degrés avec l'axe de collection des photons. Et l'analyse se fait en plaçant une lame $\lambda/4$ tournée de 45° suivie d'un polariseur linéaire à l'entrée du spectromètre. Ceci permet de transformer chacune des deux polarisations circulaires en polarisations linéaires suivant la direction de transmission maximum du spectromètre. Ainsi non seulement, on s'affranchit de la réponse en polarisation linéaire du ce dernier mais en plus on maximise le signal.

Le spectromètre principalement utilisé est un Jobin-Yvon HR460 de focale $0,46m$, avec un réseau de $600tr/mm$ ou bien un réseau de $1800tr/mm$. Alternativement, nous utilisons un spectromètre Jobin-Yvon U1000 : c'est un double monochromateur de focale $2 \times 1m$ constitué de deux réseaux $2 \times 1800tr/mm$. En sortie du spectromètre, le signal est soit analysé sur une CCD refroidie à l'azote permettant l'analyse spectrale de nos échantillons, soit dévié vers une photodiode à avalanche rapide (APD) permettant une analyse résolue en temps d'un point précis du spectre. La résolution spectrale de notre montage peut atteindre environ $30\mu eV$ avec le double-monochromateur. Mais comme nous le verrons, ce ne sera jamais un problème pour nous étant donné que nous avons travaillé sur des raies larges. La résolution temporelle du montage, quoique jamais mesurée exactement, est d'environ $50ps$ à $100ps$. Elle est principalement déterminée par le jitter de l'APD et la dispersion du réseau. De la même manière, nous ne serons jamais limités par cette résolution.

Deuxième partie

Dynamique des spins de Mn dans les boîtes quantiques

Comme on l'a démontré en I, l'effet magnéto-optique que l'on s'attend à observer dans un semi-conducteur magnétique dilué comme CdMnTe, est l'effet Zeeman géant. Toutefois, les méthodes de croissance MBE, associées aux techniques de lithographie, ont récemment permis la fabrication d'échantillons dans lesquelles des boîtes quantiques contiennent un unique ion Mn [37] ; ce qui a immédiatement permis de sonder le comportement magnéto-optique d'un seul Mn et de s'apercevoir que celui-ci diffère nettement de l'effet Zeeman géant [8].

Ceci soulève tout de suite deux questions : premièrement, quel est l'effet de la concentration en Mn lorsque l'on passe d'échantillons relativement concentrés (où est observé l'effet Zeeman géant "standard") à des échantillons très dilués (avec un seul Mn par boîte) ? Et deuxièmement, la dimensionnalité joue-t-elle un rôle lorsque l'on passe de puits 2D ou du massif 3D (qui sont généralement les cas où a été étudié l'effet Zeeman géant) à des boîtes 0D (qui offre la possibilité nouvelle de ne sonder qu'un Mn). Pour tenter de répondre à ces questions, on se propose d'étudier des échantillons de boîtes à une concentration intermédiaire en Mn. Ceci devrait en effet permettre de pouvoir sonder, via une boîte unique, le comportement d'un petit nombre de Mn.

Toutefois, de nombreuses études ont démontré qu'en physique du solide, il pouvait être très difficile de se ramener à un système modèle et que l'on pouvait rarement négliger complètement l'effet de l'environnement sur le système étudié [10]. Ainsi, dans les boîtes quantiques non magnétiques, l'influence des phonons [38, 39] et des fluctuations de charge au voisinage de la boîte [40, 41] ont démontré que l'on ne pouvait généralement pas se restreindre à considérer un système idéal à deux niveaux. C'est sans doute une remarque importante qu'il faudra veiller à garder en mémoire dans notre étude des boîtes magnétiques où l'on s'attend a priori à ne sonder que le comportement de quelques Mn.

Chapitre 1

Première approche et résultats préliminaires

Sommaire

1.1 Identification des différents complexes excitoniques 40

1.1.1 Identification de l'exciton X et du biexciton XX par des montées en puissances 40

1.1.2 Identification de l'exciton chargé positivement X^+ par application d'un champ électrique 41

1.1.3 Comportement attendu identique sous champ magnétique pour l'exciton X et le biexciton XX 43

1.2 Observe-t-on des polarons magnétiques ? 44

1.2.1 Qu'est-ce qu'un polaron magnétique ? 44

1.2.2 Dépendance en champ magnétique observée dans nos structures . . 45

1.2.3 La formation de polarons magnétiques peut-elle expliquer nos mesures ? 46

Avant d'étudier les propriétés complexes d'un objet physique ou d'essayer de le manipuler, il est essentiel de savoir sur quel objet on travaille. Dans ce chapitre, on s'attachera donc dans un premier temps à identifier les différentes raies de luminescence que l'on observe, c'est à dire à identifier les différents complexes excitoniques présents dans nos échantillons de boîte. Ensuite, on situera rapidement le contexte des études sur les boîtes magnétiques et on essaiera d'expliquer en quoi notre travail se démarque de ce qui a déjà été observé, à savoir les polarons magnétiques.

1.1 Identification des différents complexes excitoniques

L'identification des complexes excitoniques (autrement dit savoir qui est l'exciton, le biexciton...) dans les boîtes dopées avec des Mn n'a jamais pu se faire, pour une raison probablement toute simple : la présence de Mn dans les boîtes a pour effet d'élargir les raies de luminescence comme cela a déjà été observé [42, 43, 44], et comme on le reverra en 3.1. En conséquence, non seulement il est plus difficile d'isoler spectralement et de travailler sur des raies uniques, mais en plus cet élargissement qui masque la structure fine des raies empêche donc leur identification par les méthodes standards. Nous présenterons ici les méthodes qui nous ont permis d'identifier ces structures. L'échantillon sur lequel ont été faites les mesures présentées ici est le M1736 dont la composition en Mn est de $1,5\%$.

1.1.1 Identification de l'exciton X et du biexciton XX par des montées en puissances

En figure 1.1(a), on présente un spectre de micro-PL ($T = 6K$ et $B = 0T$) où l'on est parvenu à isoler quelques raies uniques. N'ayant pas accès à la structure fine de ces raies en raison de l'élargissement induit par les Mn, l'expérience la plus évidente et la plus simple pour les identifier consiste évidemment à étudier leur dépendance en fonction de la puissance d'excitation P. Les spectres présentés en 1.1(b) ont été réalisés pour des puissances d'excitation variant sur toute la gamme accessible, soit un peu plus de deux décades. Notons tout de suite qu'à faible puissance, nous perdons rapidement le signal et que cette limitation est beaucoup plus forte que dans le cas des boîtes quantiques "standards" sans Mn puisque la présence d'ions Mn implique un élargissement de la raie et par conséquent une diminution du rapport signal sur bruit. D'autre part, à forte puissance, on excite tous les états excités de chacune des boîtes, multipliant ainsi le nombre de raies de luminescence et il devient impossible de continuer à analyser des raies isolées. A nouveau ceci est plus contraignant que pour des boîtes "standard" sans Mn puisque nos raies sont larges et se superposent donc plus facilement, à densité de boîtes égale. Par contre il est possible, sur cette gamme de puissance, d'analyser l'évolution de l'intensité de luminescence de chacune des raies en fonction de la puissance d'excitation. C'est ce qui est présenté en figure 1.1(c) où l'on a intégré l'intensité de luminescence des deux raies de plus basse énergie sur toute la largeur à mi-hauteur. En principe, si la raie ne change pas de forme avec la puissance d'excitation (ce que l'on suppose), la plage d'intégration n'a pas d'importance. Etant donné nos largeurs de raies, il est inenvisageable d'intégrer la raie totale donc nous avons choisi de l'intégrer sur sa largeur à mi-hauteur. On ajuste alors les courbes obtenues par une loi de puissance du type $a \cdot P^{exp}$. Pour la raie à $1935meV$, $exp = 1,03$ ce qui signifie que le comportement en puissance de cette raie la caractérise comme un exciton. En revanche, pour la raie à $1925meV$, $exp = 1,32$ ce qui correspond à un comportement sur-linéaire. Pour un biexciton on s'attendrait à obtenir $exp = 2$ mais on va voir dans la section suivante que c'est malgré tout un biexciton. L'écart par rapport à la valeur attendue réside très certainement dans le fait que nos raies larges nous empêchent non seulement de faire des intégrations propres de raies parfaitement isolées mais aussi d'avoir accès à une plus large gamme de puissance d'excitation qui nous permettrait sans doute de mieux voir le comportement quadratique du biexciton.

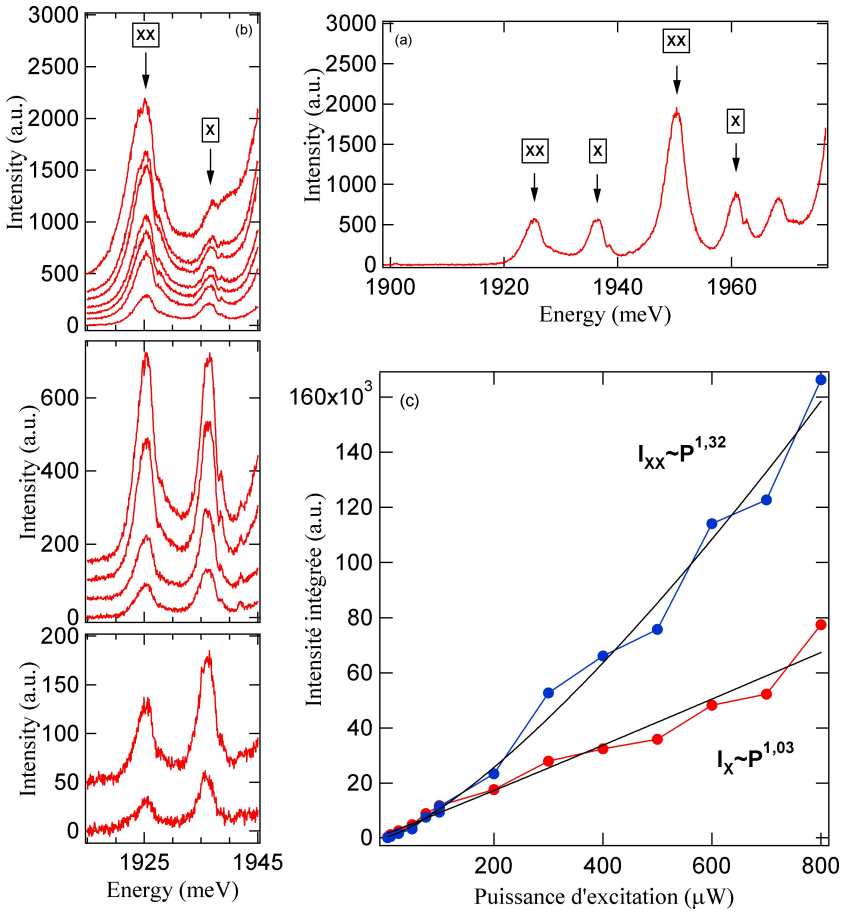

FIG. 1.1 – (a) Spectre de micro-PL à $T = 6K$ et $B = 0T$ où l'on est parvenu à isoler quelques raies uniques. (b) Spectres des deux raies de plus basse énergie pour différentes puissances d'excitation : $5\mu W$, $10\mu W$, $25\mu W$, $50\mu W$, $75\mu W$, $100\mu W$, $200\mu W$, $300\mu W$, $400\mu W$, $500\mu W$, $600\mu W$, $700\mu W$ et $800\mu W$. Sur chaque graphe, les spectres sont arbitrairement décalés de 50 pour une meilleure visibilité. (c) L'intensité intégrée de ces deux raies en fonction de la puissance d'excitation nous permet de conclure que la raie à plus basse énergie à $1925meV$ est un biexciton tandis que la deuxième à $1935meV$ est un exciton.

1.1.2 Identification de l'exciton chargé positivement X^+ par application d'un champ électrique

C'est l'application d'une tension électrique aux bornes de l'échantillon qui va nous permettre de conclure définitivement sur la nature des raies de luminescence que nous observons. Ceci permet en effet de controler l'état de charge de nos boîtes quantiques : en plaçant des contacts électriques en face avant (sur le masque aluminium) et arrière (sur le substrat) de l'échantillon, nous pouvons utiliser l'échantillon comme une diode Schottky [45]. Ceci fonctionne bien pour deux raisons principales : premièrement le substrat en face arrière présente un dopage résiduel p et deuxièmement, les états de surface de ZnTe sous le masque aluminium se comportent en accepteurs et bloquent ainsi le niveau de Fermi à leur niveau, proche de la bande de valence [46, 47]. Ainsi, en appliquant une tension positive suffisamment importante pour faire passer les niveaux accepteurs en dessous des niveaux de trous de la boîte, on s'attend à charger positivement la boîte (cf. insert en figure 1.2(a)) et donc à observer des complexes excitoniques chargés

positivement.

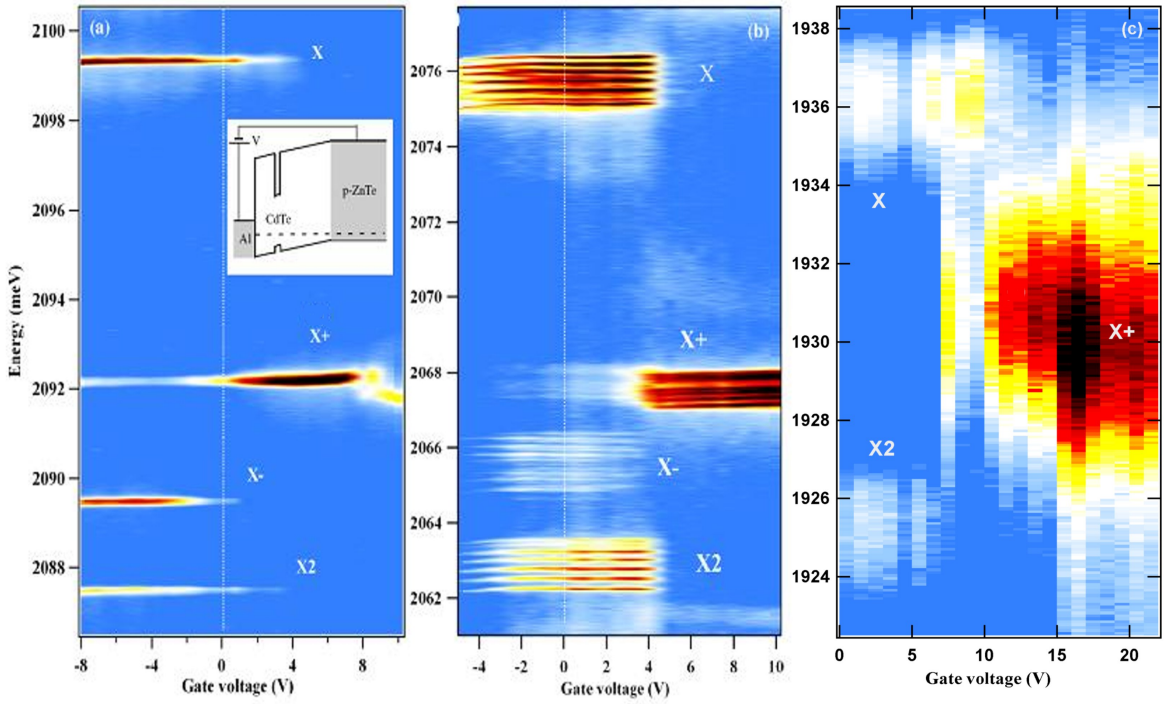

FIG. 1.2 – Spectres de PL de trois types de boîtes quantiques différentes en fonction de la tension qui leur est appliquée : (a) pour des boîtes sans Mn, (b) pour des boîtes avec un Mn unique, (c) pour des boîtes avec plusieurs Mn (ici la composition en Mn est $x = 1,5\%$). L'insert en (a) représente la structure de bande de l'échantillon sous l'application d'une tension électrique.

L'application d'un champ électrique sur notre échantillon (cf. figure 1.2(c)) révèle clairement cette possibilité de modifier l'état de charge de nos boîtes. En effet, à tension positive, on observe une nouvelle raie synonyme de la formation d'un nouveau complexe (à une énergie différente puisque l'énergie de liaison du complexe dépend du nombre de charges dans la boîte) en remplacement des complexes neutres, précédemment identifiés comme l'exciton et le biexciton. L'explication du fonctionnement de notre système au paragraphe précédent est le premier argument en faveur de l'identification de ce complexe comme l'exciton chargé positivement. Mais ce qui nous permet d'affirmer de manière définitive que nous avons bel et bien identifié l'exciton X, le biexciton XX et l'exciton chargé positivement X^+, c'est la comparaison des énergies de liaison de ces complexes dans nos boîtes CdTe avec plusieurs Mn, avec les énergies de liaison de ces complexes clairement identifiés dans les boîtes CdTe sans Mn ou avec un Mn unique (cf. figure 1.2). Dans ces deux derniers cas, ce sont des méthodes de spectroscopie fine (mettant en jeu la structure fine des raies de luminescence et leur dépendance en polarisation et en champ magnétique) qui ont permis l'identification des différents complexes [19]. Ainsi on observe que l'énergie de liaison du biexciton par rapport à l'exciton est toujours d'environ $E_{X-XX} = 12meV$ tandis que celle de l'exciton chargé positivement par rapport à l'exciton est d'environ $E_{X-X+} = 7meV$. Cette méthode permet donc pour la première fois d'identifier exciton, biexciton et exciton chargé positivement dans des boîtes possédant un grand nombre de Mn (cf. figure 1.2(c)). Enfin notons que nous n'observons pas dans nos boîtes l'exciton chargé négativement, même à tension négative. Ceci peut être dû au fait qu'il est globalement peu intense dans les boîtes CdTe et a fortiori

dans nos boîtes où les raies sont élargies et donc peu intenses.

1.1.3 Comportement attendu identique sous champ magnétique pour l'exciton X et le biexciton XX

Avant de passer à la description des effets spécifiques observés sur les boîtes magnétiques avec plusieurs Mn, précisons quels devraient être les comportements de l'exciton et du biexciton dans les expériences de magnéto-optique en configuration Faraday. On a bien entendu déjà expliqué que le comportement attendu pour l'exciton est celui de l'effet Zeeman géant présenté en partie I figure 1.17. Mais quant est-il pour le biexciton ? La réponse est toute simple : on s'attend à voir la même chose. Pour le comprendre, il suffit de regarder la figure 1.3 où l'on a représenté les niveaux énergétiques de la boîte vide, de l'exciton et du biexciton. Pour l'exciton, on a seulement

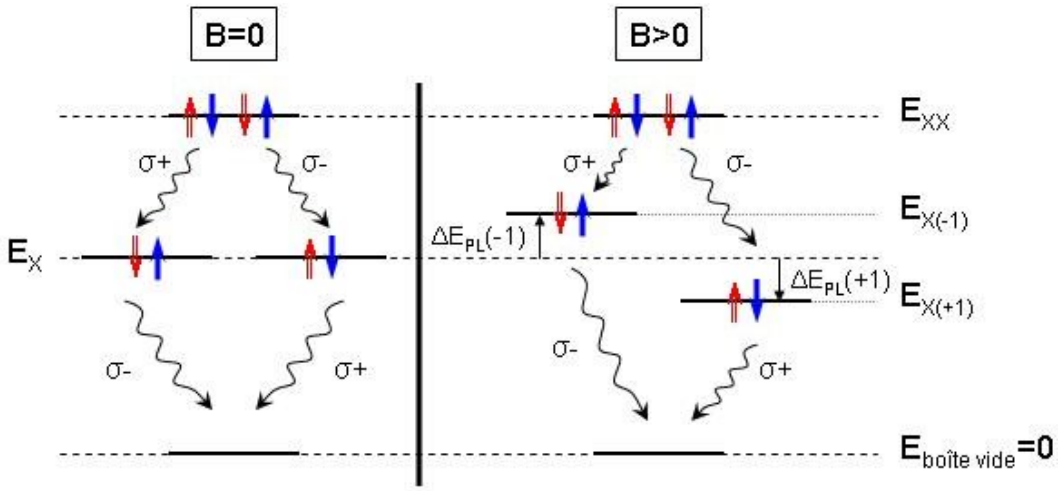

FIG. 1.3 – Représentation des états énergétiques d'une boîte quantique (boîte vide, exciton, biexciton) et des polarisations des photons émis ; à gauche en champ magnétique nul et à droite sous champ magnétique positif.

représenté les états brillants puisque c'est ceux que l'on sonde en PL. De plus, on a négligé les structures fines de l'exciton et du biexciton qui nous sont invisibles du fait de nos largeurs de raies. Dans la partie de gauche de la figure, en champ magnétique nul $B = 0$, on voit alors que l'exciton comme le biexciton sont dégénérés et peuvent se recombiner en émettant aussi bien un photon σ^+ qu'un photon σ^-. Notons simplement que l'énergie de recombinaison du biexciton est plus petite que l'énergie de recombinaison de l'exciton. En effet, en raison de l'énergie de liaison, on a $E_{XX} < 2E_X$ dans les boîtes CdTe. Lorsqu'on applique un champ magnétique positif $B > 0$ sur l'échantillon, que va-t-il se passer ? L'état énergétique de la boîte vide n'a pas de raison de bouger et celui du biexciton qui est un état singulet ne change pas non plus. En revanche, les deux états excitoniques $+1$ et -1 vont se décaler en énergie sous l'effet de l'interaction $sp-d$ avec les Mn. Et ces décalages sont évidemment opposés : $\Delta E_{PL}(+1) = -\Delta E_{PL}(-1)$ (cf. I 1.3). Or les niveaux excitoniques constituent à la fois les états de départ des recombinaisons des excitons et les états d'arrivée des recombinaisons des biexcitons. Ceci implique, pour une polarisation donnée, que le décalage énergétique (pas l'énergie absolue) d'un photon issu de la recombinaison de l'exciton et d'un photon issu de la recombinaison du biexciton est exactement le même. On observera donc la même structure de PL pour la recombinaison du biexciton ou de l'exciton : un photon σ^+ dont l'énergie diminue avec le champ magnétique et un photon σ^- dont l'énergie

augmente. De plus l'évolution des deux polarisations se fait de manière symétrique[1] par rapport à l'énergie en champ nul du biexciton ou de l'exciton respectivement (qui sont différentes). Pour conclure, ajoutons que le fait que l'évolution de la PL sous champ soit identique pour l'exciton et le biexciton n'est pas seulement valable dans le cas de l'effet Zeeman géant où les décalages énergétiques $\Delta E_{PL}(\pm 1)$ sont décrits par des fonctions de Brillouin ; mais a priori dans le cas plus général d'un effet magnétique quelconque qui conserve $\Delta E_{PL}(+1) = -\Delta E_{PL}(-1)$. C'est une remarque qu'il faut garder à l'esprit parce qu'elle nous doit nous pousser à faire des hypothèses différentes sur l'origine des phénomènes physiques observés suivant que l'on détecte ou non une évolution de la PL sous champ identique pour l'exciton et le biexciton.

1.2 Observe-t-on des polarons magnétiques ?

Dans un semi-conducteur magnétique dilué dont la composition en Mn est suffisamment élevée (on exclut par exemple le cas d'un Mn unique dans une boîte), on a vu en I 1.3 que l'on s'attend à ce que les ions magnétiques s'aimantent avec le champ magnétique en suivant une fonction de Brillouin et que ceci se manifeste par un effet Zeeman géant sur les états quantiques de la boîte et donc sur les polarisations des photons émis. Dans le matériau massif ou les puits, beaucoup d'écarts à ce comportement ont été observés. Cependant, dans le cas qui nous intéresse ici des boîtes quantiques magnétiques, une seule alternative à ce comportement a été observée jusqu'à présent : elle met en jeu la formation d'un polaron magnétique [42]. Il est alors logique de s'interroger sur la possible formation d'un tel polaron dans nos structures.

1.2.1 Qu'est-ce qu'un polaron magnétique ?

Dans le cas du matériau massif ou des puits, le concept de polaron est assez complexe et recouvre deux types de polaron différents : les polarons magnétiques liés (à un accepteur ou à un donneur) et les polarons magnétiques auto-localisés. Ils ont été largement étudiés, tant expérimentalement [48, 49], que théoriquement [50, 51].

Dans les structures 0D en revanche, c'est à dire les boîtes, le concept de polaron magnétique est relativement simple à comprendre. Un polaron magnétique consiste en l'existence en champ magnétique nul d'une aimantation spontanée des ions Mn. Cette aimantation résulte de la formation d'un complexe mettant en jeu à la fois l'exciton et les ions Mn et conduisant à un abaissement de l'énergie globale du système. En effet, en champ nul l'orientation des Mn devrait être quelconque (et donc l'aimantation totale devrait être nulle) mais la génération d'excitons dans le système peut être vue comme l'application d'un champ local appliqué aux Mn via l'interaction $sp-d$. Ainsi, même en l'absence de champ magnétique externe, on peut assister à l'orientation mutuelle de l'exciton et des Mn : c'est le polaron magnétique. Plus précisément, sa formation peut se schématiser en trois étapes[2] [42]. Premièrement et très rapidement, le spin de l'exciton, bloqué suivant l'axe z, s'oriente suivant la projection sur z du moment magnétique total instantanée des Mn (dû aux fluctuations statistiques magnétiques). Cette brisure spontanée de symétrie résulte en un abaissement de l'énergie du système. Deuxièmement, les Mn s'alignent à leur tour suivant z, dans le champ d'échange de l'exciton (plus exactement celui du trou, quatre fois supérieur à celui de l'électron si l'on se réfère aux intégrales d'échange données en I 1.3),

[1] Si bien sûr on néglige le décalage énergétique diamagnétique dû à l'effet du champ sur le centre de masse de l'exciton.

[2] Précisons toutefois qu'il n'existe pas de théorie microscopique expliquant en détail les mécanismes de formation d'un polaron, ni dans une boîte, ni dans les puits ou le massif. La difficulté principale vient du fait qu'il est difficile de relier la dynamique du polaron aux mécanismes de relaxation des spins individuels [52, 53].

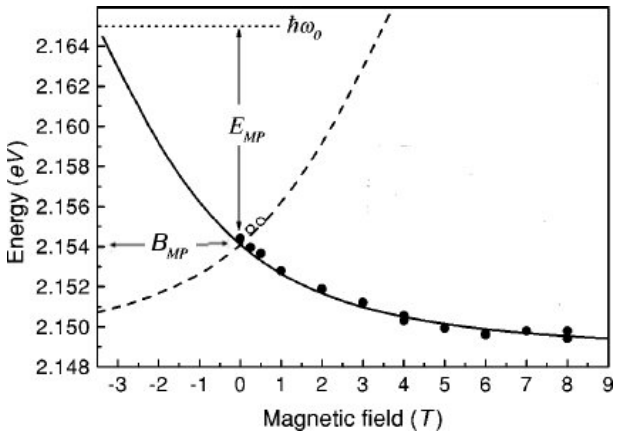

FIG. 1.4 – Figure extraite de [42] présentant la dépendance en champ magnétique de l'énergie de luminescence d'une boîte quantique où s'est formé un polaron. Les ronds pleins (resp. vides) et le trait plein (resp. pointillé) correspondent à la polarisation σ^+ (resp.σ^-). Les points expérimentaux sont ajustés par des fonctions de Brillouin décalées du champ d'échange $B_{MP} = 3,5T$. L'énergie de liaison du polaron E_{MP} est la différence, en champ nul, entre l'énergie de l'exciton en l'absence de polaron et l'énergie de l'exciton lorsque le polaron est formé.

ce qui minimise encore l'énergie du complexe. Enfin, la répartition des moments magnétiques du polaron doit évoluer vers un état d'équilibre thermodynamique. Mais ce processus, long, est généralement interrompu par la recombinaison de l'exciton.

La formation de polarons magnétiques dans les boîtes peut donc se modéliser assez simplement en disant que les Mn s'orientent dans un champ magnétique total qui se trouve être la somme du champ magnétique externe et du champ d'échange trou-Mn. Ainsi s'il n'y a pas de complication supplémentaire, les expériences de magnéto-optique peuvent être ajustées par une fonction de Brillouin décalée en champ magnétique, comme c'est le cas dans la figure 1.4.

1.2.2 Dépendance en champ magnétique observée dans nos structures

Et nous, dans nos structures, qu'observons-nous ? Les mesures de magnéto-optique réalisées sur l'échantillon M1736 (boîtes quantiques de $Cd_{98,5}Mn_{1,5}Te$) révèlent un effet franchement différent de l'effet Zeeman géant. En effet, en appliquant un champ magnétique aux boîtes quantiques précédemment étudiées en puissance et sous champ électrique (cf. 1.1), on obtient les comportements de la figure 1.5. Au lieu d'observer un comportement de type Brillouin, on observe, pour la polarisation σ^+, un décalage énergétique relativement faible aux petits champs magnétiques, puis une variation très rapide de ce décalage autour d'un champ critique de l'ordre de $B_c = 4T$ avant que le décalage finisse par saturer doucement de manière similaire à l'effet Zeeman géant au dessus de $B_c = 4T$. Pour la polarisation σ^-, on perd très rapidement la luminescence parce que l'écart énergétique entre les deux niveaux d'excitons brillants croît avec le champ magnétique (effet Zeeman géant). Ainsi, dès que cet écart dépasse quelques meV, les excitons thermalisent tous sur l'état $+1$ de plus basse énergie, dépeuplant alors l'état -1 et la luminescence en σ^- disparaît. Notons également que ce comportement est observable aussi bien sur l'exciton que sur le biexciton et qu'il n'est pas l'apanage d'une petite poignée de boîtes quantiques puiqu'on l'observe sur toutes les boîtes de l'échantillon. A la vue de ces mesures, nous sommes donc en droit de nous demander si l'on est en présence de polarons magnétiques, a priori seule alternative à l'effet Zeeman géant.

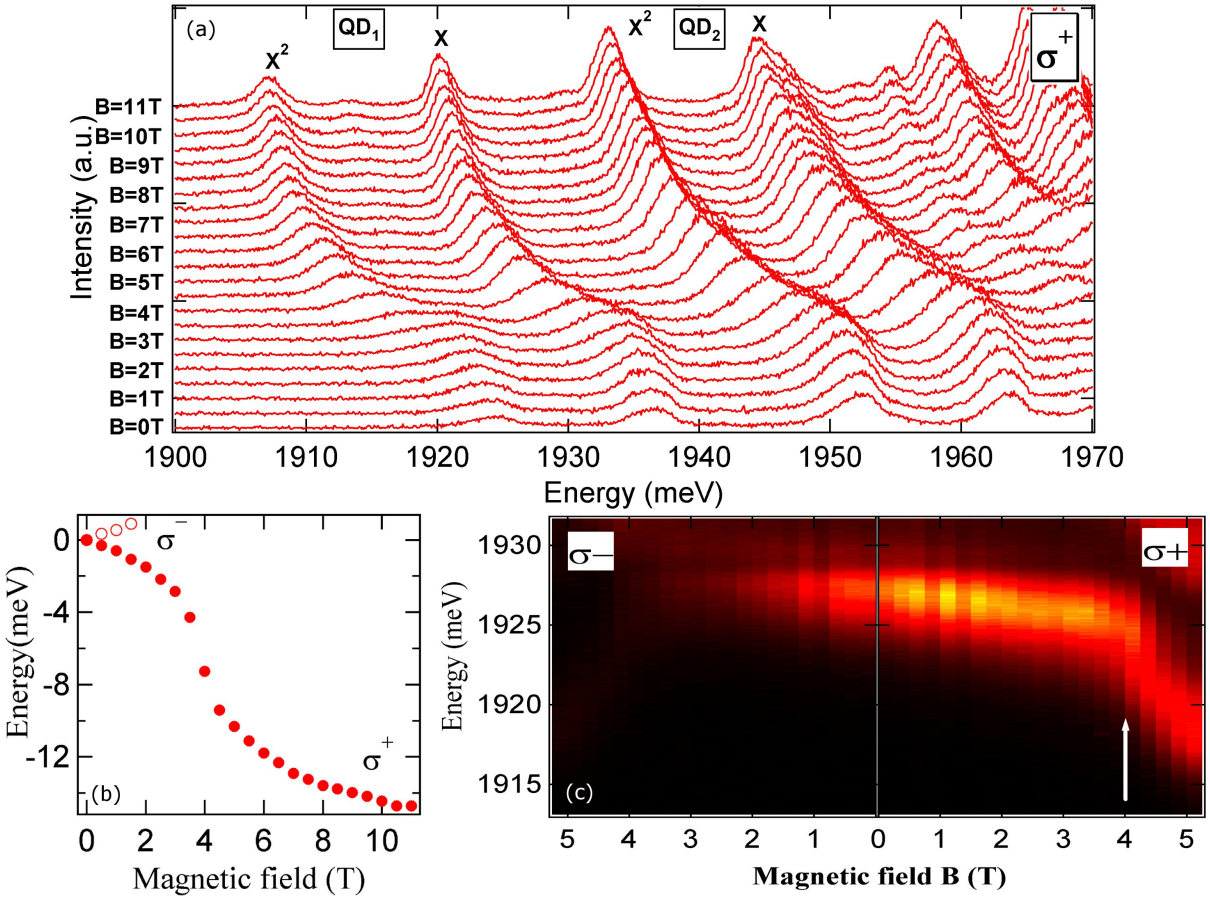

FIG. 1.5 – (a) Spectres de micro-PL résolus en polarisation (seul σ^+ est présenté ici) et réalisés sous excitation non résonante à $T = 7K$ pour des champs magnétiques allant de $B = 0T$ à $B = 11T$ par pas de $0,5T$. (b) Décalage énergétique (par rapport à l'énergie à $B = 0T$ et $T = 7K$) du maximum d'une raie unique de boîte quantique (ici un exciton) en fonction du champ magnétique dans les deux polarisations $\sigma^{\pm}$. (c) Zoom sur la transition (ici un biexciton), en intensité de couleur.

1.2.3 La formation de polarons magnétiques peut-elle expliquer nos mesures ?

Nous pouvons d'ores et déjà donner une réponse claire à cette question : nous n'avons pas de polaron magnétique dans notre système. Cependant, nous allons, chose très importante, le justifier en détail dans ce qui suit. En effet, outre le fait que dans les boîtes, la formation de polarons magnétiques représente la principale alternative à l'effet Zeeman géant, nous allons voir qu'une étude limitée du phénomène peut laisser croire à l'existence d'un tel polaron de manière assez troublante. Et si nous nous sommes trop longtemps égarés sur cette fausse piste (et à notre connaissance, nous ne sommes pas les seuls), c'est probablement que le problème mérite d'être un tant soit peu éclairci. Nous ne prétendons absolument pas faire ici une revue exhaustive des conditions de formation d'un polaron et de ses caractéristiques mais simplement justifier clairement qu'il ne se forme pas dans notre système et tenter de dire pourquoi.

Le modèle initialement envisagé

Commençons par dire pourquoi nous avons si longtemps crû à l'existence d'un polaron magnétique. La formation d'un polaron peut avoir lieu si son temps de formation est plus court que le temps de vie de l'exciton, c'est à dire s'il se forme, en totalité ou en partie, pendant la durée de vie de l'exciton [49]. On peut alors envisager que les excitons noirs, qui ont un temps de vie très long (puisque leur probabilité de recombinaison radiative est nulle) auront bien plus de chance de former un polaron magnétique qu'un exciton brillant dont la durée de vie est limitée à quelques centaines de picosecondes par la recombinaison radiative. D'autant plus que cette hypothèse fait écho à la référence [54] où il est envisagé que les excitons noirs et brillants puissent expliquer la dépendance en champ magnétique de certains temps de déclin de boîtes quantiques dans lesquelles le polaron est observé. Et surtout, cette hypothèse semble expliquer parfaitement nos mesures à première vue, comme on le voit sur la figure 1.6.

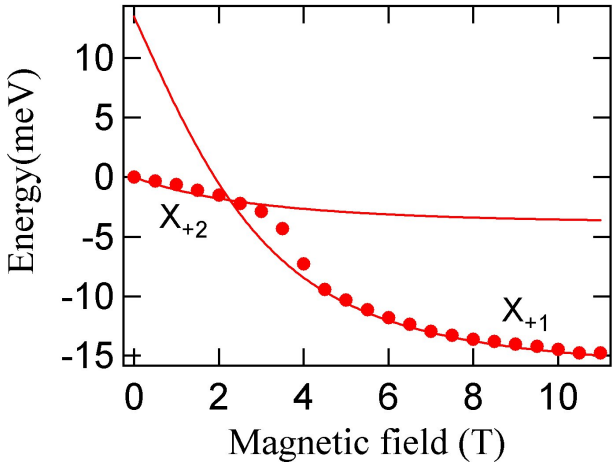

Fig. 1.6 – Nous avons ajusté ici nos mesures avec un modèle de polaron magnétique, certes faux, mais qui semble à première vue fonctionner. Ce modèle suppose qu'un polaron peut se former en présence d'un exciton noir mais pas en présence d'un exciton brillant.

Le modèle utilisé ici pour réaliser l'ajustement des données expérimentales est le suivant : en champ magnétique nul, l'exciton noir est à plus basse énergie que l'exciton brillant (du fait de l'interaction coulombienne entre électron et trou qui tend à les aligner ferromagnétiquement). On suppose alors que l'exciton qui se forme dans la boîte et que l'on détecte est principalement un exciton noir et que le polaron magnétique a donc suffisamment de temps pour se former[3]. Ceci reste vrai aux petits champs. Cependant, le décalage énergétique sous champ de l'exciton brillant est supérieur à celui de l'exciton noir (cf. figure 1.7) si bien qu'au delà d'un certain champ magnétique, c'est l'exciton brillant qui se retrouve à plus basse énergie. C'est alors principalement l'exciton brillant qui thermalise dans la boîte et le polaron n'a plus le temps de se former étant donné la courte durée de vie de l'exciton brillant. Ceci est donc vrai au-delà d'un certain champ magnétique. Au final, les données expérimentales à bas champ magnétique doivent être ajustées par une courbe prenant en compte la formation d'un polaron avec l'exciton noir c'est à dire une fonction de Brillouin modifiée dans laquelle le champ magnétique prend en compte non seulement

[3]La raison pour laquelle on peut observer l'exciton noir (a priori non couplé au champ électro-magnétique) en photoluminescence est que l'exciton noir n'est pas un état d'exciton noir pur mais comporte une "partie" brillante à cause du couplage électron-trou [55].

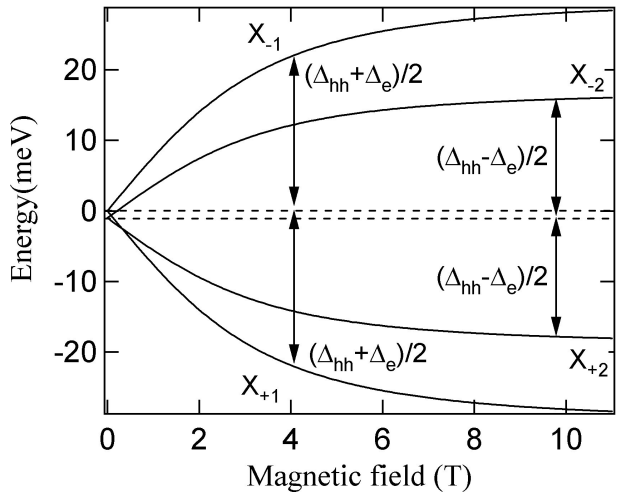

FIG. 1.7 – Allure de l'effet Zeeman géant pour les excitons brillants $+1$ et-1 et les excitons noirs $+2$ et -2 en l'absence de polaron.

le champ extérieur B_{ext} mais aussi le champ d'échange de l'exciton sur les Mn B_{MP}, soit :

$$E_{\pm 2} = E^0_{\pm 2} \mp E^{sat}_{\pm 2} B_{\frac{5}{2}}(\frac{\frac{5}{2} g_{Mn}\mu_B(B_{ext} + B_{MP})}{k_B(T + T_{AF})}) \tag{1.1}$$

$E^0_{\pm 2}$ désigne l'énergie en champ nul et en l'absence de polaron des excitons noirs et $E^{sat}_{\pm 2} = \frac{1}{2}(-\alpha - \beta)x_{eff}N_0\frac{5}{2}$ leur décalage énergétique à saturation. Quant aux données expérimentales à haut champ, elles doivent être ajustées par une simple fonction de Brillouin (pas de formation de polaron) soit :

$$E_{\pm 1} = E^0_{\pm 1} \mp E^{sat}_{\pm 1} B_{\frac{5}{2}}(\frac{\frac{5}{2} g_{Mn}\mu_B(B_{ext})}{k_B(T + T_{AF})}) \tag{1.2}$$

$E^0_{\pm 1}$ désigne l'énergie en champ nul et en l'absence de polaron des excitons brillants et $E^{sat}_{\pm 1} = \frac{1}{2}(\alpha - \beta)x_{eff}N_0\frac{5}{2}$ leur décalage énergétique à saturation. Les paramètres libres qui sont ajustés en fonction des points expérimentaux sont :

$$\begin{aligned} T_{AF} &\approx 0K \\ E^0_{\pm 2} &= 1939,94meV \\ E^{sat}_{\pm 2} &= 16,5meV \\ B_{MP} &= 4,3T \\ E^0_{\pm 1} &= 1940,74meV \\ E^{sat}_{\pm 1} &= 29,5meV \end{aligned} \tag{1.3}$$

$$\tag{1.4}$$

Or les paramètres ainsi obtenus sont tous parfaitement cohérents : pour $x_{Mn} = 1,5\%$, on attend d'après la littérature $T_{AF} \approx 0,5K$ (cf. figure I 1.16). Les excitons noirs sont bien environ $1meV$ plus bas que les excitons brillants puisqu'on trouve $E^0_{\pm 1} - E^0_{\pm 2} = 0,8meV$. Le rapport des décalages énergétiques à saturation $\frac{E^{sat}_{\pm 2}}{E^{sat}_{\pm 1}} = 0.56$ est très proche du rapport $\frac{3}{5}$ théorique. Et enfin la valeur du champ d'échange induit par le trou sur les Mn $B_{MP} = 4,3T$ est tout à fait cohérente avec la valeur de $B_{MP} = 3,5T$ obtenue en [42].

Il ressort donc de cette étude qu'un très faible nombre de paramètres libres indépendants (3 seulement) parvient a priori à expliquer une dépendance en champ franchement singulière. Pour se convaincre que ce modèle est effectivement faux, des infirmations expérimentales fortes (études en température et résolues en temps) sont nécessaires.

Les études en température

Si l'on est en présence d'un polaron magnétique, il est notamment attendu, à champ nul, que l'énergie de l'exciton augmente avec la température. En effet le complexe polaronique résulte de l'alignement commun des spins de l'exciton et des Mn. Donc si l'on chauffe, l'agitation thermique va progressivement détruire cet alignement et faire remonter l'énergie du système. Le polaron est complètement détruit lorsque son énergie de liaison est égale à zéro.

En figure 1.8, on présente la dépendance en température de l'énergie des raies de luminescence en champ magnétique nul $B = 0T$ mais aussi sous $B = 2T$ et $B = 5,5T$. A ce stade, il faut comprendre que deux effets se mélangent : d'une part l'effet de désalignement des Mn avec la température auquel on s'intéresse et qui tend à faire remonter les énergies de luminescence, et d'autre part l'effet bien connu de la dépendance du gap avec la température. Lorsqu'on augmente la température d'un semi-conducteur, le gap de celui-ci va en effet diminuer, entraînant ainsi une diminution de toutes les énergies de luminescence. Pour s'affranchir de ce dernier effet, on a

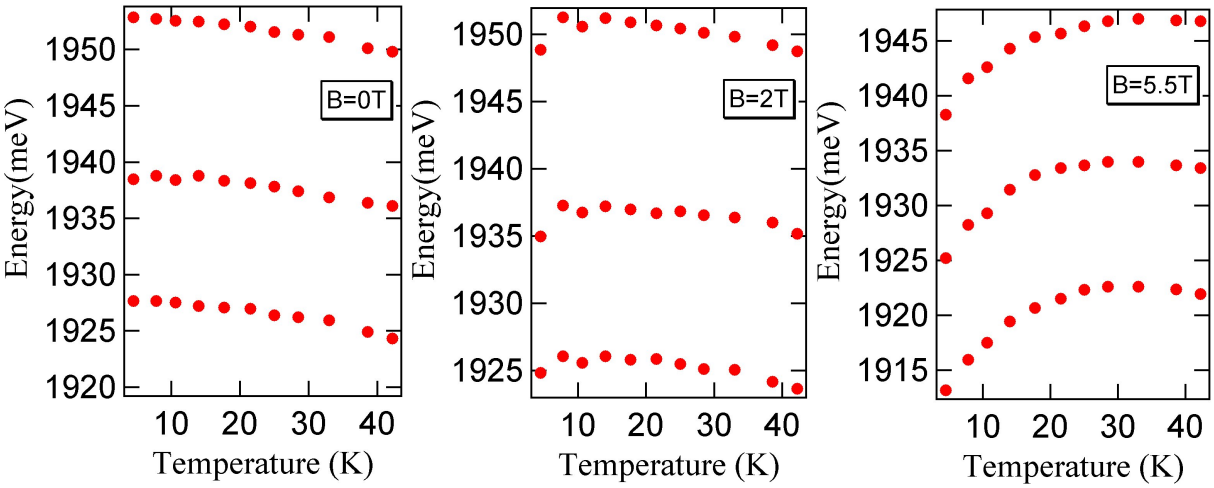

FIG. 1.8 – Dépendance en température de l'énergie de luminescence de différentes raies de boîtes quantiques pour 3 champs magnétiques différents $B = 0T$, $B = 2T$ et $B = 5,5T$. Toutes les raies (exciton au centre des figures ou biexcitons en haut et en bas) ont un comportement identique.

tout simplement mesuré la dépendance en température de l'énergie de luminescence de boîtes quantiques de CdTe identiques aux nôtres mais non dopées en Mn (cf. figure 1.9). Pour de telles boîtes non magnétiques, le décalage énergétique des raies en fonction de la température est seulement dû à la variation du gap, ce qui nous permet d'étalonner parfaitement la dépendance en température de ce dernier dans nos boîtes. La variation expérimentale du gap est ensuite ajustée par l'expression suivante :

$$E_G(T) = E_G(0) - \frac{\alpha\Theta}{2}\left(\sqrt[p]{1+\left(\frac{2T}{\Theta}\right)^p} - 1\right) \tag{1.5}$$

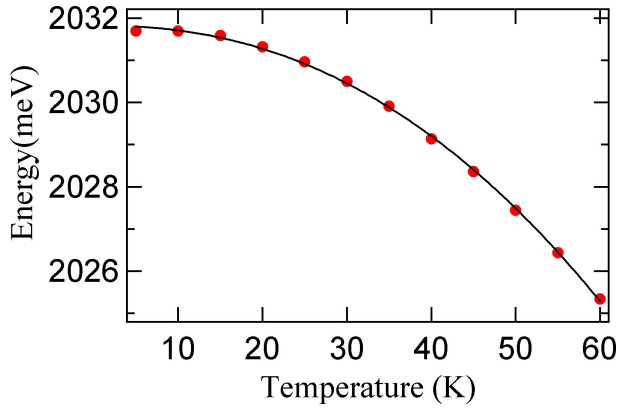

FIG. 1.9 – Les points représentent la variation expérimentale du gap de boîtes quantiques CdTe non magnétiques en fonction de la température. La courbe correspond à son ajustement théorique.

Cette expression est la forme la plus générale de la variation du gap d'un semi-conducteur et son origine ainsi que la signification physique des différents paramètres qui la composent sont discutées en [56]. En ce qui nous concerne, nous nous contentons d'obtenir un ajustement propre afin de pouvoir le soustraire à nos courbes expérimentales obtenues sur les boîtes magnétiques. C'est ce qui est fait en figure 1.10 où cette fois, la dépendance en température de la luminescence des boîtes traduit uniquement le désalignement progressif des Mn. Examinons à présent la différence

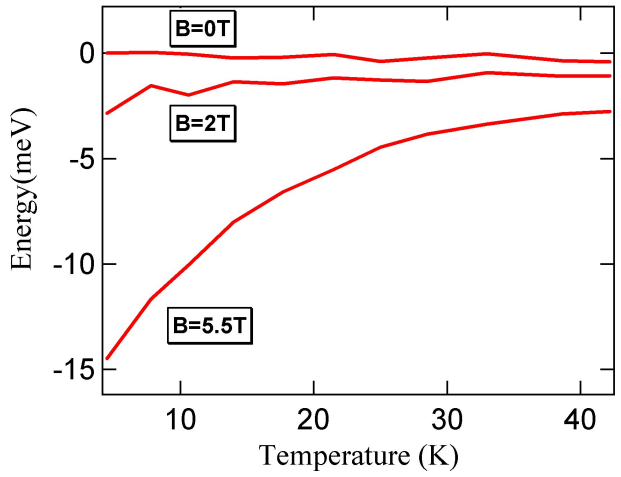

FIG. 1.10 – Dépendance en température du décalage énergétique (par rapport à l'énergie à $B = 0T$ et $T = 4,5K$) d'une raie de luminescence (ici l'exciton) pour différents champs magnétiques. Le comportement est identique pour le biexciton ainsi que pour les autres boîtes quantiques.

entre les cas avec et sans polaron. Sans polaron, l'énergie de luminescence en fonction du champ magnétique est décrite par l'effet Zeeman géant. Lorqu'on augmente la température, les Mn se désalignent et l'aimantation moyenne tend vers une valeur nulle ce qui correspond à "fermer" la fonction de Brillouin. Dans la limite d'une température infinie, la fonction de Brillouin est plate et quel que soit le champ magnétique, l'énergie de la boîte est égale à son énergie en champ nul. En l'absence de polaron, on doit donc observer -quel que soit le champ magnétique- une remontée de l'énergie de la boîte en température jusqu'à son énergie en champ nul. En revanche,

on se rappelle que la présence d'un polaron se décrit par une fonction de Brillouin décalée du champ d'échange B_{MP}. On comprend alors immédiatement qu'en présence d'un polaron, on s'attend à observer -quel que soit le champ magnétique- une remontée de l'énergie de la boîte en température jusqu'à son énergie $\hbar\omega_0$, indiquée sur la figure 1.4. $\hbar\omega_0$ est l'énergie en champ $B = -B_{MP}$ (resp. $B = +B_{MP}$) pour la polarisation σ^+ (resp. pour la polarisation σ^-), ce qui correspond à un champ total (champ extérieur et champ d'échange du trou) nul pour les Mn. Ainsi, on s'attend entre autre à observer, en champ $B = 0T$, une remontée de l'énergie de la boîte en température. D'après la figure 1.10, on conclut donc avec certitude qu'il n'existe pas de polaron dans notre système : en effet en champ nul, l'énergie de la boîte ne change pas et pour $B = 2T$ ou $B = 5,5T$ l'énergie de la boîte augmente avec la température jusqu'à saturer vers cette énergie en champ nul.

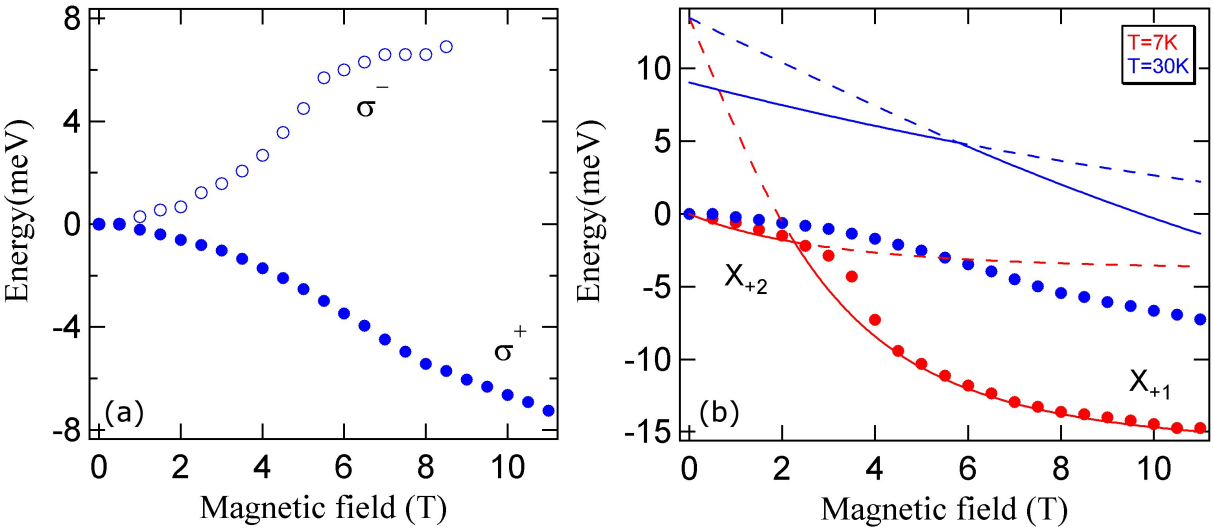

FIG. 1.11 – (a) Dépendance en champ magnétique du décalage énergétique (par rapport à l'énergie à $B = 0T$ et $T = 30K$) du maximum d'une raie de boîte (ici un exciton) dans les deux polarisations $\sigma^{\pm}$, à $T = 30K$. (b) Les montées en champ magnétique à $T = 7K$ et $T = 30K$ sont présentées ici (ronds pleins rouges et bleus resp.) pour une même raie de boîte (ici un exciton). La dépendance en température du gap a été corrigée, si bien qu'en $B = 0T$ les points se superposent. L'ajustement par le modèle proposé (traits pleins et pointillés) montre clairement que le comportement en température de notre système n'est pas celui d'un polaron magnétique. Le maximum de la raie de PL correspondrait alors aux traits pleins, les traits pointillés correspondant aux états excitoniques de plus haute énergie (brillants à bas champ et noirs à haut champ), non visibles en PL.

Pour compléter encore cette étude en température, nous avons réalisé en figure 1.11 une montée en champ magnétique à une température de $30K$ dans des conditions identiques à celle réalisée à $T = 7K$ (cf. figure1.5). Sans pour l'instant nous lancer dans une description comparative des montées en champ à ces deux températures, essayons d'ajuster ces nouvelles données avec le modèle proposé plus haut pour la formation d'un polaron sur l'exciton noir uniquement. On voit alors tout de suite que le modèle, comme on l'avait annoncé, est totalement faux. Ceci est à nouveau directement relié au fait que l'énergie en champ nul de la raie ne remonte pas avec la température alors que c'est ce qui devrait se passer dans le cas d'un polaron.

Les études de temps de déclin

L'autre méthode principale de caractérisation des polarons est de regarder leurs dépendances temporelles. On a en effet précisé que le polaron mettait un certain temps à se former (temps qui doit être inférieur au temps de vie de l'exciton si l'on veut observer le polaron). Sonder la dynamique de notre système par des expériences résolues en temps est donc sans aucun doute une bonne manière de confirmer ou d'infirmer la thèse des polarons.

Dans le cas particulier du modèle que nous avons proposé, l'exciton est censé être noir à bas champ magnétique (induisant ainsi la formation d'un polaron) et brillant à plus haut champ. Si le modèle était juste, on devrait alors logiquement s'attendre à ce que le temps de vie de l'exciton diminue en fonction du champ magnétique. Nous avons donc mis en place une expérience nous permettant de mesurer les temps de vie de boîtes individuelles en fonction du champ magnétique. Nous disposons ainsi d'une expérience de micro-spectroscopie magnéto-optique résolue en temps. En figure 1.12, nous présentons la dépendance en champ des temps de vie du biexciton et nous voyons que le temps de vie ne diminue pas du tout avec le champ. On aurait même plutôt l'impression que la tendance générale est une augmentation du temps de vie en fonction du champ. Mais si on regarde précisément les valeurs, on s'aperçoit tout simplement que la variation en fonction du champ n'est pas significative et en aucun cas représentative du passage d'un exciton noir à un exciton brillant. On souhaiterait en conclure que ceci infirme directement le modèle que nous proposions et indirectement l'hypothèse de formation d'un polaron. Malheureusement, à l'époque de ces mesures, nous n'avions pas encore identifié les différents complexes excitoniques et nous avons réalisé ces mesures sur un biexciton, qui n'est ni noir ni brillant et dont la durée de vie n'a pas de raison de changer a priori. Il est donc difficile d'en tirer une quelconque conclusion.

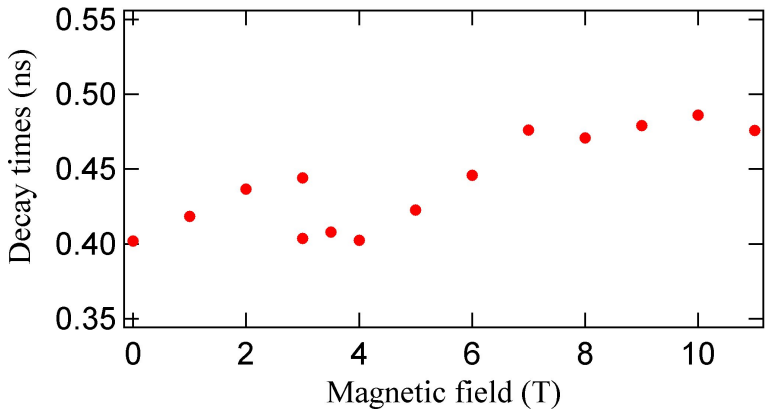

FIG. 1.12 – Les courbes de déclin de la PL du biexciton ont été mesurés à l'aide d'un laser pulsé à 450nm (Ti :Saphir + OPO) et d'une APD rapide, à $T = 7K$ pour différents champs magnétiques sur la polarisation σ^+. Des ajustements exponentiels ont permis d'en extraire les temps de vie en fonction du champ magnétique.

En revanche, une autre expérience de dynamique nous permet d'apporter une preuve directe de l'inexistence de polaron dans notre système. La dynamique de formation d'un polaron implique, s'il se forme, qu'à partir du moment où l'exciton est généré dans la boîte, l'énergie de ce dernier s'abaisse progressivement en raison de la formation du complexe polaronique. Inversement, on s'attend à ce que l'énergie du biexciton augmente progressivement du fait de la destruction du complexe polaronique. En effet, le biexciton est un état singulet et ne crée pas de champ d'échange sur les Mn. A partir du moment où le biexciton est injecté dans la boîte, le

polaron éventuellement formé sur l'exciton présent juste avant dans la boîte doit donc se détruire. Dans une expérience résolue en temps, nous devrions donc être capable de voir les manifestations de cet abaissement (exciton) ou augmentation (biexciton) de l'énergie. Notamment, si l'on place l'APD en trois positions différentes (flan haute énergie, maximum, flan basse énergie) de la raie σ^+ d'un exciton (celle que l'on observe en excitation continue), nous devrions voir, dans l'expérience résolue en temps, la chose suivante : le flan haute énergie devrait "pousser" le premier en intensité puis l'intensité du maximum de la raie devrait augmenter tandis que le flan haute énergie commencerait à diminuer et enfin le flan basse énergie devrait "pousser". Pour un biexciton, on s'attend à voir l'inverse. Cependant, nous n'observons rien de tout cela (cf. figure 1.13) : quel que soit le point où l'on se place sur la raie (ici un biexciton), on observe un temps de déclin dont la forme et le temps caractéristique sont quasiment identiques, signe que la raie ne se déplace pas en temps et qu'il n'y a pas de polaron. On pourrait toutefois émettre l'hypothèse que le polaron se forme ou se détruit si rapidement que notre résolution temporelle est insuffisante pour l'observer. Mais ceci ne tient pas : pour des concentrations en Mn de $x_{Mn} = 25\%$, le temps de formation d'un polaron a été mesuré de l'ordre de $125ps$ [54], et ce temps de formation doit augmenter lorsque x_{Mn} diminue puisque la dynamique des Mn ralentit lorsque x_{Mn} diminue.

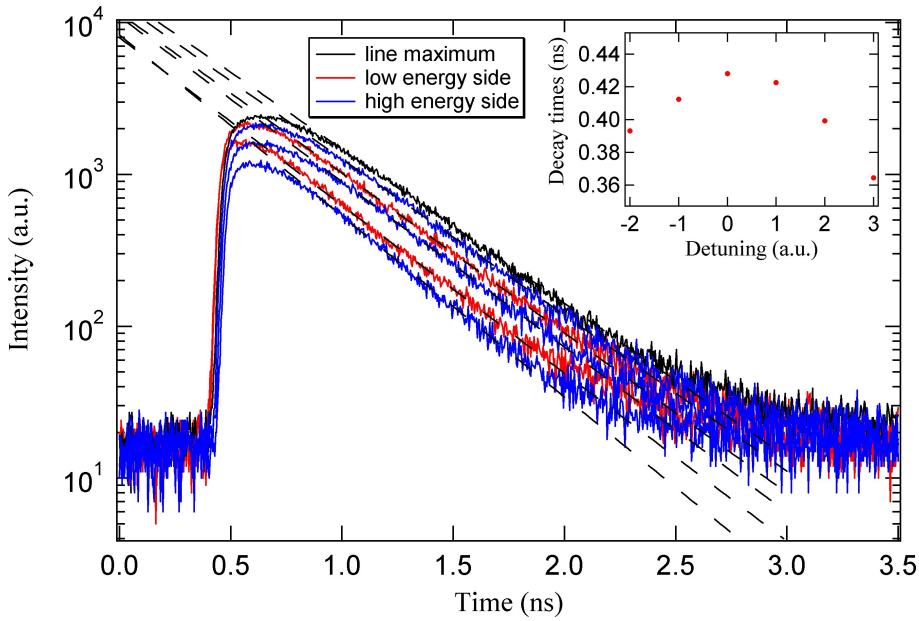

FIG. 1.13 – Courbes de déclin mesurées sur le maximum de la raie de PL du biexciton (trait noir) ainsi que sur les flans basse et haute énergie (traits rouges et bleus resp.), en des positions régulièrement espacées à $T = 7K$ et à $B = 0T$. (insert) Temps de déclin extraits d'ajustements exponentiels en fonction de la position de la détection par rapport au maximum de la raie.

Conclusion

En conclusion, on peut dire que les expériences résolues en temps et surtout les expériences en fonction de la température prouvent sans équivoque l'absence de polaron magnétique formé dans notre système.

Qui plus est, on peut ajouter que d'autres résultats infirment également mais plus ou moins fortement la formation d'un polaron. Tout d'abord, pour un polaron, on s'attend dans le cas général à observer une dissymétrie (par rapport à l'énergie en champ nul) de l'évolution sous

champ des polarisations σ^+ et σ^-. Cette dissymétrie provient tout simplement du fait que le champ d'échange du trou sur les Mn va dans un cas s'ajouter au champ extérieur et dans l'autre se soustraire. Or dans notre système, chaque fois qu'on peut l'observer, la symétrie semble être conservée. D'autre part, si un polaron se formait, on devrait observer un comportement différent pour l'exciton et le biexciton, y compris dans les expériences en excitation continue. Comme on l'a déjà dit, on s'attend à ce que le polaron se forme uniquement sur l'exciton et non pas sur le biexciton. Par conséquent, au moment de la recombinaison de l'exciton, le polaron s'est (éventuellement) formé pendant le temps de vie de l'exciton et peut être observé tandis qu'au moment de la recombinaison du biexciton le polaron a été détruit (sous réserve qu'il se soit formé auparavant) et ne peut pas être observé. Or on l'a dit, nous observons un comportement toujours identique pour l'exciton et le biexciton. Ceci infirme à nouveau l'hypothèse du polaron. Enfin, nous avons tenté de détecter un taux de polarisation non nul des Mn en champ magnétique nul en réalisant une excitation quasi-résonante polarisée circulairement. Ceci aurait pu être le signe de la formation d'un polaron [57]. Nous n'avons rien observé de tel mais ceci ne constitue qu'une très faible infirmation de la présence d'un polaron. En effet le fait que cette expérience ne fonctionne pas peut avoir de multiples explications, comme une excitation quasi-résonante de mauvaise qualité, ce qui est vraisemblablement notre cas comme on le verra en 2.

S'il est donc certain que nous n'avons pas de polaron formé dans notre système, il reste toutefois à comprendre pourquoi et dans quel cas on peut s'attendre à l'observer. On a expliqué que la formation du polaron était reliée à la dynamique des Mn, dans les boîtes comme dans les puits ou le massif. Pour qu'il ait le temps de se former pendant le temps de vie de l'exciton, cette dynamique doit donc être plus rapide que le temps de vie de l'exciton. Or, dans les puits ou le massif, cette dynamique est de plus en plus lente au fur et à mesure que l'on diminue la concentration en Mn x_{Mn} [53], et la tendance devrait être la même dans les boîtes. Ainsi le rapport du temps de formation du polaron sur le temps de vie de l'exciton, mesuré dans des couches épaisses, est censé devenir supérieur à 1 pour des concentrations inférieures à $x_{Mn} \approx 7\%$ [49], ce qui empêche donc sa formation pour des concentrations trop faibles. D'autre part, toutes les observations de polarons magnétiques dans des boîtes ont été faites à des concentrations bien plus élevées que dans notre cas [58, 43, 52, 59] ; la concentration la plus faible à laquelle a été observé un polaron étant $x_{Mn} = 7\%$ [42]. En définitive, il est donc tout à fait cohérent de ne pas observer de polaron dans nos échantillons où $x_{Mn} = 1,5\%$ et plus généralement dans des échantillons dont la concentration en Mn est trop basse (typiquement plus petite que 5% à 10%).

S'il peut paraître a posteriori évident, au vu de tous ces arguments, que la formation de polaron était impossible dans notre système, nous pensons qu'il était malgré tout important de le discuter. On retiendra donc que l'on a acquis la certitude que le polaron n'est pas la seule alternative à l'effet Zeeman géant dans les boîtes quantiques magnétiques. De plus on sait désormais dans quels cas on peut s'attendre à observer des effets liés à la formation de polarons magnétiques et de manière plus rigoureuse quelles sont les expériences (en température et en temps résolu) qui permettent d'étudier la présence et les éventuelles caractéristiques de ces polarons.

Chapitre 2

Equilibre dynamique des spins de Mn

Sommaire

2.1 Equilibre dynamique contrôlé par le champ magnétique : interprétation qualitative du phénomène 56

2.1.1 Une dépendance en champ magnétique inattendue et singulière . . 56

2.1.2 Explication qualitative : quatre idées clefs ! 58

2.2 Modélisation théorique et numérique : compréhension quantitative 64

2.2.1 Modélisation théorique du système 65

2.2.2 Résolution numérique 78

2.2.3 Analyse et discussions des simulations numériques 80

2.3 Equilibre dynamique contrôlé par d'autres paramètres : température, puissance, concentration en Mn 87

2.3.1 Compréhension du rôle théorique des différents paramètres via la modélisation numérique 87

2.3.2 Contrôle expérimental de l'effet d'équilibre dynamique des Mn . . . 93

2.4 Expériences complémentaires confirmant le modèle 97

2.4.1 Chauffage des spins de Mn dans un puits fin 97

2.4.2 Disparition du chauffage des spins de Mn en excitation quasi-résonante ? 100

2.5 Au-delà du modèle 102

2.5.1 Les hypothèses essentielles du modèle 102

2.5.2 Mécanisme de chauffage indirect des spins de Mn 104

2.5.3 La boîte quantique : une sonde locale... mais pas seulement ! 105

Nous allons maintenant présenter le phénomène d'équilibre dynamique des spins de Mn que nous avons expérimentalement mis en évidence dans les boîtes quantiques. La première partie s'attachera à fournir une synthèse qualitative et simple du phénomène. C'est la partie à lire avant toute autre. Les deux suivantes proposeront une modélisation théorique et numérique plus rigoureuse de l'équilibre dynamique des Mn qui sera confrontée à l'expérience. Puis la quatrième partie présentera des expériences annexes confirmant le modèle tandis que la cinquième partie expliquera les limites de ce modèle et à quelles conditions il peut être généralisé.

2.1 Equilibre dynamique contrôlé par le champ magnétique : interprétation qualitative du phénomène

Si l'effet que nous avons observé (cf. figure 2.1), qui présente un écart plus qu'évident à l'effet Zeeman géant "standard", ne peut pas s'expliquer par la formation de polaron (cf. 1), c'est qu'il nous faut imaginer un nouveau mécanisme physique capable de rendre compte de ce phénomène. Commençons par ré-analyser de près nos observations expérimentales pour voir si elles ne contiennent pas des informations qui nous mettraient sur quelque piste...

2.1.1 Une dépendance en champ magnétique inattendue et singulière

Rappelons que les spectres présentés en figure 2.1 sont des spectres de photoluminescence de boîtes quantiques uniques dopées avec $x_{Mn} = 1,5\%$ (échantillon M1736), obtenus sous excitation continue non résonante (et polarisée linéairement) à $514nm$ (soit $2412meV$ donc dans les barrières) à $T = 7K$. Les deux polarisations circulaires σ^+ et σ^- sont détectées en fonction du champ magnétique. Comme on l'a déjà précisé, la dépendance atypique en champ magnétique

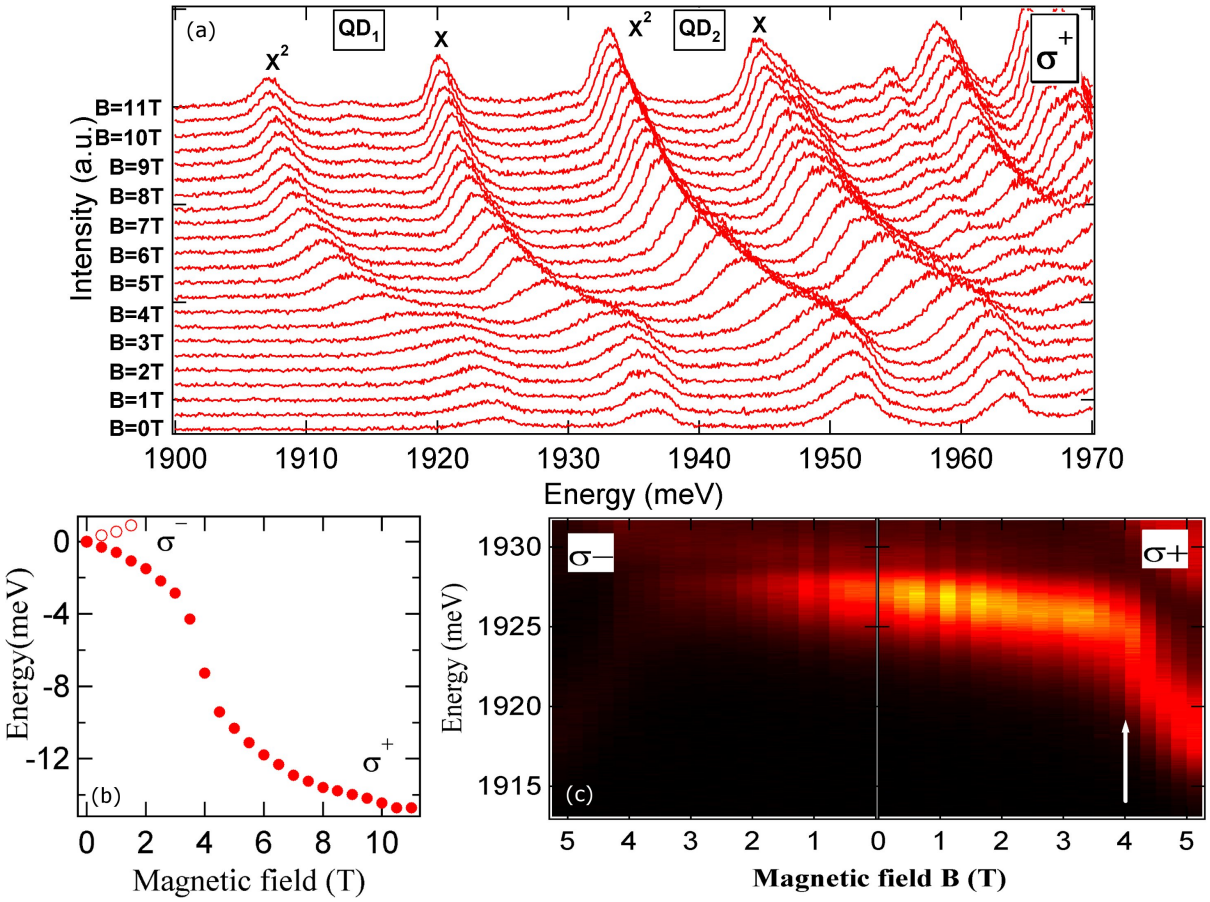

FIG. 2.1 – (a) Spectres de micro-PL à $T = 7K$ en polarisation σ^+ de $B = 0T$ à $B = 11T$ tous les $0,5T$. (b) Décalage énergétique du maximum d'une raie unique de boîte quantique (ici un exciton) en fonction du champ magnétique dans les deux polarisations $\sigma^{\pm}$. (c) Zoom (spectre tous les $0,25T$) sur la zone de champ magnétique où se produit la transition (ici pour un biexciton). Le champ critique B_c auquelle se produit cette transition est indiqué par une flèche blanche.

de notre système ne peut ni s'expliquer par l'effet Zeeman géant (habituellement observé dans les semi-conducteurs magnétiques dilués et bien décrit par une fonction de Brillouin), ni par un modèle quelconque de polaron magnétique (a priori seule alternative à l'effet Zeeman géant dans les boîtes magnétiques). Comment alors expliquer le phénomène observé ?

Le premier indice dont nous disposons vient du fait que l'exciton et le biexciton ont exactement le même comportement. Comme on l'a fait remarqué en 1.1.3, ceci peut s'expliquer par un effet d'orientation des Mn sous champ[4]. Sans bien sûr que cela constitue une preuve, on supposera que la dépendance en champ de notre système peut être attribuée à un effet des Mn.

Partant, on va essayer de comprendre plus en détail le comportement de ces Mn, notamment en quantifiant cette orientation des Mn en fonction du champ magnétique. Or, il se trouve que le décalage énergétique de la polarisation σ^+ (ou σ^- quand elle est visible) nous renseigne sur l'orientation moyenne de l'ensemble des Mn $\left\langle S_z^{tot} \right\rangle$ (par unité de volume) :

$$E_X^{\sigma^\pm}(B) = E_X^{\sigma^\pm}(B=0) \pm \frac{\alpha - \beta}{2} \left\langle S_z^{tot} \right\rangle \tag{2.1}$$

$E_X^{\sigma^\pm}$ est l'énergie du photon émis par l'exciton dans la polarisation σ^+ ou σ^-. Notons que pour un champ magnétique positif, on a $\left\langle S_z^{tot} \right\rangle < 0$ et c'est donc bien la polarisation σ^+ qui se retrouve à basse énergie. De plus, on a utilisé ici le formalisme des intégrales d'échange valable pour un puits mais, quand on traitera plus rigoureusement le problème en 2.2, on verra que l'on peut appliquer le même raisonnement pour une boîte. Nous avons donc accès à l'orientation $\left\langle S_z^{tot} \right\rangle$ des Mn en fonction du champ mais on peut aller plus loin en comprenant par quoi cette orientation est contrôlée. Nous avons vu en I 1.3 que cette orientation dépend de la température des Mn. Dans le cas où les Mn sont en équilibre thermodynamique à la température T (généralement celle du réseau) la dépendance de $\left\langle S_z^{tot} \right\rangle$ en fonction du champ se décrit par une fonction de Brillouin :

$$\left\langle S_z^{tot} \right\rangle = -x_{eff} N_0 \frac{5}{2} B_{\frac{5}{2}}\left(\frac{\frac{5}{2} g_{Mn} \mu_B B}{k_B (T + T_{AF})}\right) \tag{2.2}$$

Or il se trouve que, de manière générale, l'ajustement des données expérimentales par une fonction de Brillouin est d'une précision remarquable ; ce qui fait de l'effet Zeeman géant (via les deux équations précédentes) un excellent thermomètre pour sonder la température des Mn.

Evidemment, dans notre cas, on ne peut pas ajuster l'ensemble de la courbe par une fonction de Brillouin, ce qui signifie que les Mn ne conservent pas une température fixe quel que soit le champ. En revanche, on peut définir une température de spin effective T_{Mn} pour les Mn de la manière suivante : quand les Mn ne sont pas thermalisés au contact d'un thermostat, ils ont a priori une répartition quelconque sur les six états quantiques du Mn et le rapport des populations de deux états successifs n'est plus un poids de Boltzmann du type $exp(-\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T})$. Mais on suppose que ce rapport reste identique pour chaque paire d'états successifs. Ce rapport peut alors s'écrire $exp(-\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_{Mn}})$, ce qui définit une température pour le Mn, dite température de spin[5]. On peut alors ajuster les différentes parties de la courbe en figure 2.2 par des fonctions de Brillouin à des températures T_{Mn} différentes. Ceci nous permet d'isoler deux régimes : le régime

[4] A condition que cette orientation se fasse sur un temps long devant les temps de vie de l'exciton et du biexciton. Ce n'est pas le cas pour un polaron, ce qui explique que l'exciton et le biexciton ont alors des comportements différents.

[5] Rigoureusement, on ne peut définir à coup sûr une température de spin que pour un système à deux niveaux i.e. un spin $\frac{1}{2}$. C'est pour cela qu'on parle ici d'une température de spin "effective" du Mn et qu'on ne parlera de Mn "chauds" ou "froids" qu'avec des guillemets. Mais ceci n'a pas trop d'importance dans la mesure où on n'utilise T_{Mn} que pour expliquer qualitativement le phénomène, la description théorique rigoureuse ne faisant pas appel à ce concept comme on le verra par la suite.

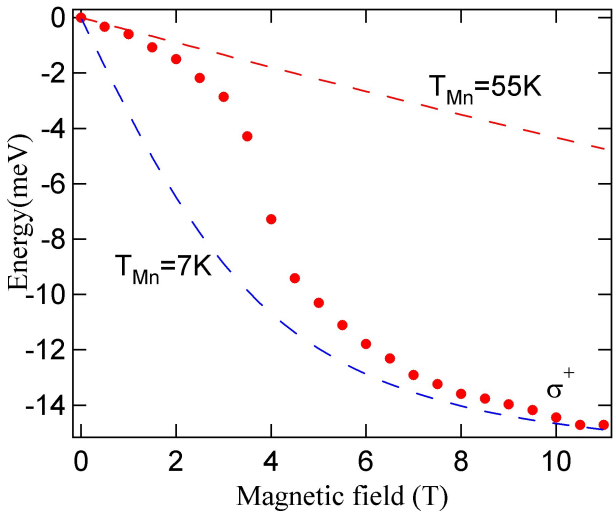

FIG. 2.2 – Décalage énergétique expérimental d'une raie (ici un exciton) en polarisation σ^+ (par rapport à sa position en champ nul) en fonction du champ (ronds rouges). L'ajustement des différentes portions de la courbe par des fonctions de Brillouin nous indiquent que la température des Mn dépend du champ B (traits pointillés bleu et rouge).

à bas champ semble caractérisé par des Mn "chauds" à une température $T_{Mn} = 55K$ tandis que le régime à fort champ met plutôt en évidence des Mn "froids" à $T_{Mn} = 7K$. La température du cryostat étant fixée à $T = 7K$, on aurait tendance à dire qu'il existe un phénomène de chauffage dépendant du champ magnétique et se manifestant principalement à bas champ.

Enfin, on observe un régime transitoire autour de $B = B_c = 4T$ qui présente une transition très brutale entre le régime "chaud" et le régime "froid". Cette transition abrupte fait penser à un effet de seuil caractéristique des boucles de rétroactions positives. C'est ce type de boucle qui est à l'oeuvre dans l'effet Larsen ou l'effet LASER par exemple.

Armés de ces premières analyses, voyons maintenant comment expliquer plus finement ce phénomène.

2.1.2 Explication qualitative : quatre idées clefs !

On présentera ici une explication entièrement qualitative du phénomène observé avant d'en développer une modélisation plus rigoureuse en 2.2. Le but est donc pour le moment de faire ressortir les idées physiques qui sont à l'oeuvre dans notre système. Elles sont au nombre de quatre. Quatre idées simples seulement. Et l'on pourra considérer qu'après les avoir comprises, on aura saisi l'essentiel de la physique de cette partie II.

Compétition entre deux thermostats : équilibre dynamique des Mn

Nous venons de voir que la température de spin des Mn T_{Mn} n'est pas constante en fonction du champ magnétique. Pour expliquer cette observation, il est nécessaire de supposer que les Mn interagissent simultanément avec deux réservoirs différents. On verra que ces deux réservoirs peuvent être dans notre cas modélisés par deux thermostats, chacun à une température différente[6]. Ces deux thermostats sont alors en compétition, chacun cherchant à imposer sa tem-

[6]Dans la suite de ce manuscrit, on désignera par réservoir un système ou sous-système qui peut échanger de l'énergie et du moment cinétique avec l'extérieur et on appellera thermostat un réservoir pour lequel on peut

pérature aux Mn avec lesquels ils sont en contact (cf. figure 2.3). Les Mn ne sont donc plus à l'équilibre thermodynamique. Mais dans une expérience en excitation continue comme la nôtre, les Mn vont atteindre un régime stationnaire où les influences de chacun des deux thermostats vont se "compenser" : on parle d'équilibre dynamique. On peut alors décrire l'état des Mn par une température effective comprise entre les températures des deux thermostats[7]. Notons enfin qu'ici les réservoirs doivent être non seulement des réservoirs d'énergie mais également des réservoirs de spin. En effet, pour thermaliser, les spins de Mn doivent pouvoir échanger énergie et spin à la fois (plus généralement énergie et moment cinétique) puisqu'un changement de leur état énergétique s'accompagne d'un changement de leur état de spin et réciproquement.

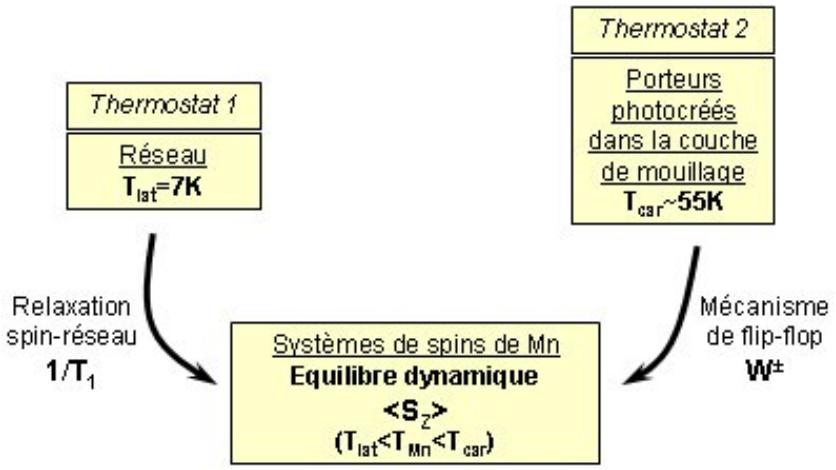

FIG. 2.3 – Schéma des différents réservoirs et de leurs interactions. Le système de Mn interagit simultanément avec deux réservoirs différents. La compétition entre ces deux réservoirs se manifeste par un équilibre dynamique des Mn.

Le premier des deux réservoirs est bien évidemment le réseau cristallin. On considèrera que sa température appelée T_{lat} est déterminée et égale à la température $T = 7K$ du cryostat : $T_{lat} = 7K$. Ce réservoir (qui est donc un thermostat) échange énergie et moment cinétique à un taux $\frac{1}{T_1}$ où T_1 est justement le temps de relaxation spin-réseau[8]. Cette façon de décrire les choses peut se voir comme purement phénoménologique : elle se contente de dire que le temps caractéristique de relaxation des Mn vers leur état d'équilibre thermodynamique, lorsqu'ils sont en contact uniquement avec le réseau, est le temps T_1 que l'on peut mesurer expérimentalement [53].

Le second réservoir est composé par les porteurs chauds photocréés par l'excitation laser au voisinage de la boîte, plus précisément dans la couche de mouillage. Nos échantillons ne sont pas intentionnellement dopés et tous les porteurs dont nous parlerons seront donc des porteurs photocréés. Injectés par excitation optique dans les barrières, ils possèdent un excès important d'énergie cinétique ce qui fait qu'on peut les considérer comme des porteurs chauds [62, 63, 64, 65]. Plus exactement, on peut faire cette hypothèse à condition de considérer que ces

définir une température.

[7]Précisons à nouveau qu'en toute rigueur, une température de spin d'un spin $\frac{5}{2}$ n'est pas forcément définie.

[8]La capacité du réseau à échanger de l'énergie avec les Mn sous forme de phonons se conçoit assez simplement. En revanche, sa capacité à échanger du moment cinétique afin d'autoriser la modification de l'état de spin des Mn, quoique plus complexe à comprendre, existe tout autant : on pourra consulter avec un peu de courage les références [60, 61] -qui décrivent deux des multiples mécanismes responsables de la relaxation spin-réseau- pour s'en persuader.

porteurs interagissent avec les Mn plus vite qu'ils n'interagissent avec le réseau qui a tendance à les termaliser à $T = 7K$. Ainsi, les porteurs interagissent avec les Mn alors qu'ils sont encore chauds (par rapport à la température du réseau $T = 7K$ bien entendu). On supposera de plus que ces porteurs ont eu le temps de thermaliser les uns avec les autres en un temps encore plus court que leur temps d'interaction avec les Mn ou avec le réseau, si bien qu'on peut les décrire par une température appelée T_{car}. On comprend bien qu'il faut que cette température, celle du thermostat chaud, soit au moins égale à celle des Mn "chauds" soit $T_{Mn} = 55K$ (cf. figure 2.2). Cette valeur sera confirmée par la résolution numérique du modèle en 2.2. On va alors pouvoir décrire la distribution énergétique de nos porteurs par une fonction de Fermi-Dirac à la température $T_{car} = 55K$. On considérera également que les porteurs qui interagissent avec les Mn et sont responsables du phénomène observé sont localisés dans la couche de mouillage. La couche de mouillage est la couche quasi-bidimensionnelle qui se forme sous la couche de boîtes quantiques au moment de la croissance (cf. figure I 2.2). On modélisera cette couche comme une couche 2D et nos porteurs comme des porteurs 2D. Au final, le second réservoir est donc un thermostat constitué d'un gaz de porteurs 2D, localisé dans la couche de mouillage et thermalisé à une température $T_{car} = 55K$. Ce thermostat va interagir avec les Mn par un processus de flip-flop : ce processus consiste en un retournement simultané du spin d'un porteur et d'un spin de Mn. Le porteur et le Mn échangent alors une unité de spin et la conservation de l'énergie est assurée par la modification de l'énergie cinétique du porteur comme on le verra. Les probabilités W^+ et W^- (suivant le sens de retournement du spin du Mn) de ce processus seront calculées et représentent le taux caractéristique de relaxation Mn-porteurs. A ce stade, on peut se demander pourquoi on ne considère pas tout simplement l'interaction des porteurs localisés dans la boîte avec les Mn, au lieu de faire appel aux porteurs de la couche de mouillage. Comme on le verra en 2.5, en raison de leur caractère 0D, les porteurs de la boîte ont une densité d'états discrète et l'énergie échangée entre un porteur et un Mn ne peut en général pas être conservée, ce qui bloque un éventuel processus de flip-flop des Mn avec les porteurs 0D.

L'équilibre dynamique des Mn résulte donc de la compétition de deux thermostats à deux températures différentes et avec des temps caractéristiques d'interaction différents. Pour le moment, cet équilibre dynamique peut être compris de la manière schématique suivante : la température de spin effective des Mn T_{Mn} est déterminée par la moyenne des deux températures T_{lat} et T_{car}, pondérée par les probabilités d'interaction $\frac{1}{T_1}$ et $W^{\pm}$ respectivement.

Interaction Mn-porteurs contrôlée par le champ magnétique : transition "chaud", "froid"

Maintenant que nous comprenons que le système de Mn peut acquérir une température plus haute que celle du réseau en considérant un réservoir de porteurs chauds, essayons de comprendre pourquoi cette température est modulée par le champ magnétique. La raison est toute simple : c'est la mise en contact des Mn avec le réservoir de porteurs qui est modulée. Plus précisément c'est la probabilité $W^{\pm}$ de l'interaction Mn-porteurs qui est modulée. Si cette probabilité chute à zéro par exemple ($W^{\pm} \approx 0$), on comprend que c'est équivalent à dire que les Mn n'interagissent pas avec les porteurs. Ils thermalisent alors uniquement avec le réseau et on obtient des Mn "froids" à $T_{Mn} = T_{lat} = 7K$. Inversement si cette probabilité est très grande ($W^{\pm} >> \frac{1}{T_1}$), les Mn vont interagir presque exclusivement avec les porteurs et thermaliser à $T_{Mn} = T_{car} = 55K$. On obtient des Mn "chauds".

Examinons donc pourquoi cette probabilité $W^{\pm}$ dépend du champ magnétique. D'après la figure 2.4, à bas champ magnétique, les mécanismes de flip-flop sont autorisés : en effet il est possible de retourner simultanément un spin de Mn et le spin d'un porteur tout en conservant

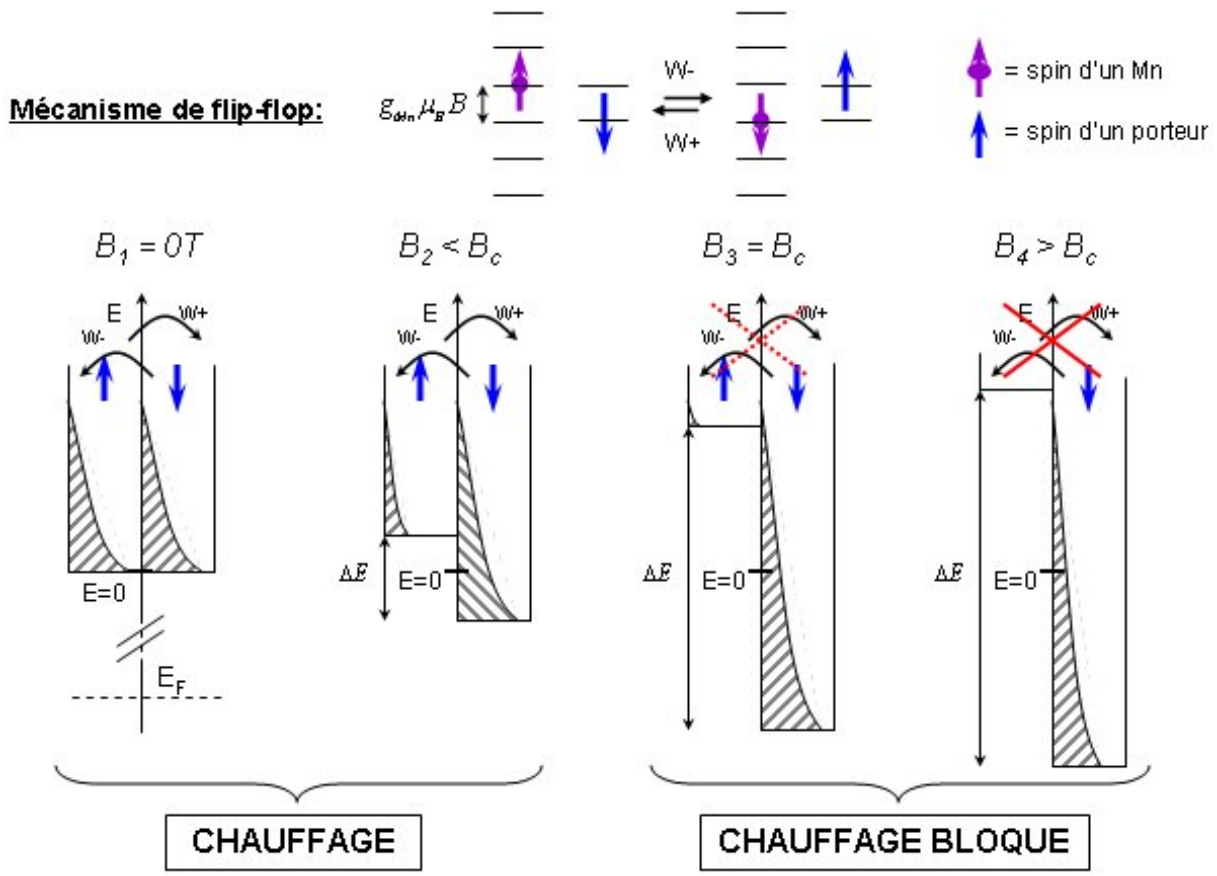

FIG. 2.4 – Schéma du processus de flip-flop entre spins de Mn et porteurs. A bas champ, le processus est autorisé alors qu'il est interdit à haut champ. Ceci induit un processus de chauffage des Mn dépendant du champ.

l'énergie. L'énergie échangée entre le Mn et le porteur est égale à $g_{Mn}\mu_B B$ (écart énergétique entre deux niveaux Zeeman successifs d'un Mn) et est cédée ou gagnée par le réservoir de porteurs grâce à la modification de l'énergie cinétique du porteur. En revanche, à plus haut champ, ce processus de flip-flop devient interdit car il ne respecte plus la conservation de l'énergie : en effet, l'écart énergétique ΔE entre les deux sous-bandes de spins du gaz de porteurs 2D est contrôlé par l'effet Zeeman géant et devient donc assez important (à champ suffisamment élevé) pour polariser presque complètement les porteurs. L'énergie $g_{Mn}\mu_B B$ échangée avec le Mn est alors trop petite pour retourner le spin d'un porteur d'un état initialement occupé d'une sous-bande de spin vers un état vide de l'autre sous-bande de spin. Le processus de flip-flop est bloqué, les probabilités $W^{\pm}$ chutent et le transfert d'énergie et de spin des porteurs vers les Mn cesse.

Au final, on part d'une situation à bas champ magnétique où la probabilité d'interaction Mn-porteurs est grande ($W^{\pm} >> \frac{1}{T_1}$) ce qui génère un effet de chauffage important des spins de Mn par les porteurs chauds. Puis, en augmentant le champ magnétique, on évolue vers une situation où la probabilité d'interaction Mn-porteurs est de plus en plus petite ($W^{\pm} << \frac{1}{T_1}$) ce qui revient à couper ce processus de chauffage. On assiste alors à une transition d'un régime "chaud" vers un régime "froid", et cette transition est contrôlée par le champ magnétique appliqué.

Interaction Mn-porteurs soumise à une boucle de rétroaction positive : effet de seuil

Il reste toutefois à comprendre pourquoi cette transition est si abrupte et paraît se faire d'un seul coup dès lors que l'on dépasse un certain champ critique B_c. Comme on l'a déjà fait remarquer, ceci n'est pas sans rappeler l'effet de seuil typique d'une boucle de rétroaction positive, présente dans de très nombreux domaines de la physique. L'effet Larsen en est une par exemple. Lorsqu'on approche un microphone du haut-parleur sur lequel il est branché, on entend un son strident suffisamment désagréable pour nous forcer à éloigner le micro au plus vite. Que se passe-t-il exactement ? Le moindre son capté par le micro est transmis vers le haut-parleur qui l'amplifie ; le micro capte alors un son plus important qui de nouveau est transmis vers le haut-parleur et amplifié plus fortement encore, et ainsi de suite jusqu'à l'infini... Dans la réalité, il y a en fait toujours une saturation quelconque qui limite l'amplitude du phénomène mais l'idée est là : quasi-instantanément, le volume sonore est décuplé !

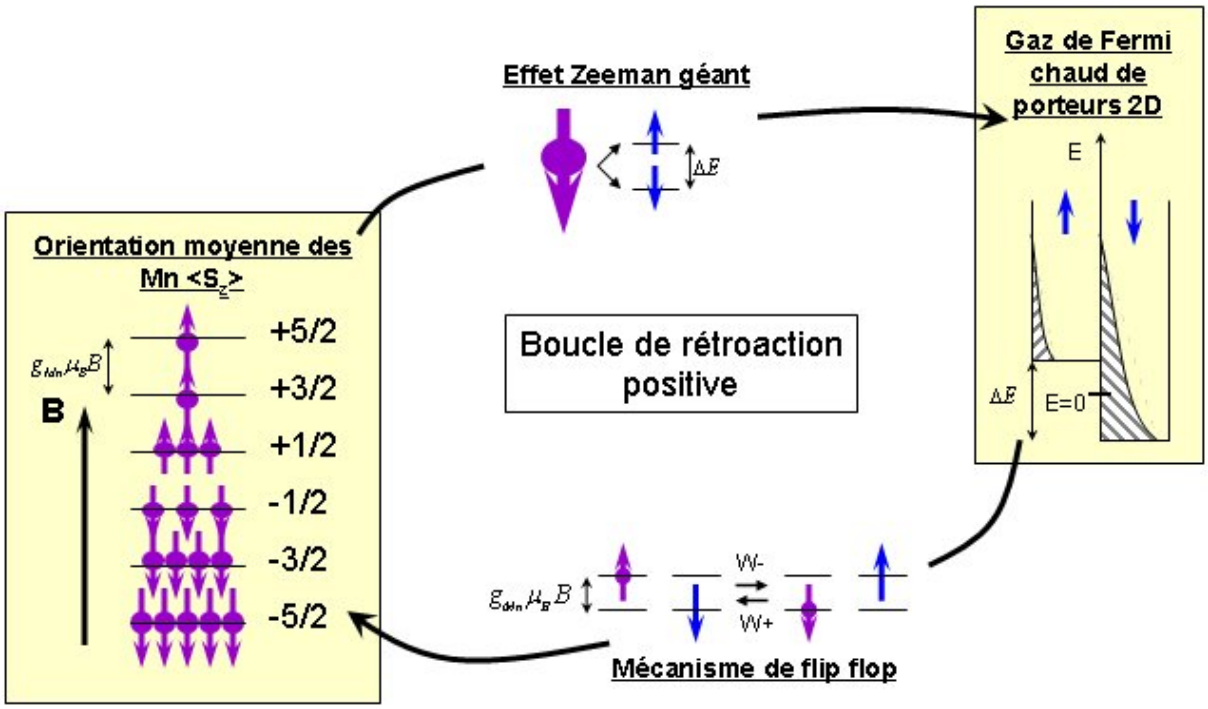

Fig. 2.5 – Schéma du principe de la boucle de rétroaction positive qui régit l'interaction entre le système de spins de Mn et le réservoir de porteurs 2D. C'est cette rétroaction qui est responsable de la rapidité avec laquelle la transition chaud-froid se produit.

Dans notre système, c'est la même idée, illustrée en figure 2.5 : l'interaction entre le système de spins de Mn et le réservoir de porteurs est contrôlée par une boucle de rétroaction positive. Supposons qu'à un instant donné, pour une raison ou pour une autre (par exemple parce qu'on a baissé un tout petit peu le champ magnétique), on chauffe un peu le système de spins de Mn. Or, on l'a désormais compris, augmenter la température des Mn T_{Mn} se décrit plus rigoureusement en disant que l'orientation moyenne des Mn $\langle S_z^{tot} \rangle$ diminue (en valeur absolue). Ceci induit donc une diminution de l'écart énergétique Zeeman géant ΔE entre les deux sous-bandes de spin du gaz de porteur 2D ce qui, par suite, diminue la polarisation du gaz de porteurs. En retour, ceci génère un fort effet de chauffage des porteurs sur les Mn. En effet, lorsque la polarisation du gaz de porteurs diminue, ceci conduit à une augmentation des probabilités de flip-flop $W^{\pm}$ et

donc à un effet de chauffage accru comme on l'a vu. Au final, ceci entraîne une réduction plus poussée de l'orientation moyenne des Mn $\langle S_z^{tot} \rangle$ (ou une augmentation supplémentaire de leur température T_{Mn} si l'on préfère). Et ainsi de suite...

Nous sommes bien en présence d'une interaction Mn-porteurs du type boucle de rétroaction positive, responsable comme on le verra, de la chute très brutale de la probabilité d'interaction Mn-porteurs $W^{\pm}$ à un champ magnétique donné. C'est ce qui explique la transition abrupte autour du champ critique B_c d'un régime de Mn "chauds" vers un régime de Mn "froids".

La boîte quantique : une sonde locale de l'aimantation

Jusqu'à présent, nous n'avons pas encore considéré le rôle des boîtes quantiques et on pourrait remarquer que la physique décrite jusqu'à présent pourrait tout autant avoir lieu dans une vraie couche 2D, autrement dit un puits quantique. C'est tout à fait vrai et l'influence importante des porteurs sur les spins de Mn dans les puits a d'ailleurs été démontrée à plusieurs reprises : l'orientation des spins de Mn, par exemple, peut être fortement affectée sous champ et peut présenter des écarts à l'effet Zeeman géant "standard" de type Brillouin [66] ; il a aussi été montré que la diffusion de ces porteurs 2D pouvait conduire à des instabilités thermiques entraînant la formation de domaines de spins "chauds" et "froids", de manière plutôt indirecte d'abord [67, 68, 69], puis de manière plus flagrante [70, 71].

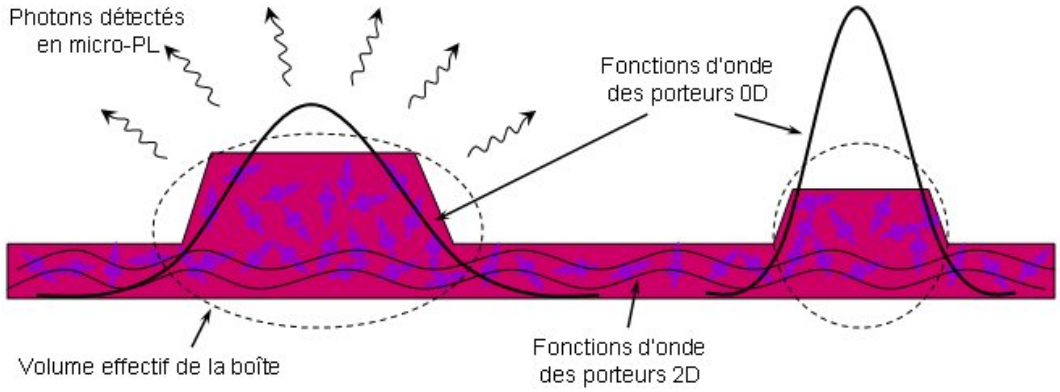

Fig. 2.6 – Schéma de la forme géométrique des boîtes quantiques et de la couche de mouillage. Les Mn de la couche de mouillage sont chauffés par interaction avec les porteurs 2D de cette même couche. Puis l'aimantation des Mn s'homogénéise par diffusion rapide de spin. Enfin, cet aimantation est sondée par les porteurs 0D de la boîte (dont le volume "effectif" est entouré par des traits pointillés) que l'on détecte en micro-PL. La boîte est donc une sonde locale de l'état de spin des Mn.

En revanche, c'est la première fois que l'effet est observé dans une boîte quantique. Pour cela, la boîte quantique est utilisée comme une sonde locale de l'orientation moyenne $\langle S_z^{tot} \rangle$ qui résulte de l'équilibre dynamique des Mn en contact à la fois avec le réseau et le gaz de porteurs 2D (cf. figure 2.6). Pour bien comprendre cette capacité de la boîte à sonder l'aimantation locale résultant d'une interaction avec des porteurs 2D, il faut avoir conscience que les Mn sont présents en concentrations égales dans les boîtes et dans la couche de mouillage. Or, on rappelle que l'interaction Mn-porteurs est une interaction de contact : les Mn ayant une fonction d'onde proche d'un pic de Dirac, il faut que les fonctions d'onde des porteurs les recouvrent pour que l'interaction soit non nulle. Par conséquent, les porteurs 2D, localisés dans la couche de mouillage, interagissent uniquement avec les Mn de la couche de mouillage, qui deviennent alors "chauds".

En revanche, les Mn situés dans les boîtes et qui n'interagissent pas avec les porteurs 2D (qui sont les seuls à pouvoir générer des processus de flip-flop, on le rappelle), devraient rester "froids". Toutefois, sur une échelle de temps plus courte que toutes les autres, les interactions spin-spin entre les différents Mn permettent l'homogénéisation locale de l'aimantation via la diffusion de spin [72]. Au final, les Mn situés à l'intérieur du volume de la boîte sont tous "chauds". On peut alors sonder leur orientation moyenne $\langle S_z^{tot} \rangle$ par micro-PL, qui détecte l'écart énergétique Zeeman géant induit par ces Mn sur les porteurs 0D de la boîte comme expliqué en 1.3.

Enfin, on verra que l'effet des boîtes ne se résume pas à sonder localement l'aimantation et réserve quelques surprises. Mais afin de bien saisir ces subtilités, on reviendra sur l'intérêt des boîtes après avoir modélisé quantitativement notre système.

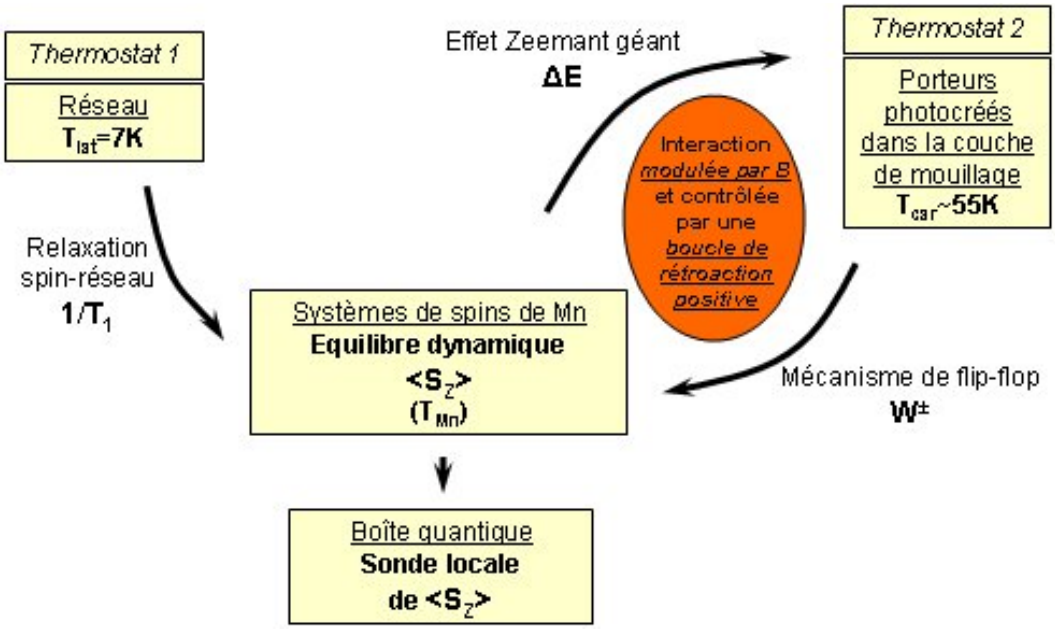

FIG. 2.7 – Schéma de l'ensemble du système.

En figure 2.7, on rappelle le schéma de l'ensemble de notre système. L'orientation moyenne des Mn $\langle S_z^{tot} \rangle$ résulte d'un équilibre dynamique issu de l'interaction simultanée et compétitive de deux réservoirs : d'une part le réseau (thermostat froid) et d'autre part le gaz 2D de porteurs photocréés dans la couche de mouillage (thermostat chaud) dont l'interaction est contrôlée par une boucle de rétroaction positive et modulée par le champ magnétique. Enfin, la boîte quantique permet de sonder localement cette orientation $\langle S_z^{tot} \rangle$.

2.2 Modélisation théorique et numérique : compréhension quantitative

Nous allons maintenant passer à la modélisation du système. La manière rigoureuse de décrire l'état d'équilibre dynamique des Mn est d'écrire les équations d'évolution des populations sur chacun des 6 états Zeeman des spins de Mn $\frac{5}{2}$. Connaissant ainsi le nombre moyen de Mn dans chaque état de spin à tout instant, on peut évidemment en déduire la valeur moyenne $\langle S_z \rangle$ au cours du temps. On a ainsi accès à la dynamique des Mn et l'état d'équilibre dynamique correspond à l'état stationnaire de cette dynamique lorsque les "influences" des deux réservoirs se compensent.

On comprend que dans le cas général, le rapport des populations de deux états Zeeman successifs n'est pas nécessairement identique pour chaque pair d'états et du type $exp(-\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_{Mn}})$. Ainsi, la bonne grandeur pour décrire l'état des Mn n'est pas T_{Mn} mais $\langle S_z \rangle$, qui décrit n'importe quelle distribution statistique des spins de Mn, qu'elle soit thermodynamique ou pas.

2.2.1 Modélisation théorique du système

Equations d'évolution

Un ion Mn porte un spin $\frac{5}{2}$ et sous champ magnétique, la dégénérescence entre ses six états de spin est levée (cf. figure 2.8). On peut désigner par N_{S_z} le nombre de spins de Mn dont la

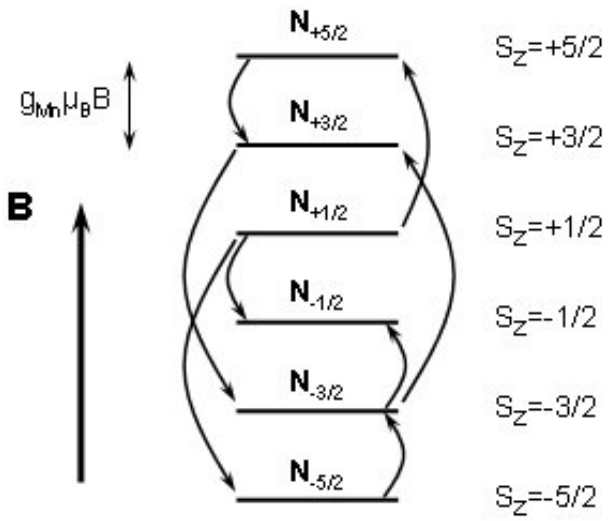

FIG. 2.8 – Schéma des six états quantiques du Mn. Les éventuelles probabilités de transition d'un état à l'autre sont indiquées par des flèches (dessinées ici au hasard).

projection suivant z est S_z (la probabilité de trouver un spin de projection S_z est alors $\frac{N_{S_z}}{N}$ où N est le nombre total de Mn). N_{S_z} est appelé population du niveau S_z. On pourra alors, en particulier, accéder à $\langle S_z \rangle$, via une simple moyenne statistique :

$$\langle S_z \rangle = +\frac{5}{2}\frac{N_{+\frac{5}{2}}}{N} + \frac{3}{2}\frac{N_{+\frac{3}{2}}}{N} + \frac{1}{2}\frac{N_{+\frac{1}{2}}}{N} - \frac{1}{2}\frac{N_{-\frac{1}{2}}}{N} - \frac{3}{2}\frac{N_{-\frac{3}{2}}}{N} - \frac{5}{2}\frac{N_{-\frac{5}{2}}}{N} \tag{2.3}$$

On va donc chercher à déterminer l'évolution temporelle de ces populations, bien décrite, pour chaque population, par une équation dite d'évolution du type :

$$\frac{dN_{S_z}}{dt} = -\gamma_1 N_{S_z} - \gamma_2 N_{S_z} + \gamma_3 N_{S_z+1} + \gamma_4 N_{S_z-1} ... \tag{2.4}$$

Chaque population peut ainsi être peuplée ou dépeuplée en fonction des probabilités (ici notées γ_i) de transition d'un niveau vers l'autre (probabilité de retournement d'un spin). Ces probabilités de transition sont conditionnées par les probabilités d'échange d'énergie et de spin du système de Mn avec les réservoirs avec lesquels il est en contact. Nous allons donc décrire ces probabilités pour chacun des deux réservoirs qui nous intéressent : le réseau puis les porteurs 2D.

Interaction Mn-réseau

La description de l'interaction Mn-réseau, communément baptisée interaction spin-réseau peut être décrite de manière phénoménologique. On part du principe que l'on connaît l'état d'équilibre thermodynamique des Mn lorqu'ils sont uniquement en contact avec le réseau dont la température est notée T_{lat} (a priori identique à la température du cryostat T). Cet état d'équilibre se calcule simplement grâce à la physique statistique et se décrit par une fonction de Brillouin[9] (cf. équation I 1.12) :

$$\langle S_z^{eq} \rangle = -\frac{5}{2} B_{\frac{5}{2}} \left(\frac{\frac{5}{2} g_{Mn} \mu_B B}{k_B T_{lat}} \right) \tag{2.5}$$

Puis on suppose que lorsque le système de Mn est porté hors équilibre pour une raison quelconque, il revient à l'équilibre avec le réseau (s'il n'interagit qu'avec ce dernier) via une relaxation exponentielle de temps caractéristique T_1, appelé temps de relaxation spin-réseau.

$$\frac{d \langle S_z \rangle}{dt} = -\frac{1}{T_1} (\langle S_z \rangle - \langle S_z^{eq} \rangle) \tag{2.6}$$

Cependant, ce qui nous intéresse, c'est de pouvoir décrire l'évolution de chaque population individuellement, pour pouvoir introduire dans notre modèle des probabilités de transition d'un niveau à l'autre (ce qui sera le cas pour la description de l'interaction Mn-porteurs). On peut alors réécrire le mécanisme de relaxation spin-réseau sous la forme :

$$\begin{aligned}
\frac{dN_{+\frac{5}{2}}}{dt} &= -\frac{1}{T_1}(N_{+\frac{5}{2}} - N^{eq}_{+\frac{5}{2}}) \\
\frac{dN_{+\frac{3}{2}}}{dt} &= -\frac{1}{T_1}(N_{+\frac{3}{2}} - N^{eq}_{+\frac{3}{2}}) \\
\frac{dN_{+\frac{1}{2}}}{dt} &= -\frac{1}{T_1}(N_{+\frac{1}{2}} - N^{eq}_{+\frac{1}{2}}) \\
\frac{dN_{-\frac{1}{2}}}{dt} &= -\frac{1}{T_1}(N_{-\frac{1}{2}} - N^{eq}_{-\frac{1}{2}}) \\
\frac{dN_{-\frac{3}{2}}}{dt} &= -\frac{1}{T_1}(N_{-\frac{3}{2}} - N^{eq}_{-\frac{3}{2}}) \\
\frac{dN_{-\frac{5}{2}}}{dt} &= -\frac{1}{T_1}(N_{-\frac{5}{2}} - N^{eq}_{-\frac{5}{2}})
\end{aligned} \tag{2.7}$$

Avec :

$$N^{eq}_{S_z} = N \exp\left(-\frac{g_{Mn} \mu_B B S_z}{k_B T_{lat}} \right) \frac{\sinh\left(\frac{1/2 g_{Mn} \mu_B B}{k_B T_{lat}} \right)}{\sinh\left(\frac{\frac{2S+1}{2} g_{Mn} \mu_B B}{k_B T_{lat}} \right)} \tag{2.8}$$

On peut montrer facilement que le temps de relaxation spin-réseau T_1 utilisé dans les équations 2.6 et 2.7 est le même. Pour cela il faut utiliser la linéarité de ces équations ainsi que l'équation 2.3.

On a ainsi décrit le réseau comme un thermostat à la température T_{lat} qui force le système de spins de Mn à thermaliser à cette température en un temps caractéristique T_1. En réalité, une

[9] A partir de maintenant et dans le reste du manuscrit, on pourra négliger la température antiferromagnétique T_{AF}, petite devant les autres, habituellement introduite dans les fonctions de Brillouin modifiées. Par contre, on continuera de prendre en compte l'influence de la concentration effective en Mn x_{eff} (même si ceci ne se voit pas dans cette équation).

description rigoureuse de cette interaction s'avère très complexe et met en jeu de nombreux phénomènes. En ce qui nous concerne, nous pouvons nous limiter pour le moment à une description phénoménologique, en utilisant les valeurs de T_1 mesurées expérimentalement et tabulées [53]. La physique du T_1 sera davantage approfondie dans la suite de ce manuscrit au fur et à mesure des besoins.

Interaction Mn-porteurs

La description de l'interaction entre les Mn et les porteurs -localisés dans la couche de mouillage on le rappelle- est plus délicate évidemment. Commençons par écrire le hamiltonien de couplage entre Mn et porteurs afin de mieux comprendre la physique de cette interaction.

Flip-flop électrons-Mn : Pour cela, prenons le cas des électrons, nous reviendrons à celui des trous (qui pourra s'en déduire) plus tard :

$$H_{e-1Mn} = -\alpha\vec{\sigma}\vec{S}\delta(\vec{r}-\vec{R}) = -\alpha\delta(\vec{r}-\vec{R})[\sigma_z S_z + \frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)] \tag{2.9}$$

$\vec{\sigma}$ et $\vec{S}$ sont respectivement les opérateurs de spin d'un électron en $\vec{r}$ et d'un Mn en $\vec{R}$. Le terme en $\sigma_z S_z$ correspond à la partie "statique" du hamiltonien et est responsable de l'effet Zeeman géant que l'on a décrit en I 1.3. Ainsi la prise en compte de ce terme ne modifie pas les états propres du système de Mn et du réservoir d'électrons qui restent ceux dont la projection sur S_z ou σ_z est définie. Ce terme "statique" modifie simplement les énergies de ces états propres. En revanche le terme en $\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)$ correspond à la partie "dynamique" du hamiltonien : il introduit des transitions entre les états propres du système définis sans prendre en compte ce terme "dynamique". C'est donc cette partie "dynamique" du hamiltonien d'échange électron-Mn qui est à l'origine du mécanisme de flip-flop et autorise ainsi le retournement du spin d'un Mn. Plus précisément, elle permet comme on va le voir, le retournement (vers le haut ou vers le bas) d'un spin de Mn d'une unité tandis qu'un électron se retourne d'une unité dans le sens opposé.

Pour pouvoir calculer précisément la probabilité de transition par unité de temps d'un état de spin à un autre, on utilise la règle d'or de Fermi, que l'on applique à l'équation 2.9 :

$$w = \frac{2\pi}{\hbar}|\langle f|H_{e-1Mn}|i\rangle|^2\delta(E_f - E_i) \tag{2.10}$$

w représente la probabilité de transition élémentaire de l'état $|i\rangle$ vers l'état $|f\rangle$ résultant de l'interaction entre un Mn et un seul électron. La règle d'or de Fermi correspond à un traitement en perturbation à l'ordre 1 de l'hamiltonien de couplage électron-Mn. Pour cela, on a évidemment besoin de connaître les états propres du système de Mn et du réservoir d'électrons en l'absence du terme "dynamique". Il faut donc décrire précisément notre système de Mn d'une part et notre réservoir d'électrons d'autre part. Le système de Mn est simple à décrire : sous champ magnétique B, les six états du Mn sont énergétiquement séparés de la quantité $g_{Mn}\mu_B B$ ((cf. figure 2.9). Les champs d'échange de l'électron et du trou sur les Mn sont bien entendu négligés (puisqu'on a démontré que l'on n'avait pas de polaron). Des transitions entre n'importe lesquels de ces niveaux peuvent avoir lieu mais à l'ordre 1 en perturbation seules subsistent les transitions entre deux niveaux consécutifs. Autrement dit, ce sont les transitions les plus probables. Quant au système d'électrons, on a expliqué en 2.1 qu'on pouvait le modéliser comme un gaz d'électrons 2D localisé dans la couche de mouillage et décrit par une fonction de Fermi-Dirac à la température $T_{car} = 55K$. Notons que ces deux hypothèses (celle d'un gaz parfaitement 2D et celle d'un gaz thermalisé à T_{car}) sont des hypothèses très fortes qui nous permettent de réaliser des calculs

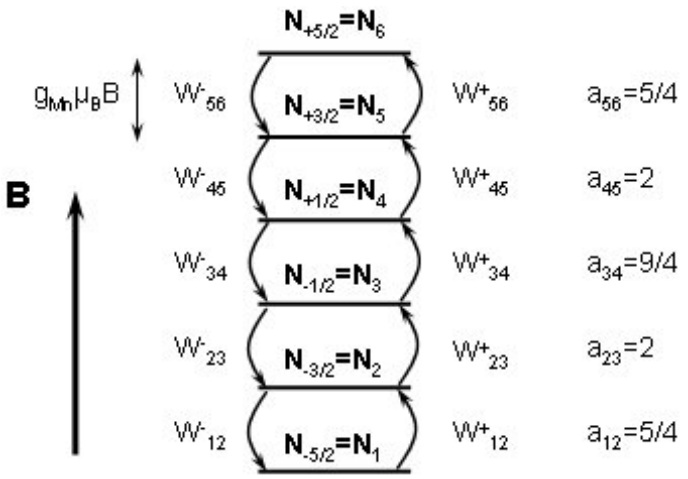

FIG. 2.9 – Probabilités de transition entre deux états consécutifs du Mn induites par le mécanisme de flip-flop entre Mn et porteurs.

analytiques. On reviendra par la suite sur la validité de telles hypothèses (cf. 2.5). Toujours dans le but de pouvoir effectuer un calcul analytique, nous supposerons que la couche de mouillage, en plus d'être modélisée comme un puits 2D, peut être considérée comme un puits de profondeur infinie. Mais cette hypothèse est peu contraignante : considérer un puits de profondeur finie ne changerait pas tellement la description du comportement qui nous intéresse mais compliquerait inutilement les calculs. Le plan de ce puits est perpendiculaire à l'axe z, défini, on le rappelle, comme l'axe de croissance (et l'axe suivant lequel le champ magnétique est appliqué). On notera L_z la largeur de ce puits et on prendra pour origine de l'axe z la première interface du puits. La seconde interface se situe alors en $z = L_z$.

On peut alors écrire les états quantiques initiaux $|i\rangle$ et finaux $|f\rangle$ de la transition dans le cas où l'on retourne un Mn vers le bas (probabilité de transition notée w^-) et dans le cas où l'on retourne un Mn vers le haut (probabilité de transition notée w^+) :

$$\begin{aligned} \text{Pour la transition } w^- : |i\rangle &= |\chi_z\rangle|\vec{k}\rangle|\sigma_z \equiv -\frac{1}{2}, S_z\rangle \\ |f\rangle &= |\chi'_z\rangle|\vec{k'}\rangle|\sigma_z \equiv +\frac{1}{2}, S_z - 1\rangle \qquad (2.11) \\ \text{Pour la transition } w^+ : |i\rangle &= |\chi_z\rangle|\vec{k}\rangle|\sigma_z \equiv +\frac{1}{2}, S_z\rangle \\ |f\rangle &= |\chi'_z\rangle|\vec{k'}\rangle|\sigma_z \equiv -\frac{1}{2}, S_z + 1\rangle \qquad (2.12) \end{aligned}$$

$|\chi_z\rangle$ et $|\chi'_z\rangle$ désignent les fonctions enveloppes de l'électron dans la direction de confinement z pour l'état initial et l'état final respectivement. Encore une fois, on ne considérera que le premier niveau confiné du puits que ce soit pour les électrons ou les trous (cf. discussion en I). On a alors pour un puits infini :

$$\langle z|\chi_z\rangle = \langle z|\chi'_z\rangle = \sqrt{2}\frac{\sin(\pi z/L_z)}{\sqrt{L_z}} \qquad (2.13)$$

$\vec{k}$ et $\vec{k'}$ désignent les vecteurs d'ondes des fonctions de Bloch de l'électron dans le plan du puits

quantique, respectivement dans l'état initial et final :

$$\langle \vec{r}_{xy} | \vec{k} \rangle = \frac{e^{i\vec{k}\vec{r}_{xy}}}{\sqrt{L_x L_y}} u_{\vec{k}}(\vec{r}_{xy}) \tag{2.14}$$

On a donc négligé la quantification en niveaux de Landau. On reviendra également sur cette hypothèse. Les calculs précédents sont basés sur la référence [68]. Mais contrairement à ce qui y est proposé, nous allons ici réaliser un calcul complet respectant la conservation de l'énergie. On reviendra plus tard sur l'intérêt de faire ce calcul complet. La conservation de l'énergie s'écrit donc :

$$E_f - E_i = E_{k'} - E_k \mp g_{Mn}\mu_B B = 0 \tag{2.15}$$

Le signe $\mp$ dépend de si l'on calcule la probabilité w^- de retourner un Mn vers le bas (signe $-$) ou la probabilité w^+ de retourner un Mn vers le haut (signe $+$). La probabilité w^- correspond donc à retourner un Mn vers le bas d'une unité de spin en diminuant son énergie de $g_{Mn}\mu_B B$ tandis qu'un électron se retourne vers le haut en augmentant son énergie cinétique de $g_{Mn}\mu_B B$. Ceci assure donc la conservation de l'énergie et du moment cinétique. Au final w^- s'écrit :

$$\begin{aligned} w_e^- &= \frac{2\pi}{\hbar}\, \alpha^2\, |\langle \chi_z' | \delta(z-a) | \chi_z \rangle|^2\, |\langle \vec{k'} | \delta(\vec{r}_{xy} - \vec{R}_{xy}) | \vec{k} \rangle|^2 ... \\ &\quad ... |\langle \sigma_z \equiv +\frac{1}{2}, S_z - 1 | \vec{\sigma}\vec{S} | \sigma_z \equiv -\frac{1}{2}, S_z \rangle|^2\, \delta(E_{k'} - E_k - g_{Mn}\mu_B B) \end{aligned} \tag{2.16}$$

On a choisi de repérer ici l'électron (resp. le Mn) par le vecteur $\vec{r}$ (resp. $\vec{R}$) de coordonnée z (resp. a) suivant l'axe de croissance z et de projection $\vec{r}_{xy}$ (resp. $\vec{R}_{xy}$) dans le plan du puits xy. Quant à la probabilité w^+, elle correspond à retourner un Mn vers le haut d'une unité de spin en augmentant son énergie de $g_{Mn}\mu_B B$ tandis qu'un électron se retourne vers le bas en diminuant son énergie cinétique de $g_{Mn}\mu_B B$:

$$\begin{aligned} w_e^+ &= \frac{2\pi}{\hbar}\, \alpha^2\, |\langle \chi_z' | \delta(z-a) | \chi_z \rangle|^2\, |\langle \vec{k'} | \delta(\vec{r}_{xy} - \vec{R}_{xy}) | \vec{k} \rangle|^2 ... \\ &\quad ... |\langle \sigma_z \equiv -\frac{1}{2}, S_z + 1 | \vec{\sigma}\vec{S} | \sigma_z \equiv +\frac{1}{2}, S_z \rangle|^2\, \delta(E_{k'} - E_k + g_{Mn}\mu_B B) \end{aligned} \tag{2.17}$$

On peut alors donner une expression plus explicite de ces probabilités élémentaires w^- et w^+ en calculant les différents éléments de matrice les uns après les autres. Le calcul du premier est direct :

$$|\langle \chi_z' | \delta(z-a) | \chi_z \rangle|^2 = 4 \frac{\sin^4(\pi a / L_z)}{L_z^2} \tag{2.18}$$

On peut supposer que le Mn est statistiquement réparti sur toute la largeur du puits quantique (c'est à dire de la couche de mouillage) pour des concentrations suffisamment élevées comme les nôtres. On peut alors moyenner sur la position a du Mn :

$$\frac{1}{L_z} \int_0^{L_z} \sin^4(\frac{\pi a}{L_z})\, da = \frac{3}{8} \tag{2.19}$$

Ce qui conduit à :

$$|\langle \chi_z' | \delta(z-a) | \chi_z \rangle|^2 = \frac{3}{2} \frac{1}{L_z^2} \tag{2.20}$$

Le second élément de matrice peut se développer en intégrant sur la surface $S = L_x L_y$ de l'échantillon :

$$\begin{aligned}\langle\vec{k'}|\delta(\vec{r}_{xy}-\vec{R}_{xy})|\vec{k}\rangle &= \int_S \frac{e^{-i\vec{k'}\vec{r}_{xy}}}{\sqrt{L_xL_y}} u^*_{\vec{k'}}(\vec{r}_{xy})\delta(\vec{r}_{xy}-\vec{R}_{xy})\frac{e^{i\vec{k}\vec{r}_{xy}}}{\sqrt{L_xL_y}} u_{\vec{k}}(\vec{r}_{xy})d\vec{r}_{xy} \\ &= \frac{1}{L_xL_y} u^*_{\vec{k'}}(\vec{R}_{xy})u_{\vec{k}}(\vec{R}_{xy})e^{i(\vec{k}-\vec{k'})\vec{R}_{xy}} \end{aligned} \tag{2.21}$$

On utilise ensuite le fait que le Mn est statistiquement distribué de manière homogène pour moyenner sur sa position. En négligeant la dépendance en $\vec{k}$ des parties périodiques des fonctions de Bloch, on obtient au final :

$$|\langle\vec{k'}|\delta(\vec{r}_{xy}-\vec{R}_{xy})|\vec{k}\rangle|^2 = \frac{1}{(L_xL_y)^2} \tag{2.22}$$

Enfin le dernier élément de matrice dans les expressions de w^- et w^+ va évidemment dépendre des états de spin σ_z de l'électron et S_z du Mn. Commençons par celui de l'expression de w^-. En ne gardant que les termes a priori non nuls, on peut le simplifier :

$$|\langle\sigma_z \equiv +\frac{1}{2}, S_z-1|\vec{\sigma}\vec{S}|\sigma_z \equiv -\frac{1}{2}, S_z\rangle|^2 = |\langle\sigma_z \equiv +\frac{1}{2}, S_z-1|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|\sigma_z \equiv -\frac{1}{2}, S_z\rangle|^2 \tag{2.23}$$

Dans la théorie générale du moment cinétique quantique [73], on démontre que pour un opérateur de moment cinétique $\vec{J}$, les opérateurs $J^+ = J_x + iJ_y$ et $J^- = J_x - iJ_y$ ont les propriétés suivantes :

$$\begin{aligned} J^+|J,J_z\rangle &= 0 \text{ si } J_z = J \\ J^+|J,J_z\rangle &= \sqrt{J(J+1)-J_z(J_z+1)}|J,J_z+1\rangle \text{ sinon} \\ J^-|J,J_z\rangle &= 0 \text{ si } J_z = -J \\ J^-|J,J_z\rangle &= \sqrt{J(J+1)-J_z(J_z-1)}|J,J_z-1\rangle \text{ sinon} \end{aligned} \tag{2.24}$$

Ceci reste donc vrai en particulier pour un opérateur de spin comme $\vec{\sigma}$ ou $\vec{S}$. Et on obtient alors les éléments de matrice pour chacune des cinq transitions w^- :

$$\begin{aligned} |\langle+\frac{1}{2},+\frac{3}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|-\frac{1}{2},+\frac{5}{2}\rangle|^2 &= \frac{5}{4} \\ |\langle+\frac{1}{2},+\frac{1}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|-\frac{1}{2},+\frac{3}{2}\rangle|^2 &= 2 \\ |\langle+\frac{1}{2},-\frac{1}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|-\frac{1}{2},+\frac{1}{2}\rangle|^2 &= \frac{9}{4} \\ |\langle+\frac{1}{2},-\frac{3}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|-\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\rangle|^2 &= 2 \\ |\langle+\frac{1}{2},-\frac{5}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|-\frac{1}{2},-\frac{3}{2}\rangle|^2 &= \frac{5}{4} \end{aligned} \tag{2.25}$$

En utilisant le fait que $|\langle f|H|i\rangle|^2 = |\langle i|H|f\rangle|^2$ pour $H = \frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)$, on obtient directement

la valeur des éléments de matrice des cinq transitions w^+ :

$$\begin{aligned}
|\langle -\frac{1}{2},+\frac{5}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|+\frac{1}{2},+\frac{3}{2}\rangle|^2 &= \frac{5}{4} \\
|\langle -\frac{1}{2},+\frac{3}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|+\frac{1}{2},+\frac{1}{2}\rangle|^2 &= 2 \\
|\langle -\frac{1}{2},+\frac{1}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|+\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\rangle|^2 &= \frac{9}{4} \\
|\langle -\frac{1}{2},-\frac{1}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|+\frac{1}{2},-\frac{3}{2}\rangle|^2 &= 2 \\
|\langle -\frac{1}{2},-\frac{3}{2}|\frac{1}{2}(\sigma^+S^- + \sigma^-S^+)|+\frac{1}{2},-\frac{5}{2}\rangle|^2 &= \frac{5}{4}
\end{aligned} \tag{2.26}$$

Au final, on constate donc que dans les expressions de w^- et w^+, l'élément de matrice lié au spin dépend uniquement des deux états Zeeman du spin de Mn entre lesquels se fait la transition. Pour simplifier, on notera a_{ij} ce coefficient, où i et j indicent chacun l'un des deux niveaux impliqués dans la transition : i et j sont des chiffres compris entre 1 et 6, 1 désignant le niveau Zeeman dont la projection du spin du Mn S_z est la plus petite ($-\frac{5}{2}$), et 6 désignant le niveau Zeeman dont la projection S_z est la plus grande ($+\frac{5}{2}$). Les valeurs des coefficients a_{ij} ainsi définis sont récapitulées sur la figure 2.9. Ceci conduit aux expressions suivantes des probabilités de transition élémentaires w^- et w^+ :

$$\begin{aligned}
w^-_{ij,e} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\alpha^2\frac{1}{L_z^2}\frac{1}{(L_xL_y)^2}\delta(E_{k'} - E_k - g_{Mn}\mu_B B) \\
w^+_{ij,e} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\alpha^2\frac{1}{L_z^2}\frac{1}{(L_xL_y)^2}\delta(E_{k'} - E_k + g_{Mn}\mu_B B)
\end{aligned} \tag{2.27}$$

Jusqu'à présent, on a considéré la probabilité de retournement d'un Mn lorsqu'il interagit avec un seul électron. Pour connaître les probabilités de transition totales W^- et W^+ en présence d'un grand nombre d'électrons, il suffit d'intégrer les probabilités de transition élémentaires sur l'ensemble de tous les états électroniques. De plus, pour que la transition soit réalisable, il faut considérer que l'état électronique initial doit être occupé et que l'état électronique final doit être vacant. Puisqu'on ne considère que le premier niveau confiné suivant z, il suffit donc d'intégrer sur la densité d'états électroniques 2D dans le plan xy (cf. figure 2.10). On obtient alors les expressions suivantes :

$$\begin{aligned}
W^-_{ij,e} &= \int_{E_k=-\infty}^{+\infty}\int_{E_{k'}=-\infty}^{+\infty} w^-_{ij}N_e(E_k)N_e(E_{k'})f_{FD}(E_k)(1-f_{FD}(E_{k'}))\,dE_kdE_{k'} \\
W^+_{ij,e} &= \int_{E_k=-\infty}^{+\infty}\int_{E_{k'}=-\infty}^{+\infty} w^+_{ij}N_e(E_k)N_e(E_{k'})f_{FD}(E_k)(1-f_{FD}(E_{k'}))\,dE_kdE_{k'}
\end{aligned} \tag{2.28}$$

La fonction f_{FD} désigne la fonction de Fermi-Dirac :

$$f_{FD}(E_k) = \frac{1}{\exp(\frac{E_k - E_e^F}{k_BT_e}) + 1} \tag{2.29}$$

T_e est la température du réservoir d'électrons. Autrement dit, $T_e = T_{car}$ lorsque les porteurs que l'on considère sont des électrons. $N_e(E_k)$ est le nombre total d'états électroniques à l'énergie E_k dans une seule sous-bande de spin (celle de l'état initial). Pour un gaz 2D, le nombre d'états $N_e(E_k) = \frac{m_e^*L_xL_y}{2\pi\hbar^2}$ et la densité d'états $D_e(E_k) = \frac{N(E_k)}{L_xL_y} = \frac{m_e^*}{2\pi\hbar^2}$ sont constants en fonction de

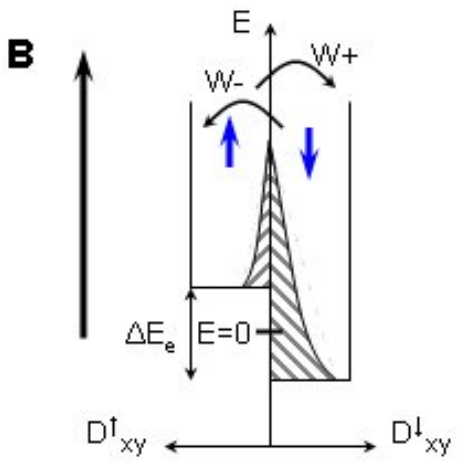

FIG. 2.10 – Représentation sous champ B de la densité d'états du gaz d'électrons 2D (interagissant avec les Mn via le mécanisme de flip-flop) et de sa probabilité d'occupation, dans le plan xy. Le schéma est fait dans la limite où $k_B T_e >> E_e^F$.

l'énergie. On peut donc noter D_e cette densité d'états et la sortir de l'intégrale. Ce faisant, il faut bien veiller à modifier les bornes de l'intégrale pour limiter l'intégration à des énergies où les deux densités d'états (initiale et finale) sont non nulles. On supprime également l'une des intégrales en intégrant grâce à la fonction de Dirac et on renomme l'énergie de l'état initial $E_k \equiv E$. Enfin, on rappelle que pour la transition W^- (resp. W^+), l'état initial correspond à un spin $\sigma_z = -\frac{1}{2}$ (resp. $\sigma_z = +\frac{1}{2}$). L'intégration se fait donc sur la sous-bande de spin $\sigma_z = -\frac{1}{2}$ (resp. $\sigma_z = +\frac{1}{2}$) avec les conventions que l'on a choisies ici. Tout ceci donne :

$$\begin{aligned} W^-_{ij,e} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\alpha^2\frac{(D_e)^2}{L_z^2}\int_{E=+\frac{\Delta E_e}{2}-g_{Mn}\mu_B B}^{+\infty} f_{FD}(E)(1-f_{FD}(E+g_{Mn}\mu_B B))\,dE \\ W^+_{ij,e} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\alpha^2\frac{(D_e)^2}{L_z^2}\int_{E=+\frac{\Delta E_e}{2}}^{+\infty} f_{FD}(E)(1-f_{FD}(E-g_{Mn}\mu_B B))\,dE \end{aligned} \tag{2.30}$$

Ces deux intégrales peuvent se calculer analytiquement (via Mathematica par exemple), ce qui mène aux résultats suivants :

$$\begin{aligned} W^-_{ij,e} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\alpha^2\left(\frac{D_e}{L_z}\right)^2 \times k_B T_e \exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_e})... \\ &...\frac{\ln\left(\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_e})+\exp(\frac{\Delta E_e/2-E_e^F}{k_B T_e})\right)-\ln\left(1+\exp(\frac{\Delta E_e/2-E_e^F}{k_B T_e})\right)}{\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_e})-1} \end{aligned} \tag{2.31}$$

et,

$$\begin{aligned} W^+_{ij,e} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\alpha^2\left(\frac{D_e}{L_z}\right)^2 \times k_B T_e... \\ &...\frac{\ln\left(\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_e})+\exp(\frac{\Delta E_e/2-E_e^F}{k_B T_e})\right)-\ln\left(1+\exp(\frac{\Delta E_e/2-E_e^F}{k_B T_e})\right)}{\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_e})-1} \end{aligned} \tag{2.32}$$

Dans ces expressions, E_e^F est l'énergie de Fermi dont l'expression est donnée en [66] :

$$E_e^F = k_B T_e \ln\left(\sqrt{\cosh^2(\frac{\Delta E_e}{2k_B T_e}) + \exp(\frac{n_e}{D_e k_B T_e}) - 1} - \cosh(\frac{\Delta E_e}{2k_B T_e})\right) \tag{2.33}$$

n_e désigne la densité d'électrons générés dans le gaz 2D que l'on considère. Et ΔE_e correspond à l'écart Zeeman géant induit par les Mn entre les deux sous-bandes de spin électronique du gaz 2D : $\Delta E_e = \alpha x_{eff} N_0 \langle S_z \rangle$.

On peut faire quelques remarques sur ces résultats. Tout d'abord, on constate que le rapport de W^+ sur W^- est exponentiel :

$$\frac{W_{ij,e}^+}{W_{ij,e}^-} = \exp(-\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_e}) \tag{2.34}$$

Ceci signifie tout simplement que pour les états quantiques Zeeman du Mn, séparés de $g_{Mn}\mu_B B$, le réservoir d'électrons se comporte comme un réel thermostat à la température T_e. En effet, lorsque le système de Mn est uniquement en contact avec les électrons, il va s'ordonner de manière à ce que les populations de spin de Mn sur les niveaux Zeeman successifs soient toutes dans le même rapport exponentiel $\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_e})$. Et ceci correspond à la définition d'un système thermalisé à T_e. On pourra alors décrire cet état d'équilibre thermodynamique par une fonction de Brillouin à la température T_e (cf. équation 1.12) :

$$\langle S_z^{eq,e} \rangle = -\frac{5}{2} B_{\frac{5}{2}}(\frac{\frac{5}{2} g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_e}) \tag{2.35}$$

Ce comportement de thermostat du réservoir d'électrons est mis en évidence grâce au fait que l'on a réalisé un calcul analytique complet des probabilités W^- et W^+, sans négliger la conservation de l'énergie. Physiquement, cela provient bien évidemment du fait que l'on a fait l'hypothèse forte d'un gaz d'électrons thermalisé à T_e. On comprend donc que l'effet de chauffage du système de Mn par les électrons se manifeste dès lors qu'on suppose $T_e > T_{lat}$ dans notre modèle. Notons ensuite que les probabilités de transition W^- et W^+, qui vont modifier l'état des Mn, dépendent de l'énergie de Fermi E_e^F qui dépend elle-même de l'écart Zeeman géant ΔE_e entre les deux sous-bandes de spin, dépendant lui-même de l'orientation moyenne des Mn $\langle S_z \rangle$. La modification de l'état des Mn dépend donc de l'état de ces mêmes Mn. En d'autres termes, l'effet de chauffage est contrôlé par une boucle de rétroaction (on démontrera rigoureusement qu'elle est positive, comme on l'a déjà expliqué). Enfin, puisque $\langle S_z \rangle$ est également contrôlé par le champ magnétique extérieur B, on comprend que les probabilités W^- et W^+ et donc le mécanisme de chauffage vont être modulés par B. On démontrera notamment que ces probabilités tendent vers zéro à champ fort ce qui revient à couper le processus de chauffage. Toutefois, il faut préciser que le comportement de thermostat du réservoir d'électrons n'est plus tout à fait valable si l'on considère que les mécanismes de flip-flop vont conduire les électrons hors équilibre. Ceci peut être décrit par l'introduction de quasi-niveaux de Fermi pour chacune des deux sous-bandes de spins électroniques. Le calcul des probabilités W^- et W^+ dans ce cas-là est à peine plus complexe et a été réalisé (cf. Annexe B). Cependant, dans la suite de ce manuscrit nous ne considérerons pas de quasi-niveaux de Fermi, qui ne modifient pas profondément la physique de notre système. En effet, on a précisé que notre modèle se basait sur des hypothèses très fortes et lorsqu'on discutera de ses limites, on s'apercevra qu'il ne prétend pas à une description infiniment précise de notre système. Par conséquent, si le but est de décrire les mécanismes physiques et leurs tendances générales plutôt que d'ajuster les résultats expérimentaux dans leurs moindres détails, il paraît peu opportun de s'encombrer d'un raffinement supplémentaire du modèle.

On peut alors écrire les équations d'évolution des populations de chaque niveau Zeeman du Mn qui décrivent l'interaction électrons-Mn uniquement (via le mécanisme de flip-flop) :

$$\begin{aligned}
\frac{dN_{+\frac{5}{2}}}{dt} &= -W^{-}_{56,e}N_{+\frac{5}{2}} + W^{+}_{56,e}N_{+\frac{3}{2}} \\
\frac{dN_{+\frac{3}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{56,e}N_{+\frac{3}{2}} - W^{-}_{45,e}N_{+\frac{3}{2}} + W^{-}_{56,e}N_{+\frac{5}{2}} + W^{+}_{45,e}N_{+\frac{1}{2}} \\
\frac{dN_{+\frac{1}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{45,e}N_{+\frac{1}{2}} - W^{-}_{34,e}N_{+\frac{1}{2}} + W^{-}_{45,e}N_{+\frac{3}{2}} + W^{+}_{34,e}N_{-\frac{1}{2}} \\
\frac{dN_{-\frac{1}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{34,e}N_{-\frac{1}{2}} - W^{-}_{23,e}N_{-\frac{1}{2}} + W^{-}_{34,e}N_{+\frac{1}{2}} + W^{+}_{23,e}N_{-\frac{3}{2}} \\
\frac{dN_{-\frac{3}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{23,e}N_{-\frac{3}{2}} - W^{-}_{12,e}N_{-\frac{3}{2}} + W^{-}_{23,e}N_{-\frac{1}{2}} + W^{+}_{12,e}N_{-\frac{5}{2}} \\
\frac{dN_{-\frac{5}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{12,e}N_{-\frac{5}{2}} + W^{-}_{12,e}N_{-\frac{3}{2}}
\end{aligned} \tag{2.36}$$

Flip-flop trous-Mn : Revenons maintenant au cas des trous (photocréés en même temps que les électrons par l'excitation optique). On a expliqué en partie I que nous ne considérions qu'un seul état quantique de la bande de valence : l'état des trous lourds (deux fois dégénéré en spin). La projection de leur moment cinétique suivant z est $j_z = \pm\frac{3}{2}$. Au premier ordre en perturbation, ils ne peuvent donc pas se retourner en échangeant une seule unité de spin avec les Mn. Le mécanisme de flip-flop trous-Mn est donc a priori impossible (très peu probable plus exactement). Or, la levée de dégénérescence entre trous lourds et trous légers a pour origine soit le confinement quantique (hamiltonien de Luttinger), soit les contraintes (Hamiltonien de Bir et Pikus) (cf. partie I). Et dans les deux cas, elle repose sur les propriétés de symétrie du cristal. Par conséquent, une brisure de symétrie du potentiel de confinement et surtout une inhomogénéité de la distribution des contraintes peut entraîner un mélange de ces états de trous lourds et de trous légers [74, 75]. Il existe d'ailleurs de nombreuses observations expérimentales faites sur des boîtes CdTe quasi-identiques aux nôtres (seule la concentration en Mn change) qui sont attribuées à ce mélange de bande de valence [19, 76]. L'origine principale de ce mélange de bande dans les boîtes CdTe semble être la distribution inhomogène des contraintes, qui provient de la relaxation inhomogène de ces dernières lors de la croissance. On partira du postulat que la distribution des contraintes est également inhomogène dans la couche de mouillage, dont le mécanisme de formation est intrinsèquement lié à celui des boîtes. On peut ainsi envisager que l'état fondamental de la bande de valence dans la couche de mouillage est un état "mélangé", avec une partie trou lourd et une partie trou léger. Le mécanisme de flip-flop trous-Mn est alors rendu possible en raison de la partie trou léger (de projection $j_z = \pm\frac{1}{2}$) de l'état fondamental de trou.

Il se trouve que ce mécanisme de flip-flop peut alors être décrit par le hamiltonien effectif suivant [19] :

$$H_{h-1Mn} = -\beta\delta(\vec{r} - \vec{R})[s_z S_z + \epsilon\frac{1}{2}(s^+S^- + s^-S^+)] \tag{2.37}$$

Ce hamiltonien est écrit dans le sous-espace des trous "lourds"[10] et on continuera dans la suite de ne considérer que les deux états de trous "lourds" et de négliger les états de trous "légers" à plus haute énergie. On rappelle que $\vec{s}$ est l'opérateur de la partie de spin du trou uniquement.

[10] Notons bien que ce terme est abusif dans la mesure où ces états de trous contiennent désormais une partie trou léger. Mais on continuera de l'employer pour des raisons de commodité.

Sa projection est donc $s_z = \pm\frac{1}{2}$ (mais correspond bien aux trous "lourds" de moment cinétique $j_z = \pm\frac{3}{2}$). Le fait que le trou soit un état "mélangé" est pris en compte par l'introduction de la constante $0 \leq \epsilon \leq 1$. $\epsilon = 0$ correspond ainsi à un état de trou lourd pur : Le mécanisme de flip-flop est alors bloqué comme on l'a dit puisque il n'existe pas de partie "dynamique" dans le hamiltonien capable d'engendrer des transitions entre les différents états propres. En revanche $\epsilon > 0$ correspond à un état de trou qui n'est pas 100% lourd ($\epsilon = 1$ correspondant à un état de trou à 50% lourd et à 50% léger) : le mécanisme de flip-flop est alors rendu possible (au premier ordre en perturbation) car le spin du trou peut être retourné d'une unité seulement, via sa partie trou léger. Nous avons donc justifié la possibilité pour les trous de se retourner en raison du mélange de bande de valence. S'il est certain que ce mélange de bande existe dans nos structures, il est en revanche très délicat d'être quantitatif quant à ce dernier point. Nous nous contenterons donc pour le moment d'introduire le paramètre ϵ dans notre modèle et nous en justifierons la pertinence a posteriori, par comparaison aux résultats expérimentaux.

Partant, le raisonnement est exactement le même que pour les électrons et on obtient immédiatement les probabilités de transitions $W^-_{ij,h}$ et $W^+_{ij,h}$ entre les différents niveaux Zeeman du Mn, induites par le mécanisme de flip-flop entre les trous et les Mn. Il suffit de remplacer α par $\epsilon\beta$ et d'indicer différemment les paramètres dépendant a priori spécifiquement de chaque type de porteurs (température, écart Zeeman géant, énergie de Fermi, densité de porteurs, densité d'états...).

$$\begin{aligned} W^-_{ij,h} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\epsilon^2\beta^2\left(\frac{D_h}{L_z}\right)^2 \times k_B T_h \exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_h})... \\ &\quad ...\frac{\ln\left(\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_h}) + \exp(\frac{\Delta E_h/2 - E_h^F}{k_B T_h})\right) - \ln\left(1 + \exp(\frac{\Delta E_h/2 - E_h^F}{k_B T_h})\right)}{\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_h}) - 1} \end{aligned} \tag{2.38}$$

et,

$$\begin{aligned} W^+_{ij,h} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\epsilon^2\beta^2\left(\frac{D_h}{L_z}\right)^2 \times k_B T_h ... \\ &\quad ...\frac{\ln\left(\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_h}) + \exp(\frac{\Delta E_h/2 - E_h^F}{k_B T_h})\right) - \ln\left(1 + \exp(\frac{\Delta E_h/2 - E_h^F}{k_B T_h})\right)}{\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_h}) - 1} \end{aligned} \tag{2.39}$$

Et l'énergie de Fermi est donnée par :

$$E_h^F = k_B T_h \ln\left(\sqrt{\cosh^2(\frac{\Delta E_h}{2k_B T_h}) + \exp(\frac{n_h}{D_h k_B T_h}) - 1} - \cosh(\frac{\Delta E_h}{2k_B T_h})\right) \tag{2.40}$$

ΔE_h correspond à l'écart Zeeman géant induit par les Mn entre les deux sous-bandes de spin de trous du gaz 2D. $\Delta E_h = \beta x_{eff} N_0 \langle S_z \rangle$.

Les équations d'évolution des populations de chaque niveau Zeeman du Mn qui décrivent

l'interaction trous-Mn uniquement s'écrivent alors :

$$\begin{aligned}
\frac{dN_{+\frac{5}{2}}}{dt} &= -W^{-}_{56,h}N_{+\frac{5}{2}} + W^{+}_{56,h}N_{+\frac{3}{2}} \\
\frac{dN_{+\frac{3}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{56,h}N_{+\frac{3}{2}} - W^{-}_{45,h}N_{+\frac{3}{2}} + W^{-}_{56,h}N_{+\frac{5}{2}} + W^{+}_{45,h}N_{+\frac{1}{2}} \\
\frac{dN_{+\frac{1}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{45,h}N_{+\frac{1}{2}} - W^{-}_{34,h}N_{+\frac{1}{2}} + W^{-}_{45,h}N_{+\frac{3}{2}} + W^{+}_{34,h}N_{-\frac{1}{2}} \\
\frac{dN_{-\frac{1}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{34,h}N_{-\frac{1}{2}} - W^{-}_{23,h}N_{-\frac{1}{2}} + W^{-}_{34,h}N_{+\frac{1}{2}} + W^{+}_{23,h}N_{-\frac{3}{2}} \\
\frac{dN_{-\frac{3}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{23,h}N_{-\frac{3}{2}} - W^{-}_{12,h}N_{-\frac{3}{2}} + W^{-}_{23,h}N_{-\frac{1}{2}} + W^{+}_{12,h}N_{-\frac{5}{2}} \\
\frac{dN_{-\frac{5}{2}}}{dt} &= -W^{+}_{12,h}N_{-\frac{5}{2}} + W^{-}_{12,h}N_{-\frac{3}{2}}
\end{aligned} \tag{2.41}$$

Système complet

Lorsque le système de Mn est simultanément en interaction avec le réseau, les électrons et les trous, les équations d'évolution de chacun des six états du Mn s'écrivent alors :

$$\begin{aligned}
\frac{dN_6}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_6 - N_6^{eq})\right] + \left[-W^{-}_{56,e}N_6 + W^{+}_{56,e}N_5\right] + \left[-W^{-}_{56,h}N_6 + W^{+}_{56,h}N_5\right] \\
\frac{dN_5}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_5 - N_5^{eq})\right] + \left[-W^{+}_{56,e}N_5 - W^{-}_{45,e}N_5 + W^{-}_{56,e}N_6 + W^{+}_{45,e}N_4\right] ... \\
&\quad ... + \left[-W^{+}_{56,h}N_5 - W^{-}_{45,h}N_5 + W^{-}_{56,h}N_6 + W^{+}_{45,h}N_4\right] \\
\frac{dN_4}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_4 - N_4^{eq})\right] + \left[-W^{+}_{45,e}N_4 - W^{-}_{34,e}N_4 + W^{-}_{45,e}N_5 + W^{+}_{34,e}N_3\right] ... \\
&\quad ... + \left[-W^{+}_{45,h}N_4 - W^{-}_{34,h}N_4 + W^{-}_{45,h}N_5 + W^{+}_{34,h}N_3\right] \\
\frac{dN_3}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_3 - N_3^{eq})\right] + \left[-W^{+}_{34,e}N_3 - W^{-}_{23,e}N_3 + W^{-}_{34,e}N_4 + W^{+}_{23,e}N_2\right] ... \\
&\quad ... + \left[-W^{+}_{34,h}N_3 - W^{-}_{23,h}N_3 + W^{-}_{34,h}N_4 + W^{+}_{23,h}N_2\right] \\
\frac{dN_2}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_2 - N_2^{eq})\right] + \left[-W^{+}_{23,e}N_2 - W^{-}_{12,e}N_2 + W^{-}_{23,e}N_3 + W^{+}_{12,e}N_1\right] ... \\
&\quad ... + \left[-W^{+}_{23,h}N_2 - W^{-}_{12,h}N_2 + W^{-}_{23,h}N_3 + W^{+}_{12,h}N_1\right] \\
\frac{dN_1}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_1 - N_1^{eq})\right] + \left[-W^{+}_{12,e}N_1 + W^{-}_{12,e}N_2\right] + \left[-W^{+}_{12,h}N_1 + W^{-}_{12,h}N_2\right]
\end{aligned} \tag{2.42}$$

Par souci de simplicité et de lisibilité, nous avons ré-indicé le niveau $-\frac{5}{2}$ (de plus basse énergie) par 1, le niveau $-\frac{3}{2}$ par 2... et le niveau $+\frac{5}{2}$ (de plus haute énergie) par 6. Ce système complet traduit la mise en compétition des différents réservoirs, ce qui débouche sur un état d'équilibre dynamique des Mn.

Le rôle de sonde de la boîte

Dans un premier temps, la résolution du système complet (cf. 2.2.2) va nous permettre de déterminer les populations de chaque niveau Zeeman du Mn. Rappelons, comme on l'a expliqué en 2.1.2, que les Mn acquièrent tous la même orientation $\langle S_z \rangle$ du fait de la diffusion de spin entre les Mn. Notre modèle suppose donc que tous les Mn, dans la couche de mouillage ou dans les boîtes, ont un comportement identique, défini par la résolution du système 2.42 (on verra plus tard quels peuvent être les écarts à ce modèle). En particulier, on aura accès à $\langle S_z \rangle$ via :

$$\langle S_z \rangle = +\frac{5}{2}\frac{N_6}{N} + \frac{3}{2}\frac{N_5}{N} + \frac{1}{2}\frac{N_4}{N} - \frac{1}{2}\frac{N_3}{N} - \frac{3}{2}\frac{N_2}{N} - \frac{5}{2}\frac{N_1}{N} \tag{2.43}$$

Dans un second temps, on sera capable de déterminer le décalage énergétique Zeeman géant induit par l'orientation moyenne $\langle S_z \rangle$ des Mn d'une boîte sur les raies de luminescence des porteurs 0D de cette même boîte. En I 1.3, on a expliqué comment modéliser l'influence des Mn sur les niveaux de conduction et de valence de la boîte. Les écarts Zeeman géant entre les deux niveaux de conduction d'une part et entre les deux niveaux de valence d'autre part sont respectivement $\sum_{i=1}^{N} I_{e,i} \langle S_z \rangle$ et $\sum_{i=1}^{N} 3I_{h,i} \langle S_z \rangle$, si bien que les énergies des excitons ± 1 sont :

$$E_X^{\sigma^\pm}(B) = E_X^{\sigma^\pm}(B=0) \pm \sum_{i=1}^{N} \left(\frac{I_{e,i} - 3I_{h,i}}{2} \right) \langle S_z \rangle \tag{2.44}$$

N désigne le nombre de Mn que sondent les porteurs 0D dans une boîte. $I_{e,i}$ (resp. $I_{h,i}$) désigne l'intégrale d'échange entre un électron (resp. un trou) et un Mn et dépend du recouvrement entre l'électron (resp. le trou) et le Mn donc de la position du Mn dans la boîte. N, $I_{e,i}$ et $I_{h,i}$ varient bien évidemment de boîte à boîte. Or dans notre expérience de micro-PL, nous ne sommes sensibles qu'à la séparation énergétique totale ΔE_X (ou au décalage $\frac{\Delta E_X}{2}$) d'une raie de luminescence. ΔE_X est défini par :

$$\frac{\Delta E_X}{2} = \mp \left(E_X^{\sigma^\pm}(B) - E_X^{\sigma^\pm}(B=0) \right) \tag{2.45}$$

Par conséquent, on peut s'affranchir des variations de N, $I_{e,i}$ et $I_{h,i}$ d'une boîte à l'autre en ne tenant compte que d'un unique paramètre ΔE_X^{sat}. ΔE_X^{sat} est défini comme la séparation énergétique ΔE_X à saturation des Mn (lorsqu'ils sont tous dans l'état $S_z = -\frac{5}{2}$) :

$$E_X^{\sigma^\pm}(B) = E_X^{\sigma^\pm}(B=0) \pm \frac{1}{2}\Delta E_X^{sat} \frac{\langle S_z \rangle}{5/2} \tag{2.46}$$

ΔE_X^{sat} peut être compris comme le résultat de l'effet Zeeman géant induit par un nombre moyen N_{moy} de Mn où chacun de ces Mn interagirait avec un électron (resp. un trou) via la même interaction d'échange moyenne $I_{e,moy}$ (resp. $I_{h,moy}$). Ceci se traduirait par $\Delta E_X^{sat} = N_{moy}(I_{e,moy} - 3I_{h,moy})$. Il faut toutefois veiller à ne pas tirer de conclusions trop hâtives de ce genre de raisonnement[11]. Le seul paramètre vraiment pertinent reste ΔE_X^{sat}. En effet, il est facilement mesurable dans le cas où l'on observe la saturation de l'effet Zeeman géant, ce qui est le cas dans nos mesures.

[11] Par exemple si l'on considère un modèle simpliste de fonction enveloppe "carré", qui revient à considérer qu'un porteur interagit de manière identique avec chaque Mn d'une boîte, on peut donner l'impression que l'on dénombre précisément le nombre de Mn dans cette boîte [77]. Mais en réalité, on n'obtient ainsi que des valeurs moyennes.

Nous avons donc expliqué et modélisé simplement le capacité de la boîte à sonder l'orientation moyenne des Mn. On pourra ainsi comparer nos mesures de micro-PL à notre modèle via l'équation 2.46 dans laquelle sera reportée la valeur $\langle S_z \rangle$ issue de la résolution du système 2.42. Cependant, la seule grandeur qui nous intéresse, c'est $\langle S_z \rangle$. Et puisque l'on est capable de quantifier "l'influence" de chacune des boîtes sur notre mesure de micro-PL grâce au paramètre ΔE_X^{sat} (mesuré pour chaque boîte), on peut alors normaliser cette mesure de micro-PL pour étudier directement la dépendance de $\langle S_z \rangle$:

$$\langle S_z \rangle (B) = \mp \frac{5}{2} \frac{2(E_X^{\sigma^\pm}(B) - E_X^{\sigma^\pm}(B=0))}{\Delta E_X^{sat}} \tag{2.47}$$

C'est ce que l'on fera dans toute la suite de ce manuscrit pour pouvoir confronter plus simplement expérience et modèle. Qui plus est, ceci permettra de déceler plus facilement d'éventuels écarts à notre modèle d'aimantation spatialement uniforme en comparant directement l'aimantation de différentes boîtes. On pourra aussi comparer aisément des échantillons de concentrations différentes...

2.2.2 Résolution numérique

Principe de la résolution

Nous cherchons à résoudre le système 2.42 qui est un système de six équations différentielles, couplées, fortement non linéaires et dont il faut satisfaire l'autocohérence (due à la boucle de rétroaction). Une simplification toutefois : nous pouvons nous contenter de la solution stationnaire de ce système puisque l'on recherche l'état d'équilibre dynamique. Une résolution numérique s'impose évidemment.

Nous avons choisi de résoudre ce système sous Matlab, qui nous permet de nous appuyer sur des routines pré-existantes facilitant la résolution du système en permettant notamment la détermination des zéros de ce système. Sans rentrer dans le détail de la résolution numérique, il nous semble intéressant d'en expliquer le principe. Le but est de parvenir à trouver, pour chaque valeur du champ magnétique, les populations N_i (donc S_z) dans l'état stationnaire. Pour cela, on commence par se placer à un champ magnétique donné (que l'on peut ensuite balayer). Ce champ détermine l'écart énergétique entre les niveaux Zeeman du Mn. Puis on choisit une configuration de départ des populations N_i qui correspond à choisir une valeur initiale de S_z. Cette valeur n'a pas d'importance car, bien que nous ne l'ayons pas rigoureusement démontré, ce système a très probablement une unique solution stationnaire. Que l'on choisisse comme état de départ l'état $S_z = 0$, l'état d'équilibre thermodynamique à T_{lat} ou à T_{car}, ou d'autres configurations singulières, on vérifie que la résolution numérique reste insensible aux conditions initiales. A partir de la configuration initiale, on est capable de calculer grâce au système 2.42, la valeur de chaque dérivée $\frac{dN_i}{dt}$. Si elles sont toutes nulles, c'est que l'on a trouvé la solution stationnaire du premier coup ! Sinon, cela signifie qu'il faut modifier la configuration des N_i (dans le sens "indiqué" par les dérivées, c'est probablement plus rapide !) et recommencer... jusqu'à ce que l'on finisse par converger vers la configuration stationnaire. On compare alors aux résultats expérimentaux et si l'ajustement n'est pas correct, on recommence avec un nouveau jeu de paramètres.

Insistons sur le fait que cet état est très différent d'un état d'équilibre thermodynamique. Dans l'état stationnaire, les différents termes du système 2.42 correspondant au réseau, aux électrons et aux trous ne sont pas nuls. Ils induisent au contraire quelques millions de transitions par seconde entre les niveaux Zeeman du Mn. Par contre, les flux d'énergie et de spin échangés entre les différents réservoirs et le système de Mn se compensent exactement. On se trouve

donc en présence d'un état dont l'équilibre apparent résulte de la neutralisation des différentes dynamiques en présence : on parle d'équilibre dynamique des spins de Mn. De manière encore plus simpliste, on peut le comprendre comme l'état où le réservoir chaud chauffe les Mn exactement autant que le réservoir froid ne les refroidit.

Bon fonctionnement du modèle

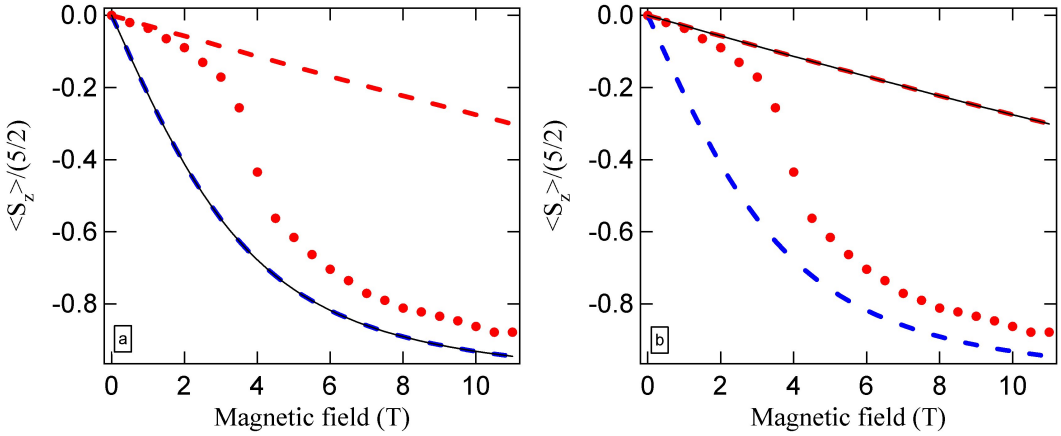

FIG. 2.11 – (a) Simulation lorsque les Mn sont uniquement en contact avec le réseau (trait plein noir). (b) Simulation lorsque les Mn sont uniquement en contact avec les porteurs (trait plein noir). On a également représenté deux fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ sur chaque figure (traits pointillés bleus et rouges respectivement).

Pour se convaincre du bon fonctionnement de notre modèle, on peut vérifier que si l'on "coupe le contact" entre Mn et porteurs (en mettant toutes les probabilités de transition $W^{\pm}$ à zéro par exemple), le système converge vers l'état d'équilibre thermodynamique avec le réseau, donné par une fonction de Brillouin à T_{lat} (cf. figure 2.11(a)).

De la même manière, on peut vérifier que si l'on "coupe le contact" entre Mn et réseau (en posant $\frac{1}{T_1} = 0$), le système converge vers l'état d'équilibre thermodynamique avec les porteurs, donné par une fonction de Brillouin à $T_{car} = T_e = T_h$ (cf. figure 2.11(b)). On pourrait évidemment faire la même chose en subdivisant le réservoir de porteurs en réservoir d'électrons et réservoir de trous à deux températures différentes.

On vérifie donc que notre modèle décrit bien la situation d'un système de Mn en interaction simultanée avec deux thermostats différents, comme on l'a expliqué précédemment.

Ajustement des données expérimentales

On va maintenant chercher à ajuster nos résultats expérimentaux en autorisant dans la simulation la compétition entre les deux réservoirs. On prend donc en compte l'influence simultanée du réseau et des porteurs sur le système de Mn. On obtient en figure 2.12 un excellent accord entre les données expérimentales et la simulation numérique tirée du modèle théorique exposé plus haut. Le jeu de paramètres utilisé pour réaliser cet ajustement est également donné en figure 2.12. L'influence de ces différents paramètres ainsi que leurs valeurs seront discutées au fur et à mesure. Avant même de commencer à discuter du modèle et de ses limites, précisons que le fait que cet ajustement fonctionne si bien est un véritable argument en faveur du modèle. En effet d'une part le phénomène observé (notamment la transition très rapide "chaud"/"froid" autour

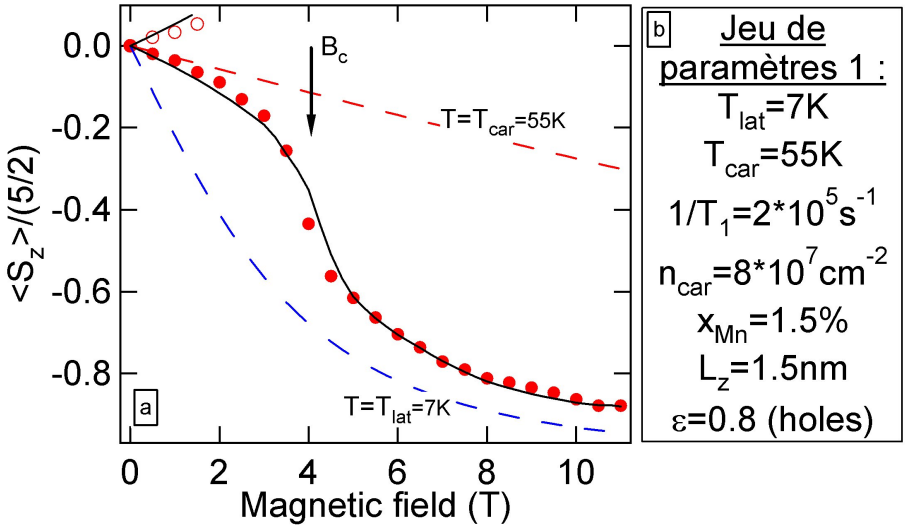

FIG. 2.12 – (a)Orientation des Mn $\frac{\langle S_z \rangle /}{5/2}$ obtenue par la normalisation du décalage énergétique d'une raie de boîte unique en fonction de B, à $T = 7K$ et dans les polarisations σ^+ et σ^- (ronds rouges pleins et vides resp.). Résultats de la simulation numérique (traits pleins noirs). Le champ critique B_c, que l'on définit comme le point d'inflexion de la courbe, est indiqué par une flèche. On a également représenté les deux fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ représentant respectivement l'état d'équilibre avec le réseau et l'état d'équilibre avec les porteurs (traits pointillés bleu et rouge resp.). (b) Jeu de paramètres utilisé pour la simulation numérique. La valeur de T_1 est donnée dans la limite $B = 0T$ (voir texte).

du champ critique) est suffisamment singulier pour ne pas pouvoir être ajusté par n'importe quel modèle, et d'autre part la plage de paramètres sur laquelle on peut obtenir un ajustement correcte est très réduite ce qui abonde dans le même sens. On y reviendra plus en détail.

2.2.3 Analyse et discussions des simulations numériques

Principe de l'équilibre dynamique et transition "chaud"/"froid"

L'état d'équilibre dynamique des Mn est le fruit de la compétition de deux thermostats à deux températures différentes et nous avons avancé plusieurs arguments allant dans ce sens. Mais essayons de l'expliquer dans le détail. Pour cela, prenons l'exemple plus simple d'un système de Mn à deux niveaux (i.e un spin $\frac{1}{2}$). Notons N_- et N_+ ces deux niveaux Zeeman. Supposons également pour simplifier qu'il n'existe qu'un seul type de porteurs. Les équations d'évolution d'un tel sytème s'écrivent alors :

$$\begin{aligned} \frac{dN_+}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_+ - N_+^{eq,lat})\right] + \left[-W^- N_+ + W^+ N_-\right] \\ \frac{dN_-}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_- - N_-^{eq,lat})\right] + \left[-W^+ N_- + W^- N_+\right] \end{aligned} \tag{2.48}$$

Avec, pour un système à deux niveaux :

$$N_\pm^{eq,lat} = N \frac{\exp\left(\mp \frac{g_{Mn}\mu_B B}{2k_B T_{lat}}\right)}{2\cosh\left(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{2k_B T_{lat}}\right)} \tag{2.49}$$

En utilisant le fait que l'on conserve le nombre total de Mn ($N_+ + N_- = N$), on peut réécrire ces équations sous la forme :

$$\begin{aligned}\frac{dN_+}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_+ - N_+^{eq,lat})\right] + \left[-(W^- + W^+)\left(N_+ - N\frac{W^+}{W^- + W^+}\right)\right] \\ \frac{dN_-}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_- - N_-^{eq,lat})\right] + \left[-(W^- + W^+)\left(N_- - N\frac{W^-}{W^- + W^+}\right)\right]\end{aligned} \tag{2.50}$$

Dans l'hypothèse que l'on a faite où le réservoir de porteurs est un thermostat décrit par la température T_{car}, on a bien sûr $\frac{W^+}{W^-} = \exp\left(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B T_{car}}\right)$, ce qui mène à :

$$\begin{aligned}\frac{dN_+}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_+ - N_+^{eq,lat})\right] + \left[-(W^- + W^+)(N_+ - N_+^{eq,car})\right] \\ \frac{dN_-}{dt} &= \left[-\frac{1}{T_1}(N_- - N_-^{eq,lat})\right] + \left[-(W^- + W^+)(N_- - N_-^{eq,car})\right]\end{aligned} \tag{2.51}$$

Avec :

$$N_\pm^{eq,car} = N\frac{\exp\left(\mp\frac{g_{Mn}\mu_B B}{2k_B T_{car}}\right)}{2\cosh\left(\frac{g_{Mn}\mu_B B}{2k_B T_{car}}\right)} \tag{2.52}$$

On voit alors le parallèle parfait entre l'interaction Mn-réseau et l'interaction Mn-porteurs. Le réseau tend à faire converger le système de Mn vers l'état $N_\pm^{eq,lat}$ à la vitesse $\frac{1}{T_1}$ tandis que le réservoir de porteurs tend à faire converger le système de Mn vers l'état $N_\pm^{eq,car}$ à la vitesse $W^- + W^+$. La compétition des deux thermostats implique alors que l'état stationnaire se trouve être la moyenne des populations à l'équilibre avec chacun des thermostats pondérée par les taux de retour à l'équilibre avec ces mêmes thermostats :

$$N_\pm = \frac{\frac{1}{T_1}N_\pm^{eq,lat} + (W^- + W^+)N_\pm^{eq,car}}{\frac{1}{T_1} + (W^- + W^+)} \tag{2.53}$$

On déduit immédiatement de ce qui précède que l'état des Mn est contrôlé par les modulations des coefficients de pondération $\frac{1}{T_1}$ et $W^- + W^+$. Et on montre au passage que la solution stationnaire est unique pour un simple système à deux niveaux. D'après l'équation 2.53, on peut passer d'un régime complètement "chaud" à un régime complètement "froid" à condition de passer d'une situation où $W^- + W^+ >> \frac{1}{T_1}$ à une situation où $W^- + W^+ << \frac{1}{T_1}$. Il est donc instructif de tracer ces deux coefficients en fonction du champ magnétique (cf. figure 2.13). En réalité, il y en a trois puisque dans notre système complet, les porteurs peuvent être des électrons ou des trous. Notons que la simulation fonctionne sur le système complet à six niveaux pour lequel la "règle de trois" de l'équation 2.53 n'est pas exacte. Nous n'avons pas calculé l'équation équivalente pour le système à six niveaux (si tant est qu'une solution analytique existe) mais nous sommes convaincu que cette solution est également unique (la non sensibilité aux conditions initiales des simulations tend à le prouver). De plus, il est logique de penser que le système à six niveaux fonctionne sur un principe similaire de "moyenne pondérée" donnée par l'équation 2.53 dans le cas du système à deux niveaux. On continuera donc de tracer les coefficients $\frac{1}{T_1}$ et $W^- + W^+$ qui sont un excellent moyen de comprendre la physique du système. Mais il ne faut pas s'étonner que ces coefficients ne vérifient pas tout à fait l'équation 2.53. Comme annoncé, on vérifie sur la figure 2.13 que les probabilités de transitions $W^\pm$ s'écroulent avec le champ magnétique et que les coefficients de pondération $\frac{1}{T_1}$ et $W^- + W^+$ se croisent. La transition d'un régime "chaud"

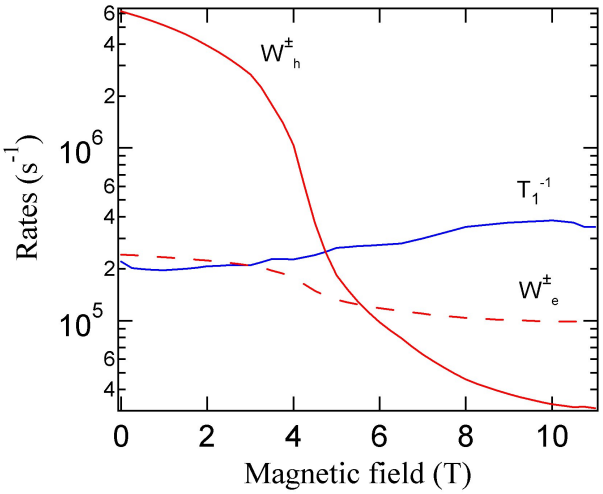

FIG. 2.13 – Dépendances de $\frac{1}{T_1}$ (trait plein bleu), $\frac{W^-_{ij,e}+W^+_{ij,e}}{a_{ij}}$ (trait pointillé rouge) et $\frac{W^-_{ij,h}+W^+_{ij,h}}{a_{ij}}$ (trait plein rouge) avec le champ B, en échelle log, pour le jeu de paramètres 1 présenté en 2.12.

à un régime "froid" pour le système de Mn est donc le résultat de la compétition entre deux thermostats dans laquelle le thermostat chaud a le dessus sur le thermostat froid à bas champ (car le thermostat chaud échange plus rapidement de l'énergie avec les Mn) et inversement à haut champ.

Sur cette même figure, on s'aperçoit que le facteur $\frac{1}{T_1}$ n'est pas constant et dépend même fortement du champ magnétique. Ceci ne relève en rien de la modélisation. $\frac{1}{T_1}$ est un paramètre que l'on rentre dans la simulation et il se trouve que, de la même manière qu'il dépend de la concentration en Mn ou de la température du réseau [53, 78, 72, 79], il dépend également du champ magnétique [72, 79]. Le fait que $\frac{1}{T_1}$ augmente avec le champ pourrait expliquer la transition que nous avons observée tout en considérant simplement un mécanisme de chauffage constant. La figure 2.14 montre le résultat de simulations dans lesquelles $W^{\pm}$ sont supposés constants avec le champ tandis que $\frac{1}{T_1}$ suit sa dépendance expérimentale. On conclut sans ambiguïté que la dépendance du temps de relaxation spin-réseau avec le champ ne peut pas expliquer à elle seule l'effet observé. Dans toute la suite, on continuera de prendre en compte les dépendances de T_1 avec le champ B, la concentration x_{Mn} ou la température T_{lat} mais on gardera en tête que ce sont les variations de $W^{\pm}$ qui expliquent la transition d'un régime "chaud" à un régime "froid".

Justification de l'importance de la boucle de rétroaction positive

Nous avons donc établi que cette transition est due à l'effondrement des probabilités de transitions $W^{\pm}$ avec l'augmentation du champ magnétique. Une justification qualitative simple (la polarisation du gaz de porteurs avec le champ) de cette affirmation a été donnée en 2.1.2 et le calcul complet de ces probabilités ainsi que leurs tracés, réalisés ci-dessus, achève de nous en convaincre. Nous avons également démontré qualitativement en 2.1.2 l'existence d'une boucle de rétroaction positive dans le système. Toutefois, nous n'avons pas démontré que cette boucle de rétroaction était nécessaire à l'observation de cette transition. On pourrait en effet objecter qu'il suffit que les coefficients $\frac{1}{T_1}$ et W^-+W^+ se croisent. Cette objection, en réalité, n'a pas lieu d'être, parce que le système est intrinsèquement bouclé. Les probabilités de transition $W^{\pm}$ dépendent de l'écart Zeeman géant ΔE_e (resp. ΔE_h) entre les deux sous-bandes de spin des électrons (resp.

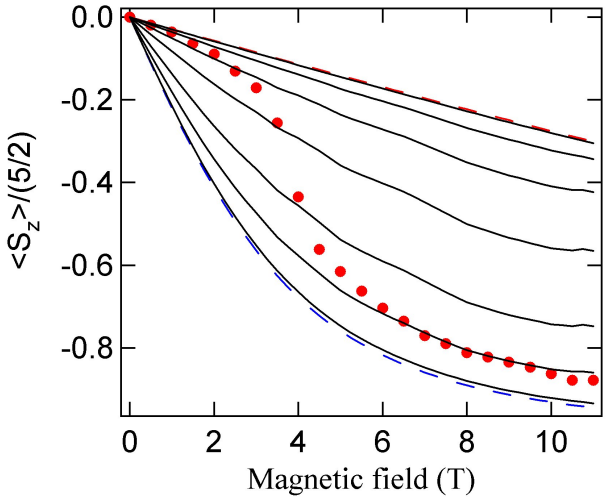

FIG. 2.14 – Simulations numériques dans le cas où le mécanisme de chauffage est constant. Le mécanisme de chauffage est alors représenté par un nombre W qui est l'exact analogue de $\frac{1}{T_1}$. $W = 10^4$ / 10^5 / $3 * 10^5$ / 10^6 / $3 * 10^6$ / 10^7 / 10^8 s^{-1} (traits pleins noirs). La dépendance de T_1 avec B est extraite de [72] et extrapolée aussi précisément que possible à nos conditions expérimentales $x_{Mn} = 1,5\%$ et $T_{lat} = 7K$. En champ nul, $\frac{1}{T_1} = 2 * 10^5 s^{-1}$ On a également représenté deux fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ (traits pointillés bleu et rouge respectivement).

des trous). Or cet écart dépend de l'état des Mn donc de $W^{\pm}$. On s'en aperçoit clairement si l'on trace $W^{\pm}$ pour les électrons et les trous en fonction de ΔE_e et ΔE_h respectivement, et non pas en fonction de B (cf. figure 2.15). Ces tracés sont intrinsèques. Ils ne dépendent pas de la rétroaction. On comprend alors très simplement la rétroaction : plus les Mn sont "chauds", plus les écarts Zeeman géants ΔE_e et ΔE_h sont petits et plus l'intensité du processus de chauffage, contrôlée par $W^{\pm}$, est importante. Il est donc impossible de comparer rigoureusement ce système avec et sans l'effet du bouclage.

Toutefois, on peut faire l'approximation la plus brutale qui soit et supposer que les dépendances en champ de ΔE_e et ΔE_h sont données par des fonctions de Brillouin. Autrement dit, on prend toujours en compte l'effet de chauffage des Mn par les porteurs mais on néglige désormais complètement le fait que l'état des porteurs dépend en retour de celui des Mn. Dans ce cas, les simulations ne permettent jamais, quelle que soit la température que l'on entre dans la fonction de Brillouin, de reproduire l'effet de transition abrupte observé. En faisant varier la température de ces fonctions de Brillouin, on obtient un réseau de courbes (non présenté ici) très similaire à celui de la figure 2.14. La transition ne résulte donc pas simplement du fait que les courbes de $\frac{1}{T_1}$ et $W^- + W^+$ se croisent. Elle résulte aussi du fait que ΔE_e et ΔE_h sont déterminés pour chaque champ B par la boucle de rétroaction et ont donc une dépendance avec B fortement non linéaire, qui en l'occurence présente une très brusque augmentation autour de $B_c = 4T$. C'est cela qui explique que la courbe de $W^- + W^+$ en fonction de B croise celle de $\frac{1}{T_1}$ suffisamment rapidement pour rendre compte des observations.

Un chauffage dû aux électrons ou aux trous ?

Essayons maintenant de comprendre les influences respectives des deux types de porteurs, électrons et trous. On a expliqué qu'en raison du mélange de bande de valence, les spins des trous

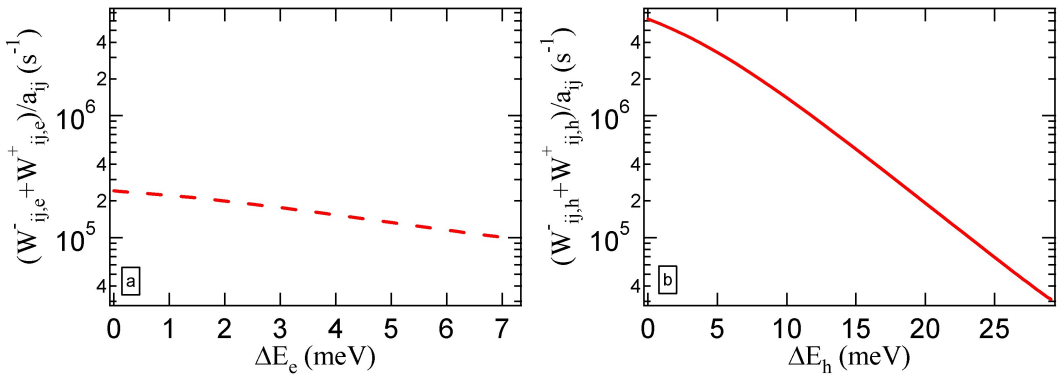

FIG. 2.15 – (a) Dépendance de $\frac{W^-_{ij,e}+W^+_{ij,e}}{a_{ij}}$ en fonction de ΔE_e, en échelle log, pour le jeu de paramètres 1. (b) Dépendance de $\frac{W^-_{ij,h}+W^+_{ij,h}}{a_{ij}}$ en fonction de ΔE_h, en échelle log, pour le jeu de paramètres 1.

sont libres de se retourner et peuvent participer au processus de chauffage via le mécanisme de flip-flop trous-Mn. Les deux types de porteurs peuvent donc interagir avec les Mn et ce via le même mécanisme. Il paraît alors compliqué de distinguer la contribution de chacun dans l'effet de chauffage des Mn. Jusqu'à présent, l'effet de chauffage des Mn par les porteurs dans les puits a quasiment systématiquement été attribué aux électrons, que les échantillons soient dopés négativement [66, 70] -et c'est alors compréhensible- ou non dopé intentionnellement [67, 68, 69, 80, 81]. Cette affirmation n'est pourtant pas très bien justifiée, si ce n'est par le fait que les trous dans un puits sont supposés être lourds et ne peuvent pas se retourner a priori. Il existe toutefois une mise en évidence assez convaincante d'un effet de chauffage par les trous dans les puits [82]. Dans cet article, il est clairement démontré que le rôle des électrons seuls est insuffisant pour expliquer les observations expérimentales. En ce sens, nous parvenons à la même conclusion. En figure 2.16, on a tenté d'ajuster les données expérimentales en tenant compte d'un mécanisme de chauffage dû aux électrons uniquement puis aux trous uniquement. Le résultat est éloquent : dans notre système, les trous sont responsables de la majeure partie du chauffage et notamment de la transition rapide "chaud"/"froid" tandis que le rôle principal des électrons est de maintenir un effet de chauffage non nul à fort champ. Ceci s'explique très simplement par le fait que l'écart Zeeman géant entre les deux sous-bandes de spin électronique (contrôlé par α) est quatre fois plus faible que l'écart Zeeman géant entre les deux sous-bandes de spin de trou (contrôlé par β). Par conséquent, à densité et à température de porteurs égales ($n_e = n_h$ et $T_e = T_h$), le gaz 2D de trous se polarise avec le champ beaucoup plus vite que le gaz 2D d'électrons. $W^{\pm}_{ij,h}$ varie ainsi sur une plage beaucoup plus grande que $W^{\pm}_{ij,e}$ (cf. figure 2.13), ce qui permet une transition d'un régime presque totalement "chaud" à un régime presque totalement "froid". Le décalage entre la simulation et la Brillouin froide en figure 2.12 est attribué à un chauffage résiduel des électrons. Il est intéressant de noter qu'en faisant varier les paramètres de la simulation sur une plage raisonnable, on ne parvient jamais à expliquer la transition par un chauffage dû aux électrons seuls. La seule manière d'y arriver est de jouer sur le paramètre clef, à savoir l'écart Zeeman géant, au travers de la concentration en Mn. Il faut alors entrer dans la simulation une valeur pour la concentration effective en Mn de $x_{Mn} = 5,5\%$. C'est bien entendu complètement irréaliste au regard de la composition de notre échantillon ($x_{Mn} = 1,5\%$) mais aussi de la possibilité d'obtenir de telles concentrations effectives (cf. figure I 1.16).

Qu'en est-il de la raison physique responsable de ce fort effet de chauffage dû aux trous ? Dans

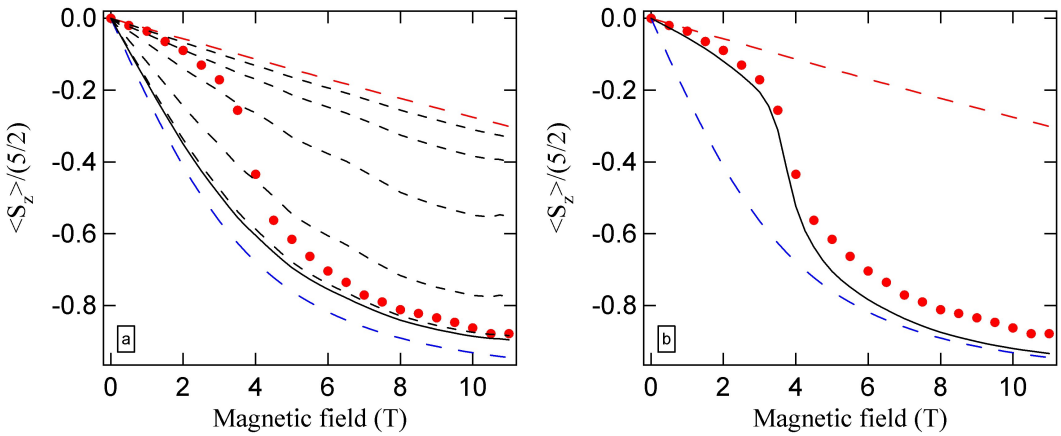

FIG. 2.16 – (a) Simulations numériques où seuls les électrons participent au processus de chauffage : $W^{\pm}_{ij,h} = 0$ donc. Avec le jeu de paramètres 1 (trait plein noir) puis pour $n_e = 10^8$ / $3*10^8$ / 10^9 / $3*10^9$ / 10^{10} cm^{-2} (traits pointillés noirs). (b) Simulations numériques avec le jeu de paramètres 1 mais où seuls les trous participent au processus de chauffage : $W^{\pm}_{ij,e} = 0$ donc (trait plein noir).

les puits, l'effet de chauffage des trous a été clairement démontré expérimentalement [82]. De plus, il a été mis en évidence dans le régime où le gaz de trous 2D est polarisé (ce qui correspond au régime "froid" à $B > B_c \approx 4T$ en ce qui nous concerne) et donc dans un régime où le retournement des trous est en principe impossible, à moins qu'il n'y ait du mélange de bande de valence. L'effet a donc été attribué au fait qu'il existe un mélange de bande de valence à $\vec{k} \neq \vec{0}$, dû au confinement (sans toutefois qu'une modélisation précise n'ait été réalisée). Dans nos structures (boîtes + couche de mouillage), nos simulations démontre aussi de manière indiscutable l'effet de chauffage des trous. Or dans nos structures les trous sont a priori toujours bloqués en raison de la séparation importante entre trous lourds et trous légers. C'est donc, comme dans les puits, la preuve de l'existence d'un mélange de bande de valence. Toutefois, l'origine et l'importance de ce mélange de bande restent indéterminées, même si l'on peut raisonnablement supposer que ce sont plutôt les contraintes qui en sont responsables, par comparaison avec les études effectuées dans des structures identiques aux nôtres [19, 76].

On peut tirer trois conclusions principales de cette étude. Tout d'abord, l'effet de chauffage des trous est prépondérant dans nos structures. Ensuite, l'effet de chauffage des trous, à la différence de celui des électrons, peut varier grandement avec le champ magnétique et induire une éventuelle transition "chaud"/"froid". Enfin, le mélange de bande de valence existe bel et bien dans nos structures (boîtes + couche de mouillage) bien qu'une description précise reste à faire, notamment afin d'en déterminer l'origine, l'importance et donc les éventuelles conséquences.

Importance du calcul complet des probabilités W+/-

Revenons à présent sur la nécessité de prendre en compte la conservation de l'énergie dans le calcul des probabilités de flip-flop Mn-porteurs $W^{\pm}$. Si on omet de conserver l'énergie $g_{Mn}\mu_B B$ correspondant au retournement d'un Mn, c'est à dire si on suppose que les porteurs se retournent à énergie constante, cela mène à $W^{+}_{ij} = W^{-}_{ij}$. C'est la démarche qui est proposée en [68]. Ce résultat est tout à fait compréhensible dans la mesure où il n'y a pas de raison de briser la symétrie entre W^{-} (probabilité de retourner un spin de Mn vers le bas) et W^{+} (probabilité de retourner un spin de Mn vers le haut) si l'on suppose que l'énergie échangée est nulle. La conséquence

d'une telle hypothèse est que l'interaction des porteurs avec les Mn tend alors à égaliser les six populations Zeeman du Mn, quel que soit le champ B. Autrement dit, l'interaction Mn-porteurs tend à thermaliser les Mn à une température infinie. C'est évidemment une approximation bien trop brutale comme le montre une version précédente de notre modèle qui ne parvient pas à ajuster les données expérimentales dans le cadre de cette approximation (cf. figure 2.17).

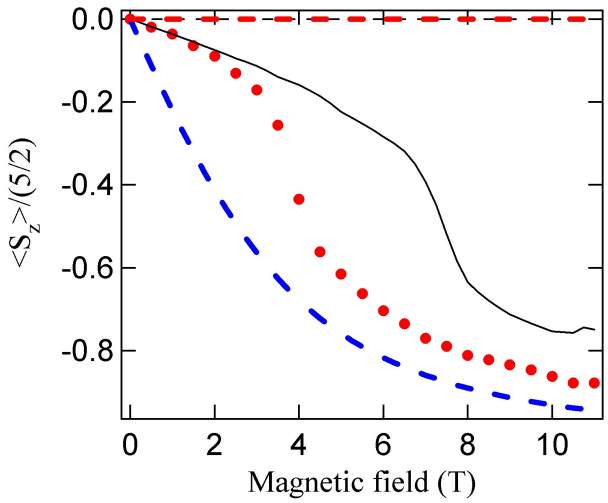

FIG. 2.17 – Simulations numériques réalisées avec un modèle qui ne respecte pas la conservation de l'énergie totale. L'ajustement est réalisé avec le jeu de paramètres 1 (trait noir). En utilisant ce modèle et en supposant que les Mn n'interagissent qu'avec les porteurs, on vérifie que les Mn thermalisent à une température infinie (trait pointillé noir).

Importance du modèle à six niveaux

Il serait agréable de pouvoir réduire le système à six niveaux du Mn à un simple système à deux niveaux. D'une part, beaucoup de résultats peuvent être rigoureusement démontrés dans le cas d'un système à deux niveaux, comme on l'a vu. D'autre part, les simulations numériques s'en trouveraient simplifiées et le temps de calcul raccourci. On peut cependant justifier qu'il est nécessaire de prendre en compte un modèle à six niveaux pour le Mn. En effet, si on ne considère que deux niveaux, séparés de l'énergie $g_{Mn}\mu_B B$, l'orientation $\langle S_z \rangle$ de ce système à deux niveaux est alors plus petite que l'orientation $\langle S_z \rangle$ que prendrait un système à six niveaux à la même température T_{Mn}. Cela modifie donc profondément les résultats de la simulation et il se trouve qu'il est même impossible de réaliser ainsi un ajustement correct des données expérimentales. Pour y remédier en continuant d'utiliser un modèle à deux niveaux, on pourrait considérer que ces deux niveaux sont séparés d'une énergie $g_{eff}\mu_B B$, où g_{eff} serait choisi de manière à reproduire correctement l'orientation $\langle S_z \rangle$ d'un système à six niveaux (sur la gamme de champ qui nous intéresse) à la même température T_{Mn}. Mais alors, l'énergie échangée avec les porteurs ne serait plus réaliste et les paramètres que l'on en tirerait sur le réservoir de porteurs ne le seraient plus non plus, a priori. Dans notre cas, un système à six niveaux ne peut donc pas raisonnablement se décrire par un système à deux niveaux. Précisons toutefois que ce désaccord reste purement quantitatif : qualitativement, la physique reste la même, ce qui justifie les analogies que l'on a pu faire précédemment entre les deux modèles.

2.3 Equilibre dynamique contrôlé par d'autres paramètres : température, puissance, concentration en Mn

Nous avons maintenant compris, tant d'un point de vue intuitif que d'un point de vue théorique, les idées principales qui sous-tendent la physique du système : l'interaction Mn-porteurs est à la base d'un effet de chauffage des Mn qui entre en compétition avec l'habituel équilibre des Mn avec le réseau. Attachons nous désormais à étudier en détail l'influence de chacun des paramètres du système. En étudiant ces paramètres d'abord d'un point de vue théorique puis d'un point de vue expérimental et en confrontant ces deux points de vue, on montrera non seulement que notre compréhension du système est assez satisfaisante mais aussi que cette compréhension nous permet de parvenir à un réel contrôle de l'interaction Mn-porteurs.

2.3.1 Compréhension du rôle théorique des différents paramètres via la modélisation numérique

L'influence des différents paramètres de notre modèle sur le résultat des simulations numériques est analysée, dans l'ordre où ils sont listés dans le jeu de paramètres 1 donné en figure 2.12. Pour chacun d'eux, on présentera un réseau de courbes (issues des simulations numériques) centré autour de la courbe qui ajuste au mieux les données expérimentales (celle issue du jeu de paramètres 1). On pourra ainsi discuter de l'influence qualitative et quantitative de chacun de ces paramètres. On précisera aussi pour chacun d'entre eux s'il est laissé libre dans la simulation ou s'il est fixé par une contrainte extérieure. Enfin, précisons que ces simulations ont été réalisées en ne faisant varier qu'un seul paramètre à la fois. Dans la réalité, beaucoup de ces paramètres sont corrélés et varient simultanément. Ainsi, la signification physique de ces simulations est pour le moment limitée. Elles ont principalement pour objet d'expliciter le rôle de chaque paramètre. Des simulations rendant réellement compte de la physique seront présentées plus loin.

Paramètres de l'interaction Mn-réseau

Commençons par l'influence de la température du réseau T_{lat}. A priori cette température est égale à celle du cryostat et de son bain d'hélium. Son rôle est assez simple à comprendre si l'on a bien saisi le fait que l'état d'équilibre dynamique des Mn correspond à la moyenne des états d'équilibre thermodynamique avec chacun des thermostats pondérée par les taux de retour à l'équilibre avec ces mêmes thermostats. Ainsi, plus T_{lat} sera petit par rapport à T_{car}, plus l'amplitude de la transition sera importante. Inversement, plus T_{lat} se rapproche de T_{car}, plus l'effet de transition est atténué (cf. figure 2.18). Dans la limite où $T_{lat} = T_{car}$, l'ensemble du système est évidemment à l'équilibre thermodynamique quel que soit le champ magnétique et l'orientation des Mn suit une fonction de Brillouin à cette même température. T_{lat} est bien sûr fixé par la température imposée au cryostat, ici $T = 7K$. Qui plus est, indépendamment du modèle, on vérifie qu'une fonction de Brillouin à $7K$ permet effectivement d'ajuster les données expérimentales à haut champ (pour $B > B_c$). Ce paramètre n'est donc pas libre.

T_1 est le temps de relaxation spin-réseau et $\frac{1}{T_1}$ est le coefficient de pondération du thermostat froid. Plus $\frac{1}{T_1}$ est grand (resp. petit), plus le système de Mn est "froid" (resp. "chaud") (cf. figure 2.19). Si $\frac{1}{T_1}$ est très supérieur ou très inférieur à $W^{\pm}$, la transition "chaud"/"froid" n'a pas lieu (et ce quel que soit le champ B) car les deux courbes $\frac{1}{T_1}$ et $W^- + W^+$ ne se croisent pas. Notons que ce paramètre T_1 dépend du champ magnétique [72, 79]. Sa valeur ainsi que sa dépendance en fonction du champ sont de plus soumises à l'influence de nombreux paramètres : la concentration en Mn x_{Mn} et la température du réseau T_{lat} [53, 78, 72, 79], mais également la densité n_{car} et la

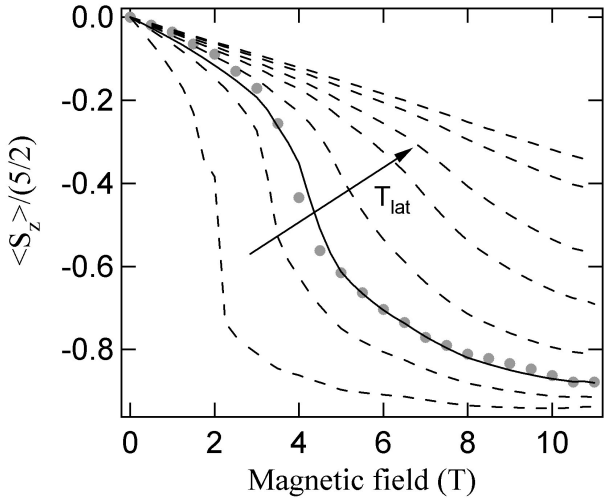

FIG. 2.18 – Réseau de courbes issues des simulations numériques montrant l'influence de T_{lat} : $T_{lat} = 2$ / 5 / **7** / 10 / 15 / 20 / 30 / 40 K, les autres paramètres étant ceux du jeu de paramètres 1 (trait plein et traits pointillés noirs). La courbe en trait plein noir correspond sur toutes les figures de cette section à l'ajustement des données avec le jeu de paramètres 1. La flèche sur la figure indique dans quel sens évolue le réseau de courbe lorsque T_{lat} augmente. La dépendance expérimentale de $\frac{\langle S_z \rangle /}{5/2}$ d'une boîte unique en fonction de B à $T = 7K$ et en polarisation σ^+ est reportée en guise de repère (ronds gris clair).

température T_{car} du gaz de porteurs dans le cas où celui-ci existe [83]. On peut donc considérer que dans nos simulations, T_1 est un paramètre fixé par des contraintes extérieures dans la mesure où nous avons utilisé le plus fidèlement possible les valeurs et les dépendances exposées dans la littérature. Nous avons procédé comme suit : dans un premier temps, nous déterminons d'après la littérature la valeur de "référence" de T_1 correspondant au mieux à nos conditions expérimentales de "référence" $x_{Mn} = 1,5\%$, $T_{lat} = 7K$ et $B = 0T$ (faible champ du moins). Dans un second temps, nous prenons en compte, toujours d'après la littérature, les différentes dépendances de T_1 (en B, x_{Mn}...) en fonction de la modification de nos conditions expérimentales. Il est important de préciser qu'étant donné les multiples dépendances de T_1, la valeur de "référence" que nous choisissons pour T_1 peut être entâchée d'une certaine erreur, éventuellement proche d'un ordre de grandeur. Or, le modèle se base sur le rapport entre $\frac{1}{T_1}$ et $W_{ij}^{\pm}$. Fixer la valeur de T_1 revient donc à normaliser l'ensemble du système 2.42 par $\frac{1}{T_1}$. En conséquence, l'erreur dans l'évaluation de la valeur de "référence" de T_1 se répercute sur les valeurs numériques des paramètres libres que l'on extrait de nos simulations, qui sont également entâchées d'une certaine erreur.

Paramètres de l'interaction Mn-porteurs

T_{car} est la température du thermostat chaud correspondant au réservoir de porteurs. En l'absence de connaissances plus poussées sur notre système, nous avons estimé raisonnable de supposer qu'électrons et trous ont la même température $T_e = T_h = T_{car}$. On pourrait croire que T_{car}, de manière symétrique à T_{lat}, tend à amplifier l'amplitude de la transition "chaud"/"froid" lorsqu'elle augmente et à réduire cette amplitude lorsqu'elle diminue. Ce n'est pas faux mais cet effet est masqué par le fait que T_{car} est surtout responsable d'un amollissement de la transition (indépendamment de la boucle de rétroaction) lorsqu'elle augmente (cf. figure 2.20). En effet la

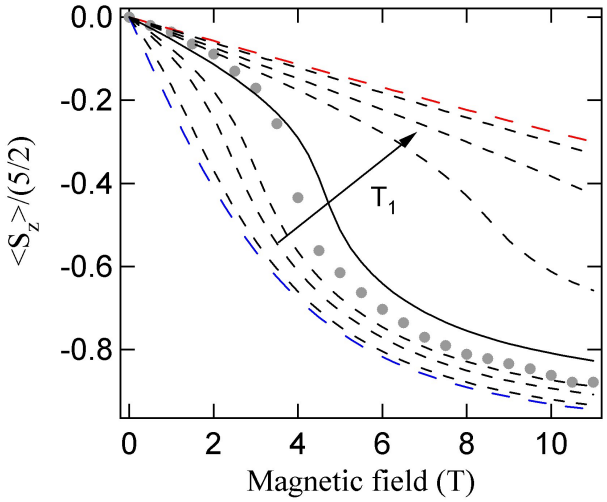

FIG. 2.19 – Simulations numériques montrant l'influence de T_1 : $\frac{1}{T_1} = 2*10^4$ / $6*10^4$ / $1*10^5$ / **2*10**^{5} / $4*10^5$ / $6*10^5$ / $2*10^6$ s^{-1}, les autres paramètres étant ceux du jeu de paramètres 1 (trait plein et traits pointillés noirs). Les valeurs de T_1 données ici sont celles à $B = 0T$. La dépendance de T_1 avec B est extraite de [72]. Données expérimentales (ronds gris clair). On a également représenté deux fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ (traits pointillés bleu et rouge respectivement).

transition brutale résulte du fait que la polarisation du gaz de porteurs devient quasi-totale sur une petite plage de champ magnétique. Ainsi si les porteurs sont thermalisés à une température T_{car} très basse, tendant vers $0K$, la polarisation du gaz devient totale au moment où l'écart Zeeman géant entre les deux sous-bandes de spin est juste assez grand pour vider complètement la sous-bande d'énergie supérieure. Le mécanisme de flip-flop s'en trouve bloqué puisqu'il ne conserve plus l'énergie alors qu'il était encore possible juste avant que la polarisation du gaz soit totale. Ceci se passe donc sur une plage très restreinte de champ magnétique. En revanche si T_{car} est élevée, les porteurs sont réparties sur une large plage énergétique et la polarisation complète du gaz se fait de manière beaucoup plus progressive. Les probabilités de transition $W^{\pm}$ diminuent donc plus lentement avec le champ et induisent une transition plus molle. T_{car} est l'un des trois paramètres libres de la simulation. Notons toutefois qu'on peut vérifier sa cohérence grâce aux données expérimentales à bas champ ($B < B_c \approx 4T$) que l'on veut être capable d'ajuster par une fonction de Brillouin à T_{car}.

$W^{\pm}$ désignent les probabilités de transition entre les différents niveaux Zeeman du Mn, qui sont induites par l'interaction Mn-porteurs. Elles correspondent grossomodo au coefficient de pondération du thermostat chaud comme on l'a déjà expliqué. $W^{\pm}$ ne sont pas des paramètres de la simulation mais constituent la clef de la compréhension physique du système. $W^{\pm}$ dépendent directement des paramètres T_{car}, n_{car}, L_z et ϵ ; et indirectement de x_{Mn} ainsi que des paramètres spécifiques de l'interaction Mn-réseau T_{lat} et T_1, parce que le système est bouclé. Nous avons suffisamment discuté de l'importance des $W^{\pm}$, et les paramètres dont ils dépendent sont discutés ci-dessous. Nous tenons simplement à préciser ici que l'ordre de grandeur de $W^{\pm}_{ij,e/h}$ est cohérent. Ce dernier dépend bien sûr des niveaux du Mn que l'on considère, du fait que le Mn se retourne vers le haut ou vers le bas et bien sûr du fait que le Mn interagit avec des électrons ou des trous. Mais l'ordre de grandeur extrait des simulations, est de $\approx 10^6$, ce qui correspond à un temps moyen d'interaction d'un Mn avec les porteurs de $\approx 1\mu s$. Or, le temps de retour-

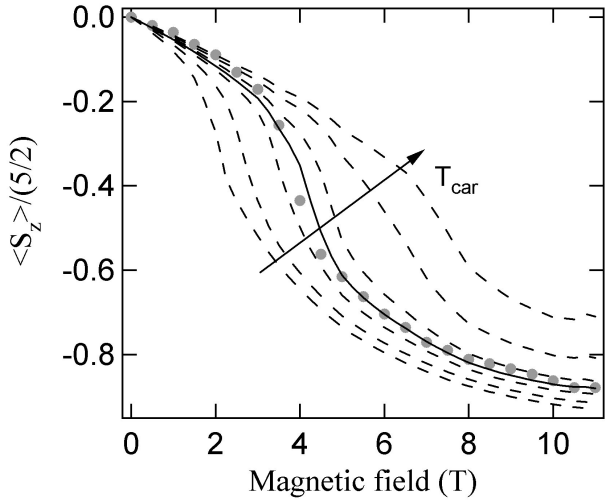

FIG. 2.20 – Simulations numériques montrant l'influence de T_{car} : T_{car} = 30 / 40 / 50 / **55** / 60 / 70 / 80 K, les autres paramètres étant ceux du jeu de paramètres 1 (trait plein et traits pointillés noirs). Données expérimentales (ronds gris clair).

nement caractéristique d'un électron avec les Mn dans un puits magnétique est de l'ordre de $\approx 1ps$ à $100ps$ suivant les densités de porteurs et les concentrations en Mn [81, 84], ce qui représente une différence d'environ cinq ordres de grandeur. A première vue, on pourrait trouver cela contradictoire. En réalité, ceci est tout à fait normal et s'explique par le fait que la probabilité d'interaction d'un électron (ou d'un trou, dans les cas où il peut se retourner) avec tous les Mn de la structure n'est pas du tout la même que la probabilité d'interaction d'un Mn avec tous les électrons (ou tous les trous), qui est celle qui nous intéresse. En effet, il y a beaucoup plus de Mn ($\approx 10^{12}$ à $10^{13}cm^{-2}$ dans notre échantillon à $x_{Mn} = 1,5\%$) que de porteurs ($\approx 10^{7}$ à $10^{8}cm^{-2}$ en ce qui nous concerne et au maximum $10^{11}cm^{-2}$ dans les puits) par unité de surface. Un porteur va donc relaxer plus vite avec les Mn qu'un Mn ne relaxe avec les porteurs, et le rapport des temps relaxation doit correspondre au rapport des densités surfaciques [81]. C'est logique et on vérifie ainsi que l'ordre de grandeur de $W^{\pm}$ que l'on trouve est tout à fait cohérent.

n_{car} est la densité surfacique du gaz de porteurs 2D. Dans la mesure où nos échantillons ne sont pas intentionnellement dopés, et que les porteurs considérés dans ce manuscrit sont tous des porteurs photocréés par excitation optique, il paraît assez raisonnable de supposer que l'on génère autant d'électrons que de trous $n_e = n_h = n_{car}$. Plus la densité de porteurs est faible (resp. élevée), plus la polarisation complète du gaz de porteurs a lieu à champ faible (resp. fort). Ainsi n_{car} contrôle plus ou moins la valeur du champ critique B_c à laquelle se produit la transition (cf. figure 2.21). Pour des densités de porteurs très faibles, le gaz de porteurs se polarise à tout petit champ. De plus le faible nombre de porteurs fait que l'effet de chauffage devient négligeable (on tend vers un système sans porteurs). La transition ne se voit donc pas et le système de Mn est toujours "froid", thermalisé avec le réseau. Par ailleurs, pour des densités de porteurs trop élevées pour que l'aimantation à saturation des Mn permettent la polarisation complète du gaz de porteurs, la transition peut ne jamais avoir lieu et le système de Mn rester toujours "chaud". n_{car} est un paramètre libre de la simulation. On vérifie toutefois sa cohérence en s'assurant qu'il est plus petit (de l'ordre de $10^{8}cm^{-2}$) que les densités surfaciques atteintes par dopage volontaire (de l'ordre de $10^{10}cm^{-2}$).

L_z est la largeur de la couche de mouillage, modélisé par un puits quantique 2D. Les proba-

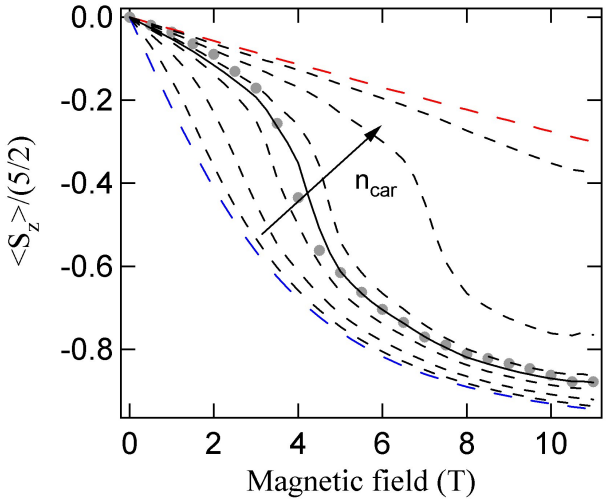

FIG. 2.21 – Simulations numériques montrant l'influence de n_{car} : $n_{car} = 1 * 10^7$ / $3 * 10^7$ / $6 * 10^7$ / **8*10**^{7} / $1 * 10^8$ / $2 * 10^8$ / $6 * 10^8$ cm^{-2}, les autres paramètres étant ceux du jeu de paramètres 1 (trait plein et traits pointillés noirs). Données expérimentales (ronds gris clair). Fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ (traits pointillés bleu et rouge respectivement).

bilités $W^{\pm}$ sont proportionnelles à $\frac{1}{L_z^2}$, ce qui traduit le fait que le recouvrement Mn-porteurs est en moyenne augmenté du fait du confinement des porteurs. Ainsi, plus L_z est petit, plus le chauffage des Mn par les porteurs est efficace (cf. figure 2.22). Or, pour être en mesure d'observer la transition "chaud"/"froid", il faut parvenir à des taux de chauffage comparables au taux de relaxation spin-réseau. Dans notre cas où l'épaisseur de la couche de mouillage est très faible ($L_z = 1,5nm$), on peut donc l'observer à des concentrations de porteurs accessibles par simple excitation optique ($n_{car} \approx 10^8 cm^{-2}$), tandis que dans des puits plus larges ($L_z = 8nm$), il est nécessaire de doper les échantillons ($n_{car} \approx 10^{10} cm^{-2}$) [66]. L_z est un paramètre relativement bien fixé par l'épaisseur de la couche de mouillage (de l'ordre du nm). Cependant, les fluctuations d'épaisseur de cette dernière font que nous n'en connaissons évidemment pas la valeur exacte.

ϵ est le paramètre introduit pour décrire de manière effective le mélange de bande de valence, qui autorise le mécanisme de flip-flop trous-Mn. Nous avons justifié a posteriori la nécessité d'introduire ce paramètre en confrontant modélisation théorique et expérience. Toutefois, nous avons aussi justifié a priori que la prise en compte du mélange de bande de valence était loin d'être absurde dans nos structures. Dans l'ajustement des données expérimentales, nous obtenons $\epsilon = 0,8$, ce qui correspond à un état fondamental de trou à 60% lourd et à 40% léger environ. Bien qu'il soit difficile d'être quantitatif quant à ces valeurs et de savoir si elles peuvent entièrement s'expliquer par les contraintes (ou le confinement, ou les deux), cela paraît relativement élevé ; notamment en comparaison des valeurs obtenues dans des structures quasiment identiques [19, 76], plutôt de l'ordre de $0,1$. On peut envisager différentes explications à cela. Premièrement, les valeurs de ϵ dans [19, 76] sont censées décrire le mélange de bande dans les boîtes elles-mêmes, et on peut imaginer que le mélange de bande soit en réalité plus important dans la couche de mouillage que dans les boîtes. Deuxièmement, les approximations brutales de notre modélisation (qui seront discutées en 2.5) pourraient nous pousser à surestimer la valeur de ϵ alors qu'une modélisation plus réaliste de notre système donnerait une valeur plus petite de ϵ. Dernièrement, il se peut que la valeur importante de ϵ soit tout simplement le signe que nous avons oublié de considérer un effet physique important dans notre modèle. La question reste

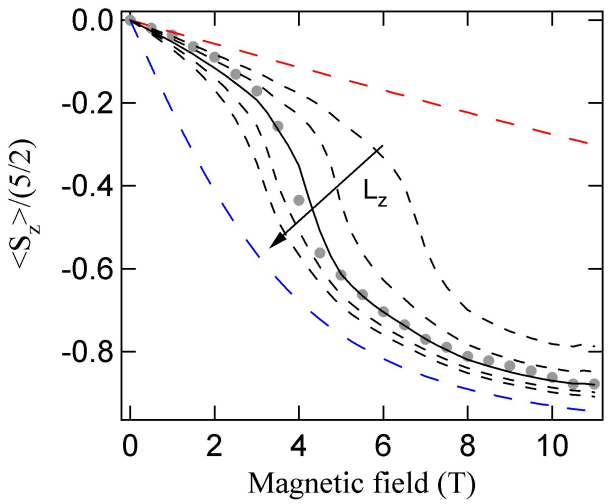

FIG. 2.22 – Simulations numériques montrant l'influence de L_z : L_z = 1 / 1,25 / **1,5** / 1,75 / 2 nm, les autres paramètres étant ceux du jeu de paramètres 1 (trait plein et traits pointillés noirs). Données expérimentales (ronds gris clair). Fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ (traits pointillés bleu et rouge respectivement).

ouverte pour le moment. Toutefois, nous croyons peu à une remise en cause complète du modèle étant donné l'ensemble de preuves accumulées dans ce manuscrit et la difficulté à expliquer un effet expérimental aussi atypique que celui observé. L'influence de ϵ sur les simulations est présentée en fig 2.23. Le cas $\epsilon = 0$ correspond au cas déjà discuté d'un chauffage par les électrons uniquement, qui ne peut en aucun cas expliquer les observations expérimentales. Bien que l'on puisse discuter de la validité de la valeur $\epsilon = 0,8$, on peut néanmoins conclure que la modélisation théorique, quand bien même approximative, prouve qu'il existe un mélange de bande de valence non négligeable dans nos structures qui rend le rôle des trous prépondérant dans le mécanisme de chauffage. Enfin, ϵ est évidemment un paramètre libre de la simulation (compris entre 0 et 1 bien entendu).

Enfin x_{Mn} désigne la concentration en Mn des boîtes quantiques, identique dans les boîtes et la couche de mouillage. x_{Mn} contrôle à quelle vitesse se polarise le gaz en fonction du champ magnétique. En effet, plus x_{Mn} est grand, plus l'écart Zeeman géant entre les deux sous-bandes de spin du gaz de porteurs est important et plus ce gaz est polarisé. Le mécanisme de chauffage est alors coupé. Pour les échantillons très concentrés, la transition "chaud"/"froid" a ainsi lieu a tout petit champ, voire n'est pas visible. On observe alors un comportement de fonction de Brillouin ("froide") standard. Inversement, dans la limite des faibles concentrations telles que celle d'un Mn unique dans une boîte, l'aimantation à saturation des Mn est trop faible pour permettre la polarisation du gaz de porteurs et on n'observe pas de transition. Le système est toujours "chaud" (cf. figure 2.24). x_{Mn} est évidemment un paramètre fixé par les conditions de croissance. Pour l'échantillon M1736 dont la dépendance en champ est présentée ici, $x_{Mn} = 1,5\%$.

L'étude des paramètres du modèle nous a permis d'accéder à une meilleure compréhension qualitative de la physique du système et du rôle que chacun des paramètres y tient. On a notamment pu se rendre compte que cet effet de transition abrupte "chaud"/"froid" n'existe que dans des conditions expérimentales particulières (densité n_{car} adaptée en fonction de la concentration x_{Mn}, de la largeur L_z...). Cette assertion est fortement corroborée d'un point de vue quantitatif par le fait que le résultat des simulations est extrêmement sensible à la variation des paramètres.

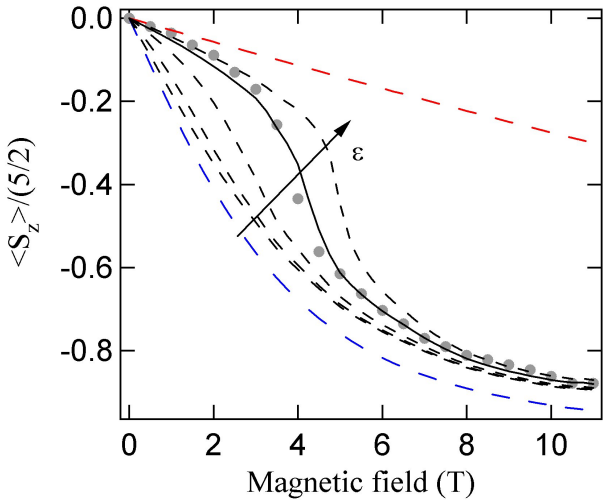

FIG. 2.23 – Simulations numériques montrant l'influence de ϵ : $\epsilon = 0$ / $0,25$ / $0,5$ / **0,8** / 1, les autres paramètres étant ceux du jeu de paramètres 1 (trait plein et traits pointillés noirs). Données expérimentales (ronds gris clair). Fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ (traits pointillés bleu et rouge respectivement).

Autrement dit, la plage de l'espace des paramètres sur laquelle ce phénomène de transition est observable est très restreinte. Ceci semble expliquer pourquoi il n'a jamais été mis en évidence dans les boîtes et l'a seulement été à de rares exceptions dans les puits. Mais cette remarque se base pour l'instant majoritairement sur des considérations théoriques. Qu'en est-il de la réalité expérimentale ? Nous proposons de vérifier qu'expérimentalement, le système se comporte bien selon les prédictions exposées ci-dessus. Modifier les paramètres expérimentaux nous permettra non seulement de vérifier de manière assez probante l'accord expérience/modèle et de renforcer ainsi la validité du modèle, mais aussi de prouver que l'on peut parvenir à contrôler l'interaction Mn-porteurs.

2.3.2 Contrôle expérimental de l'effet d'équilibre dynamique des Mn

Modifications des paramètres expérimentaux

Expérimentalement, il est possible de faire facilement varier trois des sept paramètres présentés ci-dessus : la température du réseau T_{lat} est contrôlée par la température imposée au cryostat T, la densité de porteurs n_{car} est contrôlée par la puissance d'excitation P et la concentration en Mn x_{Mn} peut être modifiée d'un échantillon à l'autre. Nous avons donc, outre le champ magnétique B, trois possibilités de contrôler l'équilibre dynamique des Mn.

En figure 2.25, on constate que ces paramètres permettent non seulement d'adoucir, de décaler, ou de supprimer la transition mais surtout de le faire de manière parfaitement cohérente avec les évolutions qualitatives décrites plus haut. Qui plus est, quantitativement, sur l'ensemble des résultats expérimentaux, l'accord expérience/modèle est tout à fait correct. On parvient à ajuster correctement l'ensemble des mesures à partir d'un même jeu de paramètres : lorsqu'expérimentalement, on change un paramètre, on ne change dans la simulation numérique correspondante que le paramètre numérique correspondant ainsi que ceux qui dépendent directement de ce paramètre expérimental (par exemple, changer la concentration x_{Mn} implique une modification corollaire de T_1).

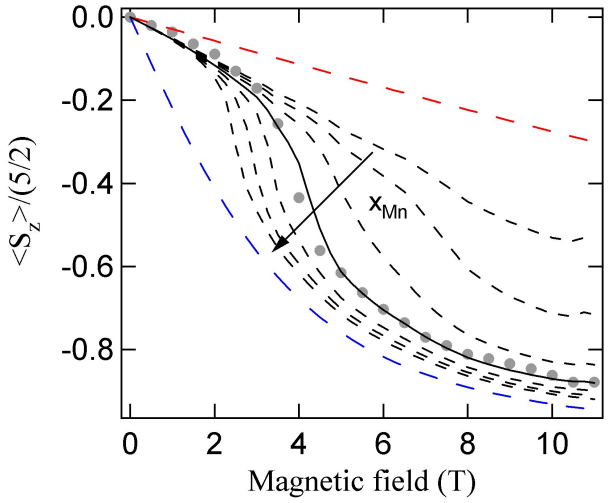

FIG. 2.24 – Simulations numériques montrant l'influence de x_{Mn} : $x_{Mn} = 0,75$ / 1 / $1,25$ / **1,5** / $1,75$ / 2 / $2,25$ %, les autres paramètres étant ceux du jeu de paramètres 1 (trait plein et traits pointillés noirs). Données expérimentales (ronds gris clair). Fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ (traits pointillés bleu et rouge respectivement).

Ainsi en figure 2.25(a), pour ajuster les données à $T = 30K$, on ne modifie que la température du réseau T_{lat}, la température des porteurs T_{car} et T_1. T_{car} dépend a priori de T_{lat} puisque T_{car} est le résultat d'un équilibre dynamique des porteurs (qui n'est pas décrit dans ce manuscrit) résultant du fait qu'on génère de manière continue des porteurs chauds qui sont simultanément refroidis par le réseau. De plus, la valeur $T_{car} = 80K$ peut être extraite d'un ajustement à bas champ des données à $T = 30K$ par une fonction de Brillouin. En figure 2.25(b), pour ajuster les courbes à différentes puissances P, on ne modifie que la densité de porteurs n_{car} qui doit être proportionnelle à P dans l'hypothèse la plus simple. Notons qu'a priori, T_1 dépend de n_{car} [83], mais cette dépendance n'a pas à être prise en compte dans notre cas[12]. Enfin, en figure 2.25(c), pour réaliser l'ajustement des données à différentes concentrations de Mn x_{Mn}, on s'est contenté de modifier la concentration en Mn effective x_{eff} (c'est la concentration effective qui intervient dans le modèle) en accord avec la figure I 1.16. On a également modifié T_1 et T_{lat}. La modification de T_{lat} ici ne s'explique pas dans le cadre du modèle présenté jusqu'ici mais provient vraisemblablement d'un processus de chauffage supplémentaire qualifié d'indirect. Ce mécanisme de chauffage indirect sera discuté en 2.5. Sur l'ensemble des ajustements numériques, les valeurs de T_1 ont été adaptées en fonction de T_{lat} et de x_{Mn} conformément à la littérature [53, 78, 72, 79] et la dépendance de T_1 avec B a été prise en compte et normalisée au mieux en fonction de x_{Mn} [72]. Dans la figure 2.25, toutes les valeurs de T_1 qui sont données correspondent aux valeurs dans la limite $B = 0T$.

[12]La raison en est un peu compliquée. En présence d'un gaz de porteurs, on peut observer une accélération de la relaxation spin-réseau via un mécanisme de transfert de spin et d'énergie d'abord des Mn vers les porteurs puis des porteurs vers le réseau [83]. Il faut bien comprendre que ce mécanisme peut exister y compris en présence d'un effet de chauffage des Mn par les porteurs. Mais pour cela, il faut qu'il existe simultanément deux gaz de porteurs : un gaz de porteurs froids résidants (qui autorise ce mécanisme d'accélération de la relaxation spin-réseau) et un gaz de porteurs chauds photocréés (qui autorise l'effet de chauffage) [85]. Or, dans notre cas, nous n'avons qu'un seul gaz, chaud, constitué par les porteurs photocréés.

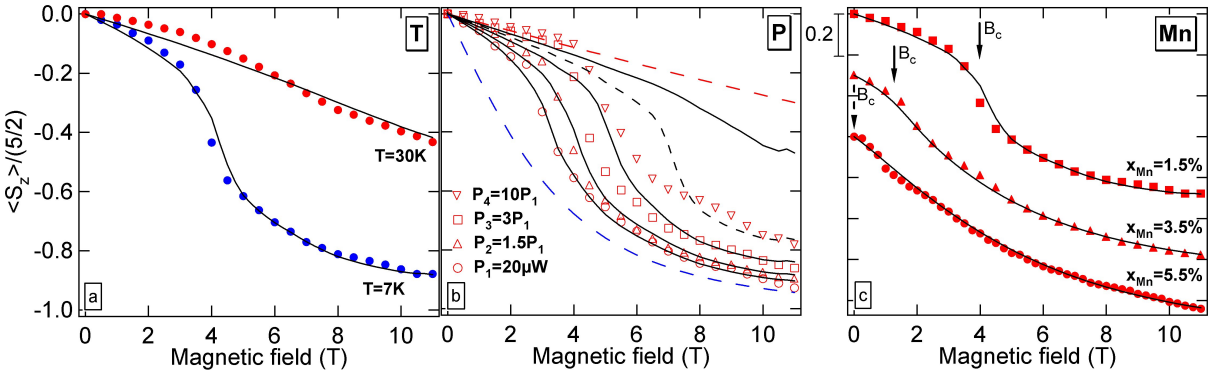

FIG. 2.25 – $\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ quantifie l'orientation des Mn obtenue par la normalisation du décalage énergétique d'une raie de boîte unique en fonction de B en polarisation σ^+. L'ensemble des simulations numériques (traits pleins noirs) est obtenu à partir du même jeu de paramètres 1. Seuls les paramètres qui diffèrent de ce jeu-là sont donnés ici. (a) $\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ vs B pour deux températures de cryostat T différentes : $T = 7K$ et $T = 30K$ (ronds bleus et rouges resp.). Ajustement de $T = 7K$: jeu de paramètres 1. Ajustement de $T = 30K$: $T_{lat} = 30K$, $T_{car} = 80K$, $1/T_1 = 10^6 s^{-1}$ (b) $\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ vs B à $T = 7K$ pour différentes puissances d'excitation Laser P : $P_1 = 20\mu W$, $P_2 = 30\mu W$, $P_3 = 60\mu W$ et $P_4 = 200\mu W$ (ronds, triangles hauts, carrés et triangles bas rouges et vides resp.). Simulations : $n_{car,1} = 0,5 * 10^8 cm^{-2}$, $n_{car,2} = 0,75 * 10^8 cm^{-2}$, $n_{car,3} = 1,5 * 10^8 cm^{-2}$ et $n_{car,4} = 5 * 10^8 cm^{-2}$ (traits pleins) et un tracé additionnel pour $n_{car} = 2 * 10^8 cm^{-2}$ (trait pointillé). On a également représenté les deux fonctions de Brillouin à $T_{lat} = 7K$ et $T_{car} = 55K$ représentant respectivement l'état d'équilibre avec le réseau et l'état d'équilibre avec les porteurs (traits pointillés bleu et rouge resp.). (c) $\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ vs B à $T = 7K$ pour des concentrations en Mn x_{Mn} différentes : $x_{Mn} = 1,5\%$ (M1736), $x_{Mn} = 3,5\%$ (M2116) et $x_{Mn} = 5,5\%$ (M2114) (carrés, triangles et ronds rouges pleins resp.). Simulations : $x_{eff} = 1,5\%$, $1/T_1 = 2 * 10^5 s^{-1}$ et $T_{lat} = 7K$ (pour $x_{Mn} = 1,5\%$), $x_{eff} = 2,4\%$, $1/T_1 = 10^6 s^{-1}$ et $T_{lat} = 10K$ (pour $x_{Mn} = 3,5\%$) et $x_{eff} = 3,1\%$, $1/T_1 = 9 * 10^6 s^{-1}$ et $T_{lat} = 12K$ (pour $x_{Mn} = 5,5\%$). Les trois courbes ont été arbitrairement décalées de $0,3$ pour améliorer la visibilité.

Conclusion : contrôle de l'interaction Mn-porteurs !

L'ensemble des mesures expérimentales démontre, comme c'était prévu par la modélisation théorique et numérique, que l'effet de transition abrupte "chaud"/"froid" n'existe que dans des conditions expérimentales particulières. En effet, comme c'est souvent le cas dans les systèmes soumis à des boucles de rétroaction positive, le comportement critique n'apparaît que sur une plage restreinte de l'espace des paramètres. L'ensemble des huits paramètres (les sept paramètres présentés en figure 2.12 ainsi que le champ B) est donc à prendre en considération et si l'un des huits diffère trop de sa valeur attendue, l'effet n'est pas observable. Certains de ces paramètres revêtent une importance particulière, essentiellement parce qu'ils sont facilement contrôlables expérimentalement et expliquent ainsi que l'effet n'ait jamais été observé dans les boîtes et n'ait été que rarement observé dans les puits. C'est le cas du champ B bien sûr puisque, pour être observable, l'effet doit se produire dans une plage de champ accessible à l'expérimentateur. Mais ce sont surtout la concentration x_{Mn}, et la densité n_{car} qui varient d'une expérience à l'autre et font disparaître la transition. Ainsi des concentrations en Mn de quelques pourcents (qui sont généralement celles étudiées) suffisent à annihiler l'effet de chauffage tandis que dans la limite des très faibles concentrations, le système est toujours chaud. Un autre paramètre explique également

les disparités des observations expérimentales. C'est l'épaisseur de la couche de mouillage ou du puits L_z : le processus de chauffage varie en $\frac{1}{L_z^2}$ expliquant ainsi que l'effet soit plus important et se produise pour une densité n_{car} plus faible dans les boîtes où la couche de mouillage est fine que dans les puits, plus larges. On trouvera une preuve expérimentale de cela en 2.4.

Notre modélisation théorique permet d'ajuster numériquement un ensemble assez complet de résultats expérimentaux à l'aide d'un même jeu de paramètres. La plupart de ces paramètres sont d'ailleurs fixés par des contraintes expérimentales ou par des données de la littérature et les simulations ne comportent qu'un petit nombre de paramètres libres. Les ordres de grandeur obtenus pour ces paramètres, fixes comme libres, sont réalistes et cohérents dans l'ensemble. L'accord expérience/modèle est donc plutôt satisfaisant, ce qui tend à confirmer la validité du modèle ; d'autant plus qu'il faut reconnaître qu'il est a priori difficile d'expliquer nos observations expérimentales par un modèle quantitatif, étant donné leurs dépendances atypiques. Toutefois, l'incapacité du modèle à décrire les expériences à fortes puissances et la valeur élevée de ϵ tendent à prouver les limites du modèle. Ces limitations sont probablement dues aux hypothèses fortes sur lesquelles se base le modèle et qui seront discutées en 2.5. En résumé, nous ne prétendons pas que les valeurs des paramètres qui sont extraites des simulations sont à considérer au pied de la lettre. Elles sont entâchées d'une incertitude liée d'une part aux hypothèses du modèle et d'autre part à la connaissance approximative des paramètres fixes, comme T_1. En revanche, nous défendons l'idée que les ordres de grandeur sont plutôt corrects dans l'ensemble. Et surtout, nous affirmons que l'accord correct expérience/modèle confirme la validité des fondements physiques de notre modèle : à savoir un équilibre dynamique des Mn résultant de la compétition entre le réseau et les porteurs -les trous ayant un rôle prépondérant- dont l'interaction avec les Mn est déterminée par une boucle de rétroaction positive, modulée par le champ.

Nous avons donc démontré l'influence de l'environnement, extrêmement important en physique du solide, au travers de l'identification et de la compréhension du mécanisme de chauffage des Mn par les porteurs injectés au voisinage d'une boîte. Nous avons également montré qu'il était possible de contrôler expérimentalement cette interaction Mn-porteurs par au moins quatre paramètres : le champ magnétique B, la concentration en Mn x_{Mn}, la puissance d'excitation P et la température du réseau T_{lat}. Contrôler l'interaction Mn-porteurs peut premièrement permettre de s'affranchir de l'influence non désirée des porteurs dans certains cas. Si la transition "chaud"/"froid" est rarement observable, le mécanisme de chauffage n'en est pas moins très souvent présent. C'est le cas pour un Mn unique dans une boîte quantique individuelle qui est soumis à un fort effet de chauffage [86] et ce quel que soit le champ magnétique. Dans le cas où l'on veut parvenir à manipuler de manière cohérente le spin du Mn ou ne serait-ce qu'à conserver son orientation longitudinale, il faut donc s'affranchir de ce processus de chauffage. Bien entendu, l'excitation résonante ou quasi-résonante est un moyen d'y parvenir [9] mais un contrôle accru de l'interaction Mn-porteurs représenterait une alternative intéressante si ce n'est une amélioration de la situation expérimentale. Deuxièmement, le contrôle de cette interaction pourrait aussi permettre d'utiliser l'effet de transition "chaud"/"froid". Contrôler l'interaction Mn-porteurs a un degré suffisamment avancé permettrait d'envisager le contrôle optique de la formation de microdomaines magnétiques par exemple (on verra en 2.5 que la présence de boîtes rend l'aimantation inhomogène spatialement). Ou alors, avec une transition suffisamment abrupte, on pourrait réaliser une porte logique contrôlée par le champ magnétique, le régime "chaud" correspondant au 0 et le régime "froid" au 1 par exemple. De manière plus générale, ce système ouvre des possibilités en terme de couplage entre propriétés magnétiques et propriétés opto-électroniques dans la mesure où il permet de contrôler la dynamique des spins de Mn par la présence d'un gaz de porteurs dont les propriétés peuvent être modulées de différentes façons. Un tel couplage est

largement recherché dans le domaine de la spintronique et constitue l'un des atouts principaux des semi-conducteurs magnétiques dilués.

2.4 Expériences complémentaires confirmant le modèle

Nous avons démontré le rôle des porteurs dans le mécanisme de chauffage des spins de Mn. Nous souhaitons donner ici des arguments qui renforce la thèse de porteurs quasi 2D. Pour cela, on peut a priori procéder de deux manières : soit on se contente d'injecter uniquement des porteurs 2D et on vérifie que l'effet de chauffage est toujours présent, soit au contraire on n'injecte pas de porteurs 2D et on s'attend à ce que l'effet de chauffage disparaisse. Pour réaliser la première situation, nous avons répété l'expérience de chauffage dans un puits fin sensé simuler la couche de mouillage seule. Pour réaliser la deuxième, nous avons procédé à des expériences en excitation quasi-résonante.

2.4.1 Chauffage des spins de Mn dans un puits fin

Pour imiter la couche de mouillage, nous avons réalisé un échantillon (M2168) constitué d'un puits fin CdMnTe/ZnTe dont la concentration en Mn $x_{Mn} = 1\%$ est voisine de celle de l'échantillon de boîte M1736 exhibant la transition "chaud"/"froid". L'épaisseur du puits est de $4MCs$ soit environ $L_z = 1,5nm$. De plus, étant donné les matériaux utilisés pour l'hétéro-épitaxie, le puits est fortement contraint. Nous reproduisons donc de manière assez fidèle l'échantillon M1736, mais sans boîte quantique. Il ne reste qu'à se placer dans des conditions expérimentales similaires. Notons toutefois que dans un puits si fin, il existe des états localisés en raison des fluctuations d'interfaces.

On présente en figure 2.26 le résultat de l'expérience de chauffage conduite sur ce puits fin. L'expérience est réalisée avec un montage de micro-PL pour travailler dans des conditions d'excitation équivalentes à celles utilisées pour les boîtes. Toutefois, la gamme de puissance à laquelle il est possible de travailler sur un puits est plus importante que sur une boîte. Rappelons que dans le cas des boîtes, la puissance d'excitation minimum que nous avons utilisée était de $20\mu W$ et la puissance maximum de $200\mu W$ (cf. figure 2.25). Dans les puits en revanche, on peut diminuer l'excitation jusqu'à des puissances de l'ordre du μW car on récolte un signal de luminescence beaucoup plus important, et on peut l'augmenter jusqu'à des puissances de l'ordre du mW sans être gêné par les difficultés d'isolement de raies individuelles comme dans le cas des boîtes sous excitation de forte puissance. Au final, on peut faire varier la puissance dans un puits sur près de 3 décades alors que sur une boîte (dans notre cas), on est limité à une variation d'un peu plus d'une décade, au maximum deux en prenant beaucoup de précautions expérimentales. Enfin, pour pouvoir comparer les puissances des expériences présentées dans ce manuscrit aux données de la littérature, il est intéressant de convertir ces puissances en densité surfacique de puissance. En supposant que le diamètre de notre faisceau laser focalisé est de l'ordre de $5\mu m$ (donc qu'il recouvre une surface d'environ $25\mu m^2$), on obtient P_S, la densité de puissance exprimée en Wcm^{-2}, en fonction de la puissance P exprimée en μW comme suit :

$$P_S = 4 * P \tag{2.54}$$

Par ailleurs, la raie de luminescence dans le puits est large d'environ $10meV$ en raison des contraintes, ce qui augmente l'incertitude sur le relevé de la position de son maximum en fonction du champ magnétique.

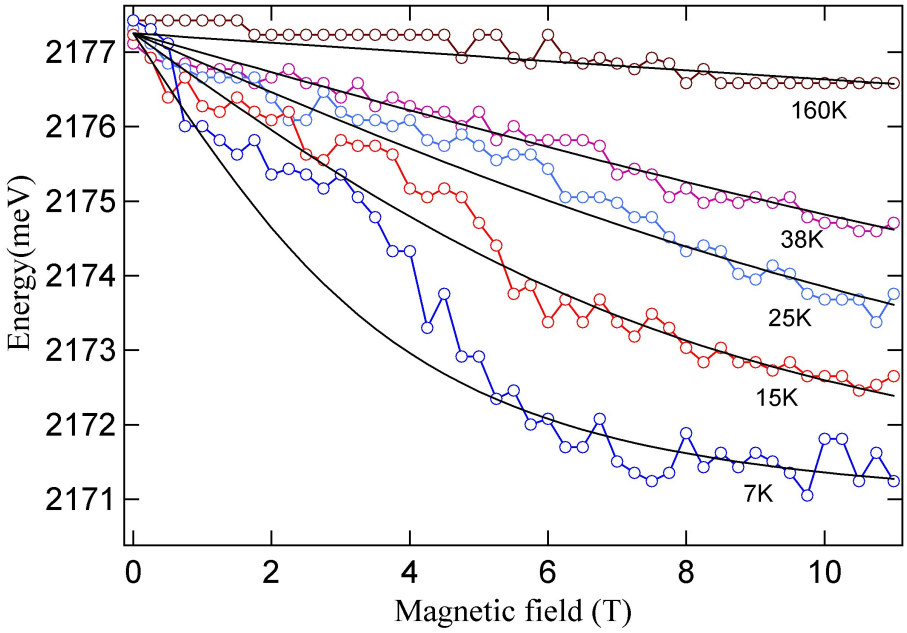

FIG. 2.26 – Décalage énergétique de la raie de PL d'un puits quantique en polarisation σ^+, à $T = 6K$, en fonction du champ magnétique pour différentes puissances de l'excitation non résonante ($405nm$ ici) : $P = 3\mu W$ / $8\mu W$ / $65\mu W$ / $150\mu W$ / $1,2mW$ (courbes bleue, rouge, bleue claire, rose et marron resp.). On a également superposé à chaque courbe expérimentale une fonction de Brillouin dont la température est donnée sur la figure (traits pleins noirs). L'expérience est réalisée avec un montage de micro-PL.

On constate qu'expérimentalement, on parvient dans ce puits fin à reproduire un effet de chauffage. En effet, les fonctions de Brillouin qu'on superpose à chacune des courbes correspondent à des températures allant de $7K$ à $160K$, démontrant ainsi que la température effective du système de Mn est bien supérieure à la température du réseau ($6K$). Et surtout, on parvient à reproduire la transition "chaud"/"froid", déjà observée dans les boîtes, pour la puissance d'excitation la plus faible ($P = 3\mu W$). Malgré les incertitudes de mesure, la courbe bleue de la figure 2.26 présente en effet un point d'inflexion au voisinage de $B_c = 4T$, séparant grossomodo un régime à bas champ où la température effective des Mn est plus élevée que celle du réseau et un régime à haut champ où la température effective des Mn tend vers celle du réseau. Comme on l'a expliqué, cette transition ne peut être observée que sur une plage restreinte de l'espace des paramètres. C'est le signe que nous sommes parvenus à ce que les conditions expérimentales utilisées pour le puits fin soient relativement proches des conditions utilisées pour les boîtes. On peut donc en conclure que dans l'échantillon de boîtes, ce sont bien les porteurs de la couche de mouillage 2D, et non pas les porteurs 0D des boîtes, qui sont responsables du mécanisme de chauffage. On proposera en 2.5 un argument supplémentaire qui réfute la possibilité que les porteurs 0D puissent expliquer nos observations expérimentales.

Cependant, force est de constater que dans cette expérience, l'effet de transition "chaud"/"froid" est d'une part peu abrupte et d'autre part disparaît rapidement avec la puissance, laissant place à un régime toujours "chaud" du système de Mn. Ce n'est pas ce qui a été observé dans les boîtes où l'effet de transition est raide et conservé à forte puissance (du moins sur la plage de puissance accessible). Or, le modèle que nous avons présenté peine justement à décrire les expériences à fortes puissances dans les boîtes. Il semblerait donc que le modèle, quoique nous n'ayons pas

encore eu le temps de réaliser ces ajustements, décrive mieux le phénomène de chauffage dans les puits. C'est somme toute assez logique dans la mesure où la description du mécanisme de flip-flop se base sur un modèle 2D. Ainsi, certes l'observation de l'effet de transition "chaud"/"froid" dans les boîtes et dans les puits pour des conditions expérimentales similaires démontre l'implication du rôle des porteurs 2D de la couche de mouillage dans le mécanisme de chauffage dans les boîtes ; mais la comparaison fine des expériences menées dans les puits d'une part et dans les boîtes d'autre part tend à démontrer la spécificité des boîtes et donc la nécessité d'adapter la modélisation. Nous y reviendrons en 2.5.

Enfin, il paraît logique de vérifier la cohérence de nos propos en confrontant ces expériences réalisées dans des puits fins ($L_z \approx 1,5nm$) aux expériences déjà présentées dans la littérature sur des puits larges ($L_z \approx 10nm$) où la transition "chaud"/"froid" a également été observée. Comme on l'a déjà précisé, le processus de chauffage dans une couche 2D est proportionnel à $\frac{1}{L_z^2}$ ce qui explique que dans un puits fin ou une couche de mouillage ($L_z \approx 1,5nm$) on puisse l'observer à des concentrations de porteurs accessibles par simple excitation optique ($n_{car} \approx 10^8 cm^{-2}$). En revanche dans des puits plus larges ($L_z = 8nm$), il est nécessaire de doper les échantillons ($n_{car} \approx 10^{10} cm^{-2}$) [66]. De manière plus générale, on comprend que le processus de chauffage augmente lorsqu'on passe progressivement de systèmes 3D à des systèmes 0D car les porteurs sont de plus en plus confinés au fur et à mesure qu'on réduit les dimensionnalités du système ce qui renforce la probabilité d'interaction Mn-porteurs. Dans la mesure où la tendance actuelle est à la miniaturisation, c'est un point important qu'il faut garder en mémoire : le rôle des porteurs nécessite d'être pris en considération dans de nombreuses études impliquant des nanostructures magnétiques, tant pour expliquer les observations expérimentales que pour se garder des effets non désirables des porteurs ou au contraire pour utiliser leurs propriétés dans de nouveaux dispositifs. Par ailleurs l'expérience de chauffage sur le puits fin nous permet de voir que la température effective des Mn peut facilement atteindre $100K$. C'est globalement bien plus élevée que les températures effectives des Mn généralement relevées dans les puits larges. A nouveau, ceci peut s'expliquer par le fait que l'interaction Mn-porteurs est renforcée du fait du confinement accru dans le puits fin. Il n'est pas non plus impossible que ce soit dû au fait que la plupart des expériences dans les puits ont été conduites dans l'hélium liquide à $1,8K$ et dans une configuration de macro-PL classique, pour laquelle les densités de puissance atteintes sont bien plus faibles[13], ce qui contribue probablement à abaisser l'ensemble des températures du système. Toujours est-il que l'expérience sur le puits fin apporte la preuve qu'il n'est pas absurde de considérer des températures de porteurs T_{car} de $55K$ ou $80K$ dans nos simulations afin d'ajuster les données expérimentales obtenues sur les boîtes.

On a justifié ici le rôle des porteurs 2D de la couche de mouillage dans le mécanisme de chauffage des Mn dans nos échantillons de boîtes et on a vérifié la cohérence de nos résultats par comparaison avec les expériences déjà connues. Il est à noter toutefois des différences expérimentales remarquables entre la physique des puits (larges ou fins) et la physique des boîtes : la transition "chaud"/"froid" est de très loin plus abrupte dans les échantillons de boîtes et semble conservée sur une plus large gamme de puissance. Nous donnerons une explication plausible de la raideur accrue de la transition en 2.5.

[13] Un comparatif des puissances utilisées dans les différentes expériences menées sur les puits est fait en [81]. On peut voir que les expériences réalisées en excitation continue le sont à des densités d'excitation bien plus faibles que les nôtres.

2.4.2 Disparition du chauffage des spins de Mn en excitation quasi-résonante ?

L'autre façon de se persuader que ce sont les porteurs quasi 2D de la couche de mouillage qui sont responsables du processus de chauffage, c'est de les supprimer en injectant les porteurs directement et seulement dans les boîtes. Pour cela, on utilise une excitation quasi-résonante sur l'échantillon M1736, avec boîtes donc. Il est à noter que l'excitation résonante a pour effet de faire luminescer l'état d'exciton chargé X^+. Pour pouvoir observer les états neutres d'exciton X et de biexciton XX et comparer les résultats aux expériences d'excitation non résonante, on applique simultanément un champ électrique négatif. Dans ces conditions, on peut réaliser une montée en champ magnétique, présentée en figure 2.27. Nul besoin de superposer les données ex-

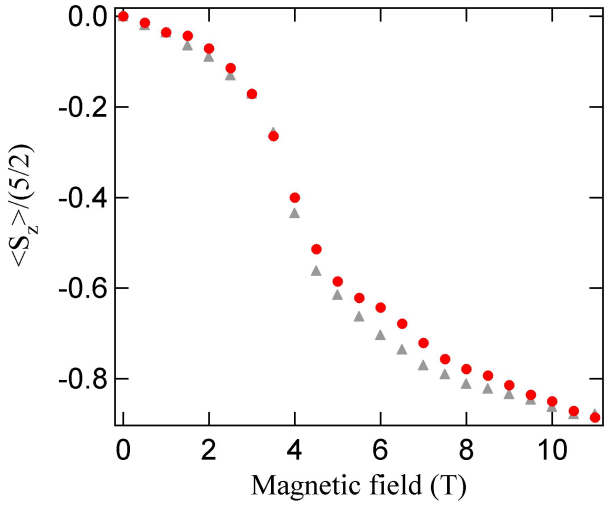

FIG. 2.27 – Orientation des Mn $\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ en fonction de B obtenue en détectant la polarisation σ^+ d'une raie unique (ici un exciton), sous excitation quasi-résonante à $579nm$ et champ électrique $E = -20V$, à $T = 9K$ (ronds rouges). Pour comparaison, on a aussi reporté la mesure faite en excitation non résonante à $T = 7K$ et déjà largement discutée précédemment (triangles gris clairs).

périmentales obtenues en excitation quasi-résonante à celles obtenues en excitation non résonante pour conclure que l'effet de chauffage des spins de Mn est toujours présent. En les superposant toutefois pour plus de rigueur, on s'aperçoit que l'effet est tout à fait identique. On peut même expliquer la légère différence après la transition par le fait que les deux mesures ont été faites à des températures légèrement différentes (impliquant donc des températures du réseau légèrement différentes).

En revanche, il ne faudrait pas conclure pour autant, à tord, que ceci démontre que les porteurs de la couche de mouillage ne jouent aucun rôle. En réalité, ce résultat provient tout simplement du fait que l'excitation quasi-résonante que nous réalisons génère tout autant de porteurs dans la couche de mouillage que l'excitation non résonante. C'est tout à fait compréhensible étant donné que nous excitons au mieux $100meV$ au-dessus de l'état fondamental de la boîte (dans la pratique, pour avoir un signal décent, nous excitons même $200meV$ au-dessus du fondamental). Il est en réalité impossible d'exciter plus proche de la résonance, tout simplement parce que nous n'avons pas détecté d'état excité à plus basse énergie. On le constate sur la figure 2.28, où l'on présente le résultat d'une expérience d'excitation de la photoluminescence (PLE) sur cet échantillon. L'impossibilité de détecter des états excités proches du niveau fondamental des boîtes vient, d'après nous, du fait que les raies sont larges. Leur intensité lumineuse est répartie

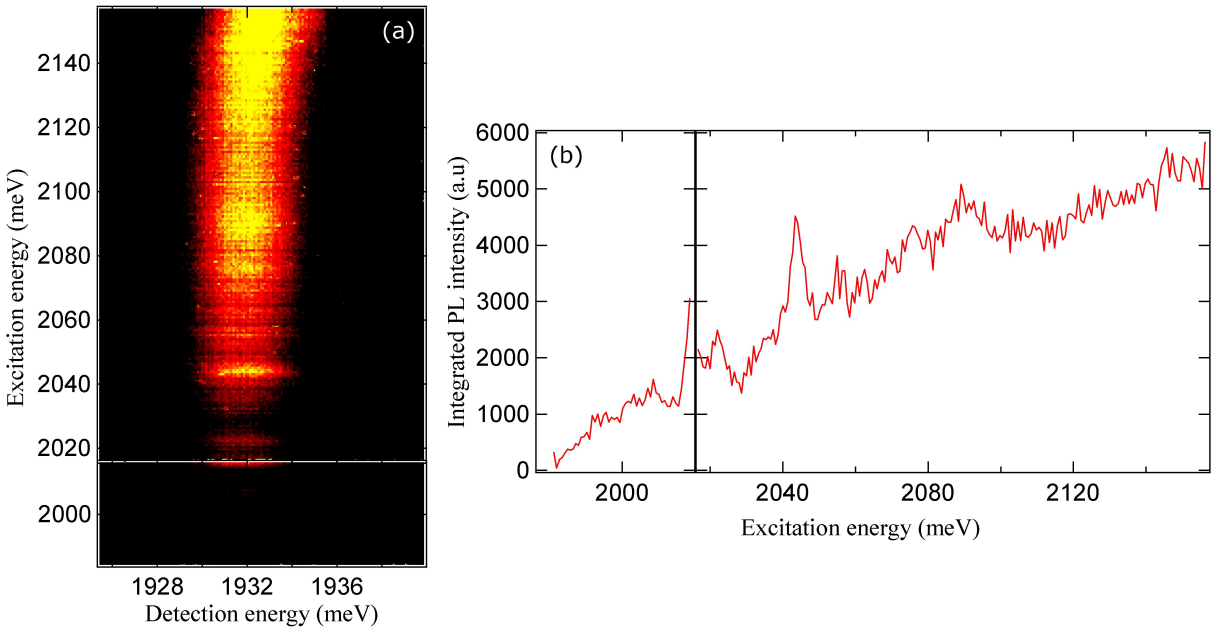

FIG. 2.28 – Expérience d'excitation de la photoluminescence (PLE) à $T = 7K$: (a) Intensité de la luminescence d'une boîte unique (un exciton chargé) en fonction de l'énergie de détection et de l'énergie d'excitation. (b) Intensité totale (intégrée) d'une boîte unique (un exciton chargé) en fonction de l'énergie d'excitation.

sur une fenêtre spectrale plus étendue que celle d'une raie fine et il est difficile de détecter des états excités dont l'absorption est qui plus est toujours bien plus faible que celle d'une couche de mouillage 2D ou de barrières 3D. De plus, la nature de quasi-continuum de ces états excités et le fait qu'ils induisent la luminescence de toutes les boîtes à la fois (résultat non présenté ici) tendent à prouver que l'excitation dite quasi-résonante est en fait équivalente ici à une excitation non résonante. Précisons que cette PLE a été réalisée sur l'exciton chargé X^+, pour la simple raison qu'au moment de l'expérience, les différents complexes excitoniques n'avaient pas encore été identifiés. Mais étant donné la nature quasi-continue de la PLE, il est très probable que le résultat soit similaire pour les états neutres X et XX.

Si l'expérience d'excitation quasi-résonante n'est pas concluante dans le sens où elle ne permet pas de prouver directement que ce sont les porteurs 2D qui sont à l'oeuvre, elle fournit toutefois quelques indices en ce sens. La PLE de la figure 2.28 prouve en l'occurence qu'il existe un quasi-continuum d'états excités. Ce quasi-continuum est visiblement commun à toutes les boîtes puisqu'il semble faire luminescer le même nombre de boîtes que l'excitation non résonante. Bien qu'il ne soit pas parfaitement 2D, on peut supposer que c'est ce continuum d'états (que l'on modélise par une densité d'états rigoureusement 2D) qui est responsable de l'effet de chauffage. On discutera en 2.5 dans quelle mesure le fait qu'il ne soit pas tout à fait 2D affecte le mécanisme de chauffage. Enfin la question de savoir si ce quasi-continuum correspond ou non à la couche de mouillage est secondaire. Nous prétendons simplement apporter ici un argument supplémentaire confirmant que les Mn peuvent effectivement être soumis à un effet de chauffage via des porteurs qui ne sont pas des porteurs 0D des boîtes.

2.5 Au-delà du modèle

Dans cette section, nous proposons de discuter des limites de la modélisation théorique qui a été présentée en 2.2. On commencera par passer en revue les différentes hypothèses sur lesquelles se base le modèle et on essaiera de distinguer celles qui sont essentielles de celles sans lesquelles le modèle expliquerait tout aussi bien les résultats expérimentaux. En discutant alors la validité des hypothèses qui sont essentielles, on conclura sur la validité des différentes interprétations physiques que l'on a tirées du modèle. Dans un second temps, on reviendra sur le mécanisme de chauffage indirect déjà évoqué en 2.3 et enfin on discutera en détail du rôle des boîtes quantiques.

2.5.1 Les hypothèses essentielles du modèle

Beaucoup des hypothèses que nous avons faites l'ont été en vue de pouvoir mener à bout un calcul analytique des probabilités de transition $W^{\pm}$, ce qui était nécessaire pour établir un modèle quantitatif. Toutefois, il nous semble que nombre d'entre elles peuvent être supprimées sans pour autant remettre en cause les conclusions auxquelles nous a mené le modèle.

C'est le cas par exemple de la modélisation de la couche de mouillage par un puits 2D infini. Pour commencer, il paraît évident que la prise en compte de la nature finie du puits n'engendrera que des corrections mineures dans le modèle. L'hypothèse la plus forte reste donc la nature 2D du puits. En effet, la couche de mouillage n'est pas physiquement dissociée des boîtes. Nous sommes donc en présence d'une couche principalement bidimensionnelle mais très fortement désordonnée par la présence de multiples puits de potentiels locaux dus aux boîtes. Qu'est-ce que cela change ? D'un point de vue énergétique, on passe d'une situation où la densité d'état est parfaitement rectangulaire à une situation où la densité d'états est constituée d'une part d'un continuum (non rectangulaire) correspondant principalement à la couche de mouillage et d'autre part de pics de Dirac à plus basse énergie, correspondant principalement aux états localisés des boîtes. Cela correspond globalement à la représentation de la figure I 1.11 sauf que le continuum de la couche de mouillage n'est pas rectangulaire. Un tel continuum pourrait être celui détectée en PLE en 2.4. On comprend alors que tant que ce continuum reste suffisamment régulier (cf. figure 2.29), on doit obtenir qualitativement le même effet de blocage du mécanisme de flip-flop lorsque les porteurs peuplant ce continuum sont complètement polarisés par l'effet Zeeman géant. En revanche, si au lieu d'avoir un continuum d'états, on a une succession d'états discrets, il est évident que les conclusions seront différentes. Il en découle que les principales conclusions du modèle ne devraient pas être affectées, tout du moins qualitativement, tant que l'on considère un continuum d'états excités suffisamment régulier pour les porteurs. Notons au passage que le fait que la couche de mouillage soit très désordonnée, rend inutile la prise en compte de la quantification en niveaux de Landau.

En ce qui concerne les porteurs, nous avons considéré qu'ils formaient un gaz thermalisé à T_{car} et pouvaient donc être décrits par une distribution de Fermi-Dirac. Précisons pour commencer qu'étant donné les faibles densités de porteurs que nous considérons et leur température élevée, il n'y a priori pas lieu de considérer un gaz quantique de Fermions. Il est très probable que les porteurs puissent être décrits tout aussi finement par une distribution de Boltzmann. Toutefois, si la description par une distribution de Boltzmann était valable, ceci ne changerait en rien les conclusions du modèle, ni qualitativement, ni quantitativement. En revanche, ceci permettrait peut-être de simplifier les équations des probabilités $W^{\pm}$ et d'accéder ainsi à une compréhension plus simple et plus profonde de la physique du système. Malheureusement, nous n'avons pas eu le temps de mener à bien cette simplification. Revenons maintenant à l'hypothèse qui suppose que le gaz de porteurs est thermalisé. De la même manière que la densité d'états n'a pas besoin d'être

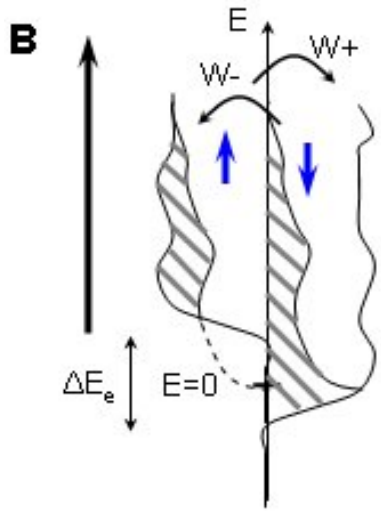

FIG. 2.29 – Illustration du mécanisme de polarisation des porteurs par l'effet Zeeman géant dans le cas plus général d'une densité d'états s'écartant du cas parfaitement 2D et d'une distribution des porteurs différant d'une distribution à l'équilibre thermodynamique.

parfaitement 2D et rectangulaire, on peut avoir une distribution de porteurs assez quelconque, du moment qu'elle reste suffisamment régulière, sans que cela change profondément le résultat physique. Nous entendons par là que les états à basse énergie doivent être globalement plus peuplés que les états à haute énergie et que la probabilité d'occupation ne doit pas présenter des pics très marqués comme des pics de Dirac. Dans ces conditions, le mécanisme de polarisation des porteurs par l'effet Zeeman géant garde tout son sens et les conclusions du modèle restent valables. Toutefois, une partie de l'hypothèse reste importante : il faut que la distribution des porteurs dans les deux sous-bandes de spin soit décrite par la même fonction (cf. figure 2.29), ce qui signifie qu'on ne prend pas en compte les effets de type pompage optique. On peut choisir de désigner ces porteurs comme "thermalisés" en spin, bien que le terme soit mal choisi. Au final, les porteurs ne peuvent plus être rigoureusement décrits par une température (on ne peut plus parler de thermostat) mais les conclusions du modèle restent correctes.

En résumé, nous pensons que les hypothèses essentielles du modèle sont au nombre de trois. Premièrement, il faut qu'il existe un continuum d'états excités relativement régulier. Deuxièmement, il faut que sous champ, les porteurs soient "thermalisés" en spin (pas nécessairement en énergie au sein d'une seule sous-bande de spin) sur ce continuum. On peut bien sûr prendre en compte un écart à cela en introduisant des quasi-niveaux de Fermi. Troisièmement, il faut bien sûr que ces porteurs soient plus "chauds" que le réseau. Même si on ne peut plus parler de température de porteurs dans le cas général où ils ne sont pas thermalisés, on comprend que cette idée signifie qu'il ne faut pas que les porteurs soient thermalisés à la température du réseau, auquel cas, il n'y a pas de processus de chauffage. Il nous semble qu'en respectant uniquement ces trois conditions, on peut conclure que les Mn sont dans un état d'équilibre dynamique, résultant du couplage simultané avec un thermostat froid et avec un réservoir "chaud" dont l'interaction est modulée par le champ et contrôlée par une boucle de rétroaction positive. Nous pensons également que la conclusion selon laquelle le processus de chauffage est principalement attribuable aux trous dans nos mesures, reste valable sous ces trois seules conditions. Or, on peut assez facilement se convaincre de la validité de ces trois hypothèses. La première paraît évidente : d'une part parce qu'il est attendu que la couche de mouillage produise un continuum d'états excités,

et d'autre part parce que nous avons observé un tel continuum d'états excités en PLE (cf. 2.28), qu'il soit associé ou non à la couche de mouillage. La deuxième se justifie en considérant que nous injectons des porteurs non polarisés dans le système et qu'il n'y a donc pas de raison de mettre en évidence des effets de pompage optique. Enfin, les processus de relaxation des photoporteurs dans un puits (et donc a priori dans la couche de mouillage) sont tels que l'on peut décrire les porteurs comme des porteurs "chauds" [62, 63, 64, 65].

Au final, nous avons formalisé un modèle dont la résolution (par la combinaison de méthodes analytiques et numériques) est possible et rend bien compte, dans l'ensemble, des résultats expérimentaux. Ce modèle se base sur des hypothèses fortes et pas toujours réalistes mais nous avons montré que les conclusions qualitatives du modèle restent probablement vraies même en l'absence de ces hypothèses restrictives. Quantitativement, on s'attend évidemment à ce que les paramètres et la forme des courbes décrivant l'effet soient modifiés. D'un côté, si on est optimiste, on peut alors espérer parvenir à ajuster plus proprement les expériences à forte puissance et obtenir une valeur plus réaliste de ϵ par exemple. D'un autre côté, il faut rester conscient que le système étudié ici est le siège d'une physique très complexe et qu'il serait sage de vérifier, d'une part que l'on est capable de mettre en place la modélisation dans le nouveau cadre proposé et d'autre part que les résultats qu'elle donne peuvent décrire fidèlement les observations expérimentales.

2.5.2 Mécanisme de chauffage indirect des spins de Mn

L'ensemble du modèle qui a été établi et discuté jusqu'ici met en jeu un processus de chauffage dit direct des Mn par les porteurs via le mécanisme de flip-flop. Mais il existe également un processus de chauffage indirect des Mn par les porteurs, déjà évoqué en 2.3. Ce processus indirect peut se résumer ainsi : les porteurs photocréés par excitation optique non résonante relaxe vers le bas de bande via les phonons. Ce faisant, ils génèrent donc des phonons dans le réseau qui ne sont a priori pas à l'équilibre avec ce dernier. Ces phonons hors équilibre peuvent à leur tour induire un chauffage des Mn. Cette dernière étape peut se comprendre schématiquement par le fait que les phonons hors équilibre tendent à élever la température du réseau, même si on ne peut pas parler, stricto-sensu, de température. Plus exactement, ceci correspond donc au fait que la fonction de distribution des phonons diffère de celle à l'équilibre thermodynamique et que cet écart, qui dépend bien évidemment de la puissance d'excitation, génère un effet de chauffage des Mn. Dans les puits, un tel processus de chauffage indirect a été mis en évidence [81, 87] et une étude plus spécifique du phénomène de chauffage par les phonons hors équilibre a été réalisée [88, 89]. On peut raisonnablement imaginer que l'efficacité de ce processus de chauffage indirect dépende de la concentration en Mn x_{Mn}. En effet, l'interaction spin-réseau dépend fortement de x_{Mn}, et il n'est pas absurde de supposer que l'effet des phonons hors équilibre sur les Mn en dépende aussi. Ceci pourrait donc justifier que dans la figure 2.25, nous ayons dû introduire, pour les concentrations en Mn $x_{Mn} = 3,5\%$ et $x_{Mn} = 5,5\%$ une température du réseau T_{lat} légèrement supérieure à la température du réseau à l'équilibre $T = 7K$ (égale à la température imposée par le cryostat).

En définitive, il ne fait aucun doute que dans nos échantillons et sous les conditions expérimentales employées, c'est le processus de chauffage direct qui est prépondérant et responsable des principales observations expérimentales comme la transition "chaud"/"froid". Un processus de chauffage indirect ne pourrait en effet pas expliquer une telle dépendance avec le champ B. Par contre, il semblerait que le processus de chauffage indirect joue également un rôle, quoique mineur, et doive être pris en compte pour une description complète du système, notamment dans le cas où les concentrations x_{Mn} augmentent. Une comparaison des processus de chauffage direct et indirect dans les puits CdMnTe tend à confirmer cette analyse [81]. Par ailleurs, une étude

dans des boîtes CdMnSe tendrait à prouver la mise en évidence d'un processus de chauffage indirect dans des boîtes [90], mais ses conclusions semblent pour le moins hâtives comme cela a bien été démontré en [81].

2.5.3 La boîte quantique : une sonde locale... mais pas seulement !

Jusqu'à présent, on a présenté la boîte comme une sonde locale de l'aimantation. Or cette même aimantation est, d'après notre modèle, spatialement homogène. On s'attend donc à observer le même phénomène sur toutes les boîtes. Nous avons donc réalisé en figure 2.30 une montée en champ B sur une plage spectrale suffisamment large pour nous permettre de suivre l'évolution d'un grand nombre de boîtes. On constate effectivement que toutes les boîtes présentent la

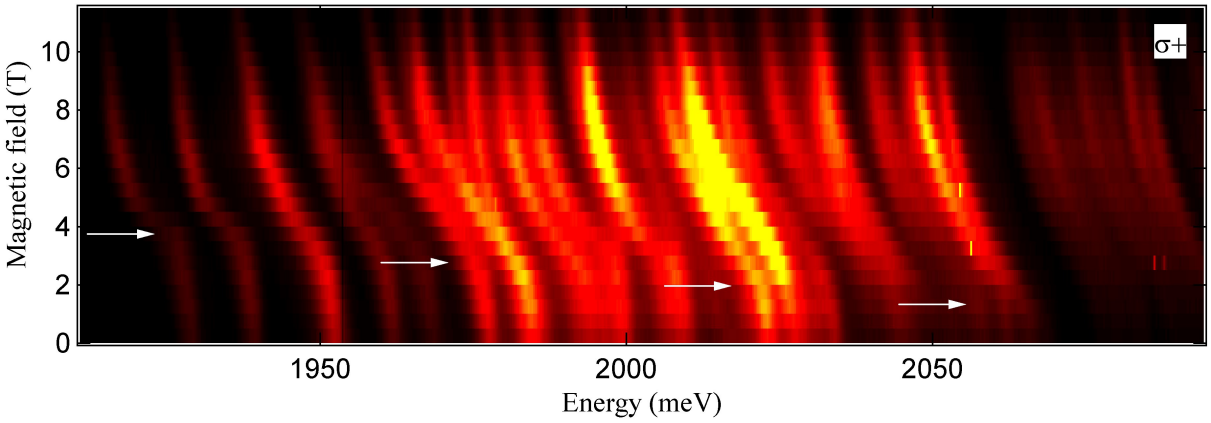

FIG. 2.30 – Micro-PL en intensité de couleur de la polarisation σ^+ de plusieurs boîtes uniques en fonction de l'énergie de luminescence des boîtes et du champ magnétique. Les mesures sont réalisées sous excitation non résonante à $T = 7K$ de $B = 0T$ à $B = 11T$ tous les $0,5T$.

transition d'un régime "chaud" vers un régime "froid". En revanche le champ critique B_c auquel se produit cette transition varie d'une boîte à l'autre. Pour les boîtes à basse énergie (celles que l'on a étudiées jusqu'à présent), $B_c \approx 4T$ alors que pour les boîtes à hautes énergie, $B_c \approx 1T$. Et entre ces deux extrêmes, le champ critique B_c semble diminuer de manière à peu près linéaire avec l'énergie. Cette observation n'est évidemment pas explicable dans le cadre du modèle. En effet, le rôle de sondes locales de l'aimantation que jouent les boîtes atteste ici clairement de l'inhomogénéité spatiale de l'aimantation.

Le raisonnement le plus simple consisterait évidemment à dire que le mécanisme de chauffage a lieu au sein de chaque boîte, non au sein de la couche de mouillage. La dispersion en taille et en forme des boîtes par exemple expliquerait alors les différences de comportement de boîte à boîte. Pourtant, un tel raisonnement ne tient pas car des porteurs 0D ne peuvent pas expliquer la transition "chaud"/"froid" observée. Voyons pourquoi. Lors du mécanisme de flip-flop entre un Mn et un porteur, l'énergie $g_{Mn}\mu_B B$ correspondant à l'écart énergétique entre deux niveaux Zeeman du Mn est échangée, et doit être fournie ou acceptée par le porteur. Dans le cas de porteurs 2D que l'on a considéré, la conservation de l'énergie est assurée par la modification de l'énergie cinétique du porteur pendant le mécanisme de flip-flop. Ceci ne pose pas de problème tant qu'il existe des états vacants pour le porteur à une énergie supérieure de $g_{Mn}\mu_B B$ à son état initial ou bien à une énergie inférieur de $g_{Mn}\mu_B B$ suivant que le Mn perd ou gagne de l'énergie respectivement. Or, dans une boîte quantique, le confinement 3D induit une densité d'états discrète dans laquelle les écarts énergétiques entre états sont déterminés par la structure

de la boîte (composition, taille, forme...). Par conséquent, pour un porteur 0D dans un état initial donné, il n'y a généralement pas d'état final disponible à une énergie qui respecte la conservation de l'énergie lors du mécanisme de flip-flop. Ainsi la nature discrète de la densité d'états d'une boîte doit bloquer le mécanisme de flip-flop des porteurs 0D.

Ce sont donc bel et bien les porteurs de la couche de mouillage qui sont à l'oeuvre. Comment alors expliquer la variation de B_c avec l'énergie de la boîte ? On rappelle que la dispersion en énergie de l'état fondamental des boîtes est essentiellement due à leur dispersion en taille et plus spécifiquement à leur dispersion en épaisseur suivant l'axe z (cf. I). Ainsi les boîtes les plus épaisses sont les boîtes dont l'énergie est la plus basse tandis que les boîtes plus fines ont une énergie plus élevée. Or les boîtes les plus épaisses sont aussi celles où le mécanisme de chauffage est le plus fort, du moins où il perdure à plus haut champ. Il se trouve que ceci peut s'expliquer par des fluctuations spatiales d'épaisseur de la couche de mouillage. Selon notre modèle 2D, une couche de mouillage plus fine génère un effet de chauffage plus fort. On en conclut donc que les boîtes épaisses reposent sur une couche de mouillage plus fine que celle sur laquelle reposent les boîtes fines. Et il est tout à fait remarquable que l'hypothèse de croissance la plus simple et la plus évidente qui soit puisse expliquer cela : la formation des boîtes lors de la transition Stranski-Krastanow 2D-3D se fait en conservant localement la quantité de matière ; les boîtes épaisses se forment ainsi en prélevant une grande quantité de matière de la couche 2D, menant ainsi à une couche de mouillage fine tandis que les boîtes fines ne prélèvent que peu de matière de la couche 2D, conservant ainsi une couche de mouillage épaisse (cf. figure 2.31). Toutefois, des fluctuations raisonnables d'épaisseur de la couche de mouillage ($1nm < L_z <$

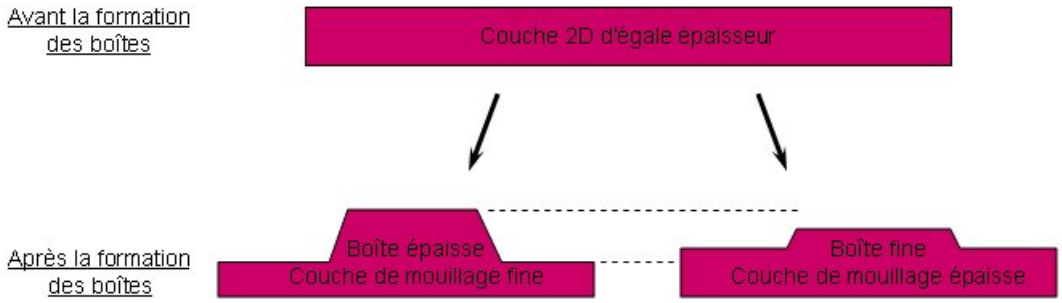

FIG. 2.31 – Schéma du probable mécanisme de formation des boîtes et de la couche de mouillage lors de la croissance.

$2nm$) ne permettent pas de rendre compte, quantitativement, d'une telle disparité des champs critiques B_c dans le cadre de notre modèle. On pourrait alors envisager que l'inhomogénéité spatiale soit causée par des fluctuations spatiales de la densité de porteurs (engendrées par les fluctuations spatiales de potentiel), ou par des fluctuations spatiales de l'état de contrainte (donc de ϵ). Mais quantitativement (sans même imaginer les détails d'un éventuel mécanisme sous-jacent), faire varier le paramètre n_{car} ou le paramètre *epsilon* dans le modèle ne permet pas non plus d'expliquer la dispersion de B_c en fonction des boîtes. Enfin, il est très peu probable que l'inhomogénéité soit provoquée par des fluctuations spatiales de la concentration en Mn puisque sur la figure 2.30, toutes les boîtes ont grossomodo le même décalage énergétique à saturation, signe que la concentration en Mn est similaire dans toutes les boîtes. En définitive, l'hypothèse des fluctuations d'épaisseur de la couche de mouillage semble particulièrement crédible dans la mesure où nous avons imaginé un mécanisme extrêmement simple pouvant induire une inhomogénéité spatiale du processus de chauffage. Il serait donc intéressant de généraliser le modèle au cadre proposé en 2.5.1 et de voir si on peut alors rendre compte de cette inhomogénéité par les seules

fluctuations d'épaisseur de la couche de mouillage ou si d'autres fluctuations doivent être prises en compte. Qui plus est, si l'inhomogénéité s'expliquait par les fluctuations d'épaisseur de la couche de mouillage, nous aurions acquis une information particulièrement intéressante sur le mécanisme de formation des boîtes et de la couche de mouillage, qui serait probablement utile pour des études ultérieures de ces boîtes, avec ou sans Mn.

Plus récemment, nous avons également imaginé un autre mécanisme, basé sur la prise en compte simultanée de porteurs 0D et 2D, qui pourrait potentiellement expliquer la dispersion de B_c. On a expliqué que le mécanisme de flip-flop entre Mn et porteurs était bloqué pour des porteurs 0D. Ceci est équivalent à l'effet bien connu de "phonon-bottleneck", qui assure que la relaxation des porteurs vers l'état fondamental d'une boîte via les phonons est bloquée, parce que les phonons n'ont en général pas l'énergie correspondant à l'écart entre deux niveaux de la boîte. Or, il est tout aussi connu que l'effet de "phonon-bottleneck" est en réalité rendu inefficace par l'existence d'un continuum d'états dans la boîte qui se superpose aux états discrets de la boîte [91]. Ce continuum d'états ne correspond pas à la densité d'états de la boîte mais à la densité d'états conjointe de la boîte et de la couche de mouillage. Autrement dit, il correspond au fait que des transitions dites "croisées" -correspondant à la recombinaison d'un électron de la boîte avec un trou de la couche de mouillage ou inversement- se produisent à la même énergie que les transitions habituelles dites "directes" -correspondant à la recombinaison d'un électron de la boîte avec un trou de la boîte- [10]. Cela permet alors aux porteurs d'une boîte de relaxer parce qu'il existe une densité d'états, qu'on appellera 0D-2D, non nulle entre les états purement 0D de la boîte. Nous pensons que ce continuum 0D-2D pourrait autoriser des processus de flip-flop entre les porteurs 0D et les Mn. Le mécanisme de flip-flop correspondrait alors probablement à la diffusion d'un porteur d'un état 0D vers un état 2D tandis qu'il flip-flop avec le Mn. D'une part, cela assurerait l'existence du continuum d'état suffisamment régulier nécessaire aux processus de flip-flop (cf. 2.5.1). D'autre part, cela mettrait directement en jeu des états 0D des boîtes, ce qui permet alors d'envisager facilement une disparité du comportement d'une boîte à l'autre. Il a par exemple été montré que la position énergétique de ce continuum d'états 0D-2D par rapport au niveau fondamental de la boîte, varie suivant la taille de la boîte [91]. La modélisation d'un tel mécanisme, basé sur le rôle du continuum 0D-2D et donc caractéristique d'une physique de boîtes (par opposition à une physique purement 2D), reste donc à faire, afin de vérifier son éventuelle capacité à expliquer l'ensemble de nos observations expérimentales. Notons qu'il semblerait que le deuxième mécanisme de chauffage des Mn proposé en [86] soit semblable voire identique à celui que l'on vient de proposer. Dans tous les cas, si ce mécanisme 0D-2D s'avère fonctionner, il sera alors intéressant de le confronter au mécanime purement 2D.

Nous avons donc mis en évidence l'inhomogénéité spatiale du processus de chauffage des Mn par les porteurs dans des boîtes quantiques. Une telle inhomogénéité a déjà été observée dans les puits [67, 68, 69, 70]. Elle a été attribuée à une brisure spontanée de symétrie basée sur la diffusion des porteurs et menant à la formation de domaines "chauds" et de domaines "froids" [71]. Ici, nous observons également la coexistence de domaines "chauds" et de domaines "froids", à des champs intermédiaires (à bas champ, l'ensemble du système est "chaud" tandis qu'à haut champ, l'ensemble du système est "froid"). Mais l'existence de domaines est ici attribuée au désordre préexistant dans l'échantillon : les fluctuations spatiales d'épaisseur de la couche de mouillage apparaîssent comme une hypothèse plausible, tendant au passage à nous fournir une information importante sur le mécanisme de formation des boîtes ; mais il se peut aussi que ces domaines soient le résultat du fait que le mécanisme de chauffage fasse intervenir les porteurs 0D des boîtes, aux comportements nécessairement différents d'une boîte à l'autre. Toutefois, la différence entre ces deux situations n'est peut être pas si grande : on peut comprendre le premier cas comme une physique principalement 2D qui serait perturbée par le désordre créé par l'existence d'objets 0D ;

tandis que le deuxième cas correspondrait à une physique principalement 0D, donc désordonnée au départ, modifiée par l'existence d'un continuum quasi-2D.

Enfin, quelle que soit l'origine de cette inhomogénéité spatiale, on peut estimer que la taille des domaines est sub-micronique puisque la luminescence de l'ensemble de ces boîtes a été récoltée à travers une ouverture du masque de micro-PL de taille inférieure au μm^2. Le rôle de sonde locale de la boîte prend alors tout son sens puisque c'est parce qu'on ne sonde qu'un seul domaine que l'on parvient à observer une transition "chaud"/"froid" si abrupte. Si l'on superposait les dépendances en champ de plusieurs boîtes, la transition apparaîtrait plus douce. C'est probablement ce qui se passe dans les puits où l'effet est moyenné sur des domaines de températures différentes.

La boîte, parce qu'elle constitue une sonde locale de l'aimantation, nous autorise ainsi à étudier la physique d'un domaine unique, de la même manière que la micro-PL permet l'étude d'une boîte unique. La boîte offre aussi une possibilité supplémentaire de contrôle de l'interaction Mn-porteurs, au niveau spatial cette fois. En effet, en sélectionnant une boîte particulière, on contrôle la formation d'un domaine sub-micronique "chaud" ou "froid" en un point précis de l'échantillon.

Chapitre 3

Résultats complémentaires, questions en suspens et perspectives

Sommaire

3.1 Evolution des largeurs de raie en fonction du champ magnétique 110
3.1.1 Largeurs de raie dans l'échantillon M1736 110
3.1.2 Largeurs de raie dans l'échantillon M2116 112
3.1.3 Largeurs de raie dans l'échantillon M2114 113
3.1.4 Conclusion 114
3.2 Questions non résolues 115
3.2.1 Reproductibilité de la transition "chaud"/"froid" dans les échantillons de boîtes ? 115
3.2.2 Evolution de l'exciton chargé X^+ sous champ magnétique 117
3.3 Quelques perspectives intéressantes 118
3.3.1 Finalisation d'études entreprises 118
3.3.2 Réalisation d'un échantillon de boîtes sans couche de mouillage . . 119
3.3.3 Mesure expérimentale des dynamiques Mn-réseau et Mn-porteurs . 119

Pour conclure l'étude de l'équilibre dynamique des Mn dans les boîtes, on commencera par présenter une étude expérimentale sur les largeurs de raie en s'attachant à démontrer l'intérêt d'une telle étude. Puis on discutera de deux points expérimentaux cruciaux qui nous paraissent ne pas trouver d'explication suffisamment satisfaisante et méritent par conséquent d'être éclaircis dans le futur. Enfin on exposera quelques perspectives qui nous semblent dignes d'intérêt.

3.1 Evolution des largeurs de raie en fonction du champ magnétique

La largeur d'une raie de luminescence permet d'accéder à de très nombreuses informations sur la physique du système étudié. Dans le cas "idéal" (notamment en supposant qu'il n'y a pas de décohérence), l'élargissement de la raie est homogène et reflète la cohérence du système, qui est uniquement limitée par la durée de vie radiative de l'état dont on regarde la luminescence. Cependant, l'interaction de cet état avec son environnement contribue à fortement élargir sa raie de luminescence, réduisant considérablement sa cohérence par la même occasion. Si l'élargissement des raies est un inconvénient évident dans les études qui cherchent à utiliser les propriétés de cohérence des systèmes quantiques, cela permet néanmoins d'accéder à la compréhension des mécanismes d'interaction du système étudié avec son environnement, puisqu'ils sont la cause de cet élargissement. Dans les boîtes quantiques semi-conductrices, l'environnement tend à jouer un rôle prépondérant. L'ensemble de cette partie II du manuscrit en est une illustration. De nombreuses études ont donc tiré parti de l'élargissement des raies de luminescence des boîtes quantiques pour mettre en lumière des mécanismes précis de l'interaction de la boîte avec son environnement. Les mécanismes de fluctuations statistiques de charges au voisinage d'une boîte ont ainsi été mis en évidence [41]. Le rôle des fluctuations statistiques magnétiques dans des boîtes magnétiques a aussi été étudié, que ce soit en présence d'un polaron magnétique [43], ou en présence d'un effet de chauffage indirect des porteurs [44]. Cependant, cela n'a pas été fait dans le cas d'un effet de chauffage direct des Mn par les porteurs. Il est donc probable que l'étude des largeurs de raie de luminescence de notre système puisse apporter un éclairage nouveau sur la compréhension du phénomène d'équilibre dynamique des Mn.

3.1.1 Largeurs de raie dans l'échantillon M1736

L'échantillon M1736 est celui dont la concentration en Mn est $x_{Mn} = 1,5\%$ et qui présente l'effet de transition abrupte d'un régime "chaud" vers un régime "froid". On a montré que l'on était capable d'isoler des raies de boîtes uniques dans cet échantillon et de les identifier. On présente donc en figure 3.1, l'évolution de la largeur de la raie d'un exciton en fonction du champ magnétique. Commençons par préciser que cette évolution est identique pour l'exciton X et le biexciton XX, et est identique de boîte à boîte. Toutefois, nous n'avons pas eu l'occasion d'étudier cette dépendance pour les boîtes à haute énergie pour lesquelles la transition "chaud"/"froid" se passe à petit champ ($B_c \approx 1T$). Précisons aussi que les spectres présentés pour cet échantillon sont, comme on le verra dans ce qui suit, plus bruités que ceux obtenus sur les autres échantillons. Ceci tient au fait que les mesures effectuées sur cet échantillon l'ont été avec un réseau plus dispersif. Le réseau est ici suffisamment dispersif pour ne pas induire une incertitude trop grande sur la mesure de largeur de raie et les raies étudiées sont relativement bien isolées. De plus, bien que les spectres soient un peu bruités, le rapport signal sur bruit est tout à fait correct. Au final, l'incertitude sur l'évaluation de la largeur de raie dans cet échantillon est inférieure au meV.

La largeur à mi-hauteur typique en champ nul est d'environ $4meV$. Puis en fonction du champ, la largeur de raie commence par augmenter jusqu'à $B \approx 3,5T$, pour ensuite diminuer jusqu'à $B = 11T$, devenant d'ailleurs à fort champ plus petite qu'en champ nul. On observe donc un effet d'affinement de la raie à fort champ par rapport à sa largeur en champ nul. Entre $B = 0T$ et $B = 11T$ la largeur de raie diminue d'un facteur 2 environ. Ceci s'explique par le fait que les fluctuations statistiques des Mn diminuent sous champ. Il est aisé de comprendre qu'en appliquant un champ magnétique suffisamment intense pour séparer les niveaux Zeeman du Mn d'une quantité bien supérieure aux fluctuations engendrées par la température, on par-

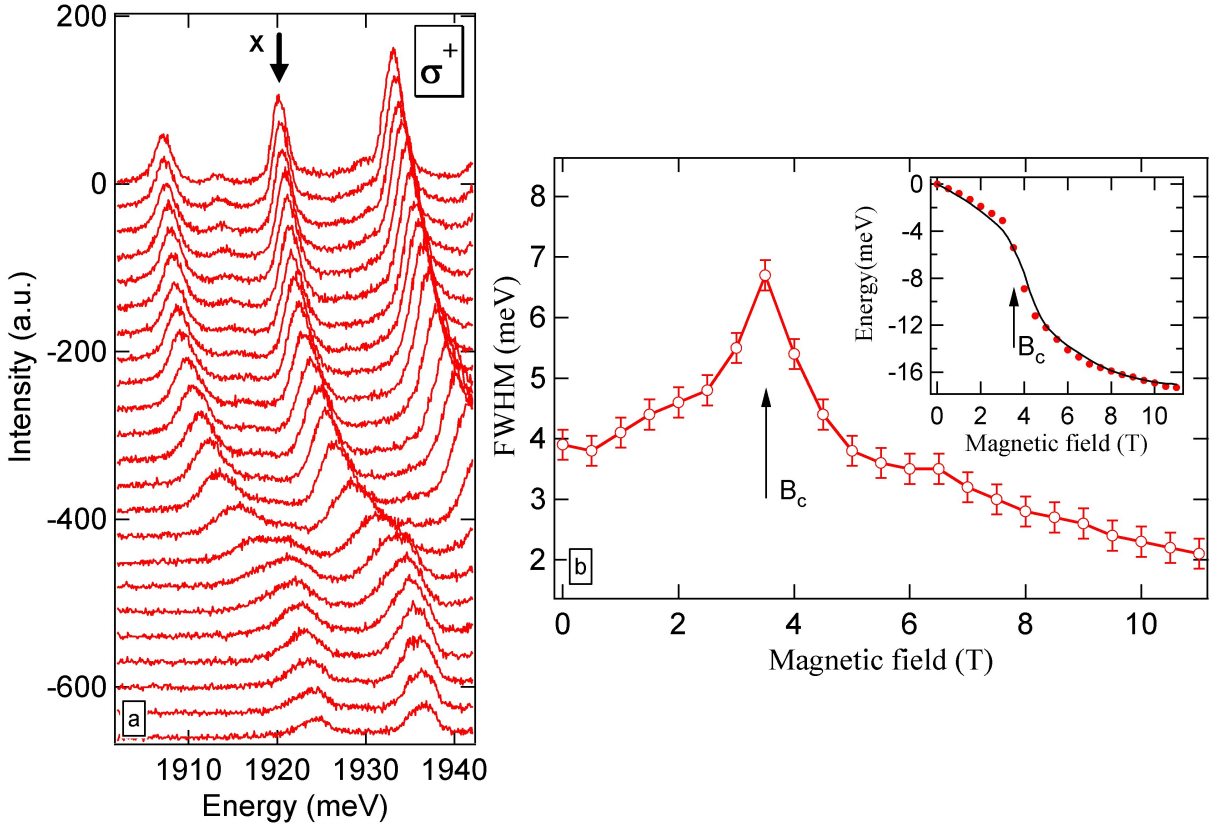

FIG. 3.1 – (a) Spectres de micro-PL d'une boîte unique de l'échantillon M1736 en polarisation σ^+ à $T = 7K$ de $B = 0T$ (en bas) à $B = 11T$ (en haut) tous les $0,5T$. (b) Largeur à mi-hauteur de la raie indiquée par une flèche noire en (a), en fonction du champ magnétique. insert : Pour rappel, la dépendance en champ du maximum de cette raie est tracée et ajustée par le modèle présenté en 2. B_c indique le champ auquel se produit la transition "chaud"/"froid".

viendra à ce que tous les Mn soient dans leur état quantique $S_z = -\frac{5}{2}$. Autrement dit, à très fort champ, les fluctuations statistiques deviennent négligeables et tous les Mn tendent à être parfaitement alignés. De manière corollaire, la raie s'affine, puisque son énergie dépend du couplage par interaction d'échange $sp - d$ entre les Mn et le complexe excitonique dont on sonde la luminescence. Théoriquement, bien que les fluctuations longitudinales des spins de Mn tendent à s'annuler sous champ, les fluctuations transverses en revanche, sont conservées. Mais a priori, on ne devrait pas être sensible à ces dernières puisque l'on sonde l'aimantation suivant z via l'effet Zeeman géant. D'autre part, dans les semi-conducteurs magnétiques dilués, l'existence d'interactions anti-ferromagnétiques de type paires de Mn [5] ou de types plus complexes [92, 93] -et qui peuvent subsister jusqu'à très fort champ- implique que l'alignement des Mn sous champ est un peu plus complexe que dans un système parfaitement paramagnétique. Cependant, à $T = 7K$, l'énergie des fluctuations thermiques est de l'ordre du meV et à $B = 11T$, la séparation Zeeman est également de l'ordre du meV. Les fluctuations statistiques du Mn dans ces conditions-là d'expérience restent donc importantes a priori et c'est sans doute la diminution des fluctuations statistiques du Mn, due au fait que l'on applique un champ magnétique, qui explique l'affinement des raies dans notre expérience.

Toutefois, on l'a noté, la raie s'élargit brutalement autour de $B \approx 3,5T$. On peut remarquer

que ce champ coïncide de manière assez précise avec le champ B_c auquel se produit la transition "chaud"/"froid". Or, au voisinage de B_c, le système de Mn est en contact simultané avec deux réservoirs : le réseau et les porteurs. En effet, on l'a déjà vu, à bas champ les Mn interagissent principalement avec les porteurs, et à haut champ principalement avec le réseau ; mais autour de B_c, les Mn interagissent avec les deux réservoirs. Par conséquent, les fluctuations statistiques des Mn au voisinage de B_c doivent a priori dépendre de la compétition entre ces deux réservoirs. Pour s'assurer qu'il existe une véritable corrélation entre la zone de transition et l'élargissement de la raie, on peut regarder ce que l'on obtient sur les autres échantillons de boîte.

3.1.2 Largeurs de raie dans l'échantillon M2116

L'échantillon M2116 a une concentration en Mn de $x_{Mn} = 3,5\%$ et présente aussi l'effet de transition "chaud"/"froid" mais à champ plus faible, au voisinage de $B_c \approx 1T$. On peut également isoler des raies de boîtes uniques dans cet échantillon. On présente donc en figure 3.2, l'évolution de la largeur de raie d'une boîte individuelle en fonction du champ magnétique. A

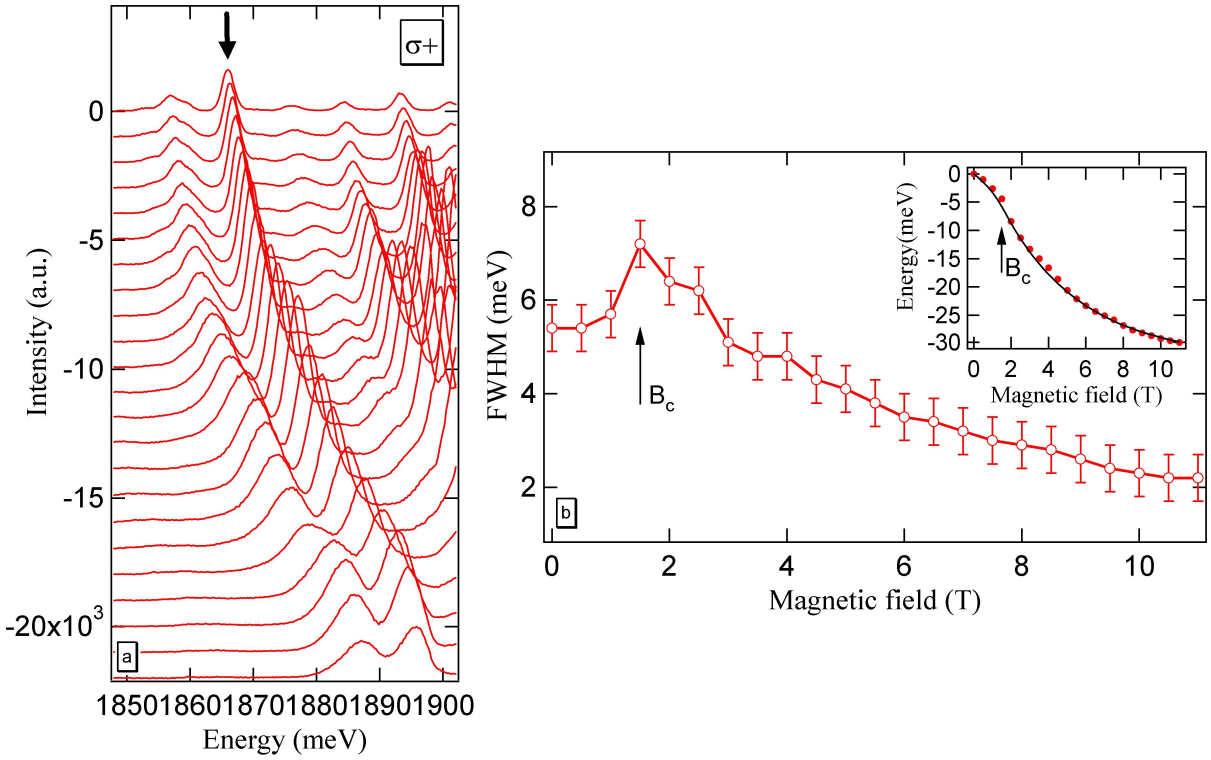

FIG. 3.2 – (a) Spectres de micro-PL d'une boîte unique de l'échantillon M2116 en polarisation σ^+ à $T = 7K$ de $B = 0T$ (en bas) à $B = 11T$ (en haut) tous les $0,5T$. (b) Largeur à mi-hauteur de la raie indiquée par une flèche noire en (a), en fonction du champ magnétique. insert : Pour rappel, la dépendance en champ du maximum de cette raie est tracée et ajustée par le modèle présenté en 2. B_c indique le champ auquel se produit la transition "chaud"/"froid".

priori, cette raie de luminescence correspond à un exciton neutre : les montées en puissance (non présentées ici) tendent en effet à le prouver bien qu'une identification aussi complète que dans l'échantillon M1736 n'ait pas été menée. La dépendance de l'élargissement d'une raie en fonction du champ est ici aussi identique sur les différentes raies que nous parvenons à isoler (mais qui correspondent toutes à des boîtes à basse énergie). Par contre, l'incertitude sur la mesure de

la largeur de raie est un peu plus élevée que pour l'échantillon précédent, d'une part parce que le réseau utilisé pour cette mesure est moins dispersif et surtout parce qu'il est plus difficile d'isoler des raies uniques dans cet échantillon, car elles sont plus larges. L'incertitude maximale ne dépasse tout de même pas $1meV$.

La largeur à mi-hauteur typique en champ nul dans cet échantillon est de $5meV$ à $6meV$. La dépendance en champ magnétique est similaire à celle de l'échantillon précédent, mais l'élargissement de la raie a lieu jusqu'à $B \approx 1,5T$ seulement, puis la raie s'affine, jusqu'à devenir plus fine qu'en champ nul. L'affinement entre $B = 0T$ et $B = 11T$ présente un facteur 2 à 3. Il semble que ces observations soient cohérentes dans la mesure où cet échantillon est plus concentré que le précédent. Par conséquent, les fluctuations statistiques en champ nul doivent être plus importantes, ce qui correspond à une largeur de raie en champ nul plus importante. De plus, à très fort champ, on s'attend à tuer toutes les fluctuations statistiques comme dans l'échantillon précédent. Du coup, il paraît également logique que l'amincissement de la raie entre $B = 0T$ et $B = 11T$ soit plus important dans cet échantillon que dans le précédent puisque la raie est plus large au départ.

Enfin, on observe ici aussi que l'élargissement de la raie se produit au champ B_c auquel a lieu la transition "chaud"/"froid". Toutefois, l'élargissement de la raie à B_c est proportionnellement (par rapport à la largeur en champ nul) beaucoup plus faible que dans le cas précédent. On aurait tendance à vouloir corréler cela avec le fait que la transition est moins abrupte. Voyons donc si on peut le vérifier sur un échantillon suffisamment concentré pour que la transition n'ait pas lieu.

3.1.3 Largeurs de raie dans l'échantillon M2114

L'échantillon M2114 a une concentration en Mn de $x_{Mn} = 5,5\%$ et ne présente pas d'effet de transition "chaud"/"froid" observable. Ceci correspond à faire tendre B_c vers $B_c = 0T$. On s'attend donc à ne pas observer d'élargissement de la raie mais uniquement un affinement progressif sous champ. On présente en figure 3.3, l'évolution de la largeur de raie d'une boîte individuelle en fonction du champ magnétique. Commençons par dire que parvenir à isoler et à suivre sous champ des raies de boîtes uniques sur un échantillon aussi concentré devient particulièrement difficile. En effet les raies sont très larges et peu intenses. Nous ne pouvons donc plus identifier les différents complexes excitoniques et nous ne pouvons pas déterminer si cette raie est un exciton, un biexciton ou un état chargé. En fait les raies sont si larges à bas champ que les différents complexes d'une même boîte ne forment souvent qu'une seule et même raie. On ne mesure donc pas toujours l'élargissement d'un seul complexe excitonique à bas champ. Nous avons a priori pris soin d'éviter d'être dans ce cas-là dans la mesure présentée ici, mais l'influence des raies voisines sur la largeur de la raie qui nous intéresse reste très importante. Par conséquent, il est évident que l'incertitude sur la mesure de largeur de raie est énorme à bas champ dans cet échantillon. Sous champ plus fort en revanche, l'incertitude s'amoindrit, notamment car les raies des différents complexes se séparent plus distinctement sous l'effet d'affinement de l'ensemble des raies. Ceci donne au passage une justification supplémentaire de la difficulté d'observer la transition "chaud"/"froid" lorsqu'on s'éloigne du jeu de paramètre pour lequel elle est bien visible. En effet, pour des échantillons un peu "trop" concentrés comme celui-ci, la transition est attendue à très petit champ et de faible amplitude. Or, à bas champ, les raies sont extrêment larges et on ne distingue pas toujours les différents complexes excitoniques, ce qui a pour effet de décupler l'incertitude sur la mesure de la position spectrale du maximum d'une raie et donc de brouiller un éventuel effet de transition. Enfin, pour toutes ces raisons, il est difficile de dire si l'évolution de la largeur de raie présentée ici est très représentative des autres boîtes ou non.

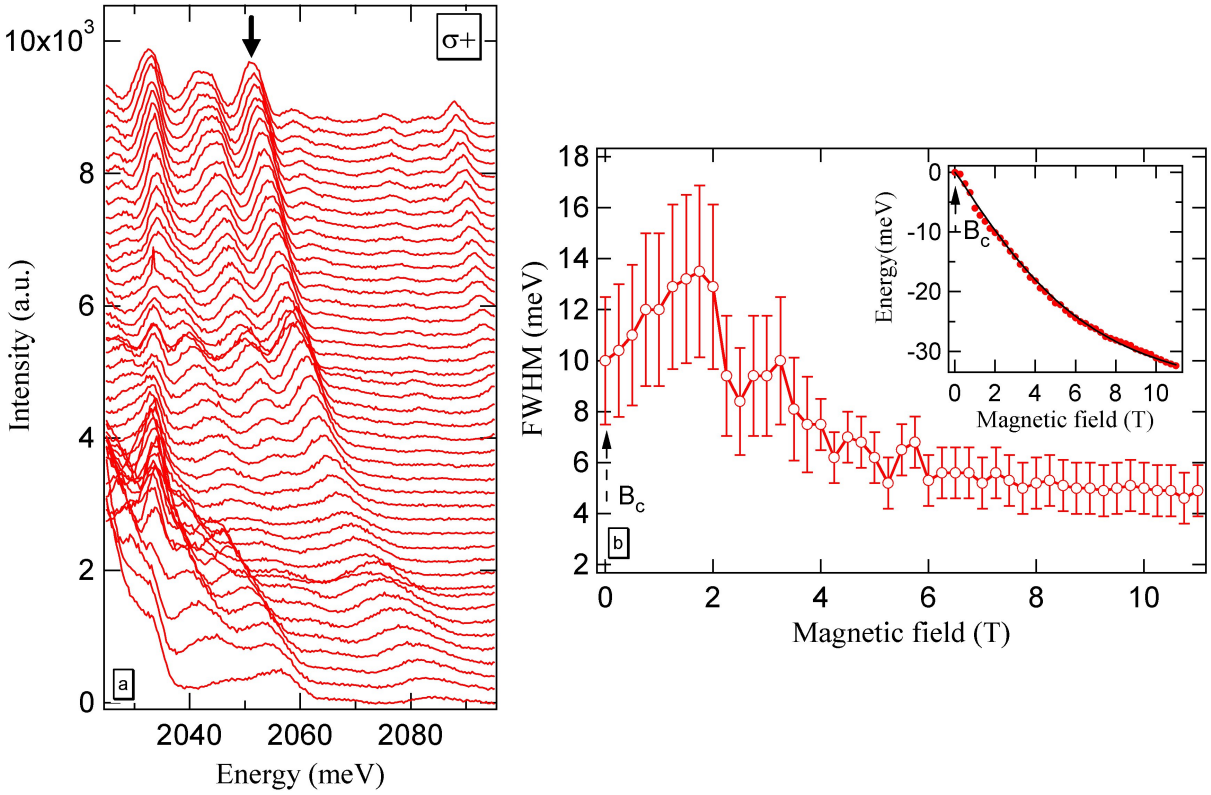

FIG. 3.3 – (a) Spectres de micro-PL d'une boîte unique de l'échantillon M2114 en polarisation σ^+ à $T = 7K$ de $B = 0T$ (en bas) à $B = 11T$ (en haut) tous les $0,25T$. (b) Largeur à mi-hauteur de la raie indiquée par une flèche noire en (a), en fonction du champ magnétique. insert : Pour rappel, la dépendance en champ du maximum de cette raie est tracée et ajustée par le modèle présenté en 2. B_c indique ici que la transition "chaud"/"froid", qui n'est pas observable, tend à être repoussée à champ nul.

Cependant, sur cette boîte correctement isolée, on peut toutefois observer que la largeur à mi-hauteur en champ nul est d'environ $10meV$, puis que cette largeur semble augmenter jusqu'à environ $B \approx 2T$ avant que la raie s'affine sous fort champ. Etant donné les incertitudes de mesure importantes à bas champ, il semble peu plausible de vouloir interpréter l'élargissement de la raie entre $B = 0T$ et $B \approx 2T$. Retenons donc simplement que d'une part les raies sont plus larges que dans les échantillons précédents, moins concentrés, et que d'autre part les raies s'affinent d'un facteur 2 à 3 entre $B = 0T$ et $B = 11T$, si l'on prend en compte l'incertitude en champ nul. Si l'on s'en tient à ces deux remarques, on peut prétendre que la majorité des boîtes de cet échantillon ont un comportement semblable.

3.1.4 Conclusion

En définitive, cette étude, menée sur plusieurs échantillons, permet de mettre en évidence un élargissement des raies de luminescence de plusieurs meV, ce qui est directement imputable aux fluctuations statistiques magnétiques des Mn, couplés aux complexes excitoniques par les interactions d'échange $sp - d$. Ceci explique que d'une part les raies soient plus larges dans les échantillons plus concentrés en Mn et que d'autre part ces raies s'affinent sous fort champ magnétique. Bien que l'on s'attende à ce qu'un modèle quantitatif (a priori relativement simple) vérifie

bien la véracité de ces conclusions, il serait intéressant de s'en assurer tout de même proprement. Par ailleurs, cette étude permet d'exhiber un élargissement important des raies à champ faible. Cet élargissement, pouvant atteindre presque 200% de sa valeur en champ nul, peut être corrélé de manière très précise avec la zone de champ magnétique dans laquelle a lieu la transition "chaud"/"froid" étudiée en 2. Nous pensons par conséquent que cet élargissement au niveau du champ B_c de la transition serait le résultat d'un accroissement des fluctuations statistiques du Mn dans cette zone où le système de Mn est en contact simultané avec deux réservoirs à deux "températures" très différentes. Cependant, il se pourrait aussi que cet élargissement soit le résultat d'une instabilité du système[14], non décrite dans le modèle d'équilibre dynamique que nous avons présenté. Pour s'en convaincre, il s'agit de développer une modélisation statistique du système. A priori plus délicate à mettre en place que la description quantitative de l'affinement des raies sous fort champ, une telle modélisation permettrait néanmoins d'apporter un éclairage nouveau sur le phénomène d'équilibre dynamique des Mn.

3.2 Questions non résolues

Dans les systèmes physiques complexes, comme le nôtre, mettant en jeu un grand nombre de particules, de sous-systèmes et d'interactions, il n'est généralement pas aisé de conclure de manière aussi certaine et précise que dans un système possédant un petit nombre de degrés de liberté dont la plupart sont déjà bien connus. Nous avons toutefois essayé jusqu'à présent d'étayer le plus possible les hypothèses et les thèses que nous avons avancées et nous pensons être parvenu à quelques conclusions fortes. Evidemment sur d'autres points, nous avons émis des conclusions, certes argumentées, mais emprûntes de doutes qu'il s'agira de lever par de nouvelles expériences ou explorations théoriques. Nous voudrions ici attirer l'attention sur deux questions sur lesquelles nous avons des doutes et peu d'arguments pour y remédier. En d'autres termes, ce sont des questions ouvertes.

3.2.1 Reproductibilité de la transition "chaud"/"froid" dans les échantillons de boîtes ?

Dans le souci de reproduire l'effet de chauffage et la transition "chaud"/"froid", nous avons fabriqué un échantillon, le M2117, a priori identique au M1736. Après être parvenu à isoler une raie unique, nous avons testé son évolution sous champ magnétique. Le résultat est présenté en figure 3.4.

Avant de s'attarder sur ce qui paraît ne pas être conforme à nos attentes, il est important de remarquer que l'effet de chauffage à bas champ d'une part et la transition "chaud"/"froid" d'autre part sont observés, comme attendu. On conviendra donc que cette mesure prouve avant tout la fiabilité des grandes lignes de notre modèle.

Toutefois, on ne peut pas ne pas remarquer que le comportement à fort champ, c'est à dire après la transition est différent du comportement de l'échantillon M1736. Ici, l'aimantation des Mn semble ne pas saturer. Autrement dit, il semble que l'effet de chauffage soit encore présent et surtout continue de diminuer. Il faut savoir que c'est la seule mesure que nous avons faite sur cet échantillon M2117. Autrement dit, nous accordons bien plus de crédibilité à l'étude menée sur l'échantillon M1736, de très loin plus complète, et a priori en accord avec les études sur les échantillons plus concentrés M2114 et M2116. Pour se persuader que le comportement du M2117 est digne d'intérêt, il faudrait donc réaliser des études complémentaires sur cet échantillon, tout

[14] Des comportements bistables ont ainsi été reportés dans des systèmes similaires [70, 71, 94, 95].

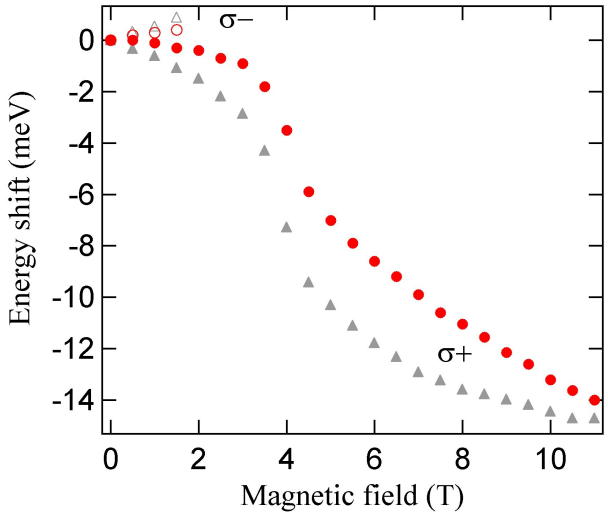

FIG. 3.4 – Décalage énergétique d'une raie de boîte unique de l'échantillon M2117 en fonction de B, à $T = 7K$, sous excitation non résonante. Le complexe excitonique correspondant à cette raie n'a pas été identifié. Les deux polarisations σ^+ et σ^- (ronds rouges pleins et vides resp.) sont analysées. Pour comparaison, les mêmes mesures faites sur un exciton dans l'échantillon M1736 (déjà discutées tout au long de cette partie II du manuscrit) sont également présentées (triangles gris clairs).

au moins pour vérifier que ce comportement n'est pas le fait d'une seule boîte dans l'échantillon. Cependant si l'on suppose que l'évolution sous champ du M2117 a tout autant de valeur que celle du M1736, il faut reconnaître que l'on n'est pas capable de les ajuster avec le même jeu de paramètres ; c'est à dire en ne modifiant que les paramètres indépendants de l'échantillon (puisque les deux échantillons sont censés être semblables), comme la densité de porteurs. On peut toutefois imaginer que les deux échantillons sont en réalité légèrement différents et que l'on s'autorise à modifier un peu, dans les simulations, des paramètres qui ne sont jamais parfaitement maîtrisés lors de la croissance, comme la concentration en Mn, ou l'épaisseur de la couche de mouillage, ou encore la valeur de ϵ quantifiant le mélange de bande de valence. Un ajustement des données expérimentales du M2117 serait alors sans nul doute possible mais il n'a pas encore été réalisé. D'ailleurs, il serait assez délicat, en l'absence d'informations expérimentales supplémentaires, de déterminer dans quelles proportions on s'autoriserait à modifier les paramètres des simulations. Il semblerait donc opportun de réaliser un troisième échantillon similaire qui pourrait peut-être nous éclairer sur le fait que ces deux comportements proviennent des fluctuations de croissance inévitables d'un échantillon à l'autre ou s'ils sont véritablement inconciliables. Bien que nous manquions d'arguments pour trancher, nous penchons en faveur de la première hypothèse. En effet, il nous semble tout à fait imaginable que d'un échantillon à l'autre, les propriétés du continuum d'états excités, et notamment sa forme, soient différentes (cf. 2.5). Un désordre différent dans les couches de mouillage pourrait par exemple expliquer que les continuums quasi 2D aient des formes différentes. Ainsi sous champ, la polarisation des porteurs se ferait à des vitesses différentes, donnant lieu à une évolution sous champ du processus de chauffage différente. Il se peut aussi que le processus de chauffage indirect soit différent d'un échantillon à l'autre.

3.2.2 Evolution de l'exciton chargé X^+ sous champ magnétique

Parmi les différents complexes excitoniques que nous avons identifiés, nous avons étudié et expliqué jusqu'à présent les comportements de l'exciton X et du biexciton XX. En revanche, nous n'avons pas encore étudié le comportement de l'exciton chargé positivement X^+. En appliquant un champ électrique positif, on peut le faire apparaître et sonder ainsi son évolution sous champ, qui est présentée en figure 3.5. Notons que l'on obtient exactement la même évolution si l'on

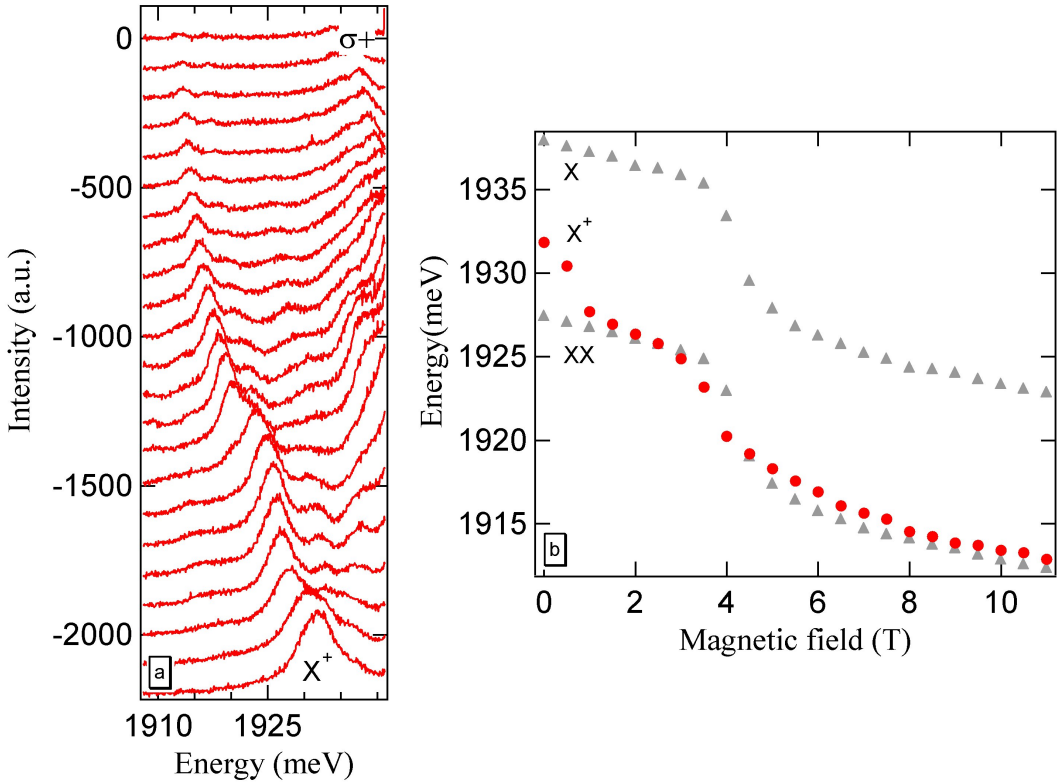

FIG. 3.5 – (a) Spectres de l'exciton chargé X^+ d'une boîte unique de l'échantillon M1736, en polarisation σ^+, à $T = 7K$, sous excitation non résonante et sous $E = +22V$, de $B = 0T$ (en bas) à $B = 11T$ (en haut) tous les $0,5T$. La perte d'intensité à fort champ est dû à un désalignement du montage de micro-PL sous fort champ lors de mesures automatisées. (b) Energie en fonction de B du maximum de la raie de l'exciton chargé X^+ (ronds rouges). Pour comparaison, on a reporté les énergies de l'exciton X et du biexciton XX obtenues pour $E = 0V$ (triangles gris clairs).

utilise une excitation quasi-résonante (qui fait ressortir l'état chargé X^+), en champ électrique nul.

Le comportement de X^+ diffère nettement de celui de X ou de XX. Or, dans le cadre de notre modélisation théorique, on s'attend à ce que l'évolution sous champ de ces trois complexes soit en réalité exactement la même. En effet, l'orientation des Mn dépend de l'interaction de ceux-ci avec les porteurs de la couche de mouillage mais ne dépend pas du nombre de porteurs dans une boîte ou de leur charge. Cette orientation induit alors le même décalage énergétique sous champ pour l'exciton et le biexciton comme on l'a déjà montré en 1.1. Il se trouve que le décalage induit sur l'exciton chargé doit également être le même. Pour s'en convaincre, il faut juste penser que le décalage énergétique de la polarisation σ^+ de X^+ résulte en partie de la séparation énergétique

des deux niveaux Zeeman électroniques dans l'état de départ de la transition X^+ (1 électron et 2 trous appariés) et en partie de la séparation énergétique des deux niveaux Zeeman de trous dans l'état d'arrivée (1 trou).

Les études que nous avons menées jusqu'à présent ne nous permettent donc pas d'expliquer ce comportement inattendu[15]. Remarquons qu'au dessus de quelques teslas les positions spectrales de X^+ et de XX sont superposées. Ceci peut laisser penser que l'état de charge change avec le champ et on peut se demander si on suit véritablement l'évolution de X^+ tout au long de l'expérience. Cependant, il n'est pas aisé de répondre à cette question dans la mesure où X et XX d'une part et X^+ d'autre part ne sont généralement pas observables simultanément ; les premiers l'étant en champ électrique nul et le second en champ électrique positif[16]. On ne peut donc pas vérifier si les deux raies de XX et X^+ se confondent véritablement. On peut seulement superposer leurs positions spectrales après coup. On pourrait vouloir utiliser la largeur spectrale de X^+, plus importante (cf. 1.1), pour l'identifier. Malheureusement, il est probable que les largeurs spectrales ne dépendent pas seulement de l'état de charge mais aussi de la configuration électronique aux environs de la boîte et donc du champ E. Il faudrait donc obtenir les évolutions de chaque complexe excitonique dans les mêmes conditions de champ électrique, ce qui n'est pas possible. De plus les largeurs spectrales, comme on l'a vu en 3.1, sont fortement dépendantes du champ magnétique et il serait par conséquent délicat d'attribuer une évolution de la largeur spectrale à un changement de l'état de charge plutôt qu'à l'augmentation du champ magnétique. Enfin, il se pourrait très bien que l'état de charge ne change pas, que ce soit bien le comportement de X^+ que l'on regarde mais que le mécanisme de chauffage soit profondément modifié par le champ électrique. En effet, nous n'avons aucune certitude sur le fait que le continuum quasi 2D permettant l'effet de chauffage soit peuplé de la même manière lorsqu'on applique un champ électrique.

3.3 Quelques perspectives intéressantes

Comme le dit le titre, nous désirons présenter ici les perspectives, à plus ou moins long terme, qui nous semblent avoir été ouvertes par les études décrites dans cette partie II du manuscrit.

3.3.1 Finalisation d'études entreprises

Il n'est bien sûr pas question de mentionner toutes les améliorations qui pourraient être apportées à ce travail. Elles sont indénombrables puisque la connaissance n'a pas de limite et chacun creusera où bon lui semblera. En revanche, nous souhaitons attirer l'attention sur deux questions qui nous semblent d'un intérêt particulier.

Modélisation théorique des largeurs de raie

Pour commencer, il nous semble que compléter l'étude des largeurs de raie par un modèle théorique pourrait permettre une confirmation supplémentaire du modèle d'équilibre dynamique des Mn que nous avons présenté. Cela pourrait même apporter de nouveaux éléments de compréhension de cette physique complexe. En effet les largeurs de raie sont le résultat des fluctuations

[15] Précisons s'il en est encore besoin que ce comportement ne peut pas être le fait d'un polaron magnétique. Bien qu'en toute rigueur, nous n'avons pas vérifié l'absence de polaron sur X^+, les arguments avancés en 1 parlent d'eux-mêmes : un polaron ne peut se former qu'à des concentrations en Mn bien plus élevées.

[16] Lorsque les conditions d'expérience sont telles qu'elles autorisent la coexistence de ces trois complexes, il devient difficile de les distinguer les uns des autres à cause de leurs largeurs de raie. De plus, la coexistence des trois complexes est bien souvent instable dans le temps.

statistiques des Mn. Par conséquent, elles sont certes affectées par le champ magnétique mais elles doivent aussi dépendre des propriétés thermodynamiques du système. En l'occurence, le système de Mn est en contact simultané avec deux thermostats (dans le cas où l'on accepte de décrire les porteurs par un thermostat). Ceci doit a priori affecter la largeur de raie de PL par rapport au cas où le système de Mn est en équilibre thermodynamique avec un unique thermostat, ce qui tend à être le cas à champ nul d'une part et à fort champ d'autre part. Il devrait donc être possible, via l'étude des largeurs de raie, d'améliorer encore notre compréhension de l'équilibre dynamique des Mn.

Compréhension de l'évolution de X^+ sous champ

Ensuite, il nous semble intéressant de se pencher sur la compréhension du comportement de X^+ sous champ. En effet, soit ce comportement résulte effectivement d'une modification de l'état de charge ou des conditions de formation du gaz de porteurs quasi 2D sous champ électrique, soit il est la conséquence de mécanismes physiques nouveaux. Il nous paraît important tout au moins de pouvoir dire dans lequel de ces deux cas on se trouve. Nous ne croyons pas que ces mécanismes puissent remettre l'ensemble du modèle en cause mais s'ils existent, ils apporteront pour sûr un éclairage nouveau. La première chose à faire serait donc de se convaincre par des expériences systématiques que c'est bel et bien la raie X^+ que l'on suit sur toute la plage de champ magnétique.

3.3.2 Réalisation d'un échantillon de boîtes sans couche de mouillage

Le but des expériences en excitation quasi-résonante que l'on a exposées en 2.4 était de supprimer les porteurs quasi 2D et de vérifier alors la disparition de l'effet de chauffage. Puisque ceci ne fonctionne pas, nous avons pensé supprimer directement la couche de mouillage lors de la croissance. Un échantillon conçu spécialement dans ce but a été fabriqué mais malheureusement nous n'avons pas pu récolter de signal de PL pour une raison inconnue. Toujours est-il qu'il serait extrêmement intéressant de renouveler l'expérience. En principe, nous savons au sein de l'équipe réaliser de tels échantillons et les intérêts d'un tel échantillon sont multiples. Premièrement cela apporterait une preuve très forte du rôle des porteurs de la couche de mouillage dans le mécanisme de chauffage des Mn. Et deuxièmement, si le premier point s'avère vrai, cela permettrait de contrôler l'effet de chauffage lors de la croissance en concevant des échantillons avec ou sans couche de mouillage suivant les buts poursuivis.

3.3.3 Mesure expérimentale des dynamiques Mn-réseau et Mn-porteurs

Comme nous l'avons maintes fois expliqué, l'équilibre dynamique des Mn résulte de la compétition entre la dynamique Mn-réseau et la dynamique Mn-porteurs. Bien que les simulations basées sur notre modèle fournissent des ordres de grandeur des temps caractéristiques de ces dynamiques, il serait évidemment extrêmement intéressant d'avoir un accès expérimental à ces dynamiques. Il nous semble que l'expérience de champ magnétique pulsé que nous avons mise en place durant cette thèse (cf. partie III) nous permettrait justement de telles mesures expérimentales. Pour cela, l'idée consiste à appliquer un champ statique en plus du champ pulsé. Pour un champ statique relativement faible, l'impulsion de champ (d'environ $0,35T$) va balayer une zone de champ où les Mn sont chauds et où leur dynamique est par conséquent majoritairement contrôlée par l'interaction Mn-porteurs. Inversement, pour un champ statique fort, l'impulsion de champ va permettre de sonder des Mn froids dont la dynamique est majoritairement contrôlée par l'interaction Mn-réseau. Le caractère pulsé du champ magnétique, combiné à une détection

résolue en temps du signal de PL devrait ainsi nous donner accès aux temps caractéristiques des deux dynamiques en jeu dans notre système.

Troisième partie

Dynamique des spins de Mn dans les puits quantiques sous "fort" champ magnétique pulsé

L'intérêt d'étudier la dynamique de spin dans les puits ou boîtes quantiques peut être illustré par les phénomènes mis à jour dans la partie II, qui résultent de ces dynamiques de spin mais ne donnent pas un accès direct à ces dynamiques. Cela démontre que la compréhension détaillée des interactions mettant en jeu le spin passe, entre autres, par l'étude de ces dynamiques de spin. De plus, la réalisation de dispositifs spintroniques nécessite également une telle compréhension.

Expérimentalement, il existe plusieurs manières de sonder ces dynamiques. Nous avons choisi d'utiliser une technique de champ magnétique pulsé dans la mesure où l'équipe bénéficie d'une certaine expertise dans ce domaine [96, 97, 98]. De plus cette technique nous donne en principe accès à des dynamiques en champ nul, habituellement difficilement accessibles. L'enjeu est donc dans un premier temps de développer une nouvelle technique de champ pulsé (cf. chapitre 1). Le développement d'une nouvelle technique est motivé, premièrement, par la volonté de générer des champs plus intenses qu'avec les techniques précédentes en espérant que cela nous donne accès à de nouveaux phénomènes ou du moins facilite les études de dynamique. Deuxièmement, on cherche à développer une technique de champ pulsé qui puisse s'appliquer non pas seulement à un puits comme c'était le cas jusqu'à présent mais aussi à une boîte individuelle.

D'un point de vue physique, ce qui va nous intéresser dans cette partie, c'est l'étude de la dynamique des Mn dans des échantillons de puits dilués en champ nul ou sous faible champ statique (cf. chapitre 2). D'une part, cela fait écho à la partie II (même si les études portaient sur des boîtes sous champ fort, contrairement à cette partie) et peut venir enrichir la compréhension que l'on en a. D'autre part, il a récemment été observé dans des puits, qu'à faible champ statique, les Mn pouvaient avoir une dynamique très rapide [98]. Cette dynamique rapide est attribuée à l'évolution hamiltonienne des Mn sous l'effet de l'interaction hyperfine et des contraintes en champ faible. Les Mn sont donc considérés comme isolés les uns des autres dans cette interprétation. Mais il n'est pas encore clairement établi dans quelle mesure l'interaction spin-spin entre les différents ions Mn serait capable d'induire une relaxation aussi rapide en champ faible. Une étude plus approfondie semble donc nécessaire pour déterminer plus clairement si cette dynamique est plutôt le fait de Mn isolés ou de Mn en interaction.

Chapitre 1

Mise en oeuvre du champ magnétique pulsé : un défi expérimental ?

Sommaire

1.1 La micro-bobine 126
1.1.1 Développement des micro-bobines 126
1.1.2 Face arrière 126
1.1.3 Face avant 127
1.1.4 Conclusion 127
1.2 Le montage mécanique 128
1.2.1 Réalisation d'un support rigide et prise des contacts 128
1.2.2 Positionnement micrométrique 130
1.3 Le développement électronique 131
1.3.1 Nappe de courant basse impédance 131
1.3.2 Cartes électroniques 132
1.3.3 Isolation électrique et compatibilité électromagnétique 134
1.4 La détection optique 134
1.4.1 Alignement à froid 134
1.4.2 Collection des photons utiles à la mesure 135

La mise en place d'une technique de champ magnétique pulsé permettant de sonder optiquement la dynamique de spin dans des puits ou des boîtes quantiques, en champ nul ou sous champ, nécessite plusieurs développements expérimentaux importants. D'une part, il faut développer le champ pulsé lui-même et ce sous deux aspects : la bobine créant le champ et l'électronique générant les impulsions de courant envoyées dans la bobine. D'autre part, les conditions dans lesquelles on veut utiliser le champ pulsé imposent de nombreux développements complémentaires. En l'occurence, pour faire de la magnéto-optique de semiconducteurs, il faut adapter la génération de champs pulsés à un montage optique, qui doit fonctionner à basse température et sous champ magnétique. Et si l'on veut faire des mesures sur des boîtes quantiques individuelles, il faut positionner spatialement le champ pulsé. En insistant sur les difficultés expérimentales rencontrées et la manière dont elles ont été surmontées, on présentera tout d'abord la micro-bobine utilisée pour générer le champ, puis le développement mécanique mené pour l'incorporer à notre montage expérimental, avant de présenter l'électronique créant les impulsions de courant et enfin les modifications de la partie détection optique du montage.

1.1 La micro-bobine

Le premier élément indispensable pour l'obtention de champs magnétiques pulsés est bien entendu la bobine d'inductance. Cette bobine doit au minimum remplir les critères suivants : elle doit présenter une géométrie permettant de générer une impulsion de champ suffisamment intense et suffisamment rapide (tant en terme de durée d'impulsion que de temps de montée ou descente) ; elle doit être suffisamment compacte pour s'adapter au reste du montage, être robuste afin de résister aux conditions expérimentales particulières (forts courants, forts champs et basses températures) et elle doit permettre un accès optique qui reste notre moyen d'accès à la physique qui nous intéresse.

1.1.1 Développement des micro-bobines

Le développement des bobines proprement dites (cf. figure 1.1), qui sont en fait des micro-bobines, est antérieur à l'utilisation que nous en avons faite dans le cadre de ce travail et a entièrement été mené par Marlio Bonfim dans le cadre de sa thèse [99]. On pourra donc se reporter à son travail pour obtenir les détails de conception, fabrication et utilisation de ces bobines. Contentons-nous de préciser que ces bobines sont, comme on va le voir, particulièrement adaptées à notre utilisation puisqu'elles ont été conçues pour générer des champs magnétiques jusqu'à $60T$ sur des impulsions de *qqs* $100ns$ avec des temps de montée et descente de $\approx 10ns$. Bien entendu, l'adaptation de ces bobines à nos exigences expérimentales ne nous permettra pas d'obtenir les mêmes caractéristiques (dans notre cas le champ généré lors de l'impulsion ne dépassera pas *qqs* $100mT$ par exemple).

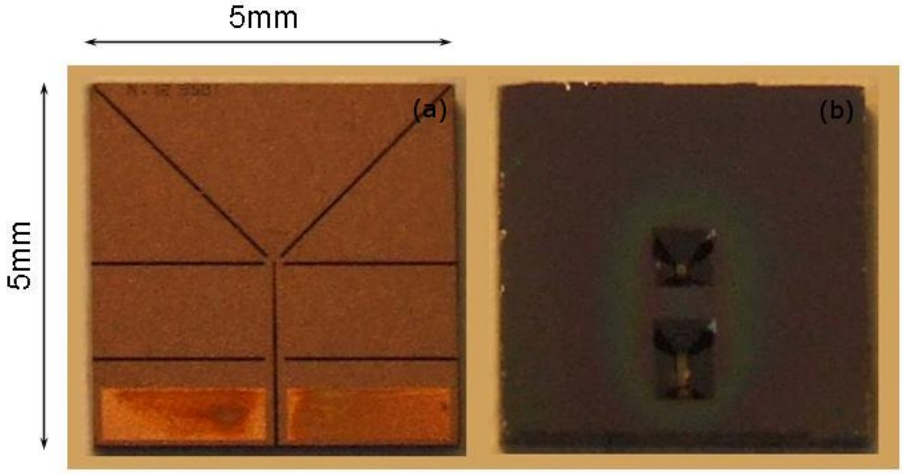

Fig. 1.1 – Photos d'une micro-bobine telle qu'elle a été fabriquée par M. Bonfim : (a) Face avant. (b) Face arrière.

Remercions donc, avant de poursuivre, M. Bonfim et S. Pizzini d'avoir accepté de mettre à notre disposition quelques unes de ces micro-bobines.

1.1.2 Face arrière

La face arrière de la bobine est en quelque sorte le substrat de celle-ci sur lequel la bobine proprement dite est ensuite fabriquée. Lors de la fabrication, le substrat de silicium est percé (par

photo-lithographie et attaque chimique) d'une ouverture pyramidale (cf. figure 1.2). L'ouverture ainsi ménagée, d'une taille de $700\mu m \times 700\mu m$ à sa base (côté face arrière) et de $100\mu m \times 100\mu m$ en haut (côté face avant), nous permet un accès optique au travers de la micro-bobine.

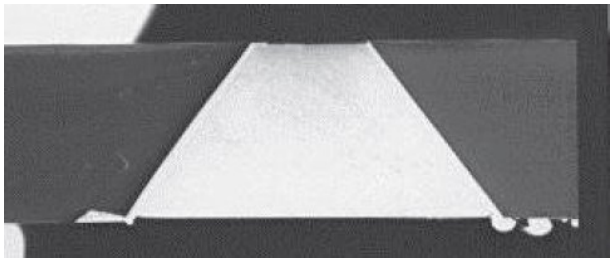

FIG. 1.2 – Photo par microscopie optique d'une coupe du substrat silicium montrant l'ouverture pyramidale qui nous permet de réaliser des mesures optiques. La face arrière est en bas et la face avant où sera déposée la micro-bobine, est en haut. Extrait de [99].

1.1.3 Face avant

La face avant de la micro-bobine correspond à la micro-bobine de cuivre elle-même. Celle-ci est déposée sur le substrat de silicium (préalablement oxydé en surface afin d'augmenter l'adhérence du cuivre sur le silicium et de les isoler l'un de l'autre) par photo-lithographie et dépôt électrolytique de cuivre. Le motif de la bobine est présenté en figure 1.3. On s'aperçoit alors que la bobine est une spire unique, d'un diamètre intérieur de $50\mu m$. Les expériences d'optique devront donc être menées à travers cette ouverture de $50\mu m$. Le diamètre extérieur de la spire est quant à lui ramené à un diamètre effectif de $150\mu m$ environ (diamètre pertinent pour le courant) par des fentes percées radialement dans le cuivre dont la surface totale est de $5mm \times 5mm$. L'épaisseur totale de cuivre est de $30\mu m$. C'est la masse totale de cuivre qui confère à la micro-bobine sa résistance mécanique importante ainsi que sa capacité à évacuer la chaleur (cette capacité est également le fait du substrat en silicium qui joue le rôle de radiateur). La surface relativement importante de la bobine (comparée aux diamètres de la spire) permet en outre d'améliorer l'adhérence du cuivre sur le silicium oxydé.

Le champ magnétique que l'on peut espérer obtenir à partir de ces micro-bobines dans le cadre de notre expérience est donné par la calibration de la figure 1.4. Comme on le voit, cette calibration ne dépend pas tellement de la température et on peut imaginer qu'elle soit semblable à basse température. Ainsi, le champ maximum que l'on peut obtenir ne dépend principalement que de deux paramètres : la distance z de l'échantillon à la bobine et le courant I que l'on envoie dans la bobine. En plaquant l'échantillon contre la bobine, on se trouve donc au mieux à une distance $z = 15\mu m$, soit à un champ d'environ $10mT/A$. Or, comme on le verra, nos cartes électroniques nous permettent de délivrer des courants de $50A$ à $60A$ au maximum. On s'attend donc à obtenir au mieux des impulsions de champ d'intensité maximale égale à $0,5T$ environ.

1.1.4 Conclusion

Avec ces micro-bobines, nous disposons donc d'un outil extrêmement performant pour la réalisation de champs magnétiques pulsés. Cependant, il ne faut pas perdre de vue que pour l'appliquer à l'étude de la dynamique dans les semi-conducteurs, il est absolument nécessaire de l'adapter à un nouvel environnement expérimental pour lequel il n'a pas été spécialement conçu.

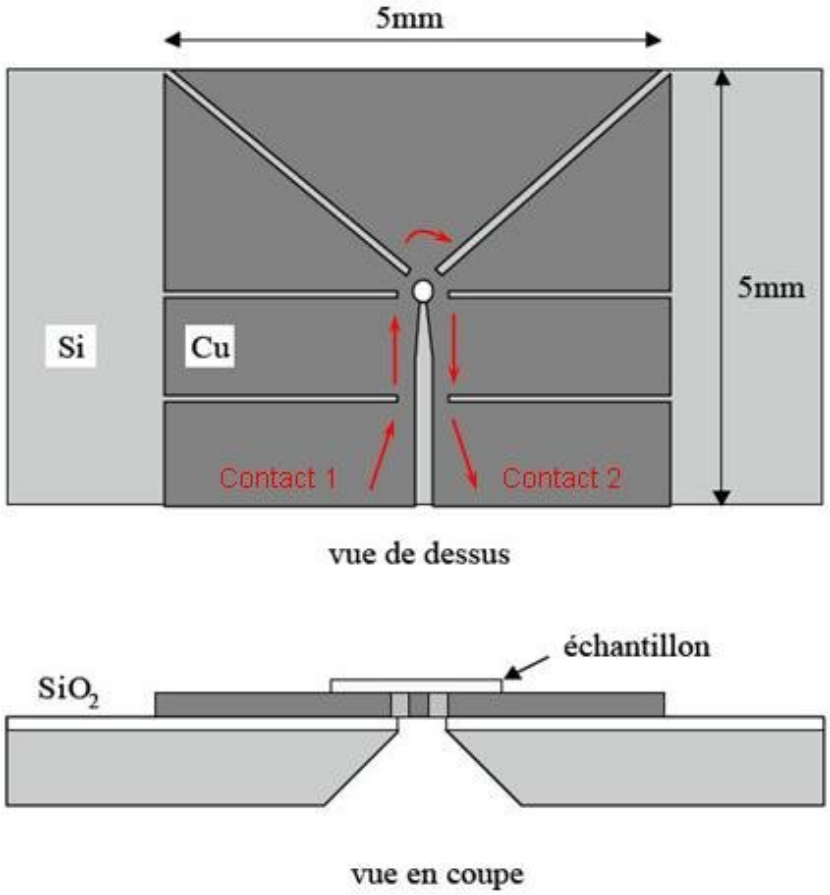

FIG. 1.3 – Schéma de la micro-bobine de cuivre sur son substrat silicium. Les flèches schématisent le passage du courant.

1.2 Le montage mécanique

La première chose à faire en vue d'incorporer ces bobines dans notre montage expérimental est de développer un support mécanique approprié. Ce support doit en priorité être suffisamment compact pour être intégré sur la canne de micro-PL dans le cryostat. Néanmoins, il doit permettre un positionnement micrométrique de l'échantillon par rapport à la bobine (à la fois pour maximiser l'intensité du champ pulsé mais aussi pour pouvoir travailler sur une boîte unique). Enfin, ce support doit être robuste et non magnétique pour résister aux basses températures et aux forts champs.

1.2.1 Réalisation d'un support rigide et prise des contacts

Afin de pouvoir manipuler la bobine et l'intégrer sur la canne de micro-PL, nous l'avons enchâssée dans un support en laiton rigide. Pour être certain de pouvoir plaquer l'échantillon contre la bobine et non contre le support, il est important de laisser légèrement dépasser la bobine de son support ($\approx 100\mu m$). De plus, il faut veiller à coller la bobine le plus parallèlement possible à son support. Un petit montage mécanique simple permet de coller la bobine tout en remplissant ces deux conditions. D'autre part, afin d'acheminer les impulsions de courant électrique, il faut parvenir à contacter la micro-bobine. Or, toujours afin de maximiser le champ pulsé appliqué,

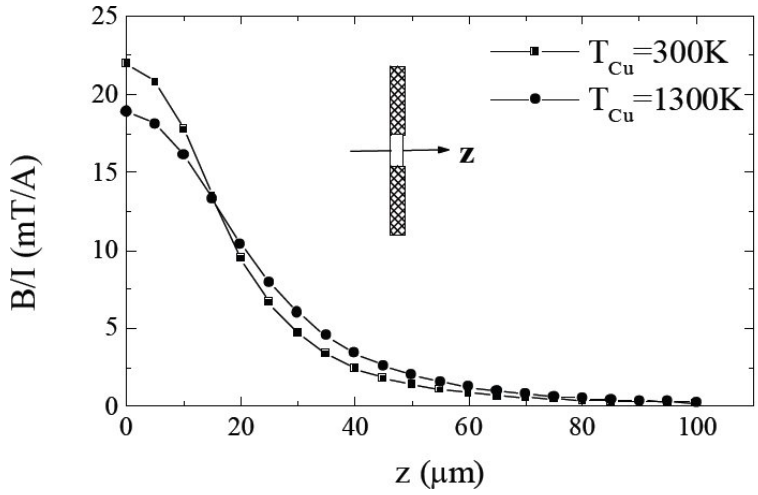

FIG. 1.4 – Calibration par simulation numérique du champ B le long de l'axe z de la bobine (l'origine $z = 0$ est au centre de la bobine). Extrait de [99].

cette dernière doit être plaquée contre l'échantillon. Il est donc nécessaire de contacter la bobine en face arrière. Pour cela, on a réalisé à l'aide d'une scie diamantée (et avant d'enchâsser la bobine dans son support en laiton), l'ablation de la partie du silicium situé au dessus des points d'entrée et sortie du courant dans la micro-bobine (cf. figure 1.5(a)). On a donc réalisé l'ablation du silicium sur le bord de la micro-bobine (correspondant aux points d'entrée/sortie) sur une largeur inférieure au mm, sur toute la longueur de la micro-bobine ($5mm$) et sur toute sa hauteur afin de mettre à jour le cuivre mais en évitant de l'attaquer trop. On peut ainsi contacter les points d'entrée et sortie du courant en face arrière. Pour cela, on soude sur chacun de ces deux points une fine lamelle de cuivre. Précisons que ces soudures sont excessivement difficiles à réaliser : il faut éviter de trop chauffer au risque de voir se décoller la bobine de son substrat en silicium, éviter de court-circuiter les deux contacts (proches de quelques dizaines de microns seulement) ; mais il faut aussi réaliser des soudures extrêmement solides dans la mesure où elles sont ensuite soumises à de très fortes contraintes mécaniques (manipulation de la bobine, dilatation thermique lors de la mise à froid) ainsi qu'à de très fortes densités de courant. De plus, la petitesse du dispositif rend ces soudures encore plus délicates à mettre en place. Au bilan, pas de méthode miracle mais un ensemble d'astuces "maison" qui ont permis de venir à bout de ces soudures[17]. Une fois ces soudures réalisées, il faut alors coller solidement l'autre bout de ces lamelles de cuivre sur le support en laiton (en intercalant bien évidemment une couche isolante de kapton) afin de rigidifier encore le dispositif.

Un tel montage de la micro-bobine a été proposé par M. Bonfim qui l'a également réalisé lui-même au départ. Cependant, cette première version était loin d'être assez solide (notamment en ce qui concerne les soudures) pour résister à l'ensemble des contraintes auxquelles est soumis le dispositif. L'ensemble des étapes a donc été repris afin de parvenir à la version de la figure 1.5(b)(c) qui nous a permis de réaliser les mesures du chapitre 2. Toutefois, le principe de montage proposé par M. Bonfim était dans l'ensemble bon et a été conservé. Enfin sur la figure 1.5(b)(c), la nappe orange que l'on peut voir correspond à la nappe d'arrivée des impulsions électriques. Elle a été soudée sur les lamelles de cuivre et peut à son tour être reliée au dispositif électronique extérieur.

[17]Un grand merci notamment à Jacques Marcus dont les seringues remplies de produits chimiques divers et variés m'ont grandement aidé.

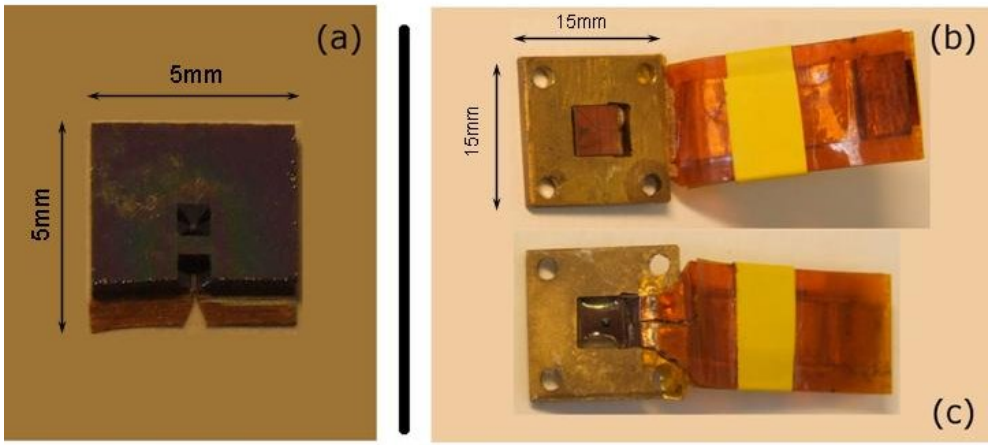

FIG. 1.5 – (a) Micro-bobine modifiée pour prendre les contacts en face arrière. (b) et (c) Micro-bobine contactée que nous avons utilisée pour les mesures : (b) Face avant. (c) Face arrière.

1.2.2 Positionnement micrométrique

Le micro-positionnement de la bobine est capital de deux points de vue. Premièrement, il doit permettre de plaquer au mieux la micro-bobine contre l'échantillon afin de maximiser l'intensité du champ pulsé. Et deuxièmement, il doit permettre de positionner la micro-bobine au-dessus d'une boîte unique donnée si l'on veut pouvoir utiliser ce dispositif pour l'étude de boîtes quantiques individuelles.

Pour ce faire, on a fabriqué le dispositif mécanique de la figure 1.6 : celui-ci est composé d'un parallélépipède creux en laiton qui vient se fixer sur la canne de micro-PL. Dans ce creux est placée une petite pièce en laiton amovible sur laquelle est collé l'échantillon (cf. figure 1.6(a)). Cette pièce peut être positionnée dans le plan xy avec une précision de l'ordre du micron et maintenue dans cette position grâce à un système de deux vis et de deux ressorts en opposition. La précision du déplacement provient tout simplement du fait que les vis utilisées ont été spécialement usinées avec un pas de $250\mu m$. Pour le positionnement suivant z, on commence par fixer la micro-bobine (précédemment contactée et montée dans son support laiton) sur le dessus du parallélépipède creux, c'est à dire au-dessus de l'échantillon (cf. figure 1.6(b)). Une troisième vis (identique aux deux premières), placée sous la pièce sur laquelle est collé l'échantillon, permet alors de venir plaquer en douceur l'échantillon contre la micro-bobine.

Le positionnement de l'échantillon sous la micro-bobine est réalisé grâce à un système d'imagerie à chaud spécialement conçu à cette intention. Bien que le principe de ce système d'imagerie ne soit pas compliqué en soi (c'est un simple montage de microscopie confocale), la mise en pratique est un peu délicate : d'une part, il faut faire attention de ne pas rayer (voire d'écraser complètement) l'échantillon ou la micro-bobine en les frottant l'un contre l'autre et d'autre part, il n'est pas possible de voir l'échantillon à travers l'ouverture de $50\mu m$ tant que l'échantillon n'est pas suffisamment proche ($\approx 50\mu m$) de la bobine (ceci est tout simplement dû au fait que l'ouverture diaphragme le faisceau). Mais avec un peu de soin, on parvient à se positionner à l'endroit souhaité sur l'échantillon et à plaquer ce dernier contre la bobine.

A partir de ce stade, l'échantillon est solidaire de la bobine et nous ne pouvons plus les déplacer l'un par rapport à l'autre. On fixe alors l'ensemble du bloc échantillon/bobine sur la tour Attocube de la canne de micro-PL qui permet le positionnement x, y, z du bloc sous l'objectif de microscope, comme pour un montage de micro-PL standard. Toutefois, on verra

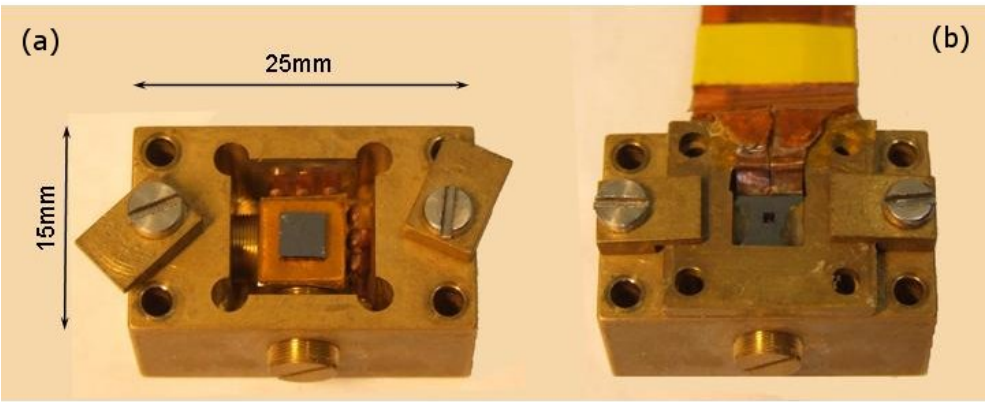

FIG. 1.6 – Photos du même système de micro-positionnement de la micro-bobine : (a) lorsque la micro-bobine n'est pas encore fixée, (b) lorsque la micro-bobine est fixée.

que l'alignement optique à froid de ce système se révèle bien plus délicat qu'un alignement de micro-PL standard.

1.3 Le développement électronique

Pour générer un champ magnétique pulsé dans l'échantillon, il faut évidemment générer une impulsion de courant électrique dans la micro-bobine. Puisque le champ magnétique est déterminé par l'impulsion de courant, il faut par conséquent contrôler au mieux la forme et les différentes caractéristiques de ces impulsions, et il faut également les acheminer vers la bobine le plus proprement possible. L'enjeu du développement expérimental de la partie électronique est de mettre en place à la fois une électronique de puissance autorisant la génération d'impulsions intenses et une électronique rapide permettant de définir le plus proprement possible les caractéristiques temporelles de ces impulsions. Enfin, il faut que cette électronique soit compatible avec le reste du montage : il faut qu'elle ne dissipe pas trop de puissance dans le cryostat à basse température et que les éventuelles perturbations électromagnétiques qu'elle crée sur les autres appareils électroniques soient faibles.

1.3.1 Nappe de courant basse impédance

Afin d'acheminer les impulsions intenses de courant (plusieurs dizaines d'ampères) dans la micro-bobine tout en continuant de travailler à basse température, il est nécessaire d'employer une nappe de courant basse impédance $Z_c = 2\Omega$ (cf. figure 1.7).

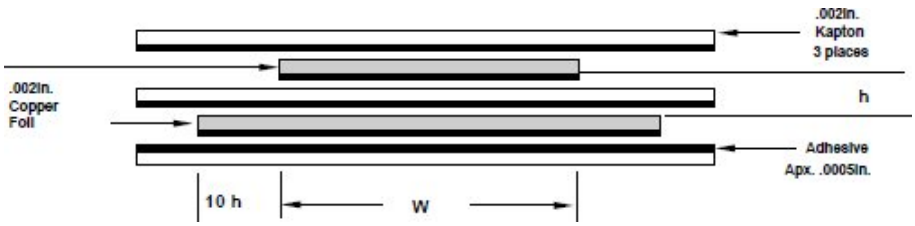

FIG. 1.7 – Schéma en coupe transverse de la nappe basse impédance utilisée pour acheminer les impulsions de courant dans la micro-bobine.

Qui plus est, pour minimiser les effets de rebonds, importants lorsqu'on travaille avec des impulsions rapides, il est nécessaire d'adapter l'impédance de cette nappe à l'impédance de sortie des cartes électroniques utilisées. Comme on va le voir, nous avons utilisé deux cartes électroniques différentes. Leurs impédances de sortie sont légèrement différentes mais quasiment adaptées à celle de la nappe ($Z_c \approx 2\Omega$ et $Z_c \approx 3\Omega$ pour les cartes 1 et 2 respectivement). Une adaptation exacte constituerait toutefois une amélioration.

La nappe connecte les cartes électroniques situées en dehors du cryostat à la micro-bobine située au bout de la canne de micro-PL. Afin d'obtenir les temps de montée et descente d'une impulsion les plus courts possibles, il est important de réduire au maximum la longueur de cette nappe. Dans notre cas, nous sommes bien obligés d'acheminer les impulsions au fond du cryostat et la longueur minimum de la nappe est de l'ordre du mètre. Ceci constitue donc une limitation par rapport aux études réalisées par M. Bonfim où une nappe d'environ $10cm$ permet l'obtention de temps de montée et descente d'environ $10ns$. Enfin, pour pouvoir connecter et déconnecter simplement (sans avoir à souder et dessouder à chaque fois) la carte électronique de la nappe d'une part, et la micro-bobine de la nappe d'autre part, nous avons coupé la nappe en deux points : à la sortie de la carte et à l'entrée de la bobine. Un petit système de presse et un peu de patience à chaque mise en place permettent de reconnecter les différentes parties. Bien entendu, ceci induit probablement des rebonds supplémentaires et donc une dégradation de l'impulsion dans la bobine.

1.3.2 Cartes électroniques

La carte électronique permet de définir les caractéristiques temporelles des impulsions de courant envoyées dans la bobine. Une impulsion est déterminée par son amplitude A_p, sa durée τ_p (ainsi que ses temps de montée et descente) et sa période T_p ou sa fréquence de répétition $f_p = 1/T_p$ (cf. figure 1.8). On définit alors le rapport cyclique par $\alpha = \tau_p/T_p$. Dans la mesure où

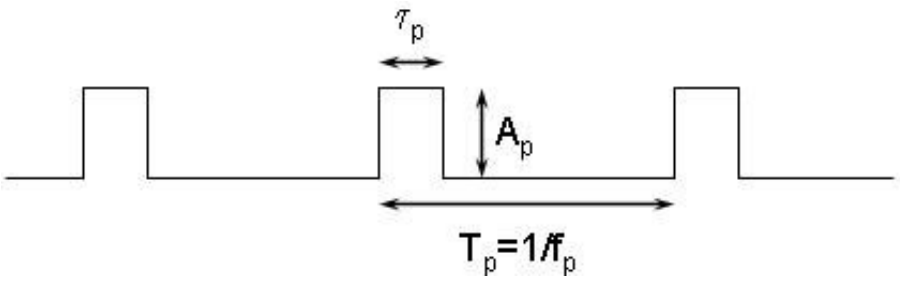

FIG. 1.8 – Schéma des différents temps caractérisant les impulsions de courant envoyées dans la bobine.

l'on ne maîtrise pas les temps de montée et descente de l'impulsion, il est inutile d'en parler ici. Ils résultent de la résolution temporelle de l'ensemble du montage et sont d'environ $20ns$.

Nous avons utilisé pour nos mesures deux cartes électroniques différentes. La première que l'on désignera dans la suite par "carte électronique 1" est issue du commerce mais a été légèrement modifiée. On reviendra sur ce point. La seconde, la "carte électronique 2" a été mise à notre disposition par M. Bonfim et S. Pizzini. Comme on va le voir, les caractéristiques de chacune de ces deux cartes se complètent mais leur fonctionnement est similaire. Elles sont notamment toutes deux munies de trois entrées et deux sorties. La première entrée est une alimentation continue standard $0V/12V$ qui permet aux composants actifs de fonctionner. La deuxième entrée est une alimentation continue de puissance $(300W, 150V, 4A)$ qui permet de fournir la puissance

nécessaire à la génération d'impulsions intenses de courant. En outre, la tension V de consigne de cette alimentation de puissance fixe directement l'amplitude de courant A_p des impulsions. Nous disposons d'une calibration grossière du courant A_p qui circule dans la bobine en fonction de la tension V appliquée (grossomodo $10V \equiv 5A$). Cependant, le plus important est de posséder une calibration du champ B_p créé par l'impulsion dans l'échantillon en fonction de V. Une telle calibration sera présentée en 2. La troisième entrée est constituée d'un générateur d'impulsions TTL qui permet de définir les caractéristiques purement temporelles des impulsions désirées, à savoir leur durée τ_p et leur fréquence de répétition f_p. La première sortie correspond évidemment à la micro-bobine dans laquelle sont envoyées les impulsions de courant (conformes aux consignes données en entrée) via la nappe basse impédance. La deuxième sortie, quant à elle, est une mesure du courant circulant dans la bobine. Elle donne une tension proportionnelle au courant dans la bobine (ou seulement proportionnelle à la dérivée de ce courant, pour la carte 1). Elle n'est pas très précise en terme d'intensité du courant et ne retourne pas une forme d'impulsion très fidèle à la réalité mais elle permet de savoir si les impulsions de courant sont bien générées dans la bobine. Et dans une expérience où l'on jongle avec autant de paramètres, il est toujours intéressant de posséder un paramètre de contrôle supplémentaire.

La carte 1 permet grossomodo de générer des impulsions dont l'amplitude maximale est $A_p \approx 45A$, la durée maximale $\tau_p \approx 10\mu s$ et la fréquence de répétition maximale est $f_p \approx 1MHz$. La carte 2 quant à elle, permet de générer des impulsions dont l'amplitude maximale est $A_p \approx 55A$, la durée maximale $\tau_p \approx 300ns$ et la fréquence de répétition maximale est $f_p \approx 1MHz$. Au final, la carte 2 permet de générer des impulsions un peu plus intenses et un peu plus rapides (les temps de montée/descente sont un peu plus courts) que la carte 1 mais la carte 1 autorise l'utilisation d'impulsions plus longues. Bien entendu, on ne peut pas se permettre de fixer tous les paramètres de manière indépendante. Les paramètres donnés ci-dessus correspondent aux spécifications de chaque carte qui recommandent de se limiter à une certaine plage de fonctionnement lorsqu'on considère les paramètres indépendamment les uns des autres. Mais il faut également respecter la puissance totale que sont capables de supporter les deux cartes électroniques ; et cette limitation est, généralement, plus contraignante. En l'absence de refroidissement, chacune des cartes est capable de supporter une puissance de l'ordre de $\approx 5W$. Cependant, la carte 2 qui nous a été prêtée, est montée sur un radiateur refroidi par eau et nous avons monté la carte 1 que nous avons achetée sur un radiateur refroidi par deux cellules Peltier elles-mêmes refroidies par eau. Ceci nous permet de gagner un facteur 10 sur la puissance en envoyant jusqu'à $\approx 50W$ dans les cartes électroniques. Dans le même temps, pour éviter qu'un refroidissement trop brusque induise une condensation qui pourrait endommager les circuits électroniques, nous insufflons de l'azote gazeux sur les circuits. Ainsi, la puissance P que nous envoyons est limitée à $50W$. Ceci impose certaines restrictions comme le montre l'équation suivante :

$$P \propto A_p^2 \tau_p f_p < 50W \tag{1.1}$$

Il faut donc réaliser un compromis entre générer des impulsions de grande amplitude, ce qui tend à conduire à un signal important, les générer avec un taux de répétition élevé, ce qui tend à augmenter le rapport signal sur bruit et générer des impulsions longues, ce qui est parfois nécessaire pour sonder des dynamiques lentes. Notons que dans la pratique, la puissance exacte injectée dans la carte électronique nous est directement donnée par l'affichage de la tension et du courant (qui dépendent de l'ensemble des paramètres précités) délivrés par l'alimentation de puissance.

1.3.3 Isolation électrique et compatibilité électromagnétique

Lorsque l'on manipule de forts courants et de hautes tensions sur des distances de quelques microns, il est évident qu'il faut veiller à isoler parfaitement les différentes parties du circuit. Il est bien sûr inutile de détailler les multiples court-circuits, les destructions d'échantillon et de bobine, ou encore de carte électronique qu'il nous a fallu avant de parvenir à un montage qui fonctionne. Pourquoi cette précision puisqu'après tout, ceci reste le lot quotidien de beaucoup d'expérimentateurs ? Pour insister sur le fait que c'est encore M. Bonfim qui a résolu l'ultime problème électronique qui nous bloquait encore. L'ensemble de l'expérience était prêt à fonctionner mais nous continuions de nous heurter au même problème électronique. Nous avions bien identifié qu'il avait pour origine une masse flottante dans la carte 1 que nous avions achetée. Mais en dépit de nos efforts, nous n'étions pas parvenus à le résoudre. M. Bonfim, lors de son dernier passage à Grenoble, nous a prêté la carte électronique 2 et a modifié dans la foulée notre carte 1. Lors de son départ après deux semaines, nous avions déjà accumulé un bonne quantité de données. Merci encore !

Précisons toutefois qu'en terme d'isolation électrique, la bobine est isolée de l'échantillon contre lequel elle est plaquée par une très fine couche ($\approx 1\mu m$) de parylène, que l'échantillon est isolé de son support par une feuille de kapton et que l'ensemble du bloc échantillon/bobine est isolé du reste de la canne de micro-PL par le fait qu'il y soit fixé au moyen de vis et rondelles nylon.

Enfin, lorsque l'on utilise de hautes fréquences, les perturbations électromagnétiques engendrées peuvent nuire au bon fonctionnement d'autres appareils électroniques aux alentours. Il faut donc, de manière générale, veiller à une bonne compatibilité électromagnétique (CEM) des appareils. On en verra un exemple dans la suite.

1.4 La détection optique

La difficulté expérimentale principale de la partie optique de ce montage consiste évidemment à insérer la micro-bobine dans le cryostat tout en continuant à collecter les photons. On a déjà expliqué que pour permettre un accès optique à l'échantillon à travers la bobine, celle-ci était ajourée et positionnée au-dessus de l'échantillon grâce à un support spécial. Cependant, il reste à réaliser l'alignement à froid de l'ensemble du système. De plus, il faut s'assurer que l'on collecte une quantité suffisante de photons malgré la modification du système. Et enfin, puisque l'on désire procéder à des expériences de champ pulsé, il faut mettre en place une détection de ces photons qui soit synchronisée sur les impulsions de courant. Et quoique ce dernier développement expérimental soit relativement standard dans les expériences d'optique, on insistera sur les particularités qu'il exige dans le cadre de l'utilisation de champ pulsé.

1.4.1 Alignement à froid

Comme on l'a déjà dit, l'échantillon est solidaire de la bobine et on fixe l'ensemble du bloc échantillon/bobine sur la tour Attocube de la canne de micro-PL qui permet le positionnement x, y, z du bloc sous l'objectif de microscope. L'alignement à froid de ce système se révèle cependant bien plus délicat qu'un alignement de micro-PL standard.

En effet, en raison de la compacité du montage, on ne peut déplacer le bloc échantillon/bobine que sur de faibles distances dans le plan xy ($\approx 1mm \times 1mm$) sans risquer d'endommager les moteurs Attocube. Il faut donc que le système soit déjà relativement centré avant de l'introduire dans le cryostat. Cependant, si on le centre parfaitement sur l'ouverture de la bobine, cela

implique d'être focalisé dans le plan avant (côté bobine) de la pyramique percée dans le silicium, d'une ouverture de $100\mu m \times 100\mu m$. Or avec la dilatation thermique, le système va bouger légèrement et le déplacement induit en xy suffit à nous faire complètement perdre l'image. En effet, en dehors de cette zone de $100\mu m \times 100\mu m$, le système ne se trouve plus dans le plan focal de l'objectif et de plus les bords inclinés de la pyramide ne reflètent pas du tout la lumière. On se retrouve dans le noir complet sans savoir dans quelle direction se déplacer. La solution alternative consiste alors à se focaliser dès le départ sur la face arrière en silicium. Cependant, dans ce plan-là, l'ouverture de $700\mu m \times 700\mu m$ constituant la base de la pyramide apparaît totalement noire, puisqu'elle correspond aux bords inclinés de la pyramide ou à l'ouverture de $100\mu m \times 100\mu m$ en face avant (nettement en dehors du plan focal). Dans ce plan-là, notre système d'imagerie nous permet donc de sonder une surface d'environ $1mm \times 1mm$ dont $700\mu m \times 700\mu m$ sont noirs. Il faut donc se placer sur un bord lumineux de ce carré noir en sachant que la dilatation thermique n'entraînera pas des déplacements en xy supérieurs à $700\mu m$. Lors de la mise à froid, soit on observe une tâche lumineuse et l'on sait alors dans quel sens se déplacer pour retrouver le bord du carré noir puisque l'on sait de quel côté de ce carré on se trouve ; soit on se trouve dans le noir et ceci signifie alors qu'il faut s'écarter du centre pour retrouver le bord du carré. Bien entendu ce deuxième cas nécessite d'avoir au préalable aligné le reste du banc optique pour être persuadé que l'absence de lumière signifie bien que l'on se trouve dans le carré noir. Au final, dans les deux cas, on sait où se trouve l'image et on n'a pas besoin de se déplacer sur des distances trop grandes en xy ce qui entraînerait la rupture des moteurs Attocubes. Une fois le bord du carré repéré, il est relativement aisé de se placer à peu près en son centre et de déplacer le plan focal jusqu'à trouver l'image de l'ouverture de la pyramide de $100\mu m \times 100\mu m$ en face avant ; puis de modifier encore un peu le plan focal pour faire l'image de la surface de l'échantillon. Finalement, une fois que l'on s'est familiarisé avec ces différentes étapes, la mise en place d'un échantillon au fond du cryostat peut se faire raisonnablement en une grosse demi-journée de travail si l'on ne rencontre pas de problèmes spécifiques. Mais pour cela il faut impérativement veiller à respecter l'ordre des étapes : (i) positionnement à chaud de l'échantillon sous la bobine, (ii) alignement à chaud du bloc échantillon/bobine sur la canne de micro-PL, (iii) alignement à froid de ce même bloc (en ayant pris soin d'aligner le reste du banc d'optique auparavant).

Enfin, bien que l'on n'ait pas encore réalisé de mesures physiques sur boîte quantique unique, notons que l'on est néanmoins capable de réaliser cet alignement sur une boîte unique choisie. Lors de tests, nous avons en effet vérifié que l'on pouvait d'une part positionner à chaud la boîte désirée (plus exactement l'ouverture du masque aluminium dans laquelle elle se trouve) sous la micro-bobine, et d'autre part que lors de la mise à froid, cet alignement n'était pas trop modifié par la dilatation thermique. A froid nous ne pouvons plus déplacer l'échantillon par rapport à la bobine et les effets des dilatations/contractions thermiques ne peuvent pas être compensés. Cependant, nous avons constaté que le déplacement relatif de l'échantillon est de l'ordre de $10\mu m$, ce qui reste inférieur au diamètre de $50\mu m$ de la bobine : la boîte sélectionnée au départ reste donc accessible. Toutefois le champ magnétique de l'impulsion doit diminuer un peu lorsque la boîte s'éloigne du centre de la spire.

1.4.2 Collection des photons utiles à la mesure

Les photons sont collectés à travers l'ouverture de $50\mu m$ de la micro-bobine ce qui diminue évidemment l'efficacité de collection. De plus, étant donné l'encombrement accru du système sous l'objectif de microscope par rapport au cas d'un simple montage de micro-PL, nous sommes contraints de travailler avec un objectif de plus grande distance de travail (distance de travail $3,7mm$, ouverture numérique $0,32$ et grossissement $\times 16$), ce qui amoindrit encore le nombre de

photons collectés. Pour des mesures sur des puits, cela ne nous a pas gêné mais pour des mesures sur boîtes uniques, il est probable que ce point sera crucial.

D'autre part, les pertes Joule dues aux impulsions dans la bobine induisent des dérives thermiques de l'ordre de quelques degrés Kelvin. Ces dérives étant génératrices de bruit dans nos mesures, il est très important de contrôler le plus précisément possible la température du cryostat afin d'améliorer le rapport signal sur bruit.

Lorsqu'on en vient à utiliser des hautes fréquences, de multiples problèmes de compatibilité électromagnétique (CEM) peuvent se poser, comme on l'a déjà précisé. En l'occurence, les rayonnements émis par la génération d'impulsions rapides dans notre montage électronique perturbent énormément le fonctionnement de l'APD (utilisée pour détecter temporellement les photons), ce qui rend impossible tout comptage fiable des photons. Un simple blindage de l'APD par une feuille d'aluminium reliée à la table optique suffit toutefois à régler le problème.

Enfin, pour réaliser une mesure de dynamique temporelle, il faut synchroniser l'APD sur la génération des impulsions dans la bobine. En soi, ce n'est pas particulièrement compliqué. Mais, ce qui diffère des expériences d'optique "standards", c'est le taux de répétition des impulsions (qqs $10kHz$ généralement), qui est très faible comparé au taux de répétition d'un laser ($\approx 80MHz$). Dans nos expériences de champ pulsé, le taux de répétition des impulsions peut éventuellement se trouver être inférieur au taux de comptage des photons et devenir ainsi le facteur limitant. C'est un élément qu'il faut garder en tête : contrairement aux expériences d'optique "standards", rien ne sert d'améliorer le taux de comptage si le taux de répétition reste petit (et inversement). Et même si pour les boîtes quantiques, on s'attend à voir largement chuter le taux de comptage des photons, il se peut que le taux de répétition soit aussi parfois un facteur limitant.

Chapitre 2

Application à l'étude de la dynamique de spin dans les puits quantiques

Sommaire

2.1 Principe de la mesure et calibration du champ pulsé 138
2.1.1 Principe de la mesure 138
2.1.2 Calibration du champ pulsé 142
2.2 Influence de la relaxation spin-réseau dans nos mesures 145
2.2.1 La relaxation spin-réseau 145
2.2.2 Quelle dynamique observons-nous ? 146
2.2.3 Insuffisance du spin-réseau pour expliquer les dynamiques observées 148
2.3 Influence de l'évolution "adiabatique" dans nos mesures 150
2.3.1 Différentes explications de l'évolution "adiabatique" des Mn 150
2.3.2 Les dynamiques observées peuvent-elles s'expliquer par une évolution "adiabatique" ? 153
2.3.3 Conclusion 154
2.4 Quelques indices sur l'origine de l'évolution "adiabatique" . . . 155
2.4.1 Etude sur un puits standard 155
2.4.2 Etude sur un puits contraint 159
2.4.3 Comparaison des deux études 159
2.5 Conclusion et perspectives 162
2.5.1 Conclusion 162
2.5.2 Perspectives 162

Maintenant que l'on dispose d'une source de champ magnétique pulsé qui puisse s'adapter à notre cadre et à nos conditions expérimentales, nous nous proposons de la mettre en application et de démontrer qu'elle nous permet effectivement de sonder les dynamiques de spin dans nos échantillons. Etant donné les difficultés supplémentaires, notamment en terme de collection de photons, que représente l'étude de boîtes par cette technique, nous avons choisi de commencer par l'étude de puits. On présentera donc dans un premier temps l'ensemble du processus de mesure et la manière de calibrer le champ pulsé. Dans les trois parties suivantes, on démontrera que l'on peut distinguer deux dynamiques différentes dans nos systèmes et on essaiera d'en déterminer les origines avant de conclure et de faire le point sur les perspectives.

2.1 Principe de la mesure et calibration du champ pulsé

On l'a dit, le champ magnétique pulsé doit nous permettre d'accéder aux dynamiques de spin des ions Mn, autrement dit à l'évolution dans le temps de l'orientation de ces Mn. Nous allons donc exposer dans un premier temps comment nous remontons à la variation temporelle de l'aimantation de ces Mn à partir de la mesure d'un signal optique. D'autre part, puisque cette variation d'aimantation est causée par l'impulsion de champ magnétique, il est important de connaître l'amplitude de ces impulsions magnétiques. Par conséquent, nous expliquerons dans un second temps, comment parvenir à déterminer le champ magnétique exact généré par les impulsions électriques dans la bobine.

2.1.1 Principe de la mesure

La manière de parvenir à extraire l'aimantation du système de Mn à partir d'un signal optique, se base évidemment sur l'effet Zeeman géant, comme dans l'ensemble de ce manuscrit. Toutefois, on cherche ici à accéder à l'évolution temporelle de cette aimantation. Pour cela, on utilise une APD synchronisée sur les impulsions électriques générées dans la bobine (cf. 1.4). Par conséquent, on n'a plus accès à l'ensemble du spectre de photoluminescence qui nous permettait de connaître directement l'aimantation des Mn à un champ magnétique donné en relevant le décalage énergétique de ce spectre par rapport à sa position énergétique en champ nul. L'APD nous permet uniquement de détecter la photoluminescence d'une seule longueur d'onde à la fois. Par contre, elle offre une résolution temporelle du signal. On obtient donc une variation dans le temps de l'intensité de luminescence à une longueur d'onde donnée, que l'on doit convertir en variation temporelle d'aimantation.

Le principe de la mesure proprement dite est illustré en figure 2.1. La mesure à l'APD est

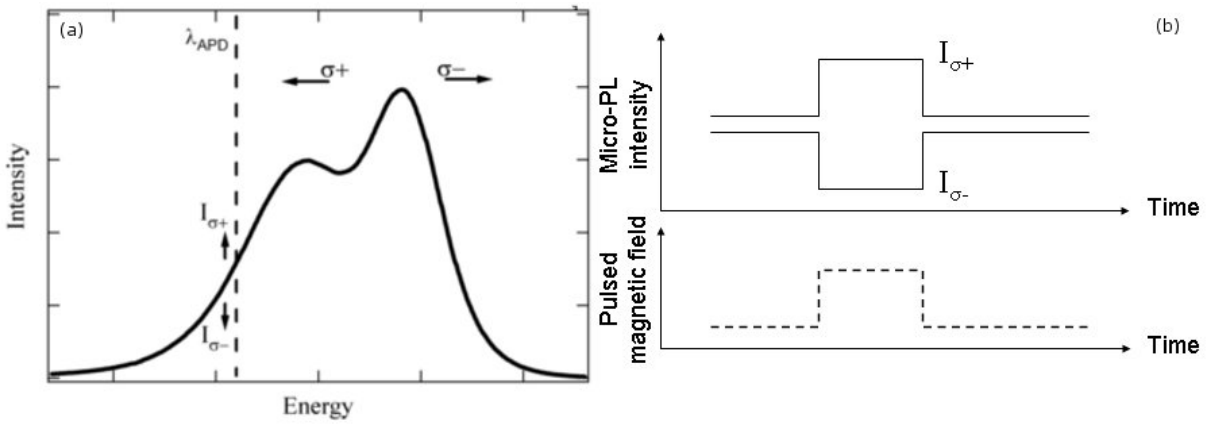

FIG. 2.1 – (a) Spectre typique de PL que l'on obtient à la CCD. Sous champ magnétique positif, ce spectre se décale à basse énergie (resp. haute énergie) en polarisation σ^+ (resp. σ^-). Le trait pointillé noir indique la longueur d'onde λ_{APD} à laquelle est effectuée la mesure à l'APD. (b) Variations de l'intensité de PL détectées à l'APD à λ_{APD} en polarisation σ^+ et σ^- pour une impulsion de champ positive.

faite à une longueur d'onde λ_{APD}. Si λ_{APD} se trouve dans le flan basse énergie du spectre de PL obtenu à la CCD, alors une impulsion de champ positive entraîne une augmentation (resp. une diminution) de l'intensité détectée en polarisation σ^+ (resp. σ^-) pendant la durée de l'impulsion. Ceci est directement relié au fait que l'ensemble du spectre de PL se décale à basse énergie (resp.

haute énergie) en polarisation σ^+ (resp. σ^-). Notons que les comportements de σ^+ et σ^- seraient inversés si l'on faisait la mesure à une longueur d'onde λ_{APD} qui se trouve dans le flan haute énergie du spectre de PL.

Il faut désormais parvenir à convertir ce signal en une information temporelle sur l'aimantation. Pour cela, il suffit de réaliser à la CCD un ensemble de spectres à différents champs magnétiques (cf. figure 2.2). Ici le champ magnétique considéré est le champ statique que l'on peut appliquer dans le cryostat à l'aide des bobines supraconductrices. On le notera désormais B_s tandis qu'on notera B_p l'amplitude du champ magnétique pulsé et B_{tot} le champ total qui désignera la somme des deux précédents. Les spectres ainsi réalisées à la CCD contiennent deux informations à la fois : d'une part, ils permettent de connaître l'aimantation des Mn pour un champ B_s donné en relevant le décalage Zeeman géant du spectre à B_s par rapport à sa position en champ nul ; d'autre part, ils permettent de déterminer l'intensité de la PL à λ_{APD} pour un même champ B_s. Autrement dit, cela permet d'établir une correspondance directe entre l'aimantation (ou l'orientation) des Mn et l'intensité de PL à λ_{APD}, indépendamment du champ magnétique appliqué. On peut ainsi traduire directement notre mesure d'intensité à l'APD en une information sur l'aimantation du système de Mn. De plus, on constate en figure 2.2, que sur la plage de champ accessible en champ pulsé, l'évolution du décalage énergétique du spectre et l'évolution de l'intensité de PL à λ_{APD} sont toutes les deux monotones en fonction du champ magnétique. Par conséquent, la correspondance aimantation/intensité est unique. Toutefois, le

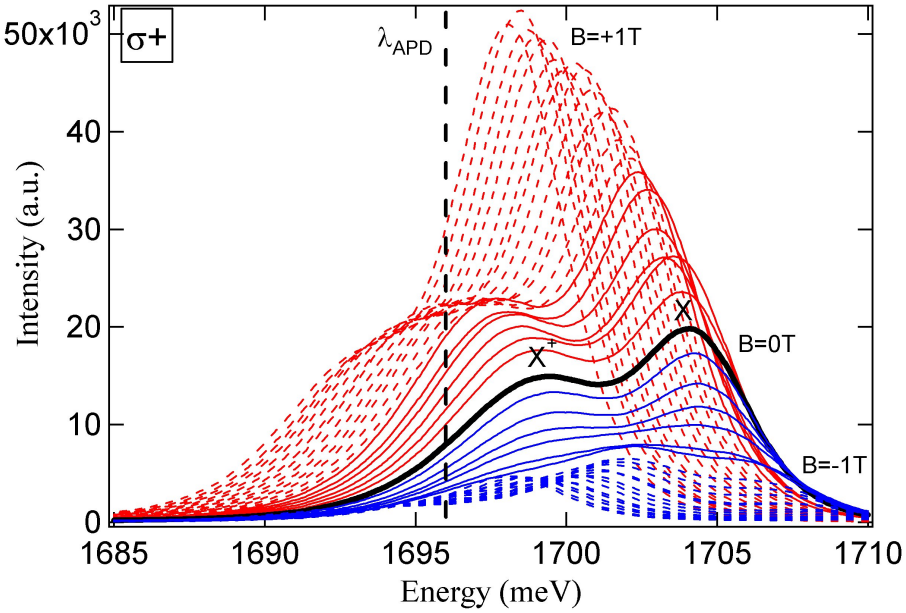

FIG. 2.2 – Spectres de PL de l'échantillon M952, réalisés à la CCD en polarisation σ^+, à $T = 6K$, sous excitation non résonante ($532nm$) d'une puissance de $150\mu W$, pour un champ magnétique statique allant de $B_s = -1T$ à $B_s = +1T$ tous les $0,05T$. On a repéré les deux complexes excitoniques exciton et exciton chargé positivement par X et X^+ respectivement. Le champ nul est en noir, les champs positifs en rouges et les champs négatifs en bleu. En traits pleins sont représentés les spectres de $-0,3T$ à $+0,3T$ qui correspondent grossomodo à la zone de champ accessible en champ pulsé (qui sera déterminée plus loin). Le trait pointillé vertical noir indique la longueur d'onde λ_{APD} à laquelle est effectuée la mesure à l'APD.

rapport signal sur bruit que l'on obtient lors de la mesure à l'APD n'est pas toujours très bon

et il est parfois délicat d'en extraire une information d'aimantation. On peut alors améliorer la méthode en mesurant non pas seulement l'intensité de la PL mais le dichroïsme circulaire magnétique, aussi appelé MCD :

$$MCD = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} \tag{2.1}$$

Pour obtenir le MCD, il suffit donc de mesurer à l'APD la variation d'intensité de PL dans les deux polarisations σ^+ et σ^- au lieu d'une seule. On améliore ainsi le rapport signal sur bruit tout en conservant une correspondance unique entre l'aimantation des Mn et le MCD. Dans cette correspondance, l'aimantation pour chaque champ magnétique B_s est toujours extraite des spectres de la figure 2.2 mais le MCD nécessite cette fois-ci de disposer des spectres dans les deux polarisations σ^+ et σ^-. L'application de l'équation 2.1 permet alors d'extraire de ces spectres le MCD en fonction de la longueur d'onde à chaque champ B_s auquel on a déterminé l'aimantation (cf. figure 2.3). Au final, établir une correspondance aimantation/MCD est exactement équivalent

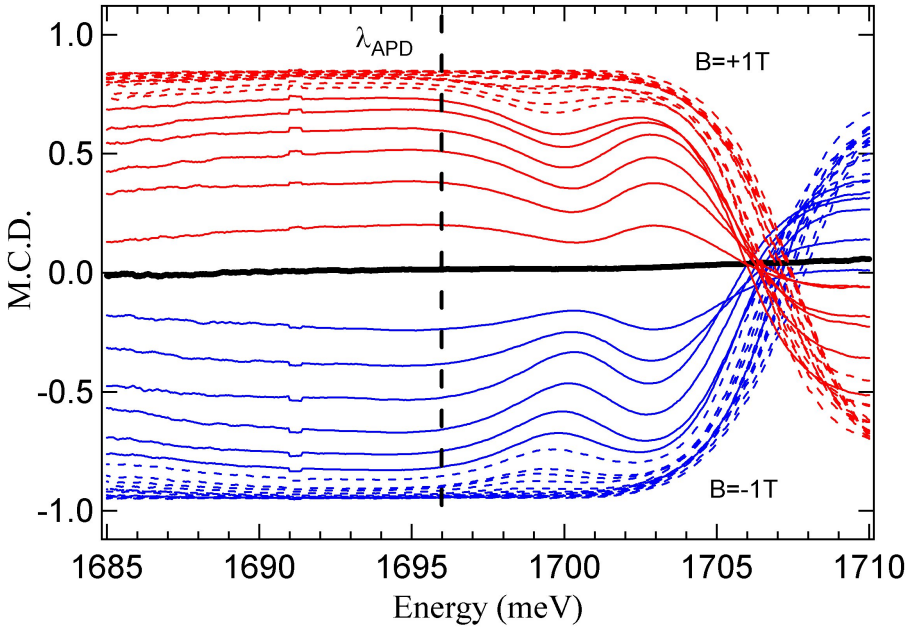

FIG. 2.3 – Signal de MCD extrait des spectres de PL obtenus en polarisation σ^+ (cf.figure 2.2) et σ^- (non présentés ici) dans les conditions de la figure 2.2. Le champ nul est en noir, les champs positifs en rouges et les champs négatifs en bleu. En traits pleins sont représentés les spectres de $-0,3T$ à $+0,3T$ qui correspondent grossomodo à la zone de champ accessible en champ pulsé (qui sera déterminée plus loin). Le trait pointillé vertical noir indique la longueur d'onde λ_{APD} à laquelle est effectuée la mesure à l'APD.

à établir une correspondance aimantation/intensité sauf que l'on améliore le rapport signal sur bruit.

Toutes nos mesures sont effectuées à la même longueur d'onde λ_{APD}. On peut donc se contenter d'établir la correspondance aimantation/MCD à cette longueur d'onde-là. Le résultat est présenté en figure 2.4 et correspond à la démarche présentée dans le paragraphe précédent. Cette figure nous permet alors de transformer le MCD, qui est la grandeur expérimentale que nous mesurons, en aimantation qui est la grandeur utile que nous cherchons à obtenir car c'est elle qui traduit la physique de la dynamique des Mn.

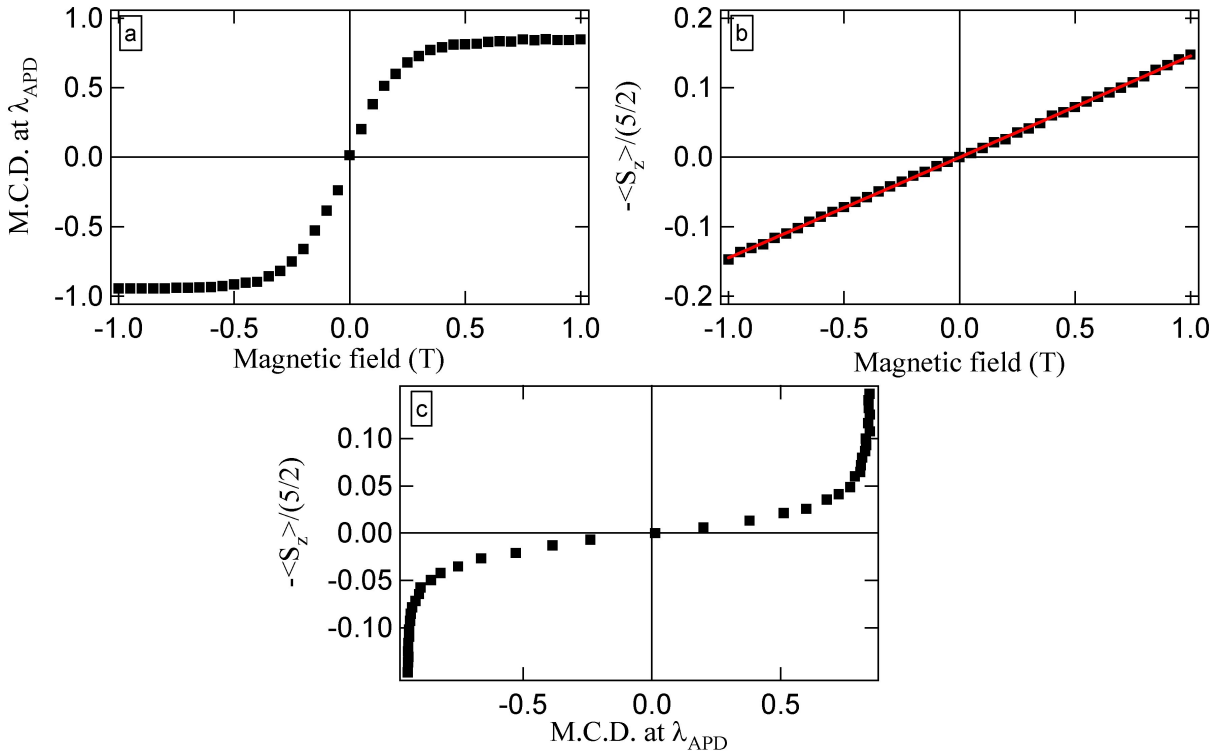

FIG. 2.4 – (a) MCD en fonction du champ magnétique à $\lambda_{APD} = 730,9nm$ extrait de la figure 2.3. (b) Orientation des Mn $-\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ (obtenue par normalisation de l'aimantation comme décrit en partie II) en fonction du champ magnétique. Cette courbe est déduite de la figure 2.2. La température des Mn qui peut être extraite de cette courbe est $T_{Mn} = 10K$. (c) $-\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ en fonction du MCD à $\lambda_{APD} = 730,9nm$ pour l'échantillon M952. Cette correspondance est extraite de (a) et (b).

Toutefois, pour que cette correspondance aimantation/MCD s'avère correcte, il faut que la variation d'intensité que l'on mesure pour chacune des deux polarisations et donc la variation du MCD, soit directement et exclusivement causée par le décalage énergétique dû à l'effet Zeeman géant. Par exemple, il ne faut pas que la variation d'intensité mesurée soit due à une modification du rapport d'intensité entre l'exciton X et l'exciton chargé X^+. De manière générale, il faut donc que le spectre conserve la même forme en l'absence ou en présence de l'impulsion de champ. Pour s'en assurer, on a mesuré pour une même impulsion de courant, la variation du MCD due à l'impulsion, à différentes longueurs d'onde λ_{APD}. On s'attend à ce qu'avant le début de l'impulsion, le MCD soit nul quelle que soit la longueur d'onde de mesure λ_{APD} ; et que pendant la durée de l'impulsion, le MCD soit positif et égal à sa valeur à l'équilibre avec le champ créé par l'impulsion. Bien sûr cette valeur à l'équilibre peut dépendre de la longueur d'onde de mesure, comme on l'a vu en 2.3. On cherche donc à ce que les valeurs du MCD pendant l'impulsion pour les différentes longueurs d'onde λ_{APD}, se situent toutes sur une courbe unique de calibration de la figure 2.3 puisque l'on applique le même champ pulsé (même impulsion) pour chaque mesure. C'est bien ce que l'on observe sur la figure 2.5. De plus, l'impulsion utilisée pour ces mesures a été générée par la carte électronique 2 avec une tension $V = 55V$, ce qui correspond à un champ pulsé $B_p = 0,15T$ (comme on le verra en 2.1.2). Or, les points se superposent tous à la courbe de calibration du MCD faite à la CCD sous un champ statique $B_s = 0,15T$, ce qui démontre

que la technique expérimentale employée est tout à fait valide.

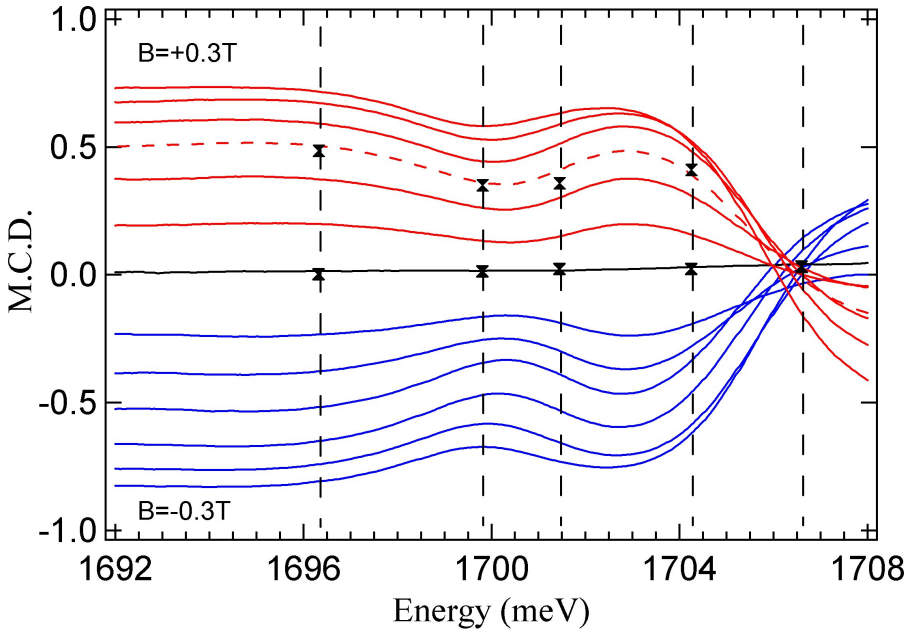

FIG. 2.5 – On a reporté les signaux de MCD en fonction de l'énergie de la PL de $-0,3T$ à $+0,3T$, déjà présentés en figure 2.3 (traits noir, rouges et bleus). Les traits pointillés verticaux noirs indiquent les longueurs d'onde λ_{APD} auxquelles ont été effectuées les mesures à l'APD sous champ pulsé : les valeurs du MCD avant et pendant l'impulsion pour chacune de ces longueurs d'onde sont indiquées par des doubles-triangles noirs.

Enfin, pour que cette méthode de mesure soit fiable, il est nécessaire de prendre quelques précautions expérimentales. Pour accéder au signal de MCD il faut mesurer les deux polarisations σ^+ et σ^-. Il est donc important de mesurer ces deux polarisations dans des conditions expérimentales identiques. Or, notre montage impose que nous les mesurions l'une après l'autre (nous ne disposons que d'une seule APD) et l'intégration du signal pour chacune des polarisations est de l'ordre de $30min$. Les conditions d'expérience doivent donc être stables dans le temps, en particulier la température qui s'est révélée être un paramètre très critique. Au final, en prêtant une attention particulière au maintien des conditions expérimentales dans le temps, on parvient à effectuer des mesures propres grâce à cette méthode. Une amélioration pourrait être apportée : elle consisterait à enregistrer alternativement et automatiquement les deux polarisations sur une durée très courte (assurant ainsi qu'elles l'aient été dans les mêmes conditions) puis à répéter cette séquence, toujours automatiquement (assurant ainsi une intégration totale sur une plage de temps suffisamment longue), tout en affichant le signal de MCD en temps réel (en guise de contrôle). Mais une telle amélioration, quoique très intéressante, demande un certain travail de développement expérimental et n'a pas encore été mise en place.

2.1.2 Calibration du champ pulsé

Nous sommes donc certes capables de déterminer l'évolution temporelle de l'aimantation des Mn mais ceci n'a pas de sens tant que nous ne sommes pas capables de savoir sous quelle amplitude de champ magnétique a lieu cette évolution. Ainsi, il est tout aussi capital de déterminer avec précision le champ magnétique B_p que nous appliquons avec la micro-bobine.

L'échantillon M952 va nous permettre de calibrer le champ magnétique B_p de la bobine. Sa concentration en Mn $x_{Mn} = 4,4\%$ est suffisante pour que les Mn présentent une dynamique plus rapide que la dynamique intrinsèque liée à l'impulsion de champ magnétique. Dans cet échantillon, l'aimantation du système de Mn est donc à tout instant à l'équilibre thermodynamique avec le champ extérieur total qui est a priori la somme du champ statique B_s et du champ pulsé B_p : $B_{tot} = B_s + B_p$. Par conséquent, la mesure de l'aimantation, que l'on effectue via une mesure du MCD, nous informe directement sur la valeur du champ B_{tot}[18]. Il suffit alors de calibrer le MCD pour chaque champ statique B_s (ce qui a déjà été fait en figure 2.4(a) et correspond à $B_{tot} = B_s$), puis de mesurer le MCD obtenu sous le champ B_p (ce qui correspond à $B_{tot} = B_p$, qui est inconnu) de la micro-bobine et de le comparer à la calibration en champ statique. On détermine ainsi simplement la valeur du champ B_p, et on peut répéter l'opération pour différentes valeurs de la tension V qui détermine l'amplitude A_p de l'impulsion de courant circulant dans la bobine et générant donc le champ B_p. Le résultat de cette calibration du champ pulsé B_p est présenté en figure 2.6. La calibration a été réalisée pour les deux cartes électroniques avec lesquelles

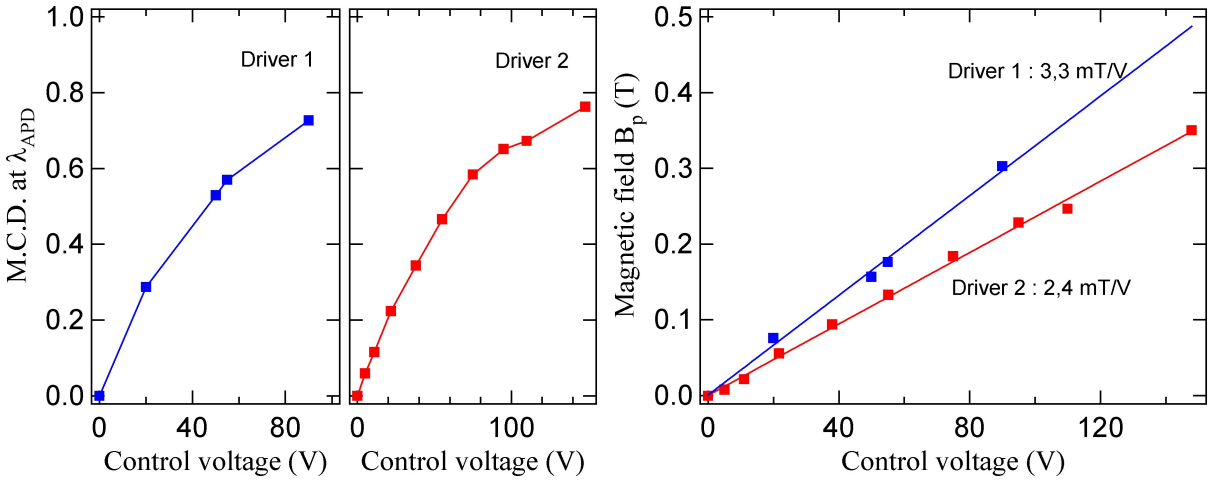

FIG. 2.6 – (a) MCD en fonction de la tension de contrôle V à $\lambda_{APD} = 730,9nm$ pour la carte électronique 1. Les mesures sont faites à $T = 6K$, sous excitation non résonante ($532nm$) d'une puissance de $150\mu W$. (b) MCD en fonction de la tension de contrôle V à $\lambda_{APD} = 730,9nm$ pour la carte électronique 2 et dans les mêmes conditions expérimentales que (a). (c) Champ magnétique pulsé B_p en fonction de la tension de contrôle V pour les cartes électroniques 1 (carrés bleus) et 2 (carrés rouges). Un ajustement linéaire indique que la calibration est d'environ $3,3mT/V$ pour la carte 1 (trait bleu) et d'environ $2,4mT/V$ pour la carte 2 (trait rouge).

nous avons travaillé. On constate au final que le champ pulsé maximal que l'on est capable de générer est $B_p = 0,35T$. C'est donc un peu inférieur aux $0,5T$ auxquels on pouvait s'attendre d'après les calibrations de la micro-bobine seule (cf. 1). Ceci peut s'expliquer par le fait que lors des multiples essais réalisés pour mettre en place ce montage, la bobine a été légèrement endommagée et ne présente plus une surface parfaitement plate. Ceci a pour conséquence principale d'éloigner un peu plus l'échantillon du centre de la bobine (ne serait-ce que de quelques microns), faisant chuter ainsi le champ magnétique vu par l'échantillon (cf. figure 1.4). Toutefois, la valeur maximale du champ pulsé $B_p = 0,35T$ est tout à fait cohérente avec les valeurs attendues et

[18]Ce n'est pas le cas dans tous les échantillons. A priori, l'aimantation (ou le MCD) ne prend pas sa valeur d'équilibre à tout instant. On le verra. Par contre, le MCD permet dans tous les cas de déterminer l'aimantation suivant la méthode décrite précédemment.

démontre surtout que l'on est capable de générer des champs pulsés "intenses" dans le cadre expérimental imposé par l'étude des nanostructures semi-conductrices.

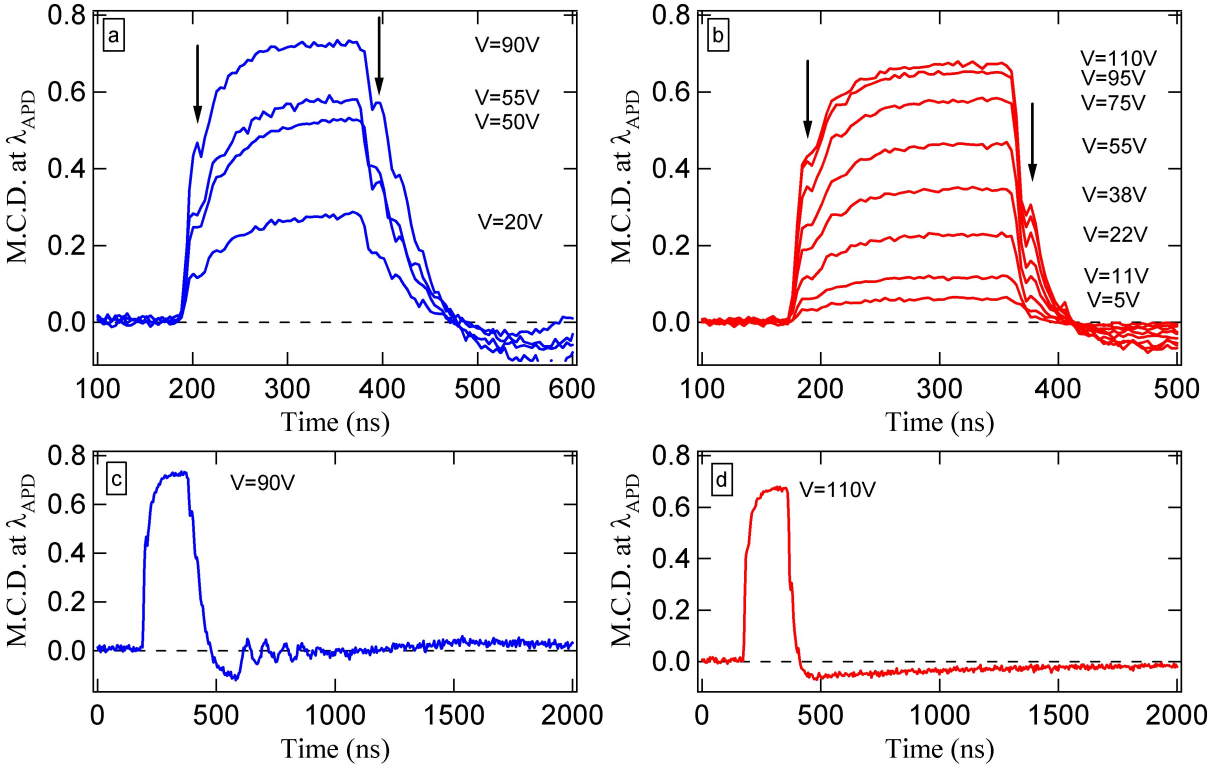

FIG. 2.7 – (a) MCD en fonction du temps pour des impulsions de $200ns$ à différentes tensions V pour la carte électronique 1, dans les conditions de la figure 2.6. Les flèches noires indiquent des rebonds électroniques, justifiant que ces courbes traduisent fidèlement le profil des impulsions de champ. (b) Idem pour la carte 2. (c) Profil de l'impulsion de champ aux temps longs pour la carte 1. (d) Idem pour la carte 2.

L'échantillon M952 nous permet aussi de calibrer, outre l'amplitude des impulsions, le profil des impulsions de champ. En effet, le système de Mn est à l'équilibre thermodynamique avec le champ total à tout instant, pas seulement au maximum de l'impulsion. Ceci peut se voir en figure 2.7 où la dynamique des Mn est suffisamment rapide pour mettre à jour les rebonds de l'impulsion électrique générant l'impulsion de champ. Dans la suite, on disposera donc du profil des impulsions délivrées par la bobine que l'on pourra comparer avec profit à la réponse en aimantation des différents échantillons. Ce profil nous permet également de déterminer les temps de montée et descente des impulsions. Puisque les montées et descentes ne sont pas exponentielles, on extrait les temps de réponse à 95% que l'on divise ensuite par 3 afin d'avoir un ordre de grandeur des temps caractéristiques [19]. Ceci donne des temps de montée et de descente de $27ns$ et $32ns$ respectivement pour la carte 1 ; et de $17ns$ et $24ns$ respectivement pour la carte 2, plus rapide. Cependant, puisque les impulsions ont des profils de montée et descente plus raides que des exponentielles, on peut considérer que les temps donnés ici sont des surestimations des temps caractéristiques réels. Enfin, on peut noter que le champ devient légèrement négatif après une impulsion de champ positive. Ceci est vrai pour chacune des deux cartes électroniques.

[19] Si les montées et descentes étaient exponentielles, le temps de réponse à 95% correspondrait en effet au triple du temps caractéristique.

En parvenant à calibrer d'une part l'aimantation en fonction du MCD et d'autre part le champ pulsé en fonction de la tension de contrôle, on démontre la possibilité d'étudier avec cette expérience la dynamique sous champ (ou en champ nul) des spins de Mn, qui nécessite de connaître à tout instant l'aimantation en fonction du champ appliqué.

2.2 Influence de la relaxation spin-réseau dans nos mesures

Par le passé, les mécanismes de relaxation des Mn dans les semi-conducteurs magnétiques dilués ont été largement étudiés. Leurs dépendances en fonction de la concentration en Mn, du champ magnétique et de la température ont ainsi été identifiées et dans l'ensemble correctement expliquées [53, 78, 72, 79]. Toutefois, les études ont presque toujours été faites pour des échantillons relativement concentrés en Mn et sous champ magnétique. Ainsi, deux questions majeures ne sont pas pleinement élucidées, bien qu'elles commencent à trouver des réponses. Premièrement, quel est le temps de relaxation des spins de Mn dans la limite des très faibles concentrations et par quoi est-il contrôlé ? Et deuxièmement, que se passe-t-il en champ nul ?

2.2.1 La relaxation spin-réseau

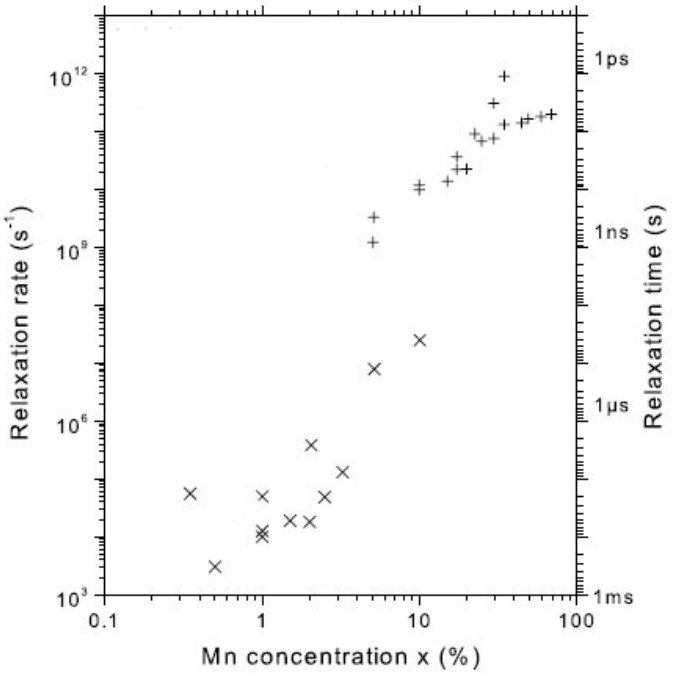

FIG. 2.8 – Taux de relaxation spin-réseau pour une température comprise entre $T = 1,5K$ et $T = 4,7K$ (croix noires) et taux de relaxation spin-spin à une température $T = 5K$ (plus noirs) dans $Cd_{1-x}Mn_xTe$. Adapté de [53].

Il est bien connu que le temps T_1 de relaxation spin-réseau diminue lorsque la concentration en Mn augmente (cf. figure 2.8). Schématiquement, ceci s'explique par le fait que pour des concentrations élevées en Mn, la relaxation s'opère principalement via les mécanismes de diffusion de spin vers les clusters de Mn et de relaxation spin-réseau au niveau de ces clusters, tous les deux rapides [100]. Bien évidemment, ces mécanismes sont de moins en moins efficaces au fur et à

mesure que l'on diminue la concentration en Mn. Ainsi, il est attendu que le temps de relaxation spin-réseau soit très long dans la limite d'un spin de Mn isolé. En effet, la relaxation de spin du Mn se fait alors par émission ou absorption d'un phonon du réseau via l'interaction spin-orbite. Or, l'état fondamental du Mn est un état de moment orbital nul, et c'est le champ cristallin qui en couplant légèrement cet état fondamental aux états excités de moments orbitaux non nuls, autorise la relaxation du spin [60, 61]. La manipulation d'un spin de Mn unique localisé au sein d'une boîte quantique a ainsi permis de déterminer que le temps de relaxation d'un spin individuel, pour des concentrations en Mn très faibles, est supérieur à la microseconde (en champ nul ou très faible), sans pour autant déterminer sa valeur exacte [9].

Si l'on s'en tient à ce raisonnement, on s'attend donc à observer, dans nos échantillons peu concentrés en Mn, une relaxation des Mn relativement lente. Qu'en est-il réellement ?

2.2.2 Quelle dynamique observons-nous ?

Pour cela, commençons par regarder la dynamique des Mn dans l'échantillon M1384. Cet échantillon est un puits quantique de CdMnTe dopé p, de concentration en Mn $x_{Mn} = 0,6\%$ et de largeur $L_z = 10nm$. On présente en figure 2.9 la calibration permettant de convertir le signal de MCD que l'on mesure en aimantation. Bien que l'on présente presque toujours les courbes de MCD (et non pas les courbes d'aimantation), cela démontre que l'on est capable de remonter à la grandeur intéressante si besoin, à savoir l'aimantation.

En figure 2.10, on présente deux séries de mesures où l'on a enregistré le signal de MCD pour différentes amplitudes du champ pulsé B_p. La première série est réalisée avec des impulsions d'une durée de $200ns$ et la seconde avec des impulsions de $2\mu s$. La première chose que l'on constate est que l'aimantation n'est pas en permanence en équilibre thermodynamique avec le champ total B_{tot} (ici égal à B_p), contrairement à ce qui a été observé sur l'échantillon M952. L'équilibre n'est pas atteint aux temps courts (i.e. $200ns$), mais l'est aux temps longs (i.e. $2\mu s$). Ceci peut se voir sur la figure 2.10(c) où l'on compare la valeur maximale du MCD obtenue sous champ pulsé à la valeur du MCD que l'on obtiendrait à l'équilibre thermodynamique et déterminée par la calibration préalable à la CCD (cf. figure 2.9(c)). Une précision s'impose toutefois : la calibration effectuée à la CCD est faite en l'absence d'impulsions de champ. Dans ces conditions, une température des Mn $T_{Mn} = 15K$ est déterminée. En revanche, lorsqu'on applique les impulsions de champ, la puissance dissipée dans la bobine résulte en une élévation de la température des Mn qui atteint $T_{Mn} = 20K$. Ceci explique que les valeurs maximales du MCD pour les impulsions longues de $2\mu s$ soient plus faibles que les valeurs attendues d'après la courbe de calibration obtenue à la CCD. De plus, ces valeurs s'alignent sur la courbe correspondant à une température $T_{Mn} = 20K$, traduisant ainsi le fait que le MCD a atteint sa valeur à l'équilibre après $2\mu s$. En comparaison, les valeurs maximales du MCD pour les impulsions courtes de $200ns$ sont nettement plus basses, démontrant ainsi que le système de Mn n'a pas atteint son équilibre thermodynamique après $200ns$.

La question que l'on doit se poser désormais est : ces observations peuvent-elles s'expliquer par un mécanisme de relaxation spin-réseau de temps caractéristique T_1 ? A première vue, cela paraît plausible. En effet, on peut estimer très grossièrement que le temps de retour à l'équilibre dans nos mesures est de l'ordre de $1\mu s$. Or d'après la figure 2.8, le temps de relaxation T_1 pour des concentrations $x_{Mn} = 0,6\%$ est de l'ordre de $100\mu s$. Mais les mesures de cette figure ont été faites pour $T < 5K$ tandis que nous avons travaillé à $T > 10K$. En effet, le chauffage lié à la génération d'impulsions dans la bobine chauffe fortement le bain d'hélium au voisinage de l'échantillon et donc le réseau. La différence de température entre les mesures de la figure 2.8 et nos mesures peut alors suffire à expliquer la différence entre les deux temps [78]. Voyons donc si

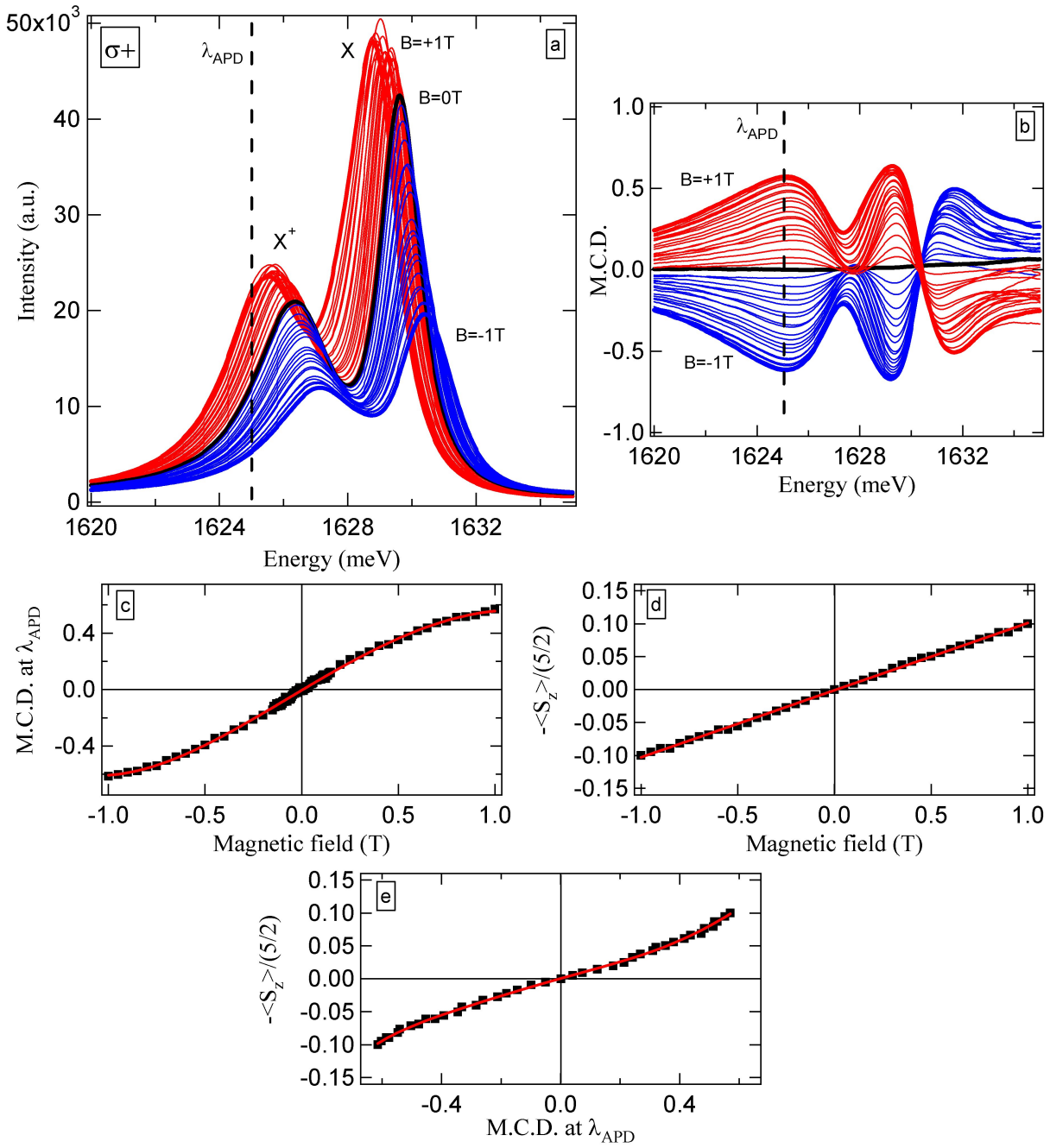

FIG. 2.9 – (a) Spectres de PL de l'échantillon M1384, réalisés à la CCD en polarisation σ^+, à $T = 6K$, sous excitation non résonante ($532nm$) d'une puissance de $100\mu W$, pour un champ magnétique statique allant de $B_s = -1T$ à $B_s = +1T$ tous les $0,05T$. Les mesures à l'APD sont effectuées à $\lambda_{APD} = 763nm$. (b) Signal de MCD extrait des spectres de PL obtenus en polarisation σ^+ (cf. (a)) et σ^- (non présentés ici) dans les conditions de (a). (c) MCD en fonction du champ magnétique à λ_{APD} extrait de (b) (carrés noirs). (d) Orientation des Mn $-\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ en fonction du champ magnétique déduite de (a) (carrés noirs). La température des Mn qui peut être extraite de cette courbe est $T_{Mn} = 15K$. (e) Correspondance $-\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ en fonction du MCD à λ_{APD} extraite de (c) et (d) (carrés noirs). En (c), (d) et (e) on a ajusté les points expérimentaux par des polynômes de degré allant jusqu'à 6 afin de pouvoir effectuer les conversions dans la pratique.

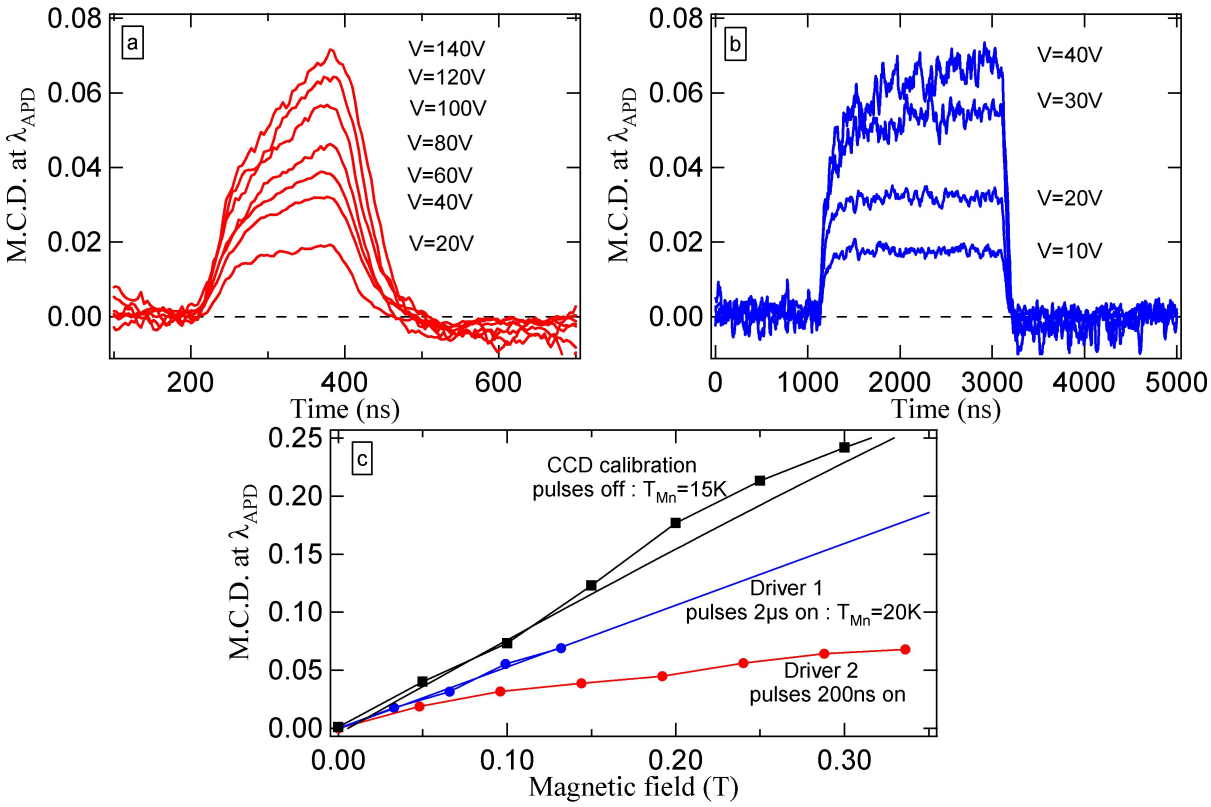

FIG. 2.10 – (a) Signal de MCD pour différentes tensions de contrôle V pour des impulsions de $200ns$, générées avec la carte 2 sous champ $B_s = 0$ et dans les conditions de la figure 2.9. (b) Signal de MCD pour différentes tensions de contrôle V pour des impulsions de $2\mu s$, générées avec la carte 1 sous champ $B_s = 0$ et dans les conditions de la figure 2.9. (c) Signal de MCD maximal en fonction de l'amplitude B_p des impulsions pour les courbes de (a) (ronds rouges) et (b) (ronds bleus) ; et comparaison avec la calibration obtenue à la CCD (carrés et trait noirs).

cette hypothèse d'une relaxation spin-réseau résiste à une analyse plus poussée.

2.2.3 Insuffisance du spin-réseau pour expliquer les dynamiques observées

Pour cela, analysons plus en détail le retour à l'équilibre de l'aimantation lors de l'application d'une impulsion de champ. Sur la figure 2.10(a), on voit très clairement que non seulement ce retour à l'équilibre n'est pas exponentiel mais qu'en plus il met en évidence au moins deux temps caractéristiques différents lors de la montée, dont l'un semble beaucoup plus court que $1\mu s$. Afin de mettre finement en exergue ces deux dynamiques, on présente en figure 2.11, le profil temporel de la réponse en aimantation du système, superposé au profil temporel de l'impulsion de champ magnétique. Le profil de champ magnétique a été obtenu au préalable grâce à l'échantillon M952 (cf. 2.1) puis son amplitude a été normalisée en intensité de MCD si bien que ce profil décrit la valeur de MCD que devrait prendre le système de Mn à tout instant s'il était en équilibre thermodynamique avec B_{tot}. La mesure sur l'échantillon M1384 est ici réalisée sous des conditions expérimentales légèrement différentes de celles de la figure 2.10 afin de mieux distinguer les deux dynamiques en présence. En particulier, on les distingue parfaitement pendant la descente de l'impulsion. La première partie de cette descente, sous champ B_{tot} plutôt faible, se fait en effet

très rapidement puisque le signal de MCD suit le champ appliqué. Cette dynamique semble donc limitée par le temps de descente de l'impulsion, d'environ $20ns$ on le rappelle. En revanche la fin de la descente et le retour à l'équilibre, sous champ B_{tot} plus fort, se font en un temps beaucoup plus long. Un ajustement exponentiel (non présenté ici) donne un temps de retour à l'équilibre d'environ $500ns$, donc cohérent avec les temps de relaxation spin-réseau.

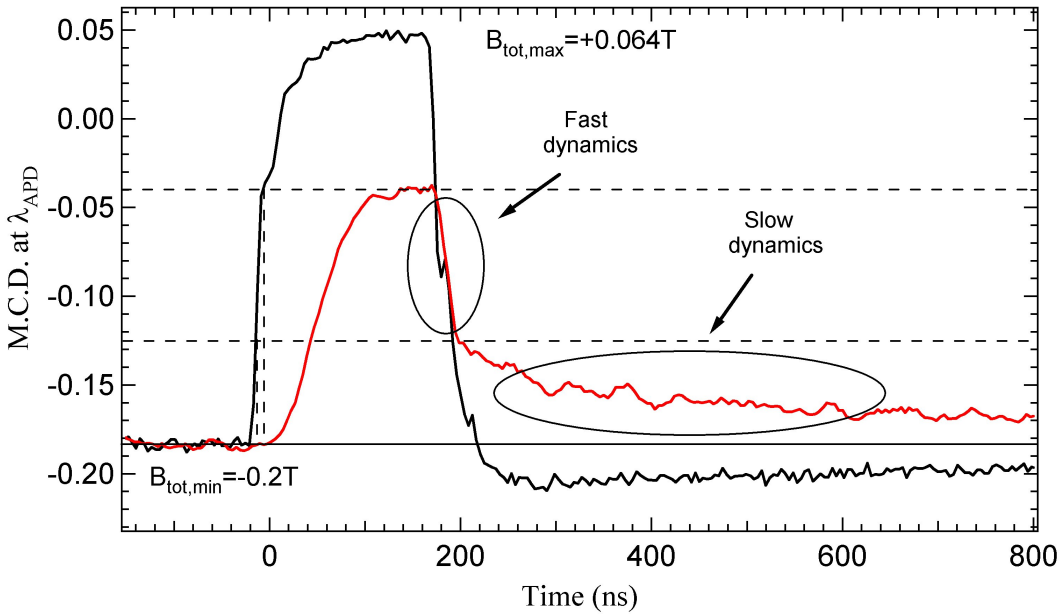

FIG. 2.11 – Signal de MCD de l'échantillon M1384 dans les mêmes conditions que la figure 2.9 mais à $B_s = -0.2T$ et pour des impulsions d'amplitude $B_p = 0.264T$ ($V = 110V$), de durée $200ns$ et de taux de répétition $51,6kHz$, générées avec la carte 2 (trait rouge). Profil temporel de l'impulsion de champ magnétique normalisée en intensité de MCD (trait noir). Le trait noir horizontal fin indique simplement le niveau où le champ pulsé est nul.

On peut alors se demander si un tel comportement peut s'expliquer par la prise en compte de la dépendance en champ magnétique du temps de relaxation spin-réseau T_1. On sait en effet qu'une telle dépendance existe même si elle est mal connue dans la limite des champs très faibles. Mais, sans même entrer dans ce genre de considérations, on peut dire ici avec certitude que cette hypothèse ne tient pas. On vient de voir que lors de la première phase de la descente de l'impulsion, on observe une dynamique très rapide du système de Mn (cf. figure 2.11). Si l'on suppose que cette dynamique est due à un mécanisme de relaxation spin-réseau, on s'attend alors à observer la même dynamique rapide lors de la montée, tout du moins dans la plage de champ magnétique identique (délimitée par les deux traits noirs pointillés horizontaux sur la figure). Or, ce n'est absolument pas le cas puisque le signal de MCD enregistré aux instants où le champ se trouve dans cette plage, est quasiment constant (cf. zone entre les deux traits noirs pointillés verticaux sur la figure).

On peut donc conclure sans ambiguïté que nos mesures dans des échantillons dilués en Mn, si elles font sans doute intervenir le temps de relaxation spin-réseau, ne peuvent pas se comprendre uniquement par des mécanismes de relaxation spin-réseau, quant bien même dépendant du champ magnétique. Des effets de dynamiques rapides intervenant a priori principalement au voisinage du champ total nul, restent en effet inexplicables par de tels mécanismes.

2.3 Influence de l'évolution "adiabatique" dans nos mesures

Le fait que la dynamique des spins de Mn dans des échantillons peu concentrés devienne très rapide en champ nul (ou au voisinage) a déjà été observé par le passé et attribué à des effets d'interaction entre les spins de Mn. Toutefois, des études très récentes semblent au contraire attribuer cette dynamique à l'interaction hyperfine avec le noyau du Mn et les contraintes. Autrement dit, ces dernières études tendent à démontrer que cette dynamique rapide est intrinsèque à un spin isolé et ne dépend pas des interactions entre Mn. Essayons de comprendre un peu mieux ces deux approches, visiblement antinomiques, afin de savoir si nos mesures s'accordent mieux avec l'une ou avec l'autre.

2.3.1 Différentes explications de l'évolution "adiabatique" des Mn

Avant de présenter ces deux approches, précisons que dans le cas le plus général, on peut envisager de décrire l'état des Mn par l'équation suivante :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}\left[H, \rho\right] - \frac{1}{\tau}\left(\rho - \rho_{eq}(T)\right) \tag{2.2}$$

avec

$$H = H_{spin} + g_{Mn}\mu_B B(t) S_z \tag{2.3}$$

Dans cette équation, ρ représente la matrice densité du système de Mn. Ainsi, le premier terme dans le membre de droite décrit l'évolution du système sous l'effet de l'hamiltonien H, dans lequel H_{spin} contient toutes les interactions du système que l'on est capable de décrire sous forme d'un hamiltonien, et $g_{Mn}\mu_B B(t) S_z$ décrit l'effet de l'impulsion de champ que l'on applique. Quant au second terme, il décrit le retour à l'équilibre du système vers son état d'équilibre thermodynamique décrit par $\rho_{eq}(T)$. Ce retour à l'équilibre se fait de manière exponentielle en un temps caractéristique τ. On peut alors raffiner cette équation en introduisant différents temps caractéristiques afin de distinguer notamment, la relaxation longitudinale décrite par T_1, de la relaxation transverse décrite par T_2. On peut aussi introduire des dépendances de ces temps, par exemple en fonction de B. On peut voir cette équation comme une boîte noire capable de décrire n'importe quel système. Si l'on connaît le détail des interactions de ce système, on aura plutôt tendance à les décrire sous la forme d'un hamiltonien et on pourra connaître l'évolution précise du système. Inversement, si on ne connaît pas exactement certains mécanismes d'interactions, on choisira plutôt de les décrire par des temps caractéristiques. En quelque sorte, la distinction entre les deux termes de l'équation est donc artificielle puisqu'elle dépend de notre état de connaissance du système.

Approche où les Mn interagissent entre eux

Revenons maintenant aux observations expérimentales d'effets de dynamiques rapides au voisinage du champ nul. Dans le premier cas, la dynamique rapide a été observée dans du CdMnTe volumique à des concentrations comprises entre 2% et $0,5\%$ [78].

Elle est attribuée à l'évolution adiabatique, au sens de la thermodynamique, des Mn. Une telle évolution correspond à une modification de l'aimantation des Mn sous la seule influence du champ extérieur, sans échange d'énergie avec le réseau[20].

[20] Dans toute la suite, lorsqu'on parlera d'évolution adiabatique des Mn, au sens thermodynamique ou au sens mécanique quantique (voir plus loin), on évitera d'utiliser le terme de "relaxation" pour désigner la modification de l'aimantation des Mn sous l'effet d'une telle évolution. En effet, le terme "relaxation" est d'après nous trop connoté à une idée d'échange d'énergie nécessaire pour assurer la modification de l'aimantation.

Expliquons-en le principe en quelques mots, par ailleurs bien décrit en [53]. A des échelles de temps $\tau_{ss} < t < T_1$, le système de Mn ne peut pas échanger d'énergie avec le réseau ($t < T_1$) et ne peut donc pas relaxer de la manière habituelle. Par contre, à ces échelles de temps, les différents spins de Mn ont le temps de thermaliser entre eux ($t > \tau_{ss}$) et on peut définir une température T_{Mn}, ou de manière équivalente une orientation (ou une aimantation) moyenne $\langle S_z \rangle$; et il se trouve que la température T_{Mn} ou l'orientation $\langle S_z \rangle$ peuvent être modifiées sous l'effet de l'interaction spin-spin (on rappelle que ceci n'est possible que pour des interactions spin-spin anisotropes puisque les interactions spin-spin isotropes, de type Heisenberg conservent le spin total). Au final, il est donc possible d'obtenir une modification de l'aimantation des Mn sans échange d'énergie avec le réseau : le fait que l'énergie interne du système de spins de Mn change doit alors être compris comme la conséquence du travail effectué par le champ magnétique extérieur, modifié au cours de l'expérience.

On retiendra que la modification de l'aimantation s'explique dans ce premier cas par l'interaction entre les différents Mn.

Approche où les Mn sont isolés les uns des autres

Dans le deuxième cas, la dynamique rapide des Mn en champ nul a été vue dans des puits de CdMnTe de concentrations en Mn allant de $1,5\%$ à $0,2\%$ [98].

Dans ce cas, la dynamique des Mn est expliquée par l'évolution hamiltonienne de ces Mn sous l'effet, toujours, du champ magnétique. Cela signifie que la dynamique est décrite par la résolution de l'équation de Schrödinger de la matrice densité ρ du système. Bien entendu, cela nécessite une détermination précise du hamiltonien du système.

Dans ces études, ce dernier fait principalement intervenir l'interaction hyperfine entre le spin du Mn et le spin de son noyau, le champ cristallin et les contraintes. Autrement dit, il ne prend pas en compte l'interaction d'un Mn avec les autres Mn. Cette évolution peut se comprendre qualitativement comme une succession de processus Landau-Zener. Un processus Landau-Zener est le fait que lorsque l'on balaye le champ magnétique d'un côté à l'autre d'un anti-croisement entre deux états quantiques $|1\rangle$ et $|2\rangle$, en partant d'un système initial dans l'état $|1\rangle$, il existe une probabilité non nulle pour le système de se trouver au final dans l'état $|1\rangle$ (transition adiabatique) ou dans l'état $|2\rangle$ (transition diabatique) [101]. En figure 2.12, on a représenté la structure des états propres, en fonction du champ magnétique, d'un système décrit par un hamiltonien du type utilisé en [98]. On peut voir qu'au voisinage du champ nul, il existe de très nombreux anti-croisements. Ces anti-croisements, puisqu'ils permettent au système de transiter d'un état à l'autre, autorise la modification de l'aimantation du système. On peut même envisager le problème de manière plus simple encore : si le champ magnétique extérieur varie suffisamment lentement, la formule de Landau-Zener affirme que les transitions sont entièrement adiabatiques. Autrement dit, le système reste dans le même état quantique tout au long de son évolution. C'est ce que l'on désigne par évolution adiabatique des Mn, mais au sens de la mécanique quantique cette fois-ci. Notons que lors d'une évolution adiabatique, l'aimantation du système change, bien que le système reste dans le même état. En effet, sur un même état quantique, la projection S_z d'un spin de Mn n'est pas la même avant et après un anti-croisement.

On retiendra que la modification de l'aimantation dans ce second cas, ne s'explique non pas par l'interaction entre les différents Mn, mais par l'évolution intrinsèque d'un Mn isolé des autres, en interaction avec son noyau en présence des contraintes et du champ cristallin.

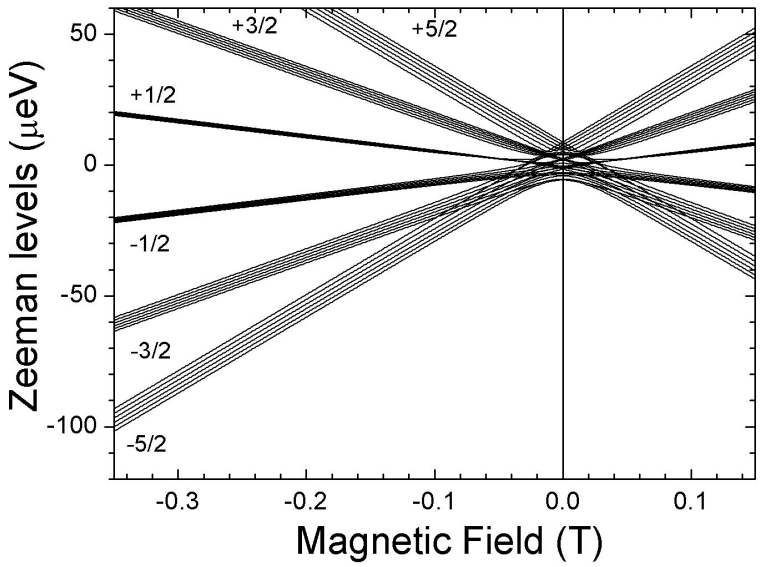

FIG. 2.12 – Structure typique des états énergétiques du système prenant en compte l'effet de l'interaction hyperfine, du champ cristallin et des contraintes.

Confrontation des deux approches

Le mécanisme responsable de la dynamique très rapide des Mn au voisinage du champ nul semble donc avoir trouvé deux explications. Cependant ces deux explications sont a priori aux antipodes l'une de l'autre : il est en effet difficile de concilier une physique décrivant comme essentielle l'interaction entre Mn avec une physique qui juge que ces interactions sont négligeables. Toutefois, il est important de noter que l'ensemble des conditions expérimentales de [78] d'une part et de [98] d'autre part est grossomodo identique, mis à part le fait que les premières expériences sont réalisées dans le matériau massif tandis que les secondes le sont dans des nanostructures. Or les nanostructures présentent des états de contraintes qui n'existent pas dans le massif. Les conclusions de ces deux études ne seraient donc pas nécessairement contradictoires. Mais pour le moment, le débat reste ouvert, aussi bien dans le massif que dans les nanostructures.

Dans les nanostructures, plus exactement dans les puits, un argument tend toutefois à éliminer l'hypothèse des interactions spin-spin : le temps caractéristique de la dynamique rapide diminue avec la concentration en Mn [98] alors qu'on s'attendrait plutôt à ce qu'il augmente avec la concentration si cette dynamique était liée aux interactions spin-spin. Nos mesures, réalisées dans des puits similaires, s'accorderaient donc a priori plus avec une description du type Landau-Zener. Bien entendu, il apparaît évident d'après ce qui vient d'être présenté, que la situation est encore loin d'être éclaircie. Il s'agit donc d'être capable de trancher définitivement entre ces deux théories. Evidemment, il se pourrait que dans la réalité, la situation soit intermédiaire et que l'effet des interactions entre Mn soit du même ordre de grandeur que l'effet des interactions intrinsèques à un Mn. Il s'agirait alors d'en déterminer les influences relatives.

Enfin, une autre question ouverte, quoique plus axée sur la compréhension théorique du problème, nous semble intéressante : peut-on uniformiser les deux descriptions théoriques sous une seule et même forme ? On pourrait ainsi comparer directement les influences des différents mécanismes. Malheureusement, à première vue, il paraît délicat, voire impossible de décrire soit l'effet des interactions par un hamiltonien exact, soit l'évolution intrinsèque d'un Mn isolé par une température T_{Mn} sensée représenter une moyenne statistique. Des rapprochements entre les

deux théories sont cependant sûrement faisables. Notamment, peut-on établir un lien entre les termes "adiabatique au sens thermodynamique" et "adiabatique au sens mécanique quantique" ?

2.3.2 Les dynamiques observées peuvent-elles s'expliquer par une évolution "adiabatique" ?

Avant de poursuivre, analysons plus en détail les profils de MCD que l'on obtient dans nos puits afin de savoir si déjà, qualitativement, on peut se convaincre que l'une de ces théories au moins s'applique dans notre cas. En figure 2.13, on présente le profil temporel de MCD de l'échantillon M1384 déjà discuté précédemment et sur lequel on a mis en évidence deux dynamiques bien distinctes.

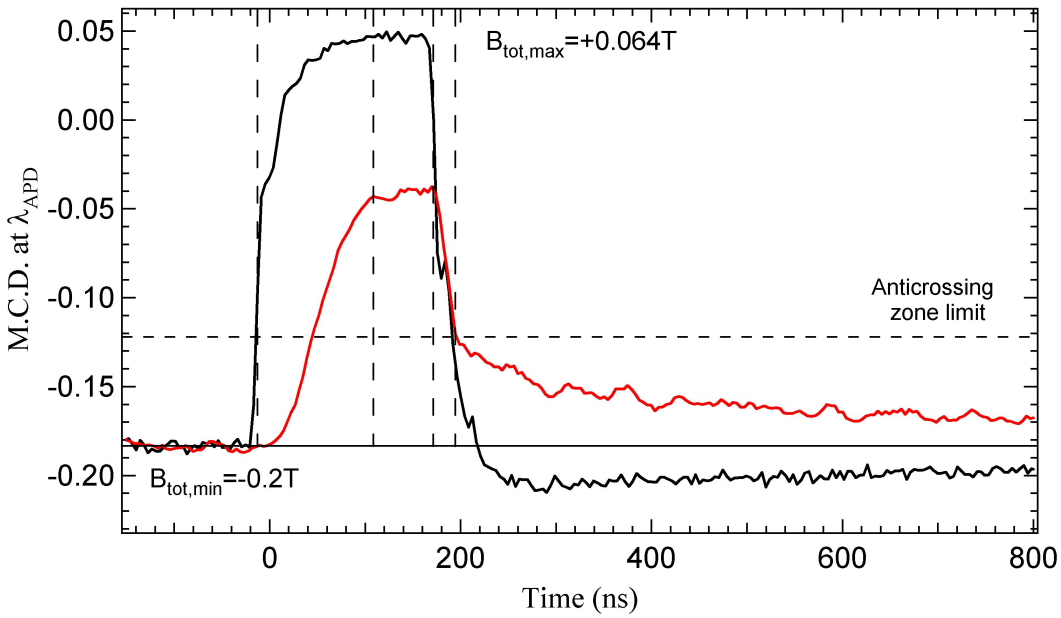

FIG. 2.13 – Signal de MCD de l'échantillon M1384 (trait rouge) et profil temporel de l'impulsion de champ magnétique normalisée en intensité de MCD (trait noir) dans les mêmes conditions que la figure 2.11. Le trait noir horizontal fin indique le niveau où le champ pulsé est nul.

Essayons d'analyser ce profil en termes d'évolution hamiltonienne, et pour cela utilisons le schéma simple d'une succession de processus Landau-Zener. On rappelle que dans ce schéma-là, pour que l'aimantation réponde à la variation du champ magnétique, il faut deux ingrédients : premièrement il faut que le champ magnétique varie bien évidemment ; et deuxièmement, il faut que les états occupés des Mn s'anticroisent pendant cette variation. A la lumière de ces deux remarques, on peut qualitativement expliquer le profil de la réponse en aimantation que l'on observe. On a vu en figure 2.12 que la zone dans laquelle se produisent les anti-croisements est centrée au voisinage du champ nul. Sur la figure 2.13, on a représenté la limite de cette zone par un trait pointillé horizontal (dont on va justifier la position un peu plus loin). Les anti-croisements se situent donc au-dessus de ce trait. Au démarrage de l'impulsion de champ (trait noir), l'aimantation (trait rouge) ne répond qu'avec un temps de retard car le champ magnétique varie au départ en-dehors de la zone d'anti-croisements (avant le premier trait pointillé vertical). Puis, le champ varie dans la zone d'anti-croisements, entraînant une variation de l'aimantation relativement rapide (entre les premier et deuxième traits pointillés verticaux). Ensuite, le champ ne varie plus et l'aimantation reste bloquée à une valeur hors équilibre, ce qui prouve que la

relaxation spin-réseau est lente (entre les deuxième et troisième traits pointillés verticaux). Le champ redescend alors, variant dans la zone d'anti-croisements, ce qui entraîne une variation très rapide de l'aimantation (entre les troisième et quatrième traits pointillés verticaux). La variation est plus rapide à la descente qu'à la montée, probablement parce qu'à la descente le champ varie très vite dans la zone d'anti-croisements et ralentit en dehors tandis qu'à la montée, le champ varie très vite en dehors de la zone d'anti-croisement puis ralentit dedans. Enfin, le champ varie mais en dehors de la zone d'anticroisement, puis ne varie plus du tout, ce qui bloque la variation de l'aimantation via les processus Landau-Zener. Toutefois, sur des échelles de temps longues, le retour à l'équilibre de l'aimantation peut s'opérer grâce à la relaxation spin-réseau (après le quatrième trait pointillé vertical).

Ce qui nous permet de fixer la limite de la zone d'anti-croisements, c'est la rupture brusque de pente lors de la descente : le champ varie en effet très rapidement et l'aimantation suit le champ jusqu'au moment où cette dernière ne répond plus alors que le champ varie toujours aussi vite. Cette mesure nous donne donc un ordre de grandeur de la zone dans laquelle se produisent les anti-croisements. Si l'on convertit la valeur du MCD au niveau de cette rupture de pente en champ magnétique, on obtient $B_{AC} \approx -0,15T$. Autrement dit, on peut considérer que la majeure partie des anti-croisements, ou du moins ceux ayant un effet sur la variation de l'aimantation se produisent entre $\approx -0,15T$ et $\approx +0,15T$. Cette limite n'est toutefois pas si franche dans la réalité puisque l'influence des anti-croisements sur la dynamique dépend aussi du fait que les états qui s'anticroisent sont occupés ou non et donc dépend de l'aimantation elle-même. Des simulations quantitatives sont donc nécessaires mais l'ensemble de nos mesures nous permet d'affirmer que la zone dans laquelle est observée cette dynamique rapide est généralement comprise entre $\pm 0,1T$ et $\pm 0,3T$ suivant les conditions expérimentales.

Enfin, une analyse qualitative de nos profils temporels en termes d'une évolution adiabatique au sens thermodynamique (causée par les interactions spin-spin), est à ce stade tout aussi convaincante. En effet, cette théorie permet également de déterminer une zone au voisinage du champ nul dans laquelle la dynamique est rapide et en dehors de laquelle elle est plus lente [78]. Le raisonnement mené plus haut à l'aide de la première théorie reste donc valable.

2.3.3 Conclusion

Dans nos échantillons de puits, la variation d'aimantation en réponse à une variation de champ magnétique, au voisinage d'un champ total nul, exhibe donc deux dynamiques bien distinctes. La première est lente et le retour à l'équilibre peut s'effectuer via un mécanisme dont le temps caractéristique laisse à penser que c'est le mécanisme habituel de relaxation spin-réseau. Le temps caractéristique de ce mécanisme, de l'ordre de la microseconde, dépend a priori du champ magnétique total. La seconde dynamique en revanche, est très rapide. Bien qu'encore mal comprise, elle peut visiblement être attribuée à une évolution que l'on peut placer sous le terme commun d'évolution "adiabatique". L'origine physique de ce mécanisme reste à déterminer, en clarifiant notamment si elle découle plutôt d'une physique de Mn en interactions ou d'une physique de Mn isolés. Sa dynamique, très rapide, ne peut pas être réduite à un temps caractéristique puisqu'elle dépend de la vitesse de balayage du champ magnétique. On a toutefois pu observer que cette dynamique pouvait être aussi rapide que les variations du champ, qui ont lieu en $\approx 20ns$.

2.4 Quelques indices sur l'origine de l'évolution "adiabatique"

La question cruciale reste donc de savoir si les interactions spin-spin jouent ou non un rôle important dans l'évolution "adiabatique" à l'origine de la dynamique rapide des Mn. Or, on a expliqué que dans le cas où l'on considère que les Mn sont sans interaction, il est attendu que les contraintes jouent un rôle important. On se propose donc de mener une étude comparative entre un puits standard et un puits contraint. Si cette étude va certes nous apporter des éléments de réponse, elle ne permettra pas, disons-le tout de suite, de trancher définitivement la question dans la mesure où une modélisation théorique complète n'a pas encore été développée.

2.4.1 Etude sur un puits standard

L'échantillon constituant le puits standard est le M2139. Cet échantillon est un puits quantique de CdMnTe dopé n, de concentration en Mn $x_{Mn} = 0,2\%$ et de largeur $L_z = 15nm$. On présente en figure 2.14 la calibration permettant de convertir le signal de MCD que l'on mesure en aimantation. Bien que nous n'ayons pas effectué une comparaison détaillée des deux échantillons, on peut dire que la dynamique de cet échantillon, le M2139, est très proche de celle du M1384 qui est celui que nous avons présenté jusqu'à présent.

Après avoir mesuré les variations de la dynamique en fonction de l'amplitude des impulsions et après avoir étudié le profil temporel typique de la réponse de l'aimantation au champ magnétique dans nos systèmes au voisinage du champ total nul, on se propose maintenant de mener une étude systématique en fonction du champ statique B_s. En effet, on a vu qu'il existe une zone centrée au voisinage du champ nul à l'intérieur de laquelle la dynamique est bien plus rapide qu'à l'extérieur. Des expériences effectuées à différents champs statiques devraient donc nous permettre de sonder efficacement cette zone. La figure 2.15 présente les signaux de MCD enregistrés à différents champs statiques compris entre $B_s = -0,5T$ et $B_s = +0,2T$. Cette expérience est reproduite pour trois amplitudes d'impulsion B_p différentes.

On observe donc, à amplitude d'impulsion B_p fixée, une réponse importante de l'aimantation pour les champs statiques B_s groupés autour d'une certaine valeur (qui varie en fonction de B_p) et une réponse beaucoup plus faible pour les champs statiques situés de part et d'autre de cette valeur. Bien que ceci puisse paraître un peu complexe à première vue, c'est en réalité extrêmement simple. On peut extraire de la figure 2.15 l'amplitude de variation du MCD (converti en orientation $\langle S_z \rangle / (5/2)$), c'est à dire la variation entre la valeur du MCD avant l'impulsion et la valeur du MCD au sommet de l'impulsion, en fonction du champ statique B_s. On a ensuite reporté la dépendance en champ B_s de cette amplitude de variation en figure 2.16. On visualise alors clairement l'effet de résonance de l'amplitude de réponse de l'aimantation avec le champ statique B_s. Cet effet est bien visible sur les graphes (b), (d) et (f). Cette observation ne doit pas surprendre. Ce n'est ni plus ni moins que la conséquence de la dynamique rapide des Mn dans une zone centrée autour du champ nul. En effet, pour les champs statiques permettant à l'impulsion de varier à l'intérieur de la zone, la dynamique est rapide et la réponse en aimantation est importante. En revanche, pour les champs statiques tels que l'impulsion varie à l'extérieur de la zone, la dynamique est lente (contrôlée par le T_1) et la réponse en aimantation est faible voire inobservable. Il est important de comprendre que cette observation est due au fait que l'on utilise des impulsions courtes : à des échelles de temps plus longues, l'aimantation parvient évidemment, quel que soit le champ statique, à sa valeur d'équilibre thermodynamique via la relaxation spin-réseau ; et l'amplitude de variation du MCD en fonction de B_s est alors constante (à amplitude B_p fixée, bien sûr). C'est ce qu'on a pu observer pour des impulsions d'une durée de $2\mu s$ (non présenté ici). Cet effet de résonance en amplitude pour des impulsions de courte durée

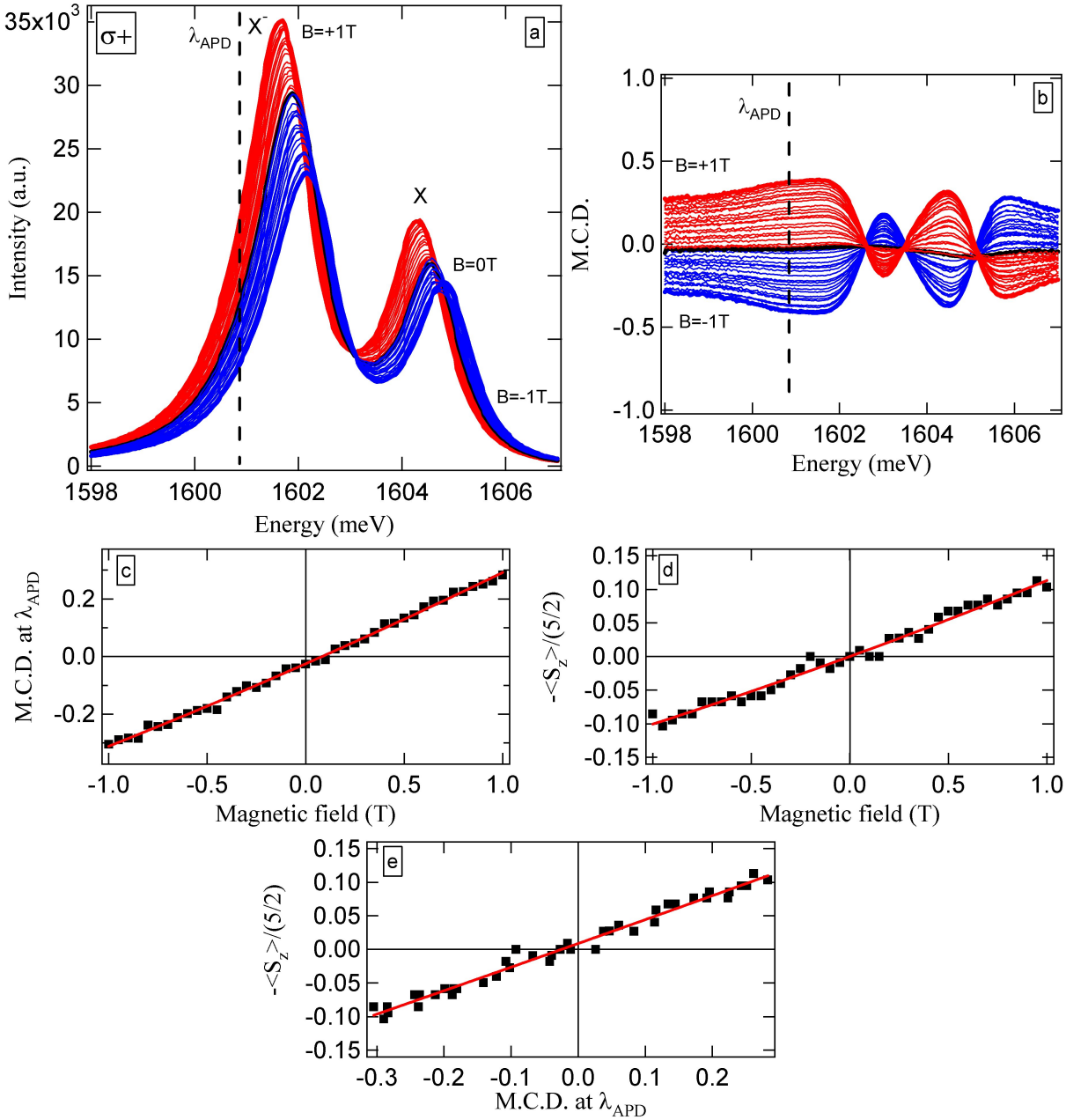

FIG. 2.14 – (a) Spectres de PL de l'échantillon M2139, réalisés à la CCD en polarisation σ^+, à $T = 6,6K$, sous excitation non résonante ($405nm$) d'une puissance de $70\mu W$, pour un champ magnétique statique allant de $B_s = -1T$ à $B_s = +1T$ tous les $0,05T$. Les mesures à l'APD sont effectuées à $\lambda_{APD} = 774,5nm$. (b) Signal de MCD extrait des spectres de PL obtenus en polarisation σ^+ (cf. (a)) et σ^- (non présentés ici) dans les conditions de (a). (c) MCD en fonction du champ magnétique à λ_{APD} extrait de (b) (carrés noirs). (d) Orientation des Mn $-\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ en fonction du champ magnétique déduite de (a) (carrés noirs). La température des Mn qui peut être extraite de cette courbe est $T_{Mn} = 15K$. (e) Correspondance $-\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ en fonction du MCD à λ_{APD} extraite de (c) et (d) (carrés noirs). En (c), (d) et (e) on a ajusté les points expérimentaux par des polynômes de degré 2 afin de pouvoir effectuer les conversions dans la pratique.

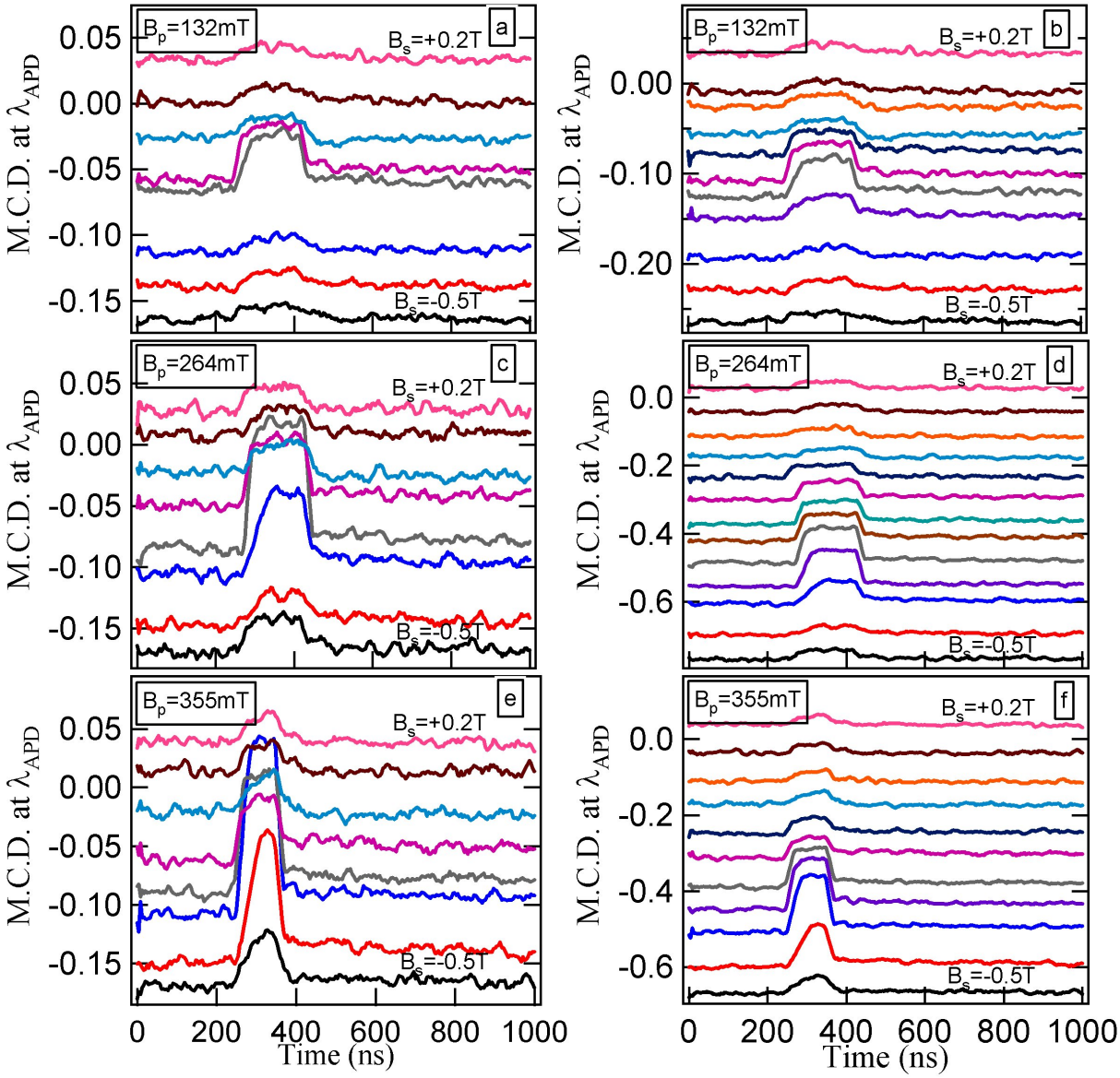

FIG. 2.15 – Dans toute la figure, une même couleur désigne un même champ statique. (a) Signaux de MCD pour les champs statiques de $B_s = -0,5T$ à $B_s = +0,2T$ tous les $0,1T$, pour des impulsions d'amplitude $B_p = 132mT$ ($V = 55V$), de largeur $200ns$ et de taux de répétition $110kHz$, générées avec la carte 2 dans les conditions de la figure 2.14. (b) Même chose qu'en (a) mais en intercalant les courbes de MCD pour les champs statiques $B_s = -0,25T$, $B_s = -0,05T$ et $B_s = +0,05T$, et en décalant arbitrairement les courbes afin d'améliorer la visibilité d'ensemble. L'échelle des ordonnées n'a donc de sens qu'au sein d'une même courbe. (c) Même chose qu'en (a) mais pour des impulsions d'amplitude $B_p = 264mT$ ($V = 110V$), de largeur $200ns$ et de taux de répétition $51,6kHz$. (d) Même chose qu'en (c) en intercalant les champs statiques $B_s = -0,25T$, $B_s = -0,15T$, $B_s = -0,125T$, $B_s = -0,05T$ et $B_s = +0,05T$ et en décalant les courbes. (e) Même chose qu'en (a) mais pour des impulsions d'amplitude $B_p = 355mT$ ($V = 148V$), de largeur $150ns$ et de taux de répétition $53,4kHz$. (f) Même chose qu'en (e) en intercalant les champs statiques $B_s = -0,25T$, $B_s = -0,05T$ et $B_s = +0,05T$ et en décalant les courbes.

est donc un moyen visuel évident de se convaincre que la dynamique rapide ne se produit que dans une certaine zone de champ magnétique. En quelque sorte c'est un moyen de s'affranchir du T_1 et de ne regarder que les effets liés à la dynamique rapide.

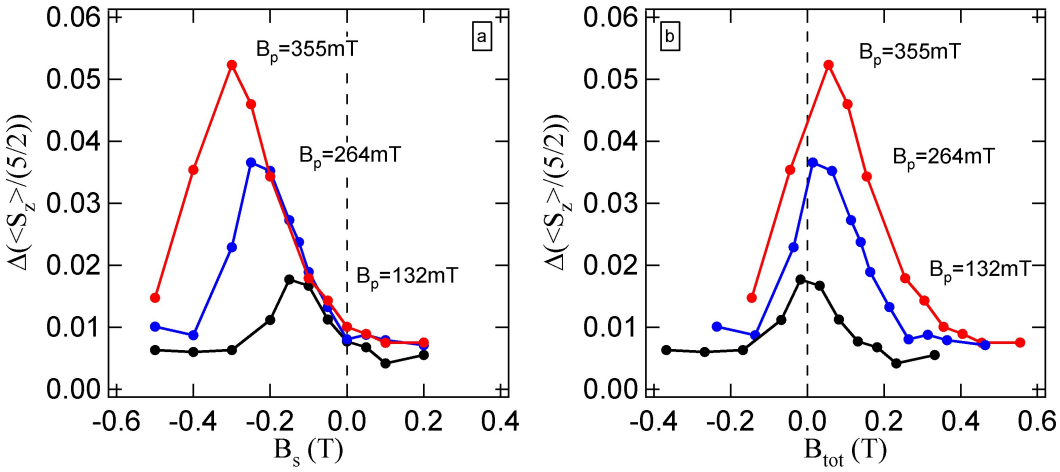

FIG. 2.16 – (a) Amplitude de variation de l'orientation des Mn $\Delta(\frac{\langle S_z \rangle /}{5/2})$ en fonction du champ statique B_s pour les trois valeurs de B_p. (b) Même chose qu'en (a) mais retracé en fonction du champ total au maximum de l'impulsion $B_{tot} = B_s + B_p$ pour chacune des trois valeurs de B_p.

Par contre, on pourrait se demander pourquoi cette résonance ne se produit pas dans une zone centrée autour de $B_s = 0$ (cf. figure 2.16(a)). A nouveau, c'est parfaitement compréhensible : c'est l'impulsion de champ appliquée qui brise cette symétrie car elle est positive et que son amplitude B_p est non négligeable devant les champs statiques B_s appliqués. On comprend aisément que pour qu'une impulsion $B_p = 200mT$ varie dans une zone de dynamique rapide comprise entre $-0,1T$ et $+0,1T$ (et entraîne donc une réponse en aimantation importante), il faut que le champ statique appliqué soit $B_s = -0,1T$. On a retracé l'amplitude de variation du MCD en fonction du champ total au maximum de l'impulsion $B_{tot} = B_s + B_p$ (cf. figure 2.16(b)). C'est un peu mieux centré. Pour rétablir complètement la symétrie, il faudrait en principe faire le tracé en fonction de $B_s + B_p/2$ qui correspond au champ total moyen appliqué pendant l'impulsion. Cependant on ne parvient pas tout à fait à rétablir la symétrie non plus (non présenté). Ceci est probablement dû au fait que la réponse en aimantation du système ne dépend pas uniquement du champ appliqué mais aussi de l'aimantation elle-même, comme on l'a déjà fait remarquer. Malgré cela, ces raisonnements permettent de se convaincre que la zone de dynamique rapide est bien centrée autour du champ nul.

On peut également évaluer l'ordre de grandeur de la largeur en champ de la zone de dynamique rapide. L'ensemble des trois mesures à différentes amplitudes B_p concorde et permet de définir cette zone comme comprise entre $-0,2T$ et $+0,2T$ environ.

Enfin, les graphes (a), (c) et (e) de la figure 2.15 exhibe une caractéristique très particulière : à amplitude d'impulsion B_p constante, certains signaux de MCD en dépassent d'autres qui sont enregistrés à un champ statique plus important. C'est la cas par exemple, dans le graphe (e), du MCD enregistré à $B_s = -0,3T$ (courbe bleue) qui dépassent tous les MCD de $B_s = -0,2T$ à $B_s = +0,1T$. Ceci démontre avec certitude que cette variation d'aimantation ne peut en aucun cas être attribuée à un phénomène de type relaxation spin-réseau. Bien que cette caractéristique ne soit pas encore bien expliquée, il est probable qu'elle constituera un élément clef dans la détermination de la physique responsable de cette évolution "adiabatique".

2.4.2 Etude sur un puits contraint

On va maintenant étudier l'échantillon M2168. Cet échantillon est un puits quantique contraint de CdMnTe non dopé, de concentration en Mn $x_{Mn} = 1\%$ et de largeur $4MCs$ soit environ $L_z = 1,5nm$. Cet échantillon a déjà été étudié en II 2.4.1. On présente en figure 2.17 la calibration permettant de convertir le signal de MCD que l'on mesure en aimantation. Dans le graphe (d), on vérifie la cohérence de la calibration de l'aimantation en fonction du champ entre $B_s = -0,1T$ et $B_s = +0,1T$, en lui superposant une calibration plus fiable entre $B_s = 0T$ et $B_s = 11T$, réalisée auparavant dans des conditions expérimentales similaires mais avec une excitation laser $70\mu W$ à $405nm$, ce qui conduit à des températures T_{Mn} voisines.

La figure 2.18 présente les signaux de MCD enregistrés à différents champs statiques compris entre $B_s = -0,8T$ et $B_s = +0,5T$ pour trois amplitudes d'impulsions B_p différentes.

De la même manière que pour l'échantillon M2139, on peut extraire de la figure 2.18 l'amplitude de variation de l'aimantation en fonction du champ statique B_s. Le résultat est reporté en figure 2.19, en fonction du champ statique B_s d'une part et en fonction du champ total maximum $B_{tot} = B_s + B_p$ d'autre part. On visualise alors clairement l'effet de résonance de l'amplitude de réponse de l'aimantation avec le champ statique B_s. C'est le signe que dans cet échantillon contraint, on est toujours en présence de mécanismes à l'origine d'une dynamique rapide n'apparaissant que dans une zone de champ centrée autour du champ nul. Notons toutefois que l'amplitude de variation est beaucoup plus faible dans cet échantillon que dans le M2139. A priori, puisque l'on a normalisé les amplitudes de variation, on ne s'attend pas à observer une telle différence. Mais il faut penser que les températures T_{Mn} sont très différentes dans les deux échantillons ($T_{Mn} = 15K$ pour le M2139 et $T_{Mn} = 50K$ pour le M2168). Ceci signifie que pour une amplitude d'impulsion B_p donnée, les Mn s'orientent beaucoup moins dans un échantillon que dans l'autre. Mais ceci est un raisonnement valable à l'équilibre thermodynamique. Qu'en est-il pour une évolution de type "adiabatique" ?

Ces mesures permettent en tout cas d'évaluer l'ordre de grandeur de la largeur en champ de la zone de dynamique rapide, dont on peut considérer qu'elle s'étend de $-0,4T$ à $+0,4T$ environ. L'ensemble des trois mesures à différentes amplitudes B_p donne globalement le même résultat, ce qui renforce la conclusion.

2.4.3 Comparaison des deux études

Ces études en fonction du champ statique B_s permettent de mettre en évidence de manière flagrante, et indépendamment de considérations théoriques quelconques, qu'il existe bien un effet de dynamique rapide des Mn, qui ne peut pas être attribué à un mécanisme de relaxation type réseau, et qui se manifeste uniquement dans une zone de champ centrée autour du champ nul.

La comparaison d'un échantillon de puits standard avec un échantillon de puits contraint nous permet de conclure que la zone dans laquelle se produit cette dynamique est environ deux fois plus large pour le puits contraint (cf. figure 2.20). On peut alors rapprocher cette observation du fait qu'en moyenne, les anti-croisements des états d'énergie du système Mn isolé (cf. figure 2.21) se produisent à des champs de plus en plus grands au fur et à mesure que l'effet des contraintes augmente. Une telle corrélation, entre la zone de champ dans laquelle la dynamique est rapide et la zone de champ dans laquelle existent les anti-croisements, est un argument en faveur d'une approche où les Mn sont isolés et dans laquelle la modification de l'aimantation se fait principalement sous l'effet de l'interaction hyperfine et des contraintes. Toutefois, il est important de rester prudent. En effet, l'effet du temps de relaxation spin-réseau T_1 n'a pas été discuté ici. Or l'échantillon M2168, plus concentré que le M2139, doit relaxer vers l'équilibre

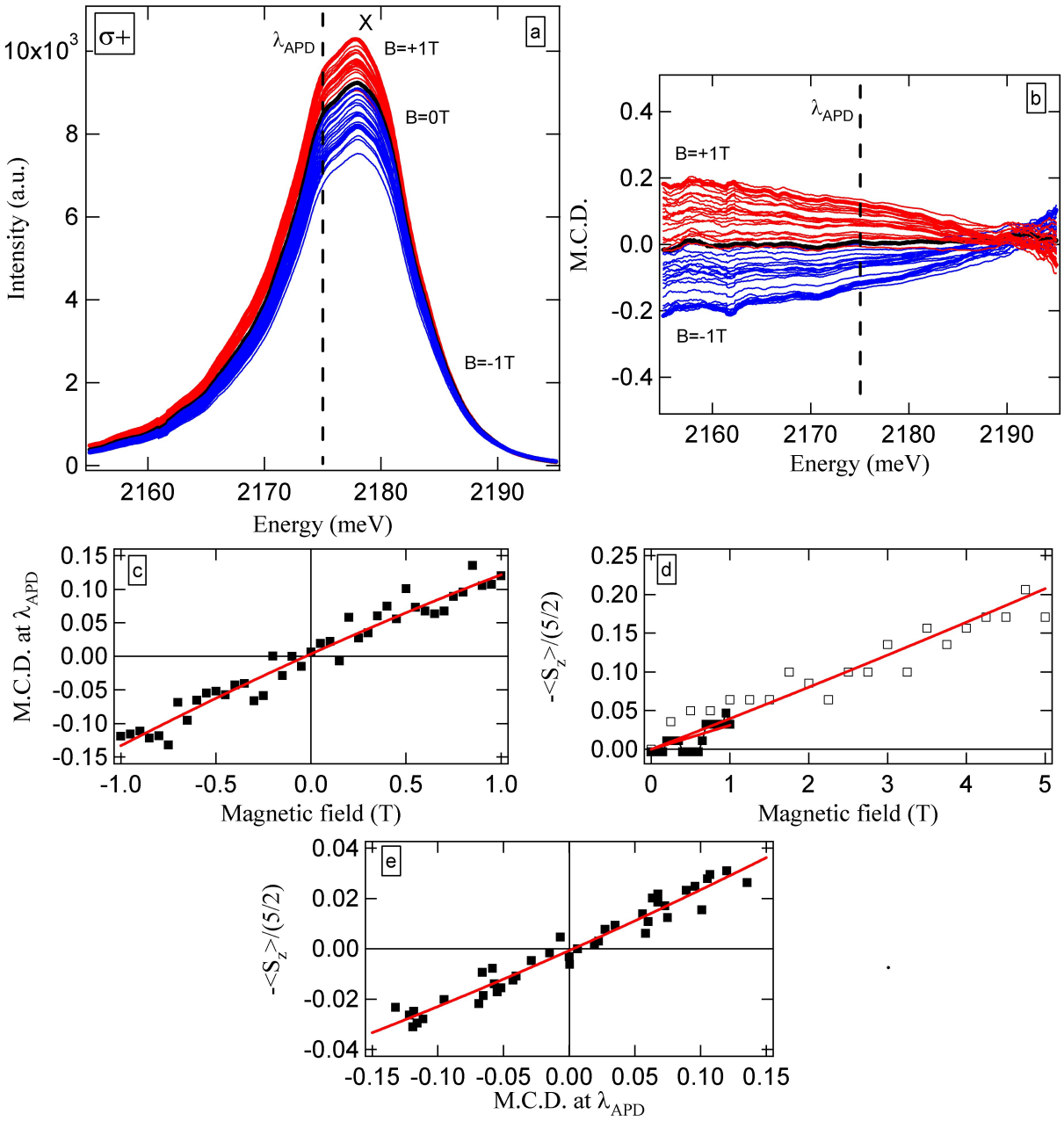

FIG. 2.17 – (a) Spectres de PL de l'échantillon M2168, réalisés à la CCD en polarisation σ^+, à $T = 7,5K$, sous excitation non résonante ($532nm$) d'une puissance de $100\mu W$, pour un champ magnétique statique allant de $B_s = -1T$ à $B_s = +1T$ tous les $0,05T$. Les mesures à l'APD sont effectuées à $\lambda_{APD} = 570nm$. (b) Signal de MCD extrait des spectres de PL obtenus en polarisation σ^+ (cf. (a)) et σ^- (non présentés ici) dans les conditions de (a). (c) MCD en fonction du champ magnétique à λ_{APD} extrait de (b) (carrés noirs). (d) Orientation des Mn $-\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ en fonction du champ magnétique déduite de (a) (carrés noirs pleins) et déduite d'une montée en champ jusqu'à $B_s = 11T$ (carrés noirs vides) (voir texte). Les températures des Mn qui peuvent être extraites de ces deux courbes sont respectivement $T_{Mn} = 50K$ et $T_{Mn} = 40K$. (e) Correspondance $-\frac{\langle S_z \rangle}{5/2}$ en fonction du MCD à λ_{APD} extraite de (c) et (d) (carrés noirs). En (c) et (e) on a ajusté les points expérimentaux par des polynômes de degré 2 et en (d) par des droites afin de pouvoir effectuer les conversions dans la pratique.

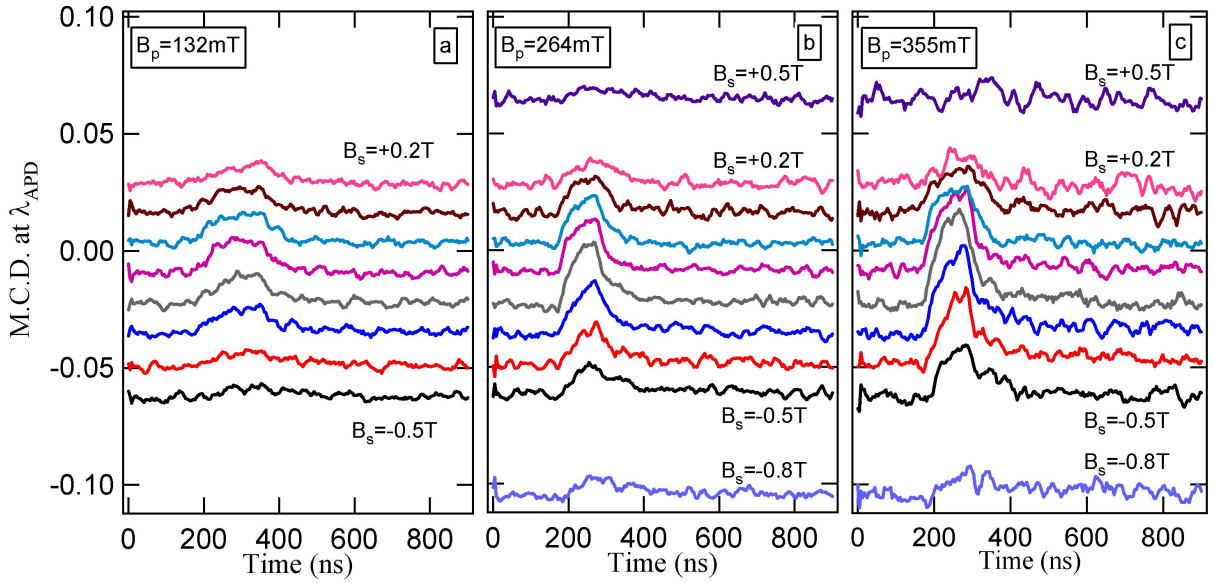

FIG. 2.18 – Dans toute la figure, une même couleur désigne un même champ statique. (a) Signaux de MCD pour les champs statiques de $B_s = -0,5T$ à $B_s = +0,2T$ tous les $0,1T$, pour des impulsions d'amplitude $B_p = 132mT$ ($V = 55V$), de largeur $190ns$ et de taux de répétition $110kHz$, générées avec la carte 2 dans les conditions de la figure 2.17. (b) Même chose qu'en (a) mais en ajoutant les champs statiques $B_s = -0,8T$ et $B_s = +0,5T$ et pour des impulsions d'amplitude $B_p = 264mT$ ($V = 110V$), de largeur $110ns$ et de taux de répétition $104kHz$. (c) Même chose qu'en (b) mais pour des impulsions d'amplitude $B_p = 355mT$ ($V = 148V$), de largeur $150ns$ et de taux de répétition $53,4kHz$.

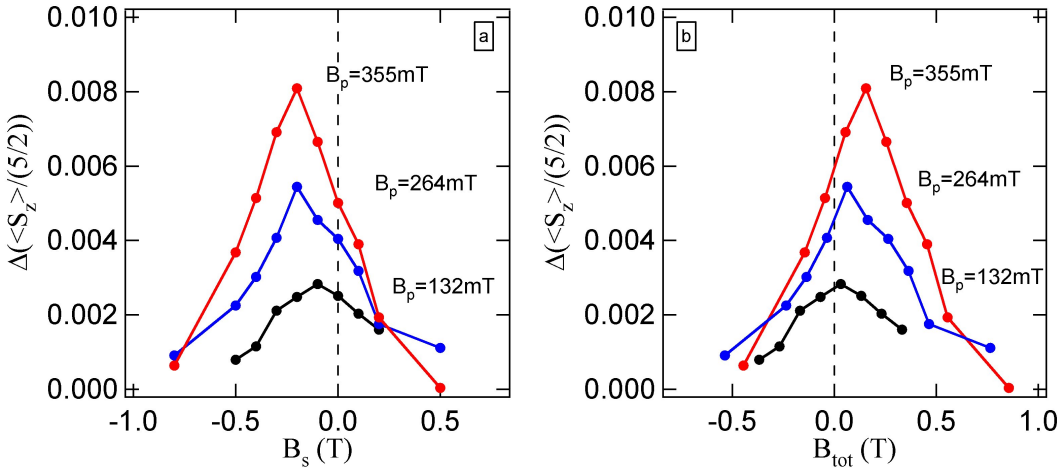

FIG. 2.19 – (a) Amplitude de variation de l'orientation des Mn $\Delta(\frac{\langle S_z \rangle /}{5/2})$ en fonction du champ statique B_s pour les trois valeurs de B_p. (b) Même chose qu'en (a) mais retracé en fonction du champ total au maximum de l'impulsion $B_{tot} = B_s + B_p$ pour chacune des trois valeurs de B_p.

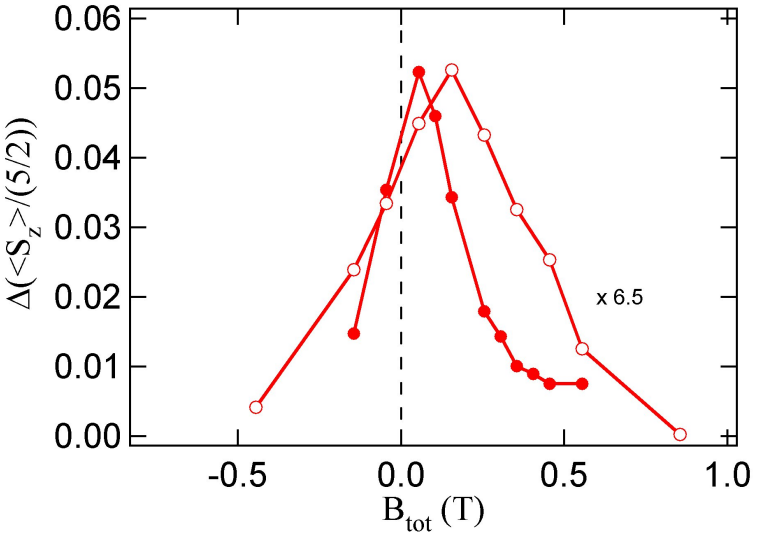

FIG. 2.20 – Amplitude de variation de l'orientation des Mn $\Delta(\frac{\langle S_z \rangle /}{5/2})$ en fonction du champ total au maximum de l'impulsion $B_{tot} = B_s + B_p$, pour des impulsions d'amplitude $B_p = 355mT$ ($V = 148V$), de largeur $150ns$ et de taux de répétition $53,4kHz$: dans le puits standard M2139 (ronds rouges pleins) et dans le puits contraint M2168 (ronds rouges vides). L'amplitude de variation du M2168 a été arbitrairement multipliée par un facteur $6,5$, ce qui peut, peut-être, s'expliquer en partie par des températures T_{Mn} différentes dans les deux échantillons.

thermodynamique plus rapidement, ce qui doit contribuer à atténuer l'effet de résonance observé. Il est aisé de se convaincre que dans la limite des échantillons très concentrés où le temps T_1 est de l'ordre de grandeur ou plus court que le temps lié à l'évolution "adiabatique", l'effet de résonance doit disparaître.

2.5 Conclusion et perspectives

2.5.1 Conclusion

La dynamique rapide que nous avons mise en évidence au voisinage du champ total nul, pour des faibles concentrations en Mn, fait suite à plusieurs observations similaires. Si elle ne peut en aucun cas s'expliquer par un mécanisme de relaxation spin-réseau, son origine reste cependant encore incertaine. Les études antérieures tendent à attribuer cette évolution rapide des Mn, que l'on peut qualifier d'"adiabatique", soit aux interactions entre Mn, soit à l'évolution intrinsèque de Mn isolés. Notre étude, bien qu'elle semble apporter des éléments de réponse, ne permet pas de trancher la question pour le moment.

Pour espérer apporter une réponse claire et solidement argumentée, notre étude devra se baser sur une modélisation complète capable de rendre compte de l'ensemble des données expérimentales collectées ici. La prise en compte simultanée des processus d'évolution "adiabatique", de la relaxation spin-réseau et peut être des mécanismes de décohérence sera en particulier nécessaire.

2.5.2 Perspectives

Bien évidemment, il s'agira avant tout de poursuivre l'étude débutée sur les puits quantiques, en grande partie par le développement d'une modélisation théorique adaptée mais probablement

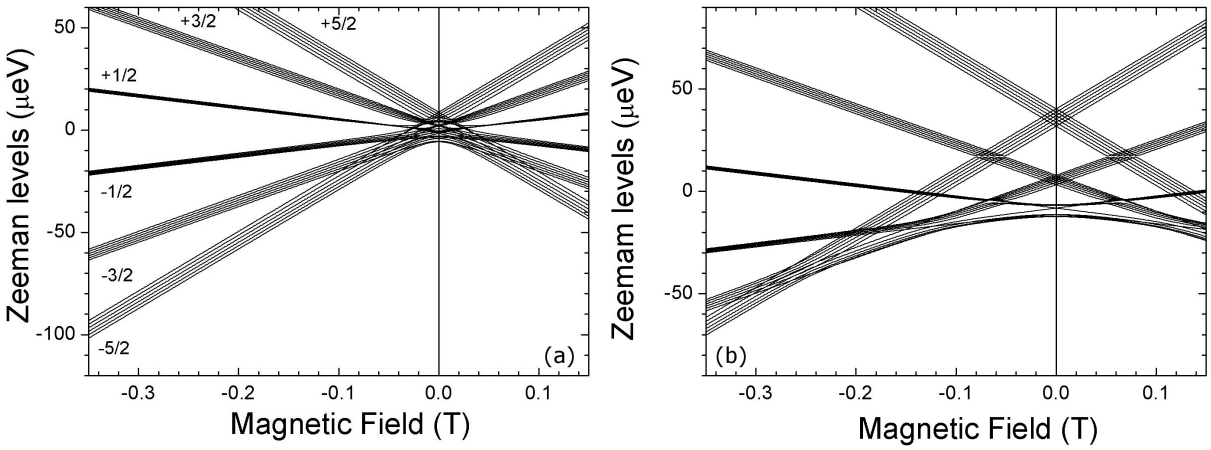

FIG. 2.21 – Structure typique des états énergétiques du système prenant en compte l'effet de l'interaction hyperfine, du champ cristallin et des contraintes : (a) dans le cas de contraintes typiques d'un puits CdMnTe sur substrat $Cd_{88\%}Zn_{12\%}Te$ soit le cas du M2139, (b) dans le cas de contraintes typiques d'un puits CdTe sur ZnTe soit le cas du M2168.

aussi par des mesures supplémentaires. Cette étude n'ayant débuté que récemment, il est difficile de dire pour le moment quels seront les axes de recherche les plus intéressants mais il ne fait aucun doute qu'elle soulèvera de très nombreuses questions dont il s'agira de reconnaître l'intérêt au moment opportun.

Par ailleurs, le développement de cette technique de champ magnétique pulsé ouvre d'autres perspectives tout à fait nouvelles, notamment en termes de mesures sur boîtes individuelles. Mis à part les expériences proposées dans les perspectives de la partie II sur les boîtes de l'échantillon M1736 étudiées dans cette même partie, on peut envisager d'appliquer cette technique sur des boîtes, tout simplement pour comparer la physique de la dynamique des Mn dilués en champ nul dans des puits 2D et dans des boîtes 0D. L'état des contraintes dans ces dernières est en effet encore différent de celui des puits ou du matériau massif. Enfin, il serait particulièrement intéressant d'appliquer la technique de champ pulsé à des boîtes individuelles possédant un seul spin de Mn (que l'on sait fabriquer au sein de l'équipe). Cette situation permet en effet d'étudier la physique de Mn extrêmement dilués, en même temps qu'elle permet de n'en sonder qu'un seul. En étudiant tout d'abord la dynamique en champ nul, on pourrait espérer faire le lien avec la physique des puits comme on l'a dit ; et si les évolutions "adiabatiques" sont dues à des effets intrinsèques à chaque Mn, il est probablement plus qu'intéressant de n'en regarder qu'un seul. Puis en étudiant la dynamique sous fort champ, on pourrait espérer mesurer un temps uniquement dû à la relaxation spin-réseau et faire le lien avec la physique des Mn concentrés.

D'un point de vue purement expérimental, pour réaliser de telles études sur des boîtes individuelles, la collection d'un nombre suffisant de photons pour avoir un rapport signal sur bruit correct sera déterminante. Travailler dans l'hélium liquide représenterait alors un avantage indéniable, à la fois parce que cela permet d'atténuer l'effet des différents mécanismes de chauffage mais aussi parce que l'on s'affranchit ainsi des fluctuations optiques. Le développement électronique sera également important pour permettre des taux de répétition plus élevés et être sûr de détecter un maximum de photons.

Conclusion

La dynamique des spins de Mn dans les semi-conducteurs magnétiques dilués constitue une physique riche et complexe. La compréhension des mécanismes sous-tendant cette physique représente un enjeu important. En effet, comme on l'a expliqué dans l'introduction, les semi-conducteurs magnétiques dilués pourrait se révéler comme des matériaux très adaptés à la conception de dispositifs spintroniques par exemple. Or pour cela, il est nécessaire de maîtriser parfaitement l'interaction des spins de Mn avec les autres excitations du solide, que ce soit pour utiliser ces interactions pour contrôler les spins ou au contraire pour s'affranchir des effets non désirés induits par certaines de ces interactions. Comme c'est généralement le cas en physique du solide où l'environnement est complexe, ces interactions sont multiples et il est nécessaire de hiérarchiser leurs influences. En l'occurrence, nous avons mis en évidence dans ce travail que les interactions principales influençant la dynamique des spins de Mn dans nos structures CdMnTe, diffèrent très nettement suivant la concentration en Mn des échantillons, la dimensionnalité du système et l'amplitude du champ magnétique appliqué.

Dans un premier temps, nous avons mis en évidence l'effet de chauffage des spins de Mn par les porteurs photocréés, dans des boîtes magnétiques. Cet effet est assez semblable à l'effet de chauffage observé dans les systèmes 2D. Bien que dans un système 0D, on s'attende naïvement à ce que cet effet de chauffage soit bloqué, pour des raisons analogues à celles de l'effet "phonon bottleneck", on l'observe malgré tout. Ceci s'explique par le fait que ce sont les porteurs quasi 2D de la couche de mouillage qui sont responsables de l'effet de chauffage.

La compétition entre cet effet de chauffage par les porteurs et le refroidissement par le réseau peut donner lieu, dans certaines conditions, à une transition abrupte d'un régime où les Mn sont "chauds" à un régime où ils sont "froids", sous l'effet du champ magnétique. Cette transition, observée expérimentalement, a été bien expliquée par une modélisation théorique et numérique. Cette modélisation a permis de mettre en évidence que la transition "chaud"/"froid" est le résultat d'un effet de chauffage via des mécanismes de flip-flop entre les porteurs et les Mn et que cet effet est contrôlé par le champ magnétique et modulé par une boucle de rétroaction positive. La modélisation a aussi permis de prouver que ce sont principalement les trous qui sont responsables de l'effet de chauffage et que ceci est possible en raison du fort mélange de bande de valence dans nos structures.

Plus généralement, on a démontré, tant expérimentalement que théoriquement, que l'effet de chauffage par les porteurs est prépondérant pour de faibles concentrations en Mn et à faible champ magnétique, et qu'il est de plus en plus important au fur et à mesure que l'on réduit les dimensions du système, et donc a fortiori sa dimensionnalité.

Malgré les similarités de cet effet avec celui observé dans les systèmes 2D, certaines observations illustrent la spécificité du mécanisme de chauffage dans les boîtes. Ainsi, la transition "chaud"/"froid" dans une boîte se produit à un champ magnétique différent selon l'énergie de luminescence de la boîte. Nous pensons que ceci signifie que les boîtes induisent la formation

de domaines submicroniques "chauds" ou "froids", qui coexistent à des champs magnétiques intermédiaires.

Afin d'améliorer notre compréhension de ces mécanismes de chauffage dans les boîtes, une modélisation plus poussée doit être entreprise, notamment en ce qui concerne la densité d'états des porteurs et leur répartition sur ces états, en prenant éventuellement en compte la diffusion des porteurs des états 2D de la couche de mouillage vers les états 0D des boîtes (ou inversement). Le mélange de bande de valence et ses origines devraient également être approfondis. Enfin, une description théorique adéquate de l'évolution sous champ magnétique des largeurs de raies de luminescence pourrait apporter de nouveaux éléments de compréhension. Expérimentalement, le fait qu'une boîte individuelle nous permettre de sonder un unique domaine magnétique devrait constituer un atout majeur pour l'étude fine des mécanismes de chauffage dans les boîtes. La réalisation d'expériences en champ magnétique pulsé pourrait également se révéler intéressante.

Dans un second temps, nous avons exploré la dynamique des spins de Mn dans des puits à faible concentration en Mn et sous champ magnétique nul ou au voisinage. Ces études ont été rendues possibles grâce à d'importants développements expérimentaux qui ont débouché sur la mise au point d'une technique de "fort" champ magnétique pulsé permettant de sonder optiquement la dynamique de spin dans les puits ou les boîtes quantiques, à basse température et sous champ magnétique. Cette technique ouvre par ailleurs la voie à de nombreuses autres études de dynamique de spin.

Les premières études que nous avons effectuées ont permis d'observer, qu'outre la relaxation spin-réseau habituelle, il existe, au voisinage du champ nul et pour de faibles concentrations en Mn, un mécanisme de dynamique rapide des Mn. L'origine de cette dynamique rapide est encore incertaine et ne pourra être clairement déterminée que par une modélisation complète de l'ensemble de nos mesures. Toutefois, les premiers arguments tendraient à prouver qu'elle est causée par l'évolution hamiltonienne des Mn sous l'effet de la variation du champ magnétique, en présence de l'interaction hyperfine et des contraintes. Autrement dit, ceci signifie que les spins de Mn, quant bien même isolés les uns des autres, ne peuvent pas être considérés comme de simples spins 5/2 et que la dynamique intrinsèque d'un spin isolé reste complexe. Les mesures effectuées devraient aussi permettre d'extraire le temps de relaxation spin-réseau au voisinage du champ nul.

Outre une modélisation plus complète de ces mesures, il serait intéressant de réaliser, à l'aide du champ magnétique pulsé, des mesures complémentaires permettant notamment d'explorer la dépendance de cette dynamique rapide avec la concentration en Mn ou avec la dimensionnalité du système.

Ce travail contribue donc à fournir une image plus réaliste de la dynamique des spins de Mn dans les semi-conducteurs magnétiques dilués. En mettant en exergue les différents réservoirs (réseau, porteurs) avec lesquelles peuvent interagir les Mn, ou en insistant sur la structure énergétique complexe d'un spin de Mn isolé, on a démontré que la modification de l'orientation des spins de Mn pouvait avoir lieu via des canaux très divers. On s'est alors efforcé de prouver que selon la concentration en Mn, la dimensionnalité du système ou la valeur du champ magnétique, on pouvait bien souvent ne considérer que quelques-uns de ces canaux et négliger les autres.

Ceci illustre donc à quel point l'image d'un spin de Mn isolé à six états quantiques est peu réaliste, et combien l'étude du rôle de l'environnement est importante. Toutefois, dans l'avenir, il sera vraisemblablement fructueux de chercher à inverser la démarche : plutôt que de complexifier le problème en tenant compte de toutes les interactions existantes, il faudra essayer de se ramener à un système modèle d'un spin isolé à six niveaux, interagissant avec l'environnement uniquement

de manière contrôlée. Pour cela, le design d'échantillons "sur mesures" grâce aux progrès des techniques de croissance et de micro-fabrication semble représenter la voie la plus prometteuse.

Annexe A

Rappel des caractéristiques des échantillons utilisés

Puits quantiques :

M952

substrat $Cd_{88\%}Zn_{12\%}Te$
puits $Cd_{1-x}Mn_xTe/CdZn_{8\%}Mg_{27\%}Te$
dopage : dopé p (N)
concentration en Mn : $x = 4,4\%$
épaisseur du puits : $L_z = 8nm$

M1384

substrat $Cd_{88\%}Zn_{12\%}Te$
puits $Cd_{1-x}Mn_xTe/CdZn_{8\%}Mg_{27\%}Te$
dopage : dopé p (N)
concentration en Mn : $x = 0,6\%$
épaisseur du puits : $L_z = 10nm$

M2139

substrat $Cd_{88\%}Zn_{12\%}Te$
puits $Cd_{1-x}Mn_xTe/CdZn_{8,7\%}Mg_{20\%}Te$
dopage : dopé n (Al)
concentration en Mn : $x = 0,2\%$
épaisseur du puits : $L_z = 15nm$

Puits quantiques contraints :

M2168

substrat ZnTe
puits $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$
dopage : non dopé

concentration en Mn : $x = 1\%$
épaisseur du puits : $L_z = 4MCs$

Boîtes quantiques :

M1736

substrat ZnTe
boîtes $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$
dopage : non dopé
concentration en Mn : $x = 1,5\%$
épaisseur de la couche CdMnTe déposée : $6,5MCs$

M2114

substrat ZnTe
boîtes $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$
dopage : non dopé
concentration en Mn : $x = 5,5\%$
épaisseur de la couche CdMnTe déposée : $6,5MCs$

M2116

substrat ZnTe
boîtes $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$
dopage : non dopé
concentration en Mn : $x = 3,5\%$
épaisseur de la couche CdMnTe déposée : $6,5MCs$

M2117

substrat ZnTe
boîtes $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$
dopage : non dopé
concentration en Mn : $x = 1,5\%$
épaisseur de la couche CdMnTe déposée : $6,5MCs$

Annexe B

Calcul de W^- et W^+ en tenant compte des quasi-niveaux de Fermi des porteurs

Dans le cas où l'on veut tenir compte de l'influence des mécanismes de flip-flop entre porteurs et Mn sur l'état des porteurs, il faut introduire des niveaux de Fermi pour chacune des deux sous-bandes de spin des porteurs. En effet, on a décrit dans le manuscrit le fait que l'état des Mn se trouve modifié par les processus de flip-flop avec les porteurs, mais il faut avoir conscience que chaque processus de flip-flop retourne aussi le spin d'un porteur. Ceci implique qu'en toute rigueur, les porteurs ne peuvent plus être décrits par une énergie de Fermi E^F unique. On définit alors deux quasi-niveaux de Fermi pour chacune des sous-bande de spin. Nous prendrons tout au long de cet annexe le cas des électrons pour réaliser les calculs, mais le raisonnement est exactement identique pour les trous :

$$\begin{aligned} E^F_{e,-\frac{1}{2}} &= E^F_e - \frac{\Delta\epsilon_F}{2} \\ E^F_{e,+\frac{1}{2}} &= E^F_e + \frac{\Delta\epsilon_F}{2} \end{aligned} \tag{B.1}$$

Les calculs ne sont alors guère plus compliqués que ceux présentés en I 2.2 et mènent aux expressions plus générales :

$$\begin{aligned} W^-_{ij} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\alpha^2(\frac{D_e}{L_z})^2 \times k_B T_e \exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B - \Delta\epsilon_F}{k_B T_e})... \\ &...\frac{\ln\left(\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B-\Delta\epsilon_F}{k_B T_e}) + \exp(\frac{\Delta E_e/2-E^F_e-\Delta\epsilon_F/2}{k_B T_e})\right) - \ln\left(1+\exp(\frac{\Delta E_e/2-E^F_e-\Delta\epsilon_F/2}{k_B T_e})\right)}{\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B-\Delta\epsilon_F}{k_B T_e}) - 1} \end{aligned} \tag{B.2}$$

$$\begin{aligned} W^+_{ij} &= a_{ij}\frac{3\pi}{\hbar}\alpha^2(\frac{D_e}{L_z})^2 \times k_B T_e ... \\ &...\frac{\ln\left(\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B-\Delta\epsilon_F}{k_B T_e}) + \exp(\frac{\Delta E_e/2-E^F_e-\Delta\epsilon_F/2}{k_B T_e})\right) - \ln\left(1+\exp(\frac{\Delta E_e/2-E^F_e-\Delta\epsilon_F/2}{k_B T_e})\right)}{\exp(\frac{g_{Mn}\mu_B B-\Delta\epsilon_F}{k_B T_e}) - 1} \end{aligned} \tag{B.3}$$

Dans ces expressions, E_e^F est l'énergie de Fermi dont l'expression est également modifiée par la prise en compte des quasi-niveaux de Fermi :

$$E_e^F = k_B T_e \ln\left(\sqrt{\cosh^2(\frac{\Delta E_e - \Delta\epsilon_F}{2k_B T_e}) + \exp(\frac{n_e}{D_e k_B T_e}) - 1} - \cosh(\frac{\Delta E_e - \Delta\epsilon_F}{2k_B T_e})\right) \quad \text{(B.4)}$$

Pour conclure, on peut remarquer que le rapport de W^+ sur W^- est toujours exponentiel mais modifié :

$$\frac{W_{ij}^+}{W_{ij}^-} = \exp(-\frac{g_{Mn}\mu_B B + \Delta\epsilon_F}{k_B T_e}) \quad \text{(B.5)}$$

Ceci traduit le fait que le réservoir de porteurs ne se comporte plus en thermostat vis à vis du système de Mn. Ceci est tout à fait logique dans la mesure où la prise en compte de l'influence des mécanismes de flip-flop sur les porteurs revient à modifier l'équilibre des porteurs : on ne peut plus les décrire par un gaz de Fermi thermalisé à T_e.

Bibliographie

[1] K. Kheng, R. T. Cox, Merle Y. d' Aubigné, Franck Bassani, K. Saminadayar, et S. Tatarenko, "*Observation of negatively charged excitons $X-$ in semiconductor quantum wells*", *Phys. Rev. Lett.* (1993), vol. 71, pp. 1752–1755.

[2] K. Sebald, P. Michler, T. Passow, D. Hommel, G. Bacher, et A. Forchel, "*Single-photon emission of CdSe quantum dots at temperatures up to 200 K*", *Applied Physics Letters* (2002), vol. 81, no. 16, pp. 2920–2922.

[3] Adrien Tribu, Gregory Sallen, Thomas Aichele, Regis Andre, Jean-Philippe Poizat, Catherine Bougerol, Serge Tatarenko, et Kuntheak Kheng, "*A High-Temperature Single-Photon Source from Nanowire Quantum Dots*", *Nano Letters* (2008), vol. 8, no. 12, pp. 4326–4329.

[4] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. Keeling, F. Marchetti, M. Szymanska, R. Andre, J. Staehli, V. Savona, P. Littlewood, B. Deveaud, et Le Dang, "*Bose-Einstein condensation of exciton polaritons*", *Nature* (2006), vol. 443, pp. 409–414.

[5] J. K. Furdyna, "*Diluted magnetic semiconductors*", *Journal of Applied Physics* (1988), vol. 64, no. 4, pp. R29–R64.

[6] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, et D. M. Treger, "*Spintronics : A Spin-Based Electronics Vision for the Future*", *Science* (2001), vol. 294, no. 5546, pp. 1488–1495.

[7] H. Boukari, P. Kossacki, M. Bertolini, D. Ferrand, J. Cibert, S. Tatarenko, A. Wasiela, J. A. Gaj, et T. Dietl, "*Light and Electric Field Control of Ferromagnetism in Magnetic Quantum Structures*", *Phys. Rev. Lett.* (2002), vol. 88, p. 207204.

[8] L. Besombes, Y. Léger, L. Maingault, D. Ferrand, H. Mariette, et J. Cibert, "*Probing the Spin State of a Single Magnetic Ion in an Individual Quantum Dot*", *Physical Review Letters* (2004), vol. 93, no. 20, p. 207403.

[9] C. Le Gall, L. Besombes, H. Boukari, R. Kolodka, J. Cibert, et H. Mariette, "*Optical Spin Orientation of a Single Manganese Atom in a Semiconductor Quantum Dot Using Quasiresonant Photoexcitation*", *Physical Review Letters* (2009), vol. 102, no. 12, p. 127402.

[10] G.Cassabois, *Origines et limites du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs.* Thèse HDR de l'université Paris VI, 2006.

[11] N.W.Ashcroft et N.D.Mermin, *Physique des solides.* EDP Sciences, 2002 ed., 1976.

[12] G.Fishman, "*Energie et fonctions d'onde dans les semi-conducteurs*", *Monographie de physique* (1988), vol. .

[13] J. M. Luttinger, "*Quantum Theory of Cyclotron Resonance in Semiconductors : General Theory*", *Phys. Rev.* (1956), vol. 102, pp. 1030–1041.

[14] R. Dingle, W. Wiegmann, et C. H. Henry, "*Quantum States of Confined Carriers in Very Thin AlxGa1−xAs-GaAs-AlxGa1−xAs Heterostructures*", *Phys. Rev. Lett.* (1974), vol. 33, pp. 827–830.

[15] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, et G. Le Roux, "*Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*", *Applied Physics Letters* (1985), vol. 47, no. 10, pp. 1099–1101.

[16] R.Najjar, *Epitaxie de semiconducteurs II-VI : ZnTe/ZnSe et CdTe :Se. Etude du confinement électronique de type-II et du dopage isoélectronique.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2008.

[17] Su-Huai Wei et Alex Zunger, "*Calculated natural band offsets of all II–VI and III–V semiconductors : Chemical trends and the role of cation d orbitals*", *Applied Physics Letters* (1998), vol. 72, no. 16, pp. 2011–2013.

[18] Chris G. Van de Walle et J. Neugebauer, "*Universal alignment of hydrogen levels in semiconductors, insulators and solutions*", *Nature* (2003), vol. 423, p. 626.

[19] Y.Léger, *Détection de spins individuels dans les boîtes quantiques magnétiques.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2007.

[20] E. Deleporte, J. M. Berroir, C. Delalande, N. Magnea, H. Mariette, J. Allegre, et J. Calatayud, "*Excitonic effects in separate-confinement quantum-well heterostructures CdTe/(Cd,Zn)Te*", *Phys. Rev. B* (1992), vol. 45, pp. 6305–6308.

[21] G.L.Bir et G.E.Pikus, *Symmetry and strain-induced effects in semiconductors.* John Wiley and sons, 1974.

[22] L.Besombes, *Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques de semiconducteurs II-VI.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2001.

[23] Murray A. Lampert, "*Mobile and Immobile Effective-Mass-Particle Complexes in Nonmetallic Solids*", *Phys. Rev. Lett.* (1958), vol. 1, pp. 450–453.

[24] V.Huard, *Etude optique des interactions dans des gaz d'électrons bidimensionnels dans des puits quantiques de CdTe.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2000.

[25] P. Kossacki, H. Boukari, M. Bertolini, D. Ferrand, J. Cibert, S. Tatarenko, J. A. Gaj, B. Deveaud, V. Ciulin, et M. Potemski, "*Photoluminescence of p-doped quantum wells with strong spin splitting*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2004), vol. 70, no. 19, p. 195337.

[26] J. A. Gaj, R. Planel, et G. Fishman, "*Relation of magneto-optical properties of free excitons to spin alignment of Mn2+ ions in Cd1-xMnxTe*", *Solid State Communications* (1979), vol. 29, no. 5, pp. 435 – 438.

[27] J. A. Gaj, W. Grieshaber, C. Bodin-Deshayes, J. Cibert, G. Feuillet, Y. Merle d'Aubigné, et A. Wasiela, "*Magneto-optical study of interface mixing in the CdTe-(Cd,Mn)Te system*", *Phys. Rev. B* (1994), vol. 50, pp. 5512–5527.

[28] D.Ferrand, *Interactions d'échange ferromagnétiques induites par un gaz de trous dans des hétérostructures 2D et des couches 3D de semi-conducteurs II-VI.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 1999.

[29] A.K. Bhattacharjee, G. Fishman, et B. Coqblin, "*Virtual bound state model for the exchange interaction in semimagnetic semiconductors such as Cd1-xMnxTe*", *Physica B+C* (1983), vol. 117-118, no. Part 1, pp. 449 – 451.

[30] L.Maingault, *Insertion d'ions magnétiques dans les boites quantiques de semi-conducteurs II-VI.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2006.

[31] D.Bimberg, M.Grundman, et N.N.Ledentsov, *Quantum dot heterostructures.* Wiley, 1999.

[32] I.N. Stranski et L. Krastanow, "*Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von ionenkristallen aufeinander*", *Sitz. Ber. Akad. Wiss. Abt. IIB* (1948), vol. 146, p. 797.

[33] L. Marsal, L. Besombes, F. Tinjod, K. Kheng, A. Wasiela, B. Gilles, J.-L. Rouvière, et H. Mariette, "*Zero-dimensional excitons in CdTe/ZnTe nanostructures*", *Journal of Applied Physics* (2002), vol. 91, no. 8, pp. 4936–4943.

[34] L.Marsal, *Elaboration et caractérisation de nanostructures auto-organisées de semiconducteurs II-VI.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2001.

[35] F. Tinjod, B. Gilles, S. Moehl, K. Kheng, et H. Mariette, "*II–VI quantum dot formation induced by surface energy change of a strained layer*", *Applied Physics Letters* (2003), vol. 82, no. 24, pp. 4340–4342.

[36] F.Tinjod, *Mécanismes de formation des boîtes quantiques semi-conductrices, application aux nanostructures II-VI et étude de leurs propriétés optiques.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2003.

[37] Laurent Maingault, L. Besombes, Y. Léger, C. Bougerol, et H. Mariette, "*Inserting one single Mn ion into a quantum dot*", *Applied Physics Letters* (2006), vol. 89, no. 19, p. 193109.

[38] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, et H. Mariette, "*Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*", *Phys. Rev. B* (2001), vol. 63, p. 155307.

[39] I. Favero, G. Cassabois, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, Ph. Roussignol, et J. M. Gérard, "*Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots*", *Phys. Rev. B* (2003), vol. 68, p. 233301.

[40] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, et H. Mariette, "*Few-particle effects in single CdTe quantum dots*", *Phys. Rev. B* (2002), vol. 65, p. 121314.

[41] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, et J.M. Gérard, "*Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantumdot*", *Nature Physics* (2006), vol. 2, pp. 759–764.

[42] A. A. Maksimov, G. Bacher, A. McDonald, V. D. Kulakovskii, A. Forchel, C. R. Becker, G. Landwehr, et L. W. Molenkamp, "*Magnetic polarons in a single diluted magnetic semiconductor quantum dot*", *Phys. Rev. B* (2000), vol. 62, pp. R7767–R7770.

[43] G. Bacher, A. A. Maksimov, H. Schömig, V. D. Kulakovskii, M. K. Welsch, A. Forchel, P. S. Dorozhkin, A. V. Chernenko, S. Lee, M. Dobrowolska, et J. K. Furdyna, "*Monitoring Statistical Magnetic Fluctuations on the Nanometer Scale*", *Phys. Rev. Lett.* (2002), vol. 89, p. 127201.

[44] A. Hundt, J. Puls, et F. Henneberger, "*Spin properties of self-organized diluted magnetic* $Cd_{1-x}Mn_xSe$ *quantum dots*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2004), vol. 69, no. 12, p. 121309.

[45] J. Seufert, M. Rambach, G. Bacher, A. Forchel, T. Passow, et D. Hommel, "*Single-electron charging of a self-assembled II–VI quantum dot*", *Applied Physics Letters* (2003), vol. 82, no. 22, pp. 3946–3948.

[46] S. Bhunia et D. N. Bose, "*Schottky barrier studies on single crystal ZnTe and determination of interface index*", *Journal of Applied Physics* (2000), vol. 87, no. 6, pp. 2931–2935.

[47] W. Maślana, P. Kossacki, M. Bertolini, H. Boukari, D. Ferrand, S. Tatarenko, J. Cibert, et J. A. Gaj, "*p-type doping of II–VI heterostructures from surface states : Application to ferromagnetic* $Cd_{1-x}Mn_xTe$ *quantum wells*", *Applied Physics Letters* (2003), vol. 82, no. 12, pp. 1875–1877.

[48] A. Golnik, J. Ginter, et J. A. Gaj, "*Magnetic polarons in exciton luminescence of* $Cd_{1-x}Mn_xTe$", *Journal of Physics C : Solid State Physics* (1983), vol. 16, pp. 6073–6084.

[49] G. Mackh, W. Ossau, D. R. Yakovlev, A. Waag, G. Landwehr, R. Hellmann, et E. O. Göbel, "*Localized exciton magnetic polarons in* $Cd1 - xMnxTe$", *Phys. Rev. B* (1994), vol. 49, pp. 10248–10258.

[50] T. Dietl et J. Spałek, "*Effect of thermodynamic fluctuations of magnetization on the bound magnetic polaron in dilute magnetic semiconductors*", *Phys. Rev. B* (1983), vol. 28, pp. 1548–1563.

[51] A. V. Kavokin et K. V. Kavokin, "*Theory of two-dimensional magnetic polarons in an external magnetic field*", *Semiconductor Science and Technology* (1993), vol. 8, pp. 191–196.

[52] J. Seufert, G. Bacher, M. Scheibner, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, et J. K. Furdyna, "*Dynamical Spin Response in Semimagnetic Quantum Dots*", *Phys. Rev. Lett.* (2001), vol. 88, p. 027402.

[53] T. Dietl, P. Peyla, W. Grieshaber, et Y. Merle d'Aubigné, "*Dynamics of Spin Organization in Diluted Magnetic Semiconductors*", *Phys. Rev. Lett.* (1995), vol. 74, pp. 474–477.

[54] J. Seufert, M. Scheibner, G. Bacher, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, et J. K. Furdyna, "*Dynamics of zero-dimensional excitons in a semimagnetic environment*", *phys. stat. sol.* (2002), vol. 229, pp. 727–731.

[55] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. See, I. Farrer, D. A. Ritchie, et A. J. Shields, "*Time-resolved studies of single quantum dots in magnetic fields*", *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures* (2004), vol. 21, no. 2-4, pp. 381 – 384. Proceedings of the Eleventh International Conference on Modulated Semiconductor Structures.

[56] S.Moehl, *Etude des propriétés optiques de boîtes quantiques semiconductrices II-VI pour leur application à l'émission à un photon à haute température.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2005.

[57] S. Mackowski, T. Gurung, H. E. Jackson, L. M. Smith, G. Karczewski, et J. Kossut, "*Exciton-controlled magnetization in single magnetic quantum dots*", *Applied Physics Letters* (2005), vol. 87, no. 7, p. 072502.

[58] G. Bacher, H. Schömig, M. K. Welsch, S. Zaitsev, V. D. Kulakovskii, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, J. K. Furdyna, B. König, et W. Ossau, "*Optical spectroscopy on individual CdSe/ZnMnSe quantum dots*", *Applied Physics Letters* (2001), vol. 79, no. 4, pp. 524–526.

[59] P. S. Dorozhkin, V. D. Kulakovskii, A. V. Chernenko, A. S. Brichkin, S. V. Ivanov, et A. A. Toropov, "*Controlling magnetic moment and its fluctuations in individual semimagnetic quantum dots with different exchange interactions*", *Applied Physics Letters* (2005), vol. 86, no. 6, p. 062507.

[60] M. Blume et R. Orbach, "*Spin-Lattice Relaxation of S-State Ions :* $Mn2+$ *in a Cubic Environment*", *Phys. Rev.* (1962), vol. 127, pp. 1587–1592.

[61] R. Orbach et M. Blume, "*Spin-Lattice Relaxation in Multilevel Spin Systems*", *Phys. Rev. Lett.* (1962), vol. 8, pp. 478–480.

[62] Jagdeep Shah, A. Pinczuk, A. C. Gossard, et W. Wiegmann, "*Energy-Loss Rates for Hot Electrons and Holes in GaAs Quantum Wells*", *Phys. Rev. Lett.* (1985), vol. 54, pp. 2045–2048.

[63] C. H. Yang, Jean M. Carlson-Swindle, S. A. Lyon, et J. M. Worlock, "*Hot-Electron Relaxation in GaAs Quantum Wells*", *Phys. Rev. Lett.* (1985), vol. 55, pp. 2359–2361.

[64] S. Das Sarma, J. K. Jain, et R. Jalabert, "*Hot-electron relaxation in GaAs quantum wells*", *Phys. Rev. B* (1988), vol. 37, pp. 1228–1230.

[65] A. J. Vickers, "*Electron power loss in* $AlxGa1 - xAs/GaAs$ *quantum wells at intermediate electron temperatures*", *Phys. Rev. B* (1992), vol. 46, pp. 13313–13318.

[66] B. König, I. A. Merkulov, D. R. Yakovlev, W. Ossau, S. M. Ryabchenko, M. Kutrowski, T. Wojtowicz, G. Karczewski, et J. Kossut, "*Energy transfer from photocarriers into the magnetic ion system mediated by a two-dimensional electron gas in (Cd,Mn)Te/(Cd,Mg)Te quantum wells*", *Phys. Rev. B* (2000), vol. 61, pp. 16870–16882.

[67] V. D. Kulakovskii, M. G. Tyazhlov, A. I. Filin, D. R. Yakovlev, A. Waag, et G. Landwehr, "*Hierarchy of relaxation times in the system of Mn-ion spins in photoexcited semimagnetic quantum wells*", *Phys. Rev. B* (1996), vol. 54, pp. R8333–R8336.

[68] M. G. Tyazhlov, A. I. Filin, A. V. Larionov, V. D. Kulakovskii, D. R. Yakovlev, A. Waag, et G. Landwehr, "*Spin relaxation of Mn ions in (Cd,Mn)Te/(Cd,Mg)Te quantum wells under picosecond optical pumping*", *JETP* (1997), vol. 85, pp. 784–796.

[69] M. G. Tyazhlov, V. D. Kulakovskii, A. I. Filin, D. R. Yakovlev, A. Waag, et G. Landwehr, "*Mn spin domains in highly photoexcited (Cd,Mn)Te/(Cd,Mg)Te quantum wells*", *Phys. Rev. B* (1999), vol. 59, pp. 2050–2056.

[70] F. Teppe, M. Vladimirova, D. Scalbert, T. Wojtowicz, et J. Kossut, "*Optically induced instability of spin precession in magnetic quantum wells*", *Phys. Rev. B* (2003), vol. 67, p. 033304.

[71] M. Vladimirova, D. Scalbert, et C. Misbah, "*Pattern formation in paramagnetic diluted magnetic semiconductors*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2005), vol. 71, no. 23, p. 233203.

[72] T. Strutz, A. M. Witowski, et P. Wyder, "*Spin-lattice relaxation at high magnetic fields*", *Phys. Rev. Lett.* (1992), vol. 68, pp. 3912–3915.

[73] C.Cohen-Tannoudji, B.Diu, et F.Laloe, *Mécanique quantique tome 1/2*. Hermann, 1986 ed., 1973.

[74] F. V. Kyrychenko et J. Kossut, "*Diluted magnetic semiconductor quantum dots : An extreme sensitivity of the hole Zeeman splitting on the aspect ratio of the confining potential*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2004), vol. 70, no. 20, p. 205317.

[75] M. Tadic, F. M. Peeters, et K. L. Janssens, "*Effect of isotropic versus anisotropic elasticity on the electronic structure of cylindrical* $InP/In0.49Ga0.51P$ *self-assembled quantum dots*", *Phys. Rev. B* (2002), vol. 65, p. 165333.

[76] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault, et H. Mariette, "*Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped self-assembled quantum dots*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2007), vol. 76, no. 4, p. 045331.

[77] P. Wojnar, J. Suffczyński, K. Kowalik, A. Golnik, G. Karczewski, et J. Kossut, "*Microluminescence from Cd[sub 1 - x]Mn[sub x]Te magnetic quantum dots containing only a few Mn ions*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2007), vol. 75, no. 15, p. 155301.

[78] D. Scalbert, J. Cernogora, et C. Benoit A La Guillaume, "*Spin-lattice relaxation in paramagnetic CdMnTe*", *Solid State Communications* (1988), vol. 66, no. 6, pp. 571 – 574.

[79] A. V. Scherbakov, A. V. Akimov, D. R. Yakovlev, W. Ossau, G. Landwehr, T. Wojtowicz, G. Karczewski, et J. Kossut, "*Spin-lattice relaxation in semimagnetic CdMnTe/CdMgTe quantum wells*", *Phys. Rev. B* (2000), vol. 62, pp. R10641–R10644.

[80] D. Keller, D. R. Yakovlev, B. König, W. Ossau, Th. Gruber, A. Waag, L. W. Molenkamp, et A. V. Scherbakov, "*Heating of the magnetic ion system in (Zn, Mn)Se/(Zn, Be)Se semimagnetic quantum wells by means of photoexcitation*", *Phys. Rev. B* (2001), vol. 65, p. 035313.

[81] M. K. Kneip, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. A. Maksimov, I. I. Tartakovskii, D. Keller, W. Ossau, L. W. Molenkamp, et A. Waag, "*Direct energy transfer from photocarriers to Mn-ion system in II-VI diluted-magnetic-semiconductor quantum wells*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2006), vol. 73, no. 3, p. 035306.

[82] A. V. Akimov, A. V. Scherbakov, D. R. Yakovlev, I. A. Merkulov, M. Bayer, A. Waag, et L. W. Molenkamp, "*Multiple transfer of angular momentum quanta from a spin-polarized hole to magnetic ions in Zn[sub 1 - x]Mn[sub x]Se/Zn[sub 1 - y]Be[sub y]Se quantum wells*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2006), vol. 73, no. 16, p. 165328.

[83] A. V. Scherbakov, D. R. Yakovlev, A. V. Akimov, I. A. Merkulov, B. König, W. Ossau, L. W. Molenkamp, T. Wojtowicz, G. Karczewski, G. Cywinski, et J. Kossut, "*Acceleration of the spin-lattice relaxation in diluted magnetic quantum wells in the presence of a two-dimensional electron gas*", *Phys. Rev. B* (2001), vol. 64, p. 155205.

[84] G. Bastard et L. L. Chang, "*Spin-flip relaxation time of conduction electrons in* $Cd1 - xMnxTe$ *quantum wells*", *Phys. Rev. B* (1990), vol. 41, pp. 7899–7902.

[85] M. K. Kneip, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. A. Maksimov, I. I. Tartakovskii, D. Keller, W. Ossau, L. W. Molenkamp, et A. Waag, "*Spin-lattice relaxation of Mn ions in ZnMnSe/ZnBeSe quantum wells measured under pulsed photoexcitation*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2006), vol. 73, no. 4, p. 045305.

[86] L. Besombes, Y. Leger, J. Bernos, H. Boukari, H. Mariette, J. P. Poizat, T. Clement, J. Fernández-Rossier, et R. Aguado, "*Optical probing of spin fluctuations of a single paramagnetic Mn atom in a semiconductor quantum dot*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2008), vol. 78, no. 12, p. 125324.

[87] A. V. Koudinov, Yu. G. Kusrayev, et I. G. Aksyanov, "*Light-induced heating effects in semimagnetic quantum wells*", *Phys. Rev. B* (2003), vol. 68, p. 085315.

[88] A. V. Akimov, A. V. Scherbakov, A. L. Zhmodikov, V. P. Kochereshko, D. R. Yakovlev, W. Ossau, G. Landwehr, T. Wojtowicz, G. Karczewski, et J. Kossut, "*Luminescence detection of nonequilibrium phonons in* $CdTe/Cd0.6Mn0.4Te$ *semimagnetic quantum wells*", *Phys. Rev. B* (1997), vol. 56, pp. 12100–12103.

[89] A. V. Scherbakov, A. V. Akimov, D. R. Yakovlev, W. Ossau, A. Waag, G. Landwehr, T. Wojtowicz, G. Karczewski, et J. Kossut, "*Heating of the spin system by nonequilibrium phonons in semimagnetic (Cd,Mn,Mg)Te quantum wells*", *Phys. Rev. B* (1999), vol. 60, pp. 5609–5616.

[90] A. Hundt, J. Puls, A. V. Akimov, Y. H. Fan, et F. Henneberger, "*Photocarrier-induced spin heating and spin-lattice relaxation in diluted magnetic Stranski-Krastanov quantum dots*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2005), vol. 72, no. 3, p. 033304.

[91] A. Vasanelli, R. Ferreira, et G. Bastard, "*Continuous Absorption Background and Decoherence in Quantum Dots*", *Phys. Rev. Lett.* (2002), vol. 89, p. 216804.

[92] V. Bindilatti, E. ter Haar, N. F. Oliveira, Y. Shapira, et M. T. Liu, "*Distant-Neighbor Exchange Constants in Dilute Magnetic Semiconductors*", *Phys. Rev. Lett.* (1998), vol. 80, pp. 5425–5428.

[93] V. Bindilatti, E. ter Haar, Jr. N. F. Oliveira, Y. Shapira, et M. T. Liu, "*Distant-neighbor exchange constants in Mn-based dilute magnetic semiconductors*", *Journal of Applied Physics* (1999), vol. 85, no. 8, pp. 5950–5952.

[94] P.-F. Braun, B. Urbaszek, T. Amand, X. Marie, O. Krebs, B. Eble, A. Lemaitre, et P. Voisin, "*Bistability of the nuclear polarization created through optical pumping in In[sub 1 - x]Ga[sub x]As quantum dots*", *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* (2006), vol. 74, no. 24, p. 245306.

[95] A. I. Tartakovskii, T. Wright, A. Russell, V. I. Fal'ko, A. B. Van'kov, J. Skiba-Szymanska, I. Drouzas, R. S. Kolodka, M. S. Skolnick, P. W. Fry, A. Tahraoui, H.-Y. Liu, et M. Hopkinson, "*Nuclear Spin Switch in Semiconductor Quantum Dots*", *Physical Review Letters* (2007), vol. 98, no. 2, p. 026806.

[96] M.Goryca, D.Ferrand, P.Kossacki, M.Nawrocki, W.Pacuski, W.Maslana, S.Tatarenko, et J.cibert, "*Anisotropy dependent magnetization relaxation in CdMnTe quantum wells*", *phys.stat.sol.(b)* (2006), vol. 243, no. 4, pp. 882–886.

[97] M.Goryca, P.Kossacki, D.Ferrand, M.Nawrocki, W.Pacuski, W.Maslana, S.Tatarenko, et J.cibert, "*Anisotropy dependent magnetization relaxation in CdMnTe quantum wells*", *phys.stat.sol.(b)* (2006), vol. 3, no. 12, pp. 4094–4097.

[98] M. Goryca, D. Ferrand, P. Kossacki, M. Nawrocki, W. Pacuski, W. Maślana, J. A. Gaj, S. Tatarenko, J. Cibert, T. Wojtowicz, et G. Karczewski, "*Magnetization Dynamics Down to a Zero Field in Dilute (Cd,Mn)Te Quantum Wells*", *Physical Review Letters* (2009), vol. 102, no. 4, p. 046408.

[99] M.Bonfim, *Micro bobines à champ pulsé : applications aux champs forts et à la dynamique de renversement de l'aimantation à l'échelle de la nanoseconde par effet Kerr et Dichroisme Circulaire Magnétique de rayons X.* Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2001.

[100] D.Scalbert, *phys.stat.sol.(b)* (1996), vol. 193, p. 189.

[101] Curt Wittig, "*The Landau-Zener Formula*", *The Journal of Physical Chemistry B* (2005), vol. 109, no. 17, pp. 8428–8430.

Résumé

Nous avons étudié la dynamique de spins de Mn dans des boîtes et des puits quantiques magnétiques II-VI, et mis en évidence que la dynamique complexe de ces Mn est régie par leur couplage avec les différentes excitations du solide. L'influence de l'environnement a notamment été explorée en fonction de la dimensionnalité des structures étudiées, de leur concentration en Mn ou du champ magnétique appliqué. Nous avons montré qu'en fonction de la valeur de ces variables, le couplage d'une des excitations du solide avec les Mn prend généralement le pas sur les autres. Grâce à des études de micro-spectroscopie magnéto-optique de boîtes quantiques magnétiques, nous avons d'abord mis en exergue l'influence des porteurs photocréés au voisinage des boîtes sur la dynamique des Mn. Ces porteurs génèrent un effet de chauffage des Mn via un mécanisme de flip-flop entre porteurs et Mn, contrôlé par une boucle de rétroaction positive. De plus, cet effet est d'autant plus important que le champ magnétique et la concentration en Mn sont faibles et que les dimensions du système sont petites. Ensuite, le développement expérimental d'une technique de "fort" champ magnétique pulsé nous a permis de sonder optiquement la dynamique des Mn dans des puits quantiques magnétiques. Ceci a permis d'observer une dynamique très rapide des Mn, en champ magnétique nul ou au voisinage, et à faible concentration en Mn. Cette dynamique, encore mal comprise, semblerait être liée à l'évolution, pendant l'impulsion de champ, de Mn isolés dont la structure énergétique interne est complexe à cause de l'interaction hyperfine et des contraintes.

Mots-clés: boîte quantique, puits quantique, semi-conducteur magnétique dilué, dynamique de spin, micro-spectroscopie, magnéto-optique, champ magnétique pulsé

Abstract

We studied Mn spin dynamics in II-VI magnetic quantum wells and quantum dots and we showed the complex dynamics of these Mn is driven by their coupling to different solid excitations. The environment importance has been investigated while varying the studied structures dimensionality, their Mn concentration or the applied magnetic field. We demonstrate that depending on these variables values, the coupling of one of the solid excitations with the Mn generally overcomes the other ones. Thanks to magneto-optical micro-spectroscopic studies of magnetic quantum dots, we first proved the influence of photocreated carriers in the vicinity of quantum dots over the Mn dynamics. These carriers induce a heating effect due to a flip-flop mechanism between carriers and Mn, and controlled by a positive feedback loop. Moreover, this effect is all the more important than magnetic field and Mn concentration are low and than system dimensions are small. Then, the experimental development of a "high" pulsed magnetic field technique allowed us to optically probe the Mn dynamics in magnetic quantum wells. This results in the observation of a very fast Mn dynamics, under zero or low magnetic field, and for low Mn concentration. This dynamics, not well understood yet, seems to be due to the evolution, during the field pulse, of isolated Mn whose internal energetic structure is complex because of hyperfine interaction and strains.

Keywords: quantum dot, quantum well, diluted magnetic semi-conductor, spin dynamics, micro-spectroscopy, magneto-optics, pulsed magnetic field