

# Étude en magnéto-absorption de puits quantiques semimagnétiques CdMnTe / CdMgTe en présence d'un gaz d'électrons bidimensionnel - Phénomènes de ségrégation aux interfaces CdTe / CdMnTe

Aristide Lemaitre

## ▶ To cite this version:

Aristide Lemaitre. Étude en magnéto-absorption de puits quantiques semimagnétiques CdMnTe / CdMgTe en présence d'un gaz d'électrons bidimensionnel - Phénomènes de ségrégation aux interfaces CdTe / CdMnTe. Autre [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1999. Français. NNT: . tel-00645513

# HAL Id: tel-00645513 https://theses.hal.science/tel-00645513

Submitted on 28 Nov 2011

**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.

# Groupe de Physique des Solides



# Thèse

#### Présentée à l'Université Pierre et Marie Curie pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université Pierre et Marie Curie Spécialité: Physique des Solides

par

# Aristide LEMAÎTRE

# Étude en magnéto-absorption de puits quantiques semimagnétiques CdMnTe / CdMgTe en présence d'un gaz d'électrons bidimensionnel

### Phénomènes de ségrégation aux interfaces CdTe / CdMnTe

soutenue le 24 novembre 1999 devant le jury composé de :

M. Joël Cibert	Rapporteur
M. Claude DELALANDE	
M. Jan GAJ	
M. Bernard JUSSERAND	Rapporteur
M. Philippe LAVALLARD	

# Remerciements

Je remercie Camille COHEN et Jean KLEIN, directeurs successifs du Groupe de Physique des Solides, de m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire.

Je rends un très chaleureux hommage à Claudette RIGAUX qui a dirigé ce travail. J'ai bénéficié de son expérience, de sa constante disponibilité et de sa grande gentillesse. J'ai apprécié sa rigueur dans la conduite de nos recherches, notamment dans un sujet aussi complexe et original que les puits quantiques dopés. Elle m'a appris, de façon exemplaire, les demarches d'un travail expérimental.

Je remercie vivement Christophe TESTELIN d'avoir participer à l'encadrement de cette thèse. Il a montré pendant le déroulement de ce travail toutes les qualités d'un futur directeur de thèse.

Je remercie Joël CIBERT et Bernard JUSSERAND de s'être intéressés à ce travail, de leurs discussions et d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse. Je dois à Jan GAJ d'avoir initié l'étude du premier sujet de ce travail au GPS. Son séjour dans l'équipe a été pour moi particulièrement enrichissant. Philippe LAVALLARD et Claude DELALANDE. Je remercie ces chercheurs de leurs fructueuses remarques et d'avoir accepté de juger ce travail.

Je dois à Michel MENANT mon apprentissage des techniques cryogéniques qu'il a su m'enseigner avec une redoutable patience devant mon empressement. J'ai apprécié les compétences de Marcin ZIELINSKI avec qui j'ai eu le plaisir de faire mes premières armes expérimentales sur les composés semimagnétiques. Frédéric BERNARDOT m'a donné de précieux conseils de pédagogie dans la présentation de mes travaux. Je les remercie, tous trois, de la sympathique ambiance qu'ils ont su insuffler dans l'équipe.

Les résultats expérimentaux, présentés dans ce mémoire, n'auraient pas été aussi remarquables sans les échantillons d'une excellente qualité qu'a réalisé Grzegorz KARCZEWSKI de l'Institut de Physique de l'Académie des Sciences de Varsovie. Je lui en suis grandement reconnaissant.

Que soient remerciés, pour les moyens expérimentaux qu'ils ont mis en œuvre : Jean-Pierre VIEREN, de l'École Normale Supérieure, qui a réalisé les contacts ohmiques, les mesures de magnéto-transport et de résonance cyclotron ; Marek POTEMSKI du LCMI, Grenoble, qui a mis à notre disposition sa bobine 14 T ; son thésitif Francisco TERAN avec qui j'ai réalisé les mesures jusqu'à une heure tardive ; Petra DENK du L2M, Bagneux, qui a réalisé les masques par lithographie des barres de Hall ; Annie FLEURY qui m'a ouvert les portes de la salle blanche au GPS ; et Izio ROSENMAN du GPS qui m'a donné l'accès au SQUID. Je remercie aussi Andrzej MYCIELSKI de l'Institut de Physique de Varsovie de m'avoir fourni la recette de la sauce pour l'attaque chimique sélective du substrat de GaAs.

Je suis pleinement redevable à Abdelwahad GHAZALI du temps qu'il m'a consacré

pour de nombreuses discussions et une lecture *très* attentive de mon manuscrit. Il possède toutes les qualités qu'un expérimentateur peut espérer d'un théoricien : ouverture, disponibilité, pédagogie... Je tiens aussi à remercier Claude BENOÎT à la GUILLAUME et Gérald BASTARD pour les différentes discussions que nous avons eues sur les aspects théoriques et expérimentaux de ce travail.

Je suis grandement réconnaissant à Jean-Michel GÉRARD et à Richard PLANEL de m'avoir accueilli comme scientifique du contingent au CNET/Bagneux et au L2M après ma deuxième année de thèse. Cette année, passée sur un bâti d'épitaxie par jets moléculaires, a été d'un apport irremplaçable pour la poursuite de ma thèse. J'ai grandement bénéficié du contact scientifique et humain de ces deux chercheurs. Mon initiation à l'épitaxie n'aurait pu être aussi agréable sans le concours aussi chaleureux de Véronique THIERRY-MIEG. J'ai eu grand plaisir à collaborer avec Bruno GAYRAL, thésitif au CNET/Bagneux.

Je remercie tous les permanents du GPS, du CNET et du L2M pour les discussions, leurs aides expérimentales, et leurs contacts amicaux. Je pense notamment à O. BETBEDER, M. CHAMARRO, M. COMBESCOT, F. GIRES, C. GOURDON, R. GROUSSON, V. VOLIOTIS, J.-C. HARMAND et I. SAGNES. J'ai eu la chance de cotoyer dans ces laboratoires de bien sympathiques thésitifs, entre autres : J. BELLESSA, M. DIB, S. LEBIB, D. MARTINS, C. SIGEL et T. RIVIERA.

# Sommaire

Ι	Intr	oducti	ion	<b>7</b>
	Les	semicor	nducteurs semimagnétiques	8
		1.	Structure de bande	8
		2.	Interaction d'échange $sp - d$	9
		3.	Magnétisme des ions Manganèse - Interactions $d - d$	10
II	Étu	de des	interfaces	15
	А.	Interfa	aces imparfaites — Effet extrinsèque	18
		1.	De la rugosité	18
		2.	De l'interdiffusion	19
		3.	De la ségrégation de surface	19
	В.	Aimar	ntation aux interfaces — Effet intrinsèque	24
		1.	Modèle de l'aimantation locale	24
		2.	Effet Zeeman des porteurs confinés	28
	С.	Résult	ats expérimentaux	29
		1.	Échantillons	29
		2.	Expériences	30
		3.	Évidence expérimentale de la ségrégation	33
		4.	Modélisation et discussion	38
		5.	Interdiffusion par recuit	41
II	I Effe	ets exci	itoniques dans un gaz d'électrons bidimensionnel	<b>45</b>
	А.	Travaı	ux antérieurs dans les composés II-VI	48
		1.	L'exciton chargé négativement	48
		2.	L'exciton combiné à une résonance cyclotron	52
		3.	Fortes densités (~ $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )	52
	В.	Résult	ats expérimentaux	57
		1.	Structure	57
		2.	Mesure de la densité électronique – Effet Shubnikov-de Haas .	57
		3.	Résonance cyclotron dans l'infrarouge lointain	59
		4.	Magnétotransmission dans l'infrarouge proche	62
	С.	Modèl	e et discussion	74
		1.	Interaction coulombienne électron-trou	74
		2.	Interaction d'échange électron-électron	81
		3.	Analyse des résultats expérimentaux	85
		4.	Importance de l'effet d'échange électron-électron	94

1	•	
ł	٦	
J	J	

C	onclusion		97
$\mathbf{A}$	nnexe		99
$\mathbf{A}$	Méthodes	magnétooptiques	99
	1.	Le tenseur diélectrique	. 99
	2.	Spectres expérimentaux	. 100
	3.	Structure multicouche	. 102
	4.	Mesures d'effet Kerr	. 102
Bi	ibliographie		104

# Chapitre I

# Introduction

Les semiconducteurs semimagnétiques II-VI forment une famille de composés pour lesquels une partie des cations a été remplacée par des ions d'un élement de transition.

Leur originalité résulte dans la présence de moments magnétiques localisés sur la couche 3d incomplète de l'élément de transition. L'interaction d'échange entre les électrons délocalisés et ces moments magnétiques est responsable d'un effet Zeeman géant des bandes de valence et de conduction. Celle-ci se traduit notamment par des propriétés magnéto-optiques spectaculaires (rotation Faraday, effet Zeeman géant de la transition excitonique...).

Cette propriété confère aux semiconducteurs semimagnétiques un atout particulièrement appréciable dans l'étude des propriétés électroniques et optiques des hétérostructures semiconductrices. Ce travail en illustre deux applications fort différentes : la caractérisation des interfaces et l'étude des effets excitoniques dans un gaz d'électrons bidimensionnel dans des puits quantiques.

Dans la première partie nous montrons comment ces composés peuvent nous renseigner sur les propriétés structurales des hétérostuctures. La compréhension des mécanismes qui les gouvernent est essentielle pour envisager la réalisation de structures de très haute qualité. Ce travail a été consacré, en particulier, à la caractérisation des interfaces d'une série de puits quantiques asymétriques  $Cd_{1-x}Mn_xTe/CdTe / Cd_{1-y}Mg_yTe$ . L'interface semimagnétique CdMnTe / CdTe est sondée sous champ magnétique par l'effet Zeeman de la transition fondamentale excitonique des porteurs confinés dans le puits. Cette technique, très simple à mettre en œuvre, donne une description précise de la dilution des ions  $Mn^{2+}$  à proximité de l'interface. Elle met en évidence le mécanisme de ségrégation aux interfaces qui résulte du mélange des atomes entre deux monocouches adjacentes lors de la croissance.

La deuxième partie, plus novatrice, est consacrée à l'étude des propriétés magnétooptiques de puits semimagnétiques  $Cd_{1-y}Mg_yTe / Cd_{1-x}Mn_xTe / Cd_{1-y}Mg_yTe$  dopés n, asymétriquement, par modulation. Les résultats que nous présentons ici ont été obtenus pour une gamme de dopage  $(2.10^{11} \text{ cm}^{-2})$  jusqu'à présent peu explorée. Elle est néanmoins d'un grand intérêt tant les phénomènes excitoniques sont importants dans les composés II-VI. Les effets spectaculaires (comme l'identification de l'exciton chargé [1]) rapportés récemment pour les dopages plus faibles (quelques  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup>) préfigurent la richesse des résultats que nous devrions attendre de telles études. La découverte de nouveaux phénomènes quantiques comme l'effet Hall quantique fractionnaire [2] ou la cristallisation de Wigner [3] dans les semiconducteurs III-V motive d'autant plus l'exploration de ces propriétés.

Dans ce contexte, les puits quantiques semimagnétiques sont d'un intérêt remarquable : le couplage du gaz de porteurs avec les moments magnétiques des ions  $Mn^{2+}$  offre alors un vaste champ d'étude. La transition ferromagnétique observée récemment dans un puits CdMnTe dopé p en est une illustration convaincante [4].

Dans les puits de CdMnTe que nous avons étudiés, ce couplage nous permet de modifier les populations relatives de spin du gaz d'électrons, jusqu'à sa polarisation complète à un champ magnétique relativement faible. Cette propriété simplifie considérablement l'interprétation des spectres expérimentaux en découplant les mécanismes dépendant et indépendant du spin des électrons. Nous avons pu mettre ainsi en évidence une série de phénomènes originaux dans les spectres de magnétoabsorption à basse température qui confirment l'importance des effets excitoniques en présence d'un gaz de porteurs, même relativement dense, et mettent en évidence l'apparition d'effets à N corps.

## Les semiconducteurs semimagnétiques

Nous rappelons brièvement les propriétés électroniques, optiques et magnétiques du composé  $Cd_{1-x}Mn_xTe$  [5] ainsi que les principales caractéristiques du composé non magnétique  $Cd_{1-y}Mg_yTe$  utilisé comme matériau barrière.

#### 1. Structure de bande

Le semiconducteur semimagnétique  $\operatorname{Cd}_{1-x}\operatorname{Mn}_x\operatorname{Te}$  cristallise dans le réseau cubique de la blende de Zinc pour des concentrations inférieures à 77 % (jusqu'à 100 %, par épitaxie sur substrat blende de Zinc). Le réseau est constitué de deux sous-réseaux cubiques à faces centrées, décalés d'un quart de la diagonale du cube. Les atomes de Te occupent l'un des sous-réseaux, l'autre étant occupé aléatoirement par des atomes de Cadmium ou de Manganèse. Le paramètre de maille est de 6, 48 - 0, 141x Å. Les électrons délocalisés du Te  $(5s^25p^4)$ , du Cd  $(5s^2)$  et du Manganèse  $(4s^2)$  forment les bandes de valence et de conduction. La périodicité, brisée par la disposition aléatoire des ions Mn, est rétablie dans l'approximation du cristal virtuel.

Les extremums des bandes se situent au centre de la première zone de Brillouin (au point  $\Gamma$ ) (figure I.1). À champ magnétique nul, la bande de conduction ( $\Gamma_6$ ), de symétrie *s*, est dégénérée deux fois (J = 1/2). Le couplage spin-orbite scinde les états de la bande de valence, de symétrie *p*, en un quadruplet  $\Gamma_8$  (J = 3/2), qui forme les bandes de trous lourds ( $m_J = \pm 3/2$ ) et de trous légers ( $m_J = \pm 1/2$ ), et en un doublet  $\Gamma_7$  (J = 1/2) de plus basse énergie [6, 7, 8]. L'énergie d'interaction spin-



FIG. I.1: Structure de bande au voisinage du point  $\Gamma$  du CdMnTe massif.

orbite  $\Delta_{so} = E_{\Gamma_8} - E_{\Gamma_7} = 930 \text{ meV}$  (dans CdTe). La largeur de la bande interdite croît linéairement avec la composition  $E_g = E_{\Gamma_6} - E_{\Gamma_8} = 1606 + 1592x \text{ meV}$  [9]. Les électrons de la couche incomplète  $3d^5$  de l'élément de transition sont localisés

Les électrons de la couche incomplète  $3d^5$  de l'élément de transition sont localisés au voisinage des ions Mn<sup>2+</sup>. L'état fondamental de l'ion libre est le multiplet  ${}^{6}S_{5/2}$ avec L = 0 et S = 5/2, six fois dégénéré. Dans la matrice CdTe, ni le champ cristallin, ni le couplage spin-orbite ne lèvent cette dégénéréscence. Les ions Mn<sup>2+</sup> présentent un comportement paramagnétique du type Brillouin. Le facteur de Landé  $g_{Mn} = 2$  [10].

Le composé  $\operatorname{Cd}_{1-y}\operatorname{Mg}_y$  Te est utilisé comme matériau barrière. L'ion  $\operatorname{Mg}^{2+}$  est un élement de la colonne II<sub>A</sub>. Sa largeur de bande interdite, qui varie rapidement avec la concentration ( $E_g = 1606 + 1592y$  meV), en fait un matériau très adapté aux forts confinements.

#### 2. Interaction d'échange sp - d

L'interaction d'échange entre les électrons délocalisés et les ions magnétiques est responsable de l'effet Zeeman géant des états électroniques de valence et de conduction en champ magnétique.

Elle est décrite par un hamiltonien du type Heisenberg [11, 12]:

$$H_{sp-d} = \sum_{\mathbf{R_i}} J_{sp-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R_i}) \mathbf{S_i}.\boldsymbol{\sigma}$$

 $J_{sp-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i)$  est l'interaction d'échange entre le moment magnétique de l'ion Mn<sup>2+</sup>  $\mathbf{S}_i$  en  $\mathbf{R}_i$  et le spin de l'électron  $\boldsymbol{\sigma}$  en  $\mathbf{r}$ .  $J_{sp-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i)$  varie rapidement à l'échelle de la cellule unité.

Dans l'approximation du champ moyen, proposée par Gaj, Planel et Fishman [12], les spins des ions magnétiques sont remplacés par leur moyenne thermodynamique et spatiale  $\langle \mathbf{S} \rangle$ . Soit

$$H_{sp-d} = x \sum_{\mathbf{R}_{\mathbf{i}}} J_{sp-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{\mathbf{i}}) \langle \mathbf{S} \rangle . \boldsymbol{\sigma}$$

où la somme est maintenant étendue à tous les sites du sous-réseau des cations.

Si le champ magnétique est appliqué suivant l'axe Oz

$$H_{sp-d} = x \sum_{\mathbf{R}_{\mathbf{i}}} J_{sp-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{\mathbf{i}}) \langle S_z \rangle \sigma_z \quad \text{et } \langle S_x \rangle = \langle S_y \rangle = 0$$

Dans la base des fonctions d'onde  $|J,m_J\rangle$  des états électroniques, les éléments de matrice sont

$$H_{sp-d}^{\Gamma_{6}} = \begin{bmatrix} A & 0 \\ 0 & -A \end{bmatrix}$$
$$H_{sp-d}^{\Gamma_{8}} = \begin{bmatrix} 3B & 0 & 0 & 0 \\ 0 & B & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -B & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -3B \end{bmatrix}$$
$$H_{sp-d}^{\Gamma_{7}} = \begin{bmatrix} B & 0 \\ 0 & -B \end{bmatrix}$$

où  $A = \frac{1}{2}N_0\alpha x \langle S_z \rangle$  et  $B = \frac{1}{6}N_0\beta x \langle S_z \rangle$ .  $N_0\alpha$  et  $N_0\beta$  sont respectivement les intégrales d'échange des bandes s et p.  $N_0$  est le nombre de cellules par unité de volume.

Le couplage est ferromagnétique entre les spins des électrons s et d alors qu'il est antiferromagnétique pour les électrons p et d. Dans CdMnTe [12],

$$N_0 \alpha = +0,22 \text{ eV}$$
$$N_0 \beta = -0,88 \text{ eV}$$

L'effet du champ magnétique est donc de lever la dégénéres cence des bandes de valence et de conduction. Les interactions sp-d sont si fortes dans les composés semimagnétiques que l'on emploie le terme d'« effet Zeeman géant ». Il peut atteindre pour la bande de valence 100 meV pour un échantillon massif de concentration 17 %.

Les règles de sélection des transitions interbandes en configuration Faraday sont, en polarisation circulaire  $\sigma^+$ ,  $\Delta m_J = +1$  et en  $\sigma^-$ ,  $\Delta m_J = -1$ . Les énergies et les forces d'oscillateur relatives des transitions  $\Gamma_8 \to \Gamma_6$ , en présence de l'interaction d'échange sp - d, sont données dans le tableau I.1.

Pour chaque polarisation circulaire, deux transitions sont permises. Le schéma de la figure I.2 résume ces propriétés magnétooptiques.

#### 3. Magnétisme des ions Manganèse - Interactions d - d

Les moments magnétiques des ions  $Mn^{2+}$  dans la matrice CdTe sont couplés mutuellement, essentiellement par le mécanisme de superéchange [13] (par l'intermédiaire de deux trous de la bande de valence). Cette interaction est antiferromagnétique, à courte portée. Elle est forte entre atomes premiers voisins,  $J_{NN} = -6, 3$  K, puis décroît rapidement ( $J_{NNN} = -1, 3$  K entre atomes deuxièmes voisins).

Transition É		on	Énergie	Polarisation	Probabilité
$\left \frac{3}{2},-\frac{3}{2}\right\rangle$	$\rightarrow$	$ \tfrac{1}{2},-\tfrac{1}{2}\rangle$	$E_g - \frac{1}{2}N_0(\alpha - \beta)x\langle S_z \rangle$	$\sigma^+$	3
$ rac{3}{2},-rac{1}{2} angle$	$\rightarrow$	$\left \frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$	$E_g + \frac{1}{2}N_0(\alpha + \frac{1}{3}\beta)x\langle S_z \rangle$	$\sigma^+$	1
$\left \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\right\rangle$	$\rightarrow$	$ \tfrac{1}{2},-\tfrac{1}{2}\rangle$	$E_g - \frac{1}{2}N_0(\alpha + \frac{1}{3}\beta)x\langle S_z \rangle$	$\sigma^{-}$	1
$\left \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\right\rangle$	$\rightarrow$	$\left \frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$	$E_g + \frac{1}{2}N_0(\alpha - \beta)x\langle S_z \rangle$	$\sigma^{-}$	3

TAB. I.1: Caractéristiques des transitions magnéto-optiques  $\Gamma_8 \to \Gamma_6$  dans un semiconducteur semimagnétique massif.



FIG. I.2: Transitions interbandes en configuration Faraday et en polarisation circulaire  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  sous champ magnétique.

La valeur moyenne  $\langle S_z \rangle$  de chaque ion  $\mathrm{Mn}^{2+}$  est donnée, dans l'approximation de champ moyen, par le modèle d'amas en supposant une distribution aléatoire des ions. Elle est obtenue en pondérant la moyenne thermique  $\langle S_z \rangle_i$  de chaque type d'amas par la probabilité  $P_i(x)$  qu'un spin appartienne à ce type d'amas, soit :

$$\langle S_z \rangle = \sum_i P_i(x) \langle S_z \rangle_i$$

Pour les faibles concentrations de Manganèse (x < 5 %), pour lesquelles la probabilité qu'un ion magnétique appartienne à un amas de plus de trois atomes est négligeable et en ne considérant que les interactions entre plus proches voisins, quatre types d'amas sont à envisager:

- ions isolés un ion est considéré isolé s'il ne côtoie aucun autre ion magnétique sur ses 12 sites premiers voisins. La probabilité qu'un ion  $Mn^{2+}$  soit isolé est donc  $P_1(x) = (1-x)^{12}$ ;
- **paires** à 1,7 K, les paires sont gelées dans leur état fondamental jusqu'à 15 T  $(B < 2|J_{NN}|/g_{Mn}\mu_B)$ . Elles n'apportent aucune contribution à l'aimantation.  $P_2(x) = 12x(1-x)^{18}$ ;

triplets ouverts  $P_O(x) = 18x^2(1-x)^{23}(7-5x);$ 

triplets fermés  $P_F(x) = 24x^2(1-x)^{22}$ .

La moyenne thermodynamique du spin d'un ion isolé  $\langle S_z \rangle_1$  est identique à celle d'un ion libre en présence d'un champ magnétique *B*. Son comportement est paramagnétique, du type Brillouin :

$$\langle S_z \rangle_1 = -SB_S \left( S \frac{g\mu_B B}{k(T+T_0)} \right)$$

où  $B_S(x)$  est la fonction de Brillouin normalisée pour un spin S = 5/2:

$$B_S(x) = \frac{2S+1}{2S} \coth\left(\frac{2S+1}{2S}x\right) - \frac{1}{2S} \coth\left(\frac{1}{2S}x\right)$$

et  $T_0$  est un paramètre phénoménologique qui décrit les interactions entre ions magnétiques à plus longue portée. Il dépend de la concentration en ion  $Mn^{2+}$ .

Le spin moyen d'une paire est nul, soit  $\langle S_z \rangle_2 = 0$ . L'état fondamental en champ magnétique du spin d'un triplet fermé est  $|S, m_S\rangle = |5/2, -5/2\rangle$  et celui d'un triplet ouvert  $|1/2, -1/2\rangle$  (pour  $B < 7|J_{NN}|/g_{Mn}\mu_B$  et  $B < 3|J_{NN}|/g_{Mn}\mu_B$ , respectivement). Les valeurs moyennes du spin de ces amas sont données approximativement par :

$$\langle S_z \rangle_O \simeq \frac{\langle S_z \rangle_1}{3} \text{ et } \langle S_z \rangle_F \simeq \frac{\langle S_z \rangle_1}{15}$$

Ces deux relations ne sont toutefois rigoureuses que lorsque  $\langle S_z \rangle_1$  est saturé.



FIG. I.3: Comparaison du modèle statistique d'amas (équ. I.1) (trait tiré) et de la loi empirique (I.2) (trait plein) dans l'évolution de l'aimantation à saturation  $xS_{\text{eff}}(x)$ (en unité de  $g_{Mn}\mu_B$ ) en fonction de la concentration en ions magnétiques x. La probabilité qu'un ion magnétique appartienne à un amas d'au plus trois premiers voisins est aussi représentée en trait pointillé.

 $\langle S_z \rangle$  est donc donnée, dans  $\operatorname{Cd}_{1-x}\operatorname{Mn}_x\operatorname{Te}$  par;

$$\langle S_z \rangle = -S_{\text{eff}}(x)B_{5/2} \left(\frac{5}{2}\frac{g_{Mn}\mu_B B}{k_B(T+T_0(x))}\right)$$

avec

$$S_{\rm eff}(x) = \frac{5}{2} \left( P_1(x) + \frac{P_0}{3} + \frac{P_F}{15} \right)$$
(I.1)

Cette expression est cependant limitée aux faibles concentrations. Au-delà de 5 %, la probabilité qu'un ion magnétique appartienne à un amas de plus grande taille devient non négligeable. Aussi, Gaj *et al.* [14, 9] ont proposé une loi empirique pour  $S_{\text{eff}}(x)$  et  $T_0(x)$  d'après une série de mesures sur des échantillons massifs  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x$ Te (couches épitaxiées ou monocristaux obtenus par la méthode de Bridgman) pour une large gamme de concentrations jusqu'à  $x_{Mn} = 0, 67$ :

$$S_{\text{eff}}(x) = \frac{5}{2} [0, 265 \exp(-43, 34x) + 0, 735 \exp(-6, 19x)],$$
  

$$T_0(x) = \frac{35, 37}{1 + 2, 752x} x \quad [\text{K}]$$
(I.2)

La comparaison de  $S_{\text{eff}}(x)$  donnée par le modèle statistique et cette loi empirique est montrée sur la figure I.3. On a aussi représenté la probabilité  $\sum_{3} P = P_1 + P_2 + P_O + P_F$  qu'un ion magnétique appartienne à un amas d'au plus trois premiers voisins. L'accord est excellent pour les faibles concentrations, mais se détériore rapidement lorsque la concentration dépasse 5 %, quand le modèle statistique n'est plus valide.

Nous venons d'évoquer les principales caractéristiques des semiconducteurs semimagnétiques massifs. Le chapitre suivant, sur l'étude des interfaces dans les puits quantiques CdTe/CdMnTe donne une introduction aux propriétés des hétérostructures semimagnétiques.

# Chapitre II Étude des interfaces

La perfection des interfaces dans les hétérostructures semiconductrices est limitée par différents mécanismes lors de la croissance : la rugosité associée aux fluctuations de monocouches, l'interdiffusion à haute température de croissance, la ségrégation qui résulte de l'échange d'atomes en surface entre deux monocouches adjacentes... Ces mécanismes influencent fortement les propriétés électroniques et optiques des structures quantiques (puits, superréseaux, etc.). Le processus de ségrégation a été particulièrement étudié dans les semiconducteurs III-V et Si/Ge par une large gamme de méthodes expérimentales : en spectroscopie de surface, par électrons Auger ou photoémission (rayons X et ultraviolet) [15], *in situ* par diffraction d'électrons hautementement énergétiques (RHEED) [16], en microscopie électronique haute résolution [17] ou par effet tunnel [18], en photoluminescence à basse température [19], en diffusion Raman [20]...

Dans les II-VI, les semiconducteurs semimagnétiques se sont révélés être des matériaux de choix pour caractériser la qualité des interfaces par effet Zeeman. Dans un puits non magnétique (CdTe) entouré de barrières semimagnétiques (CdMnTe), les porteurs confinés seront peu sensibles à l'effet Zeeman du puits (où il n'y a pas d'ion magnétique) et des barrières (où la probabilité de présence des porteurs est faible) mais en revanche bien plus sensibles à l'effet Zeeman à proximité des interfaces.

R. Planel a suggéré l'étude de puits quantiques asymétriques semimagnétiques pour mettre en évidence, de façon convaincante, le processus de ségrégation aux interfaces lors de la croissance. Il s'agit de deux puits de CdTe, nominalement identiques, de même largeur et de même composition de barrières. Ils sont asymétriques : une des barrières est constituée d'un matériau semimagnétique (par ex. CdMnTe), l'autre est non magnétique (par ex. CdMgTe). Seul l'ordre de la croissance diffère (figure II.1). Dans le premier cas, la barrière semimagnétique est déposée avant le puits (interface CdTe sur CdMnTe, dite *inverse*). Dans l'autre cas, cette barrière est déposée après le puits (interface CdMnTe sur CdMnTe, *normale*).

L'application d'un champ magnétique perpendiculaire au plan des couches modifie grandement la hauteur de la barrière semimagnétique par effet Zeeman (chapitre I). Les niveaux d'énergie électroniques du puits sont redistribués. A priori, si les interfaces normales et inverses étaient rigoureusement identiques, l'effet Zeeman des transitions excitoniques serait donc le même pour les deux puits quantiques,



FIG. II.1: Croissance des puits quantiques asymétriques

quelle que soit la nature de leur interface. La figure II.2 montre l'effet Zeeman de la transition excitonique du niveau fondamental  $(E_1H_1)$  obtenu, en réflectivité, pour une de nos paires de puits quantiques asymétriques (11 monocouches de largeur) dont la barrière magnétique est riche en Manganèse (47.2 %, une description précise de leurs caractéristiques est donnée par la suite) pour les deux polarisations circulaires. En comparaison nous avons montré l'effet Zeeman *calculé* de la transition excitonique fondamentale d'un puits avec des interfaces parfaites (l'aimantation des barrières est identique à celle d'un échantillon massif de même concentration).

Cette figure amène trois constatations:

- 1. les énergies des transitions expérimentales à champ nul sont bien plus élevées que celle du puits abrupt calculée d'après la largeur nominale donnée par le constructeur;
- 2. l'effet Zeeman expérimental est beaucoup plus grand, quelle que soit la nature de l'interface (inverse ou normale), que celui qui est calculé;
- 3. enfin, l'effet Zeeman expérimental dans les puits diffère suivant l'ordre de croissance de la barrière magnétique. Le puits quantique possédant l'interface inverse montre un effet Zeeman bien plus important (d'un facteur 4, à 5 T) que celui ayant l'interface normale.

La différence d'énergie à champ nul indique un plus fort confinement des porteurs dans les structures réelles. Il résulte très certainement d'une largeur de puits plus faible que celle établie d'après la vitesse de croissance du CdTe, calibrée par les oscillations RHEED. Ce rétrécissement peut, certes, provenir de la réduction, involontaire, des flux de Cd et de Te pendant la croissance (par exemple si la température des cellules n'est pas totalement stabilisée en début de croissance). Cependant, il peut être aussi la conséquence de la dilution des atomes de l'interface dans le puits par le mécanisme de ségrégation ou d'interdiffusion.

Le deuxième point montre une très forte modification de l'aimantation qui ne peut provenir que de l'interface magnétique. Gaj *et al.* [14] ont envisagé deux contributions à ce phénomène : un effet *intrinsèque* qui résulte de la suppression brutale d'une partie des premiers voisins magnétiques des ions Manganèse de l'interface. La



FIG. II.2: Effet Zeeman de la transition excitonique  $E_1H_1$  de deux puits asymétriques : • (resp.  $\circ$ ) : interface normale (CdMnTe sur CdTe);  $\blacksquare$  (resp.  $\Box$ ) : interface inverse (CdTe sur CdMnTe); • (resp.  $\diamond$ ) : effet Zeeman calculé pour des interfaces parfaites, l'aimantation de la barrière étant celle d'un massif de même composition, en polarisation  $\sigma^+$  (resp.  $\sigma^-$ )

réduction des interactions antiferromagnétiques entre ions  $Mn^{2+}$  est ainsi responsable d'une aimantation accrue de l'interface qui se traduit par un effet Zeeman des niveaux confinés plus important. Le second effet, *extrinsèque*, est la dilution des ions Mn de l'interface dans le puits où la probabilité de présence des porteurs est la plus élevée. L'interaction d'échange porteurs – ions Manganèse sera donc plus importante.

Enfin la troisième observation met clairement en évidence une anisotropie se développant suivant l'axe de croissance. Celle-ci est la signature, très probable, de la présence d'un mécanisme de ségrégation responsable la dilution du Manganèse dans le puits.

L'équipe grenobloise du Laboratoire de Spectroscopie Physique de l'université J. Fourier a largement utilisé cette méthode pour mettre en évidence le mécanisme de ségrégation. Leurs résultats expérimentaux montrent, de manière cohérente, le caractère systématique et dominant de ce mécanisme dans différents types d'hétérostructures (puits quantiques ou superréseaux) [21, 14, 9].

Cependant, Schmitt *et al.* [22] de l'université de Würzburg ont rapporté récemment un comportement différent sur une série de puits CdMnTe/CdTe/CdMgTe de faibles largeurs (60-, 24- et 12 Å) qui semble incompatible avec le seul mécanisme de la ségrégation.

Nous avons donc voulu vérifier sur plusieurs séries de puits quantiques de même nature, provenant d'un troisième laboratoire, l'Institut de Physique de l'Académie des Sciences de Varsovie, la qualité des interfaces CdMnTe/CdTe.

Les résultats de nos expériences et notre interprétation sont donnés dans la troisième partie de ce chapitre. Mais il convient auparavant de décrire les différents mécanismes qui interviennent lors de la croissance et altèrent la perfection des interfaces. Puis, dans un second temps, nous présenterons le modèle d'aimantation locale développé par Gaj et coll. [14] pour décrire l'effet Zeeman des porteurs confinés dans le puits quantique.

## A. Interfaces imparfaites — Effet extrinsèque

Trois mécanismes sont principalement responsables de l'altération de la qualité de l'interface. La rugosité, qui se développe dans le plan des couches perpendiculairement à l'axe de croissance, provient de la fluctuation de monocouches à l'interface. La ségrégation et l'interdiffusion résultent toutes deux de l'échange de matière entre couches; elles se manifestent dans la direction de la croissance. La ségrégation, contrairement à l'interdiffusion, est un mécanisme hautement anisotrope. Seules quelques techniques expérimentales comme les mesures RHEED réalisées par J.-M. Gérard [16] ou la microscopie électronique ou l'effet tunnel [17, 18] permettent de mesurer directement le profil de concentration, monocouche par monocouche. Dans la plupart des expériences, notamment par l'étude de l'effet Zeeman, l'interprétation des résultats nécessite un modèle théorique pour construire le profil des interfaces. Il sera donné pour les mécanismes d'interdiffusion et de ségrégation.

#### 1. De la rugosité

La spectroscopie excitonique des puits quantiques montre un élargissement des raies lorsque la largeur des puits diminue. Ce phénomène est révélateur de la rugosité se développant aux interfaces due à la formation de larges îlots (de quelques dizaines à quelques centaines d'angströms de largeur) d'une à deux monocouches de hauteur. Ces terrasses induisent des fluctuations d'épaisseur du puits responsables de l'élargissement des raies excitoniques. Ces fluctuations sont aussi à l'origine de la localisation des excitons. Elle se traduit par un décalage, appelé décalage de Stokes, entre la position énergétique des raies de photoluminescence et d'absorption (ou d'excitation de la luminescence).

On distingue, en spectroscopie excitonique, trois types de rugosité [23, 24]:

- une rugosité à courte échelle, lorsque la taille des îlots est comparable au rayon de Bohr de l'exciton (~ 50–70 Å dans les II-VI). L'interface est dite rugueuse. L'exciton se localise très facilement dans une fluctuation d'interface. Les raies sont larges;
- une rugosité à très courte échelle, quand la taille de îlots est bien inférieure au rayon de Bohr. L'exciton « voit » une largeur de puits moyenne. Les raies sont plus fines que dans le premier cas. L'interface est dite alors pseudo-lisse;
- enfin, sous d'excellentes conditions de croissance (notamment, en réalisant des arrêts de croissance aux interfaces), les terrasses peuvent s'étendre alors sur

plusieurs centaines d'angströms. Les interfaces sont, pour l'exciton, parfaitement *lisses*. Les raies sont extrêmement fines, et les spectres peuvent présenter trois pics associés aux largeurs L et  $L \pm 1$  monocouche dues à cette rugosité à *longue échelle* (L est la largeur du puits).

La rugosité peut difficilement rendre compte du comportement anisotrope observé plus haut. Les deux interfaces, inverse et normale, peuvent effectivement présenter une rugosité différente (comme dans les interfaces GaAs/AlAs et AlAs/GaAs) mais ne peuvent expliquer un tel contraste dans l'effet Zeeman [9].

#### 2. De l'interdiffusion

Dans les hétérostructures II–VI ou III–V, l'interdiffusion en cours de croissance est souvent négligeable aux températures habituelles de croissance. Le transport de matière, activée thermiquement, est en effet peu probable pour ces températures de l'ordre de 280 ° C dans les II–VI à base de Tellure. Grieshaber *et al.* [9] ont observé le phénomène d'interdiffusion pour des échantillons synthétisés au-delà de 310 ° C. Ce transport est isotrope, indépendant du sens de croissance (le coefficient de diffusion est identique pour les interfaces normales et inverses). Le profil est généralement modélisé par la fonction erreur, convolution du profil de composition abrupt par une gaussienne [14] (figure II.3). L'interdiffusion ne permet donc pas d'expliquer



FIG. II.3: Profils de concentration en Manganèse modélisant l'interdiffusion aux interfaces normale et inverse  $Cd_{0,5}Mn_{0.5}Te/CdTe$ . Traits continus : longueur caractéristique d'interdiffusion  $\ell_{Mn}^D = 0,7$  Å. Traits tirets : sans interdiffusion.

l'anisotropie observée dans les puits asymétriques.

Ce mécanisme a été mis en évidence dans des échantillons recuits à haute température. Nous donnerons, en fin de chapitre, les résultats obtenus par Maćkowski *et al.* [25] sur les puits asymétriques objets de notre étude.

#### 3. De la ségrégation de surface

La ségrégation de surface est un mécanisme hautement anisotrope. Elle correspond à l'échange de matière (dans notre cas, d'atomes de Cd et de Mn) entre la dernière couche incorporée et la couche en cours de croissance. Les couches enfouies sont « gelées » et ne participent plus à la ségrégation. Moison [15] décrit très simplement ce processus dans le cas d'une interface B - As sur A - As (où A et B sont des éléments de la III<sup>e</sup> colonne) : pendant le dépôt de la première couche de B - As sur A - As une fraction  $\sigma$  de la monocouche inférieure A migre vers la surface, alors que dans le même temps une fraction identique de la monocouche B en surface est incorporée dans la couche inférieure. Le dépôt d'une troisième monocouche de B - As en surface « fixe » alors la première couche, et ainsi de suite. La composition en élément A de la i-ème monocouche est donc donnée par :

$$\begin{aligned}
x_i &= 1, & i < 0 \\
x_0 &= 1 - \sigma & (\text{II.1}) \\
x_i &= (1 - \sigma) \ \sigma^i = (1 - \sigma) \ \exp(-\frac{z}{\ell_A}), & i > 0
\end{aligned}$$

La fraction  $\sigma$  de matière échangée a été ici supposée constante, quelles que soient les proportions des éléments A et B de la monocouche considérée. Nous verrons plus loin que cette approximation est raisonnable. Les équations II.1 font apparaître une décroissance exponentielle de la concentration de l'élément A, avec une longueur caractéristique  $\ell_A$ , la longueur de dilution reliée à  $\sigma$  par  $\ell_A = -a_0/\ln \sigma$  ( $a_0$  est l'épaisseur d'une monocouche). Pour souligner le caractère anisotrope de la ségrégation, la figure II.4 donne le profil de composition de l'élément  $\mathrm{Mn}^{2+}$  de deux interfaces normale et inverse CdTe/Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te pour x = 0, 5 et une longueur de dilution  $\ell_{Mn} = 4.7$  Å. Dans ce cas, le mélange des ions Mn/Cd entre les deux monocouches de surface est complet ( $\sigma = 0, 5$ ) et le profil de concentration est de la forme x, x/2, x/4, x/8... pour l'interface inverse et de la forme x/2, 3x/4... pour l'interface normale. La constante d'action de masse K que nous verrons plus loin est égale à l'unité.



FIG. II.4: Profil de concentration en Manganèse modélisant la ségrégation pour des interfaces normale et inverse – Traits continus :  $\ell_{Mn} = 4.7$  Å (K = 1), traits tirés : sans ségrégation.

Le premier modèle quantitatif nous vient des métallurgistes [26, 27] qui ont décrit l'équilibre thermodynamique des deux dernières couches de surface. Il a été largement repris, et amélioré pour les semiconducteurs [15, 28, 29]. Récemment Dehease *et al.* [30] ont proposé un modèle cinétique de ségrégation lorsque les conditions de croissance (vitesses de croissance importantes et faible température de substrat) ne permettent pas d'atteindre l'équilibre thermodynamique.

#### Modèle thermodynamique

Ce modèle suppose l'équilibre chimique entre la couche de surface et la couche immédiatement inférieure (incorporée). Il est atteint lorsque les potentiels chimiques du massif (pour la couche incorporée) et de surface sont égaux. La réaction chimique à l'équilibre des deux dernières couches constituées des éléments A et B s'écrit ainsi (en reprenant les notations de Mariette *et al.* [28]):

où  $x_{i,s}$  (resp.  $1 - x_{i,s}$ ) est la composition en élément A (resp. B) dans la couche incorporée (i) ou dans la couche de surface (s).  $x_t$  est la proportion d'éléments Aayant migrés vers la surface (nous verrons plus bas comment  $x_t$  est reliée à la fraction  $\sigma$  introduite par Moison dans l'équation II.1). La constante d'action de masse est donc :

$$K = \frac{(x_s + x_t)(1 - x_i + x_t)}{(x_i - x_t)(1 - x_s - x_t)} = \frac{x_s^{eq} \left(1 - x_i^{eq}\right)}{x_i^{eq} \left(1 - x_s^{eq}\right)}$$
(II.3)

À l'équilibre, K est donnée (Mc Lean [27]) par la loi d'action de masse (II.4) par analogie aux équilibres chimiques des réactions en phase gazeuse ou en solution (voir par ex. [31]).  $E_s$  est un terme phénoménologique d'énergie « chimique » qui exprime la propension d'un atome A à migrer vers la surface en échange d'un atome B (Mariette [28] emploie aussi le terme d'énergie d'activation). Cette forme, inspirée des métallurgistes, a été largement reprise pour la croissance des semiconducteurs III-V (par ex. [15, 19]) ou II-VI (voir [21, 9]) en ajoutant éventuellement à l'exposant un terme d'énergie élastique lorsque la différence des paramètres de maille des matériaux A - C et B - C est trop importante. Mais récemment, Mariette *et al.* [28, 29] ont proposé d'introduire un préfacteur  $K_0$  à l'exponentielle (équ. II.5) arguant que les « phases » atome A dans la couche de surface et atome A dans la couche incorporée ne sont pas de même nature à la différence d'une réaction en phase gazeuse ou en solution diluée. Ils soulignent aussi l'analogie du mécanisme de ségrégation avec échange des atomes A/B avec celui des impuretés dans un semiconducteur, qui est décrit lui aussi avec un préfacteur. K est alors un coefficient de distribution.

$$K = e^{-E_s/k_BT} \qquad \text{Moison } et \ al. \ [15] \tag{II.4}$$

$$K = K_0 e^{-E_s/k_B T} \quad \text{Mariette } et \ al. \ [28] \tag{II.5}$$

Ce choix peut modifier largement l'interprétation de la valeur de  $E_s$ . En effet, dans le cas K = 1 (valeur que nous retrouverons le plus souvent dans nos résultats expérimentaux), lorsque le mélange des élements A et B entre les deux couches est complet,  $E_s = 0$  selon la loi (II.4) utilisée par Moison. L'échange d'un atome Aincorporé et d'un atome B de surface est aussi probable qu'un échange inverse. En revanche, la présence du préfacteur  $K_0$ , différent de l'unité, dans l'expression (II.5) impose, pour K = 0, une valeur non nulle de  $E_s$ , un des deux états est donc plus favorable, mais leur taux d'occupation est identique.

#### Modèle cinétique

Le modèle thermodynamique a cependant été mis en défaut lors de la croissance d'hétérostructures à faible température de substrat : il ne décrit plus les variations de profil avec la température. Dans GaInAs sur GaAs, notamment, ce modèle prévoit une augmentation de la ségrégation de l'Indium vers la surface lorsque la température décroît ( $E_S$  est négative). Expérimentalement, Larive *et al.* [32] ont observé, à l'inverse, que la ségrégation de l'In devenait plus faible lorsque la température du substrat diminuait. Ce comportement suggère l'importance des phénomènes cinétiques négligés dans le modèle thermodynamique : à faibles températures de substrat ou à fortes vitesses de croissance, l'équilibre thermodynamique n'est pas atteint avant le « gel » de la monocouche dans la matrice. Dehease *et al.* [30] ont donc proposé un modèle cinétique.

L'équation II.2 doit être réécrite pour faire intervenir le paramètre temps. Elle s'exprime ainsi, pour le dépot d'un plan atomique entier d'éléments B en  $t_{MC}$  secondes :

 $X_{A(B),i(s)}$  sont les quantités d'élements A ou B présents dans la monocouche de surface (s) ou incorporée (i).  $P_1$  est la probabilité qu'un atome B migre de la couche de surface vers celle incorporée avec échange d'un atome A,  $P_1 = \nu_1 \exp(-E_1/k_B T)$ , et  $P_2 = \nu_2 \exp(-E_2/k_B T)$  est la probabilité du processus inverse (un atome B migrant vers la couche de surface).  $E_1$  et  $E_2$  représentent les barrières énergétiques à franchir pour passer d'une configuration à une autre (voir le diagramme de configuration sur la figure II.5). Dans les III-V elles sont de l'ordre des énergies de liaison de l'élément III (1 à 2 meV). Les fréquences de vibration  $\nu_1$  et  $\nu_2$  sont des combinaisons des fréquences de vibration du réseau de surface et du massif ( $\nu_1 \approx \nu_2 \approx 10^{13} s^{-1}$ ). Enfin,  $\Phi_B(t)$  est le flux incident d'atomes B adsorbés en surface.

Pendant l'intervalle de temps dt, la variation de  $X_{B,s}(t)$  est donnée par la somme du flux incident  $\Phi_B(t)$  et du nombre d'atomes B de la couche incorporée migrant



FIG. II.5: Diagramme de configuration pour un processus d'échange A/B

vers la couche de surface  $P_2X_{A,s}(t)X_{B,i}(t)$  moins le nombre d'atomes *B* migrant, par le processus d'échange inverse, vers la couche incorporée  $P_1X_{A,i}(t)X_{B,s}(t)$ . Soit l'équation différentielle suivante:

$$\frac{dX_{B,s}(t)}{dt} = \Phi_B(t) + P_2 X_{A,s}(t) X_{B,i}(t) - P_1 X_{A,i}(t) X_{B,s}(t)$$
(II.6)

 $X_{B,s}(t)$  est calculée en résolvant cette équation numériquement avec les conditions de conservation de la matière. Dans la limite thermodynamique, lorsque le terme de flux est négligeable devant les deux autres termes d'échange (croissance lente et/ou température de substrat élevée), cette équation devient, dans le régime stationnaire (lorsque  $dX_{B,i}(t)/dt = 0$ ):

$$P_1 X_{A,i}(t) X_{B,s}(t) = P_2 X_{A,s}(t) X_{B,i}(t)$$

Et nous retrouvons bien l'équation II.3 obtenue lorsque l'équilibre thermodynamique est atteint avec la constante d'action de masse identique à II.5 :

$$K_{\text{thermo}} = \frac{P_1}{P_2} = \frac{\nu_1}{\nu_2} e^{-E_s/k_B T} \quad \text{avec} \quad E_s = E_1 - E_2$$
(II.7)

Mariette *et al.* [28, 29] ont repris ce modèle pour modéliser la ségrégation aux interfaces MnTe/CdTe tout en considérant, à la différence de Dehease *et al.*, que les phénomènes de ségrégation ont lieu sur toute la surface non encore incorporée (la ségrégation a encore lieu entre les deux avant-dernières couches qui n'ont pas été recouvertes par la troisième couche en cours de croissance). Finalement, pour construire le profil de concentration à l'interface nécessaire aux simulations, Mariette *et al.* ont proposé de reprendre l'équation II.3 avec une constante d'action de masse effective  $K_{\text{eff}}$  traduisant les effets cinétiques.  $K_{\text{eff}}$  s'identifie à  $K_{\text{thermo}}$  dans la limite thermodynamique.

#### Modélisation de l'interface

Nous disposons maintenant de deux modèles pour construire le profil de concentration aux interfaces en présence de ségrégation. Dans le modèle thermodynamique, le seul degré de liberté agissant sur la forme du profil est la température du substrat, intervenant dans la constante d'action de masse  $K_{\text{thermo}}$ . En revanche, dans le modèle cinétique qui prolonge le premier, un autre paramètre devient critique : la vitesse de croissance. Mariette *et al.* le prennent en compte en définissant une nouvelle constante  $K_{\text{eff}}$ .

Donc, à une constante d'action de masse donnée K correspond un profil de concentration aux interfaces décrit par la relation II.3.  $x_t$ , la proportion d'éléments A ayant migré vers la surface est solution d'une équation du second degré qui fait intervenir la concentration de la couche précédente et celle, nominale, de la couche de surface. Le profil est alors construit de proche en proche. Dans nos simulations nous avons préféré construire le profil de concentration à l'aide d'une exponentielle décroissante, identique à l'équation de Moison II.1, comme l'ont fait différents auteurs [14, 21]. Cette approximation est valable lorsque K est peu différente de 1 (et vraie pour K = 1), valeur que nous retrouverons très fréquement. K est reliée à  $\ell_A$ , la longueur de dilution intervenant dans l'équation II.1, par la formule (si K est peu différente de 1):

$$K = \frac{1}{e^{a_0/\ell_A} - 1}$$
(II.8)

La génération du profil est ainsi relativement directe. Il faudra néanmoins s'assurer que les conditions de conservation de la matière sont effectivement vérifiées. Un exemple d'un tel profil a déjà été donné dans la figure II.4.

## B. Aimantation aux interfaces — Effet intrinsèque

Nous avons vu au début de ce chapitre qu'il était nécessaire d'envisager la modification de l'aimantation des ions Manganèse au voisinage de l'interface due à la réduction du nombre d'ions Mn premiers voisins. Les interactions antiferromagnétiques entre ions magnétiques sont alors moins nombreuses et l'aimantation s'en trouve augmentée.

Gaj *et al.* [14, 9] proposent un modèle d'aimantation locale pour déterminer l'aimantation en chaque monocouche de la structure.

#### 1. Modèle de l'aimantation locale

L'effet Zeeman d'un composé semimagnétique massif est directement proportionnel (par l'interaction d'échange sp-d) à l'aimantation moyenne  $M_{\text{massif}}[x, B, T]$  des ions magnétiques. Elle dépend de la concentration x en ions magnétiques, du champ magnétique appliqué B et de la température T (voir le chapitre I).

Dans une hétérostructure, qui est un empilement de monocouches de concentrations différentes, l'aimantation n'est plus homogène dans la direction de l'axe de croissance z. Elle dépend alors en chaque plan atomique perpendiculaire à l'axe z de la concentration en ions magnétiques de ce plan x, mais aussi de l'environnement magnétique via les interactions antiferromagnétiques entre ions Manganèse des autres plans. Cette modification est appelée effet intrinsèque. L'aimantation ne peut donc être que définie localement. Elle est dénommée  $M_{\text{locale}}[x(z), z, B, T]$  où x(z) est le profil de concentration de la structure. L'hypothèse de Gaj est de considérer que l'on peut calculer localement, pour chaque monocouche, l'effet Zeeman du potentiel de confinement comme étant proportionnel à l'aimantation  $M_{\text{locale}}$ .

Il est nécessaire, maintenant, d'établir l'expression de  $M_{\text{locale}}[x(z), z, B, T]$  pour un profil de concentration x(z) donné. Le traitement rigoureux implique le calcul statistique des amas comme il a été présenté dans le chapitre I. Néanmoins, le recensement des différentes configurations est excessivement laborieux, sinon impossible analytiquement. Pour s'affranchir de cette difficulté, Gaj a proposé l'approximation suivante : l'aimantation par ion Mn ne dépend que de la probabilité *moyenne* locale  $x_{NN}(z)$  sur les trois couches adjacentes qu'un ion premier voisin soit un ion magnétique. Le paragraphe suivant illustre et justifie cette approximation dans le cas d'une interface et d'une monocouche parfaites.

#### Aimantation d'une interface et d'une monocouche parfaites

Un ion Mn dans une monocouche (100) a quatre premiers voisins dans cette monocouche, quatre dans la monocouche précédente et quatre dans la suivante. Pour une interface parfaite (ou abrupte)  $Cd_{1-x}Mn_xTe/CdTe$ , un ion Mn de la couche d'interface ne « voit » donc plus que 2/3 des ions Mn premiers voisins qu'il aurait vu dans un matériau massif de même composition. La probabilité moyenne locale de la monocouche d'interface est  $x_{NN} = 2x/3$ . Le moment magnétique moyen local d'un ion Mn de la monocouche est donc :

$$\langle S \rangle_{\text{interface}}[x, B, T] = \langle S \rangle_{\text{massif}}[\frac{2x}{3}, B, T]$$

L'aimantation locale de la monocouche (en unité de  $g\mu_B$  et par site cationique  $Cd^{2+}$  ou  $Mn^{2+}$ ) s'écrit alors :

$$M_{\text{locale, interface}}[x, B, T] = x \langle S \rangle_{\text{massif}}[\frac{2x}{3}, B, T]$$

et exprimée en fonction de l'aimantation d'un massif de concentration 2x/3

$$M_{\text{locale, interface}}[x, B, T] = \frac{x}{2x/3} 2x/3 \langle S \rangle_{\text{massif}}[\frac{2x}{3}, B, T]$$
$$= \frac{3}{2} M_{\text{massif}}[\frac{2x}{3}, B, T]$$

Pour une monocouche parfaite, un ion Mn « perd » tous ses premiers voisins des couches adjacentes,  $x_{NN} = 1/3x$ , et l'aimantation s'exprime ainsi :

$$M_{\text{locale, monocouche}}[x, B, T] = 3M_{\text{massif}}[\frac{1}{3}x, B, T]$$

Dans les deux cas  $M_{\text{massif}}[x_{NN}, B, T]$  est donnée par la formule empirique I.2 du chapitre précédent. Les aimantations à saturation d'une interface et d'une monocouche parfaites sont données en comparaison de l'aimantation d'un massif de même concentration sur la figure II.6.



FIG. II.6: Aimantation à saturation (en unité de  $g\mu_B$ ) d'une interface et d'une monocouche parfaites dans le modèle de l'aimantation locale en fonction de la concentration en ions magnétiques. L'aimantation d'un massif de même composition est donnée en comparaison.

La modification de l'environnement magnétique d'une monocouche ou d'une interface perturbe notablement leur aimantation. La réduction des interactions antiferromagnétiques par la diminution des ions plus proches voisins accroît le paramagnétisme de façon importante (d'un facteur 2 pour une monocouche parfaite de concentration en ions magnétiques égale à 15 %). Le potentiel de confinement des porteurs du puits en champ magnétique présentera donc un effet Zeeman accru au voisinage de ces interfaces ou monocouches. Pour des interfaces présentant un profil moins abrupt (comme dans le cas de la ségrégation) cet effet sera, certes, moins prononcé car la concentration en ions magnétiques varie moins brutalement, mais devra être tout de même pris en compte comme nous le verrons dans le prochain paragraphe.

Pour justifier l'utilisation d'une probabilité moyenne locale dans le calcul de l'aimantation, Grieshaber *et al.* [9] ont comparé cette méthode à un calcul de statistique d'amas en se limitant aux triplets. Leurs résultats montrent un accord excellent avec leur modèle dans la gamme de concentration (inférieure à 7 %) où le calcul statistique reste valable (lorsque les amas de plus grande taille ont une probabilité négligeable). Pour les concentrations supérieures, Grieshaber *et al.* pensent que leur modèle reste valable pour deux raisons : l'aimantation des amas de plus grande taille diminue rapidement avec leur taille (pour ne faire intervenir que les plus proches voisins dans la probabilité moyenne locale  $x_{NN}$ ), et la probabilité de présence des électrons confinés dans les alliages décroît rapidement lorsque la concentration en  $Mn^{2+}$  augmente. L'effet Zeeman des niveaux électroniques du puits sera peu sensible à l'aimantation de ces couches.

#### Généralisation à un profil quelconque

Nous avons vu dans le paragraphe précédent que l'aimantation par ion Manganèse pouvait être calculée à partir de la probabilité moyenne locale  $x_{NN}$  pour une interface ou une monocouche parfaite en se limitant à la concentration moyenne des trois couches adjacentes. En généralisant à un profil de concentration quelconque, Gaj *et al.* [14] ont proposé l'expression suivante:

$$x_{NN}(z) = \frac{x(z - 1 \text{ MC}) + x(z) + x(z + 1 \text{ MC})}{3}$$

Le moment magnétique moyen par spin Mn de la monocouche en z s'écrit donc  $\langle S \rangle_{\text{locale}}[x(z), z, B, T] = \langle S \rangle_{\text{massif}}[x_{NN}(z), B, T]$  et l'aimantation locale (en unité de  $g\mu_B$ ) devient

$$M_{\text{locale}}[x(z), z, B, T] = x(z)\langle S \rangle_{\text{locale}}[x(z), z, B, T]$$
  
$$= \frac{x(z)}{x_{NN}(z)} x_{NN}(z) \langle S \rangle_{\text{massif}}[x_{NN}(z), B, T]$$
  
$$= \frac{x(z)}{x_{NN}(z)} M_{\text{massif}}[x_{NN}(z), B, T]$$

Cette dernière expression permet d'évaluer maintenant très simplement la contribution de l'effet intrinsèque à l'effet Zeeman des niveaux confinés du puits lorsque les interfaces présentent un profil de concentration élargi par la ségrégation ou l'interdiffusion (effet extrinsèque).

#### Contributions effet intrinsèque / effet extrinsèque

Sur la figure II.7, les contributions respectives des effets intrinsèque et extrinsèque à l'aimantation à saturation d'une interface inverse sont données en fonction de la concentration nominale de la barrière. Lorsque l'effet extrinsèque est pris en compte, l'aimantation reportée est la somme des aimantations des monocouches dans lesquelles le Manganèse a ségrégé (parties grisées du schéma de gauche). Le profil de concentration est construit tel que le mélange des ions Cd/Mn soit complet (K = 1).

À faible concentration, les deux effets ne représentent qu'une faible correction par rapport à l'aimantation du massif. Lorsque la composition devient plus importante chaque effet, pris individuellement, accroît notablement l'aimantation de l'interface. L'effet extrinsèque est dominant. Leur combinaison n'apporte plus qu'une faible correction. En effet, lorsque l'environnement magnétique ne varie plus de façon aussi brutale, la contribution de l'effet intrinsèque est minorée. Dans le cas d'une interface



FIG. II.7: Contributions des effets intrinsèque et extrinsèque à l'aimantation à saturation de l'interface inverse pour un profil asymétrique K = 1 en fonction de la concentration nominale en ions Manganèse dans la barrière. L'aimantation d'un massif de même concentration est donnée en comparaison.

inverse, cet effet apporte même une contribution négative. Ce résultat n'est toutefois pas surprenant, lorsqu'on envisage la courbure du profil de concentration de cette interface:  $x_{NN,i}$  est supérieure à la concentration réelle  $x_i$  de la monocouche i. Les interactions antiferromagnétiques sont donc plus nombreuses et diminuent ainsi l'aimantation. Mais pour l'interface normale, où la courbure est de signe opposé,  $x_{i,NN}$  sera inférieure à  $x_i$ , et l'effet intrinsèque apportera une contribution positive à l'aimantation.

Notons, pour clore ce paragraphe, que Grieshaber *et al.* [9] ont estimé l'effet intrinsèque dû à la rugosité d'interface. Ils n'observent qu'une faible modification de l'aimantation en passant d'une interface lisse à une interface rugueuse, négligeable devant l'effet de dilution.

#### 2. Effet Zeeman des porteurs confinés

Nous avons défini et déterminé l'aimantation locale pour chaque monocouche de la structure en fonction de sa position z et du profil de composition x(z). Le potentiel de confinement, en présence de champ magnétique, peut être, lui-aussi suivant le modèle de Gaj *et al.*, décrit localement en chaque plan de la structure. Si, en l'absence de champ,  $V_{BC,\pm 1/2}[x(z)]$  et  $V_{BV,\pm 3/2}[x(z)]$  sont les potentiels de bandes de conduction et de valence respectivement, en présence de champ ces potentiels deviennent respectivement :

$$V_{BC,\pm 1/2}[x(z)] \pm \frac{1}{2} N_0 \alpha M_{\text{locale}}[x(z), z, B, T]$$
$$V_{BV,\pm 3/2}[x(z)] \pm \frac{1}{2} N_0 \beta M_{\text{locale}}[x(z), z, B, T]$$

avec  $M_{\text{locale}}[x(z), z, B, T] = x(z)/x_{NN}(z)M_{\text{massif}}[x_{NN}(z), B, T]$ . Les constantes d'échange  $N_0\alpha$  et  $N_0\beta$  sont celles du massif CdMnTe (220 meV et - 880 meV resp.).

L'effet Zeeman intrinsèque du matériau ( $\sim -0,06 \text{ meV/T}$ ) sera inclus pour reproduire les données expérimentales.

Nous disposons, à présent, d'un modèle décrivant l'effet Zeeman local d'un potentiel de confinement x(z) quelconque. Les énergies des niveaux électroniques du puits en champ magnétique peuvent être calculées très simplement en utilisant le formalisme de la fonction enveloppe [33].

## C. Résultats expérimentaux

Nous présentons ici les résultats obtenus pour trois séries de puits asymétriques [34], qui mettent en évidence la ségrégation aux interfaces pour une large gamme de concentrations en ions Manganèse (de 13 % à 47 %) et pour de faibles largeurs de puits (15-, 11- et 8 monocouches). Leur croissance a été réalisée à température de substrat identique (280 ° C). Notre analyse ne nous permettra donc pas de caractériser l'équilibre thermodynamique ou d'observer des effets cinétiques.

#### 1. Échantillons

Nos échantillons proviennent de l'Institut de Physique de l'Académie de Sciences de Varsovie où leur croissance a été réalisée par G. Karczewski. Ils sont fabriqués par épitaxie par jets moléculaires sur substrat de GaAs orienté (100) recouvert d'une large couche tampon de CdTe de 3–4  $\mu m$ . Le large désaccord de paramètres de maille (~ 13%) entre ces deux matériaux est atténué par le dépôt d'une très fine couche de ZnTe (~ 3 monocouches) de paramètre de maille intermédiaire (6.1 Å). Le ZnTe assure aussi la croissance du CdTe orienté (100). Cette méthode, malgré l'utilisation d'un substrat très désaccordé, offre une épitaxie de très bonne qualité : le caractère bidimensionnel de la croissance du CdTe est rapidement obtenu, après quelques centaines de nanomètres de dépôt et le nombre de défauts (d'empilement, ou dislocations) est suffisamment faible.

La température du substrat pendant la croissance  $(280 \degree C)$  et la vitesse du dépôt de CdTe (0,5 MC/s) sont identiques pour tous les échantillons. L'épitaxie est réalisée sous flux légèrement excédentaire en atomes métalliques (Cd, Mg, Mn) qui donnent une croissance de meilleure qualité que sous excès de Tellure. Pour limiter la rugosité aux interfaces, le constructeur a procédé à un arrêt de croissance à chacune des interfaces sous flux successifs de Cd (9 s), de Te (9 s) et enfin de Cd (9 s), réalisant ainsi la première ou dernière monocouche du puits.

Nous avons étudié deux paires d'échantillons asymétriques. Chacun est composé de trois puits de CdTe  $PQ_1$ ,  $PQ_2$  et  $PQ_3$ , de largeurs différentes, respectivement



FIG. II.8: Séquence des couches des échantillons de type A ou B.

 $L_1$ ,  $L_2$  et  $L_3$  (resp. 15, 11 et 8 MC), entourés de barrières de  $Cd_{1-x}Mn_x$ Te et de  $Cd_{1-y}Mg_y$ Te. Dans une même paire (formée d'un échantillon A et d'un échantillon B), les paramètres de croissance sont identiques : mêmes largeurs de puits, compositions des barrières... Les échantillons A et B ne diffèrent que par leur ordre de croissance (figure II.8). Les interfaces semimagnétiques sont alors soit normales (CdMnTe sur CdTe) soit inverses (CdTe sur CdMnTe).

Les deux paires, respectivement 11206A/B et 04296A/B, présentent différentes concentrations en Manganèse dans les barrières :  $x_{Mn} \approx 47 \%$  et  $x_{Mn} \approx 14 \%$ , respectivement. Un cinquième échantillon 06126B, de type B uniquement, de concentration intermédiaire (~ 31%) complète notre étude. Le tableau II.1 indique les caractéristiques des structures étudiées.

#### 2. Expériences

L'effet Zeeman de la transition excitonique fondamentale  $E_1H_1$  des puits quantiques  $PQ_{1,2,3}$  a été déterminé par des mesures de magnétoréflectivité et d'effet Kerr en configuration Faraday, jusqu'à 5 T, et à très basse température (1,7 K, hélium pompé). Pour le  $PQ_3$  de l'échantillon 11206B des expériences complémentaires en excitation de la photoluminescence (PLE) ont été nécessaires pour extraire correctement l'énergie de la transition.

Nous présentons sur la figure II.9 les spectres de réflectivité de l'échantillon 042996A à 0 T et 5 T dans chacune des polarisations circulaires  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ .

Le spectre d'effet Kerr à 5 T est donné en comparaison. Cette figure montre la correspondance entre les structures associées aux transitions excitoniques dans ces deux méthodes. Elle illustre aussi la diversité des formes liées aux réflexions multiples dans l'échantillon (voir annexe A). Ainsi, en réflectivité, pour un même échantillon, les transitions des trois puits disposés régulièrement dans la structure

Composition des barrières		Largeur du puits	Interface	
Échantillon	Mn(%)	Mg(%)	Nominale (MC)	CdMnTe/CdTe
			15	Ν
11206A	47.2	47.2	11	Ι
			8	Ν
			15	Ι
11206B	47.2	47.2	11	Ν
			8	Ι
			15	Ν
04296A	13.9	24.6	11	Ι
			8	Ν
			15	Ι
04296B	14.9	26.8	11	Ν
			8	Ι
			15	Ι
06126B	31.3	26	11	Ν
			8	Ι

TAB. II.1: Description des échantillons. N et I indiquent le type d'interface CdMnTe/CdTe, normale (N) ou inverse (I).

offrent trois formes bien différentes: un pic  $(PQ_1)$ , un épaulement tourné vers la gauche  $(PQ_2)$  ou vers la droite  $(PQ_3)$ . L'effet Kerr présente un comportement complémentaire: à un pic de réflectivité est associé un épaulement en effet Kerr et vice versa. La confrontation des spectres obtenus par ces deux méthodes permet donc de déterminer très simplement la position de la transition. Néanmoins, pour s'assurer du bien-fondé de cette procédure, nous avons effectué un ajustement théorique des spectres [35] (voir aussi annexe A). La forme obtenue expérimentalement est très bien reproduite (figure II.10) à partir des paramètres de croissance fournis par le fabricant (notamment l'espacement entre les puits). L'énergie des transitions de chacun des puits est ainsi extraite, sans ambiguïté.

L'importante largeur des structures provient très certainement de la rugosité des interfaces. Cet effet est d'autant plus marqué que les puits sont de petite taille et que la concentration en Manganèse est forte. Nous avons été ainsi amenés à réaliser des expériences complémentaires de PLE sur le  $PQ_3$  de l'échantillon 11206B pour mesurer correctement l'effet Zeeman de la transition.

Enfin la concentration des barrières est déterminée de façon analogue d'après les énergies des transitions excitoniques relevées sur les spectres de réflectivité et d'effet Kerr. À nouveau, l'effet Kerr se révèle fort utile pour distinguer la contribution de la barrière magnétique de celle de la barrière de CdMgTe. Les concentrations pour chacun des cinq échantillons sont reportées dans le tableau II.1.



FIG. II.9: Spectre de réflectivité à 0 T de l'échantillon 04296A (courbe a). Les positions des structures excitoniques des trois puits sont repérées par une ligne verticale. Comparaison des spectres de réflectivité ( $\sigma^+$  courbe b et  $\sigma^-$  courbe c) et d'effet Kerr (courbe d) à 5 T. Les flèches montrent la correspondance entre les structures associées aux transitions.



FIG. II.10: Ajustements théoriques (trait pointillé) des spectres de réflectivité  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  des puits  $PQ_1$  et  $PQ_2$  de l'échantillon 04296A à 2 T. Les énergies des transitions déterminées par ces ajustements sont repérées par les flèches.

#### 3. Évidence expérimentale de la ségrégation

Les énergies des transitions excitoniques  $E_1H_1$  des puits  $PQ_1$ ,  $PQ_2$  et  $PQ_3$  des deux échantillons A et B de la série 11206 sont reportés sur la figure II.11: le déplacement Zeeman, dont l'origine est l'énergie à champ nul, est représenté en fonction du champ magnétique. Les déplacements sont comparés par paire de puits de même largeur, mais d'interfaces opposées: normale (N) ou inverse (I). L'effet Zeeman, pour ces échantillons de concentration en Manganèse élevée (47.2%), est bien plus important pour les puits possédant une interface magnétique inverse que pour ceux possédant une interface normale, et ce quelle que soit la largeur du puits. Ce premier résultat est en contradiction avec les expériences de Schmitt *et al.* [22] qui observent que le rapport des effets Zeeman des interfaces inverses et normales diminue, pour devenir égal à l'unité (et même s'inverser) lorsque la taille du puits décroît jusqu'à 24 Å (7,4 MC) (le rapport des effets Zeeman tiré de cet article est donné dans le tableau II.2).

Deux puits nominalement de même largeur peuvent présenter de faibles variations d'énergie de la transition excitonique à champ nul, traduisant ainsi de faibles variations de largeurs (ces fluctuations proviennent essentiellement des flux de croissance légèrement différents lors de la croissance d'échantillons successifs). Aussi, nous avons adopté, sur la figure II.13, une autre présentation : l'effet Zeeman de chacun des puits à 5 T est reporté en fonction de l'énergie de transition du puits à champ nul. Ceci confirme l'importante différence d'effet Zeeman suivant la nature de l'interface.

Les résultats obtenus pour la deuxième paire 04296 sont donnés suivant la même présentation sur les figures II.12 et II.14. Pour ces puits, dont les barrières sont moins concentrées en ions magnétiques ( $x_{Mn} = 14 - 15\%$ ), la différence est en revanche bien moins marquée: l'effet Zeeman est peu sensible au type d'interface. Ce comportement s'explique parfaitement dans le modèle de ségrégation que nous utilisons plus loin. Néanmoins remarquons que ce comportement est identique pour les trois largeurs de puits étudiées. Ainsi les caractéristiques des interfaces des puits les plus fins sont similaires à celles des plus larges. Ce résultat est, à nouveau, en contradiction avec ceux de Schmitt et coll. [22] qui observent différentes qualités d'interfaces alors que la largeur du puits diminue.

Les résultats obtenus sur la première paire semblent confirmer l'hypothèse de

TAB. II.2: Effets Zeeman de trois paires de puits asymétriques  $CdMn_x Te / CdTe / CdMg_y Te$  possédant une interface normale (x = 0, 22 et y = 0, 23) ou inverse (x = 0, 21 et y = 0, 21) de différentes largeurs, et leur rapport (inverse sur normale) obtenus par Schmitt et al. [22].

Largeur	Effet Zeeman	à 7.5 T (meV)	Rapport
du puits	Int. inverse	Int. normale	
60	4,3	1,3	$3,5 \pm 0,5$
24	29,3	29,0	$1{,}0\pm0{,}2$
12	$59,\!8$	116,1	$0,5\pm0,1$



FIG. II.11: Déplacement Zeeman des transitions excitoniques  $E_1H_1$  des puits  $PQ_1$ ,  $PQ_2$  et  $PQ_3$  de la paire 11206A/B. Points expérimentaux pour les interfaces inverses  $(I): \blacksquare (\sigma^-)$  et  $\square (\sigma^+)$ , les interfaces normales  $(N): \bullet (\sigma^-)$  et  $\circ (\sigma^+)$ . Les lignes continues joignent les points calculés d'après un profil de puits asymétrique de longueur de dilution  $\ell_{Mn}$  et de largeur de puits L reportées dans le tableau II.3.



FIG. II.12: Identique à la figure II.11, mais pour les échantillons A et B de la série 04296


FIG. II.13: Effet Zeeman des transitions excitoniques  $E_1H_1$  à 5 T des puits  $PQ_1$ ,  $PQ_2$  et  $PQ_3$  de la paire 11206A/B fonction de l'énergie des transitions à champ nul. Interfaces normales ( $\blacksquare$ ), inverses ( $\bullet$ ). Les lignes sont des guides pour les yeux.

la ségrégation aux interfaces comme un mécanisme dominant : ils mettent en évidence une forte anisotropie dans le profil de concentration de puits suivant l'axe de croissance de la structure. Ces constatations sont d'ailleurs confortées par l'étude du cinquième échantillon 06126B : l'effet Zeeman à 5 T des trois puits est présenté de manière analogue aux figures II.13 et II.14 sur la figure II.15. Bien qu'incomplet, ce résultat montre que l'effet Zeeman des puits (fin ou large) possédant une interface magnétique inverse est toujours supérieur à celui du puits de largeur intermédiaire, mais possédant une interface normale.

Pour caractériser qualitativement l'effet de la ségrégation, nous avons modélisé l'effet Zeeman de ces puits asymétriques.



FIG. II.14: Identique à la figure II.13, mais pour les échantillons A et B de la série 04296



FIG. II.15: Identique aux figures II.13 et II.14, mais pour l'échantillon B uniquement de la série 06126

### 4. Modélisation et discussion

Pour reproduire le profil de concentration de ces puits, nous avons considéré une distribution asymétrique, exponentiellement décroissante des ions Manganèse et Magnésium dans le puits, telle que décrite dans le paragraphe A.3. de ce chapitre. Il y est montré que cette distribution donne une description satisfaisante de la ségrégation aux interfaces.  $\ell_{Mn}$  et  $\ell_{Mg}$  sont les longueurs caractéristiques de dilution des ions Manganèse et Magnésium, respectivement, aux interfaces. Les concentrations en ions  $Mn^{2+}$  et  $Mg^{2+}$  dans les barrières ont été déterminées, rappelons-le, d'après les énergies à champ nul des transitions excitoniques pour chacun des échantillons. L'effet Zeeman du potentiel de confinement (barrières et queue de dilution dans le puits) est calculé suivant le modèle de l'aimantation locale de Gaj et al. [14] décrit dans le paragraphe B. de ce chapitre. L'effet Zeeman intrinsèque est pris en compte (~ -0.06 meV/T entre les deux composantes  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ ). Les premiers niveaux confinés des électrons  $(E_1)$  et des trous lourds  $(H_1)$  du puits sont obtenus par le formalisme de la fonction enveloppe [33]. Nous avons choisi un décalage de bande de valence (ou « offset ») de 0,3 pour CdMnTe et CdMgTe (dans la référence [14], les auteurs ont préféré une valeur plus élevée 0,4, mais ce choix n'a que peu d'influence sur le résultat final). Enfin, l'énergie de liaison de l'exciton a été calculée en utilisant l'élégante méthode proposée par Leavitt et Little [36] et améliorée par Pevla etal. [37]. Pour la masse de l'électron et les masses des trous lourds parallèle et perpendiculaire à l'axe de croissance, nous avons choisi  $m_e = 0,096m_0, m_{hh\parallel} = 0,513m_0$  et  $m_{hh\perp} = 0, 193m_0$  [38]. La constante diélectrique  $\epsilon = 10$  en accord avec les paramètres donnés dans la référence précédente.

Les longueurs de dilution  $\ell_{Mn}$  et  $\ell_{Mg}$  apparaissent comme les seuls paramètres ajustables pour reproduire l'effet Zeeman des transitions excitoniques de chaque puits. En fait, la largeur réelle des puits L, qui peut différer légèrement de sa valeur nominale, impose donc un troisième paramètre. Mais, les influences respectives de L et  $\ell_{Mg}$  sur l'énergie à champ nul et l'effet Zeeman des transitions du puits ne sont pas séparables expérimentalement : une faible variation de  $\ell_{Mg}$  produira une faible variation de l'énergie à champ nul, variation qui pourra être elle-même compensée en ajustant la largeur L du puits. Aussi nous avons choisi de fixer, arbitrairement,  $\ell_{Mg} = \ell_{Mn}$ . L'énergie à champ nul sera donc déterminée par L et finalement  $\ell_{Mn}$ sera ajustée pour reproduire l'effet Zeeman du puits.

Les comparaisons des effets Zeeman expérimentaux et théoriques sont données sur les figures II.11 et II.12 pour les deux paires. Les paramètres  $\ell_{Mn}$  et L, issus de cette analyse sont reproduits dans le tableau II.3.

Un important résultat est la valeur commune de  $\ell_{Mn}$  pour les puits d'interface normale ou inverse d'un même échantillon, mais aussi dans une même paire. En revanche, la longueur de dilution du Manganèse varie notablement entre les échantillons des différentes séries (~ 4,8–5,3 Å pour la paire 04296A/B, 4,2 Å pour 06126B et 3,3–3,4 Å pour la série 11206A/B). Ceci provient très certainement de conditions de croissance légèrement différentes (les croissances des séries 11206A/B et 04296A/B sont espacées de six mois!) Cette dispersion reste néanmoins proche des résultats de Gaj *et al.* [14] et de Grieshaber et coll. [21]. La valeur moyenne de K de la série 04296A/B et de l'échantillon 06126B, proche de l'unité, a été observée à de

	Largeur du PQ (MC)		Type	Longueur de dilution		K
Échantillon	Nominale	Ajustée	d'interface	théorique	moyenne	
	15	14,9	Ν	$3,5{\pm}0,3$		0,66
11206A	11	11	Ι	$3,8{\pm}0,3$	$3,4{\pm}0,5$	0,74
	8	$^{7,7}$	Ν	$2,9{\pm}0,5$		$0,\!48$
	15	13,7	Ι	$3,5{\pm}0,2$		$0,\!66$
11206B	11	10,1	Ν	$3,1{\pm}0,3$	$3,3{\pm}0,5$	$0,\!54$
	8	7,5	Ι	$3,4{\pm}0,4$		$0,\!63$
	15	14,89	Ν	$4,5{\pm}0,4$		$0,\!95$
04296A	11	10,78	Ι	$4,5{\pm}0,4$	$4,8{\pm}0,5$	0,95
	8	$7,\!99$	Ν	$5,5{\pm}0,5$		$1,\!25$
	15	$13,\!91$	Ι	$4,7{\pm}0,4$		1
04296B	11	10,3	Ν	$5,7{\pm}0,5$	$5,3{\pm}0,5$	$1,\!31$
	8	$7,\!68$	Ι	$5,5{\pm}0,5$		1,25
	15	12,74	Ι	$4,3{\pm}0,3$		$0,\!88$
06126B	11	9,2	Ν	$3,7{\pm}0,5$	$4,2{\pm}0,5$	0,71
	8	6,79	Ι	$4,5{\pm}0,3$		$0,\!95$

TAB. II.3: Largeur de puits et longueur de dilution  $\ell_{Mn}$  (en Å) théoriques des puits obtenues par le modèle de ségrégation décrit dans le texte. La constante d'action de masse K est donnée en correspondance d'après la formule II.8. N et I indiquent le type d'interface CdMnTe/CdTe, normale (N) ou inverse (I).

nombreuses reprises dans les études grenobloises [14, 9, 28, 29] pour des conditions de croissance similaires (température de substrat de 280 °C et vitesse de dépôt de 0,5 MC/s).

Une telle valeur de la constante d'action de masse signifie un mélange des ions Cd/Mn complet entre la monocouche qui vient juste d'être complétée et la couche en cours de croissance. L'interprétation en terme d'équilibre thermodynamique est bien différente suivant le modèle considéré :

- en suivant l'analyse de Moison *et al.*, reprise par Grieshaber, qui ne fait pas intervenir de préfacteur dans la loi d'action de masse, K = 1 signifie que l'énergie d'activation  $E_s$  est nulle. Les états «  $Mn_{surface} + Cd_{incorporé}$  » et «  $Mn_{incorporé} + Cd_{surface}$  » ont la même énergie. La probabilité d'occupation est donc identique. En conséquence, la constante d'action de masse et donc le profil de dilution ne doivent pas être modifiés par un changement de température du substrat. Et effectivement, dans leurs résultats, Grieshaber *et al.* [9] n'ont observé aucune modification du profil pour différents puits CdMnTe/CdTe crûs à 280 °C et à 250 °C;
- l'interprétation est dramatiquement différente lorsqu'un préfacteur  $K_0$  doit

être introduit dans la loi d'action de masse comme le soutiennent Mariette et al. [28, 29]. Dans ce cas, l'énergie d'activation, pour K = 1 est non nulle: un des deux états (« Mn<sub>surface</sub> + Cd<sub>incorporé</sub> » ou « Mn<sub>incorporé</sub> + Cd<sub>surface</sub> ») est énergétiquement plus favorable suivant le signe de  $E_s$ . Pour confirmer leur hypothèse, l'équipe de Mariette [28] a étudié trois puits MnTe/CdTe synthétisés à 280 °C, 230 °C et 180 °C respectivement. À la différence de Grieshaber, les résultats montrent clairement la réduction de K avec la diminution de la température de croissance (1, 0,75 et 0,5 resp.). L'énergie d'activation, déduite de cette analyse, est de l'ordre de 300 meV (avec une marge d'erreur comprise entre 175 et 495 meV). Ce résultat est en désaccord avec les conclusions de Grieshaber. Notons toutefois que la croissance MnTe sur CdTe est hautement hors d'équilibre. En effet, le matériau MnTe cristallise naturellement dans une structure wurtzite. En revanche, il prend la structure blende de Zinc, en croissance par épitaxie sur CdTe. Le mécanisme de ségrégation est-il toujours identique? Mariette et al. [28] n'excluent d'ailleurs pas un mécanisme supplémentaire lors de la croissance, comme la formation d'amas MnTe.

Pour expliquer nos résultats obtenus sur la série 11206A/B, pour laquelle K est particulièrement faible (0,6), une température involontairement basse du substrat pendant la croissance pourrait être invoquée (effets cinétiques). Remarquons, par ailleurs, que Gaj *et al.* [14] ont obtenu une valeur similaire de la longueur de dilution  $\ell_{Mn} = 3.1$  Å dans un puits de CdMn<sub>0.22</sub>Te/CdTe de 19 MC, crû à 250 °C.

La symétrie de l'effet Zeeman de la série 04296A/B observée pour des puits d'interfaces normale et inverse s'interprète aussi dans ce modèle de ségrégation. Les



FIG. II.16: Profils d'aimantation à saturation d'interfaces normale et inverse diluées  $\ell_{Mn} = 4.7$  Å. Trait continu  $x_{Mn} = 14$  %; trait pointillé  $x_{Mn} = 47$  % pour les barrières. Les flèches indiquent la position nominale des interfaces.

profils d'aimantation à saturation de deux interfaces normale et inverse sont reportés sur la figure II.16 pour une barrière de composition  $x_{Mn} = 14\%$  (comme pour notre échantillon) et de longueur de dilution  $\ell_{Mn} = 4,7$  Å (K = 1). En comparaison, ces mêmes profils sont représentés en trait pointillé pour une barrière de concentration plus élevée, similaire à celle de la paire 11206 ( $x_{Mn} = 47\%$ ).

Pour les barrières de faible concentration, l'aimantation dominante provient de la barrière où la concentration en Manganèse est la plus élevée, proche de la concentration du massif pour laquelle l'aimantation est maximum (lorsque  $x_{Mn} = 15\%$ , voir figure II.6). L'effet du champ magnétique sur le potentiel de confinement des porteurs sera donc plutôt symétrique par rapport au centre du puits pour des interfaces normale et inverse. En revanche, pour des concentrations de Manganèse dans les barrières supérieures à 15 %, l'aimantation maximale provient de la queue de dilution, de concentration plus faible. Et celle-ci est fortement asymétrique suivant le type d'interface. L'effet Zeeman des puits de la série 11206A/B traduit bien cette asymétrie.

L'interprétation de toutes nos mesures s'intègre parfaitement dans un modèle de ségrégation. Néanmoins nous avons voulu observer les conséquences d'une analyse de nos résultats dans un modèle d'interdiffusion. Le profil de composition est décrit, aux interfaces, par une fonction erreur, convolution du profil abrupt et de l'élargissement gaussien couramment employé pour décrire l'interdiffusion et caractérisé par une longueur de diffusion  $\ell_{Mn}^D$ . Les ajustements théoriques reproduisent parfaitement l'effet Zeeman mesuré expérimentalement. La figure II.17 montre la comparaison des longueurs caractéristiques obtenues d'après l'ajustement théorique pour reproduire l'effet Zeeman des six puits de la série 11206, dans les deux modèles.

Cependant, alors que dans le modèle de ségrégation une largeur commune de dilution permet de reproduire l'effet Zeeman du puits pour les deux types d'interfaces, deux largeurs de diffusion, bien différentes, sont nécessaires pour décrire correctement l'effet Zeeman. Nous pouvons, certes, faire intervenir un mécanisme supplémentaire pour interpréter physiquement la différence des longueurs caractéristiques données par le modèle d'interdiffusion. Par exemple, nous pourrions envisager une forte rugosité à courte échelle se développant lors de la croissance du CdMnTe. L'effet Zeeman de l'interface inverse CdTe sur CdMnTe serait ainsi accru, augmentant artificiellement la longueur d'interdiffusion de cette interface. Cet effet a été observé dans des puits de CdTe avec des barrières MnTe par Jouneau *et al.* [39]. Néanmoins, comme il a été dit précédemment, la croissance MnTe sur CdTe est hors d'équilibre. Dans nos échantillons de plus faible concentration en ions  $Mn^{2+}$ , nous pensons que ce phénomène est beaucoup moins probable. Finalement, nos analyses, effectuées dans le modèle de la ségrégation, sont tout à fait cohérentes avec celles de Grieshaber et coll. [9], qui n'ont pas observé un tel mécanisme.

#### 5. Interdiffusion par recuit

Maćkowski *et al.* [25] ont caractérisé l'interdiffusion des ions Mn et Mg aux interfaces, induite par un rapide recuit à haute température de la paire 04296A/B, en utilisant les mêmes techniques d'effet Zeeman.

Cinq parties de chacun des deux échantillons ont été recuites pendant quinze



FIG. II.17: Longueurs caractéristiques en fonction de la largeur des puits de la série 11206. Cercles et carrés pour les interfaces inverses et normales respectivement

secondes à cinq températures différentes entre 410 ° C et 510 ° C. Comme précédemment, l'énergie à champ nul et l'effet Zeeman de la transition excitonique  $E_1H_1$ des puits  $PQ_{1,2,3}$  ont été déterminés d'après les spectres de réflectivité. Les puits des dix pièces présentent tous un accroissement de l'effet Zeeman et un déplacement de l'énergie à champ nul vers le bleu (sauf étonnamment pour un puits recuit à basse température), signature très certaine de l'interdiffusion. Ce déplacement vers le bleu montre un comportement particulier : il est constant quelle que soit la largeur du puits, à température de recuit identique. Ceci est incompatible avec le seul mécanisme de l'interdiffusion qui tendrait à faire croître ce déplacement alors que la largeur du puits diminue. Les auteurs suggèrent la présence d'un autre mécanisme, la relaxation des contraintes, pour expliquer cette régularité.

L'effet Zeeman se comporte de façon plus attendue : la variation est plus importante pour les interfaces normales qu'inverses. En effet, le profil de concentration, plus abrupt à l'interface normale, sera sous l'effet du recuit plus « perturbé » que celui de l'interface inverse.

Les simulations numériques de l'effet Zeeman ont permis à Mackowski et à ses collaborateurs de caractériser l'interdiffusion des ions Manganèse et Magnésium dans la structure. Le profil, après recuit, est décrit par la convolution du profil exponentiel, caractéristique de la ségrégation lors de croissance et d'un élargissement gaussien, de longueur caractéristique  $\ell^D_{Mn,Mg}$ , modélisant l'interdiffusion. L'aimantation des interfaces est donnée, comme précédemment, par le modèle de l'aimantation locale.

Leur analyse montre que les longueurs  $\ell^D_{Mn,Mg}$  sont indépendantes du type d'interface et de la largeur du puits, conformément au modèle de l'interdiffusion. En revanche, les valeurs numériques sont particulièrement sensibles à la prise en compte



FIG. II.18: Longueurs d'interdiffusion en fonction de l'énergie de la transition fondamentale à champ nul. Température de recuit 480 ° C. Sans relaxation des contraintes (fig. a), ou avec (fig. b). Interfaces normales :  $\blacksquare$  Mn,  $\Box$  Mg et inverses :  $\bullet$  Mn,  $\circ$  Mg.

ou non de la relaxation des contraintes dans la structure. La croissance, par épitaxie de matériaux désaccordés en paramètres de maille, induit des contraintes qui modifient notamment l'énergie à champ nul de la transition excitonique  $E_1H_1$  du puits. Ces contraintes peuvent être, sous l'effet du recuit, partiellement ou totalement relaxées. Les auteurs ont comparé les longueurs de diffusion dans les deux cas limites (figure II.18) : lorsque les contraintes n'ont pas été relaxées (i) ou lorsqu'elles le sont complétement (ii). La longueur de diffusion du Magnésium décroît d'un facteur trois alors que celle du Manganèse augmente légérement en passant des situations (i) à (ii). Dans le cas (ii),  $\ell_{Mg}^{D}$  est deux fois plus faible que  $\ell_{Mn}^{D}$ . Ce résultat est en accord avec d'autres travaux [40, 41] sur des puits symétriques de CdMgTe/CdTe et CdMnTe/CdTe.

Nos résultats expérimentaux confirment l'importance du mécanisme de la ségrégation aux interfaces. Ils s'incrivent parfaitement dans la série d'études initiées par les équipes grenobloises [21, 14, 9] dans les hétérostructures semimagnétiques CdMnTe. L'analyse, par le modèle de l'aimantation locale, du comportement en champ de la transition excitonique nous a permis de caractériser les profils des interfaces d'une large gamme de puits quantiques. Nous vérifions que le processus asymétrique de la ségrégation est principalement responsable de la dégradation de la qualité des interfaces (vis à vis de l'interdiffusion notamment). Il se manifeste de façon cohérente pour l'ensemble de nos échantillons quelle que soit la largeur du puits ou la concentration en Manganèse des barrières.

# Chapitre III

# Effets excitoniques dans un gaz d'électrons bidimensionnel

La croissance d'hétérostructures II-VI dopées sélectivement (ou par modulation) de qualité est plus récente que celle des composés Silicium Métal-Oxyde-Semiconducteur (MOS) ou III-V. Néanmoins, les phénomènes précédemment observés ont été retrouvés dans ces composés : l'effet Hall quantique entier, la résonance cyclotron...

Dans le domaine de la spectroscopie optique, les puits II-VI dopés apportent une contribution intéressante tant les effets excitoniques sont importants (le Rydberg de l'exciton dans le massif est de 10 meV dans CdTe, et de seulement 4 meV dans GaAs). Ainsi, dans le régime faible dopage, quelques  $10^{10}$  électrons/cm<sup>2</sup>, le résultat le plus spectaculaire a été l'observation et l'identification de l'exciton chargé négativement (X<sup>-</sup>) dans un puits quantique CdTe par Kheng *et al.* [1]. Un deuxième exemple de ces phénomènes observés en magnétooptique dans des puits CdTe faiblement dopés est l'exciton combiné à une résonance cyclotron, observé pour la première fois par Yakovlev *et al.* [42].

La gamme des dopages intermédiaires (quelques  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ), objet de notre étude, est une région critique : le gaz d'électrons devient fortement dégénéré. Les effets excitoniques sont fortement atténués par la présence du gaz d'électrons alors que les effets collectifs deviennent importants. L'un des phénomènes le plus surprenant est la persistence (notamment en photoluminescence) d'une « singularité » dans les spectres optiques jusqu'à des dopages importants [44, 45]. Cette caractéristique est souvent attribuée à une « singularité au niveau de Fermi » ou exciton de Mahan [43] par analogie avec les singularités observées dans les métaux dans les spectres d'absorption. De nombreuses descriptions théoriques prévoient en effet l'évolution de l'exciton vers cette singularité, résultant de l'interaction coulombienne entre le trou photocréé et l'ensemble des électrons proches de la surface de Fermi (pour une revue, voir la référence [64]). De nombreux auteurs ont proposé des mises en évidence expérimentales de ce phénomène dans les III-V [44, 45]. Dans les composés II-VI, ce concept a été employé à plusieurs reprises pour décrire la persistence d'une raie, large et asymétrique, dans les spectres d'absorption [1, 46, 47]. Néanmoins, l'interprétation de cette raie n'a pas été vérifiée jusqu'à présent. En fait, les preuves (théoriques ou expérimentales) de l'origine même de cette singularité sont sujettes à de nombreuses controverses.

Une autre propriété essentielle de ces gaz bidimensionnels est la répartition des porteurs sur les niveaux de Landau discrets en champ magnétique. Elle donne lieu à toute une série de phénomènes, dont le plus connu est l'effet Hall quantique. En magnétooptique, elle se traduit par l'apparition de raies mettant en jeu des transitions entre les niveaux de Landau des bandes de conduction et de valence. Les études réalisées jusqu'à présent dans les hétérostructures II-VI ne donnent qu'une description très sommaire de ces effets [1, 46]. Or, les spectres magnétooptiques dans les III-V ont révélé un grand nombre de phénomènes originaux [45, 48].

Ces observations appellent donc à une étude plus approfondie des gaz bidimensionnels denses dans les hétérostructures II-VI. Dans ce contexte, les puits quantiques semimagnétiques dopés apportent une très bénéfique contribution à la compréhension de ces mécanismes. En champ magnétique l'effet Zeeman géant des bandes de valence et de conduction permet en effet de modifier les populations relatives des sous-bandes de spin à population totale de porteurs constante. Cette propriété est un « outil » très efficace pour distinguer ainsi les différents phénomènes dépendant ou non dépendant du spin [47].

#### Le dopage modulé

La technique du dopage modulé, qui consiste à déposer les donneurs dans la barrière à proximité du puits, permet d'obtenir un gaz d'électrons bidimensionnel d'une exceptionnelle qualité. Les porteurs, transférés dans le puits, sont séparés spatialement des donneurs, ce qui leur confère une grande mobilité. Dans CdTe, cette technique est parfaitement maîtrisée. Les donneurs sont généralement, pour le dopage n, l'Iode (à Varsovie et Würzburg) ou l'Indium et l'Aluminium (à Grenoble). L'Iode, utilisée dans nos échantillons, est un élément de la colonne VII, qui est en position substitutionnelle sur un site Tellure. Les mobilités sont certes jusqu'à présent toujours plus faibles que dans les matériaux III-V, mais atteignent des valeurs remarquablement élevées, jusqu'à  $1,4.10^5$  cm<sup>2</sup>.V<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup> [49].

Le dépôt des donneurs est réalisé de deux manières, soit par un dopage planaire (la croissance de la barrière est alors interrompue) soit par un dopage uniforme d'une fine couche de la barrière. Le dopage est plus conséquent dans cette dernière méthode sans pour autant nuire à la qualité de la couche. En revanche, la précision du dopage du puits est moins bien contrôlée. Dans les deux cas, le dopage est réalisé en aval et/ou en amont du puits à une certaine distance du puits. La couche intermédiaire non-dopée est nommée spaceur. Le dopage asymétrique, en aval du puits, limite la ségrégation des impuretés dans le puits. En contrepartie, le champ électrique détruit la symétrie du puits.

La quantité d'électrons transférés dans le puits est imposée par différents paramètres, notamment la densité de donneurs, la hauteur des barrières et la largeur du spaceur. Jusqu'à une certaine densité de donneurs, le nombre de porteurs est directement donné par le nombre de donneurs présents dans la barrière. Au-delà, le champ électrique créé par la séparation des charges positives et négatives s'oppose au transfert des électrons vers le puits. La densité de porteurs dans le puits atteint une valeur limite. Elle est alors imposée par l'égalité des potentiels chimiques du puits et



FIG. III.1: Effet du champ électrique sur la structure de bande d'un puits quantique dopé asymétriquement par modulation.

de la couche dopée, qui joue le rôle d'un réservoir d'électrons (figure III.1). Le calcul de la densité exacte est alors donné par un traitement auto-cohérent de l'équation de Schrödinger qui détermine l'énergie et la position des électrons dans un puits soumis à un champ électrique et de l'équation de Poisson qui détermine ce champ électrique en fonction du nombre de charges et de leur position. Le nombre d'électrons transférés dans le puits est alors obtenu à l'égalité des potentiels chimiques.

Une expression très simple, souvent employée pour déterminer approximativement la densité de porteurs est obtenue ainsi :

- les électrons et les donneurs ionisés forment les deux plans d'un condensateur, séparés d'une distance  $L_s$ . Le champ électrique est donc  $E = -e n_e/\epsilon\epsilon_0$  où  $n_e$  est la densité superficielle d'électrons transférés dans le puits et  $\epsilon$  est la constante diélectrique relative de la barrière;
- ce champ E dérive un potentiel électrostatique  $\phi(z)$  qui modifie la structure de bande du puits et de la barrière;
- enfin, le dopage maximum est atteint quand le niveau de Fermi du puits est égal à celui de la couche de dopants.

La densité maximale d'électrons transférés dans le puits est alors donnée par l'expression :

$$n_e^{\max} = \frac{\epsilon \epsilon_0 W}{e^2 L_s} \tag{III.1}$$

W représente le travail d'extraction d'un électron du puits vers le niveau de donneur de la barrière. Soit  $W = V_0 - E_D - E_F - E_1$ , où  $V_0$  est la hauteur de la barrière,  $E_D$  l'énergie de localisation du donneur (environ 10 meV),  $E_1$  l'énergie de l'état fondamental électronique du puits et  $E_F$  l'énergie de Fermi du gaz. Lorsque le dopage est uniforme sur une certaine largeur,  $L_s$  doit être remplacée, dans cette expression, par la distance entre le puits et le milieu de la couche de dopage. Cette expression est valable lorsque la largeur du puits est faible devant celle du spaceur.

Lorsque la barrière est dopée à saturation,  $n_e$  ne dépend plus alors que de la largeur du spaceur et de la hauteur de la barrière. Dans nos échantillons la barrière est constituée de CdMgTe. Ce composé permet d'obtenir un puits profond (~ 100 meV entre le premier niveau électronique et le haut de la barrière). La concentration maximale de porteurs est donc relativement élevée pour d'importantes largeurs du spaceur (~ 1-2.10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup> pour  $L_s = 400$  Å).

# A. Travaux antérieurs dans les composés II-VI

### 1. L'exciton chargé négativement

La formation d'un exciton chargé dans un semiconducteur, par analogie avec l'atome d'hydrogène et l'ion H<sup>-</sup>, a été évoquée pour la première fois par Lampert en 1958 [50]. Ce complexe est formé d'une paire électron-trou photocréée liée à un électron de la bande de conduction par l'interaction coulombienne. Les calculs de Lampert ont montré que l'exciton chargé négativement X<sup>-</sup>(ou trion), dans le massif, était une espèce stable, d'énergie de liaison plus forte que celle de l'exciton neutre, et ce quel que soit le rapport des masses électron-trou. Cependant, l'énergie de liaison du complexe X<sup>-</sup> (définie comme l'écart énergétique entre l'exciton et l'exciton chargé) est bien trop faible dans l'échantillon massif (quelques dizièmes de meV) pour permettre une description correcte du comportement de ce complexe.

Stébé et Ainane [51] ont montré, en revanche, que l'énergie de liaison de l'exciton chargé était considérablement augmentée (d'un facteur dix) par le confinement spatial des porteurs dans un puits quantique. Cette prédiction a été suivie de peu par l'observation à basse température (1,7 K), par Kheng et al. [1] en 1993, d'une raie à plus basse énergie que l'exciton dans un multi-puits quantique de CdTe en présence d'un gaz d'électrons (figure III.2). Ils l'ont attribuée à l'état fondamental de l'exciton chargé négativement. Les hétérostructures II-VI sont très favorables à l'observation de ce complexe car les énergies de liaison de l'exciton sont importantes. Kheng et al. [1] ont mesuré une énergie de liaison de l'exciton  $X^-$  de l'ordre de 2,7 meV dans un multi-puits de 100 Å. Le complexe  $X^-$  a été mis en évidence, deux ans plus tard, par Finkelstein et coll. [53] dans un puits de GaAs. L'énergie de liaison y est plus faible: 1,15 meV pour un puits de 200 Å. L'exciton chargé est maintenant bien identifié et décrit. Notamment, les états excités de l'exciton X<sup>-</sup> ont été observés en champ magnétique [54, 55] ou encore le complexe analogue X<sup>+</sup>, formé d'un électron et de deux trous (dans un gaz de trous bidimensionnel pour un puits dopé p), a été identifié dans GaAs [56, 55] et dans CdTe [57] et CdMnTe [47].

#### Formation et stabilité de l'exciton chargé

De manière schématique la formation de l'exciton négativement chargé est donnée par :



FIG. III.2: Manifestation de l'exciton négativement chargé (raie Y) dans les spectres de densité optique et d'émission d'un multi-puits quantique  $CdTe/Cd_{0,84}Zn_{0,16}$  Te faiblement dopé n (~ 2.10<sup>10</sup> cm<sup>-2</sup>), observé par Kheng et al. [1]. La raie X correspond à l'exciton neutre. Tirée de la référence [52].

$$h\nu_{X^-} + e_c \longleftrightarrow X^-$$

où  $e_c$  représente un électron déjà présent dans la bande de conduction et  $h\nu_{X^-}$  le photon d'énergie nécessaire à la formation de ce complexe.

Il est utile de comparer cette transition à celle,  $h\nu_X \longleftrightarrow X$ , décrivant la formation d'un exciton neutre.

Ces deux équations nous fournissent la condition de stabilité du complexe X<sup>-</sup> par rapport à l'exciton neutre :

$$X^- + (h\nu_X - h\nu_{X^-}) \longleftrightarrow X + e_c$$

Le terme de droite représente le système exciton + électron non liés. La stabilité du complexe X<sup>-</sup> est donc assurée si la différence d'énergie  $E_{X^-} = h\nu_X - h\nu_{X^-}$ est positive.  $E_{X^-}$  est appelée énergie de liaison de l'exciton chargé. Elle dépend évidemment de la structure réelle du puits, comme l'exciton neutre. Le paramètre le plus important est la largeur du puits (mais cette énergie dépend aussi de la hauteur des barrières...). La variation de l'énergie de liaison de l'exciton chargé négativement avec la largeur du puits est montrée sur la figure III.3 (d'après Wojtowicz *et al.* [58]). Elle a été obtenue par différentes équipes sur une large gamme de puits, dans la limite des faibles dopages (~  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup>). Elle est bien sûr une fonction décroissante de la largeur et tend vers une valeur constante non nulle, proche de 1,5 meV pour les plus larges puits (~ 600 Å). Stébé *et al.* [61] ont effectué un calcul théorique qui tient



FIG. III.3: Énergie de liaison du trion  $X^-$  en fonction de la largeur du puits. Les données ont été obtenues en photoluminescence ( $\blacksquare$ ), en excitation de la photoluminescence et en réflectivité (•) sur des échantillons produits à Varsovie. Les triangles représentent les résultats obtenus sur des puits provenant de Grenoble [1, 59, 60]. La ligne continue représente les calculs théoriques Stébé et al. [61] adaptés à CdTe. Tirée de la référence [58].

compte de la structure réelle du puits. Leurs résultats semblent surestimer l'énergie de liaison de l'exciton chargé, comme l'ont remarqué Wojtowicz *et al.* [58].

La force d'oscillateur de l'exciton chargé est très forte comme l'a montrée l'équipe de Cox [1, 62, 52]. Celle-ci, renormalisée à la densité d'électrons du gaz, est dix fois plus importante que celle de l'exciton lié à un donneur neutre ( $D^0X$ ) qui est pourtant reconnue elle-aussi comme élevée. L'exciton chargé disparaît toutefois rapidement lorsque la température augmente de quelques dizaines de Kelvins.

#### L'exciton chargé en champ magnétique

50

Nous abordons ici une propriété essentielle des excitons chargés: la polarisation circulaire des transitions en champ magnétique, en configuration Faraday. La fonction d'onde de l'état fondamental de l'exciton X<sup>-</sup> possède une partie orbitale électronique, de moment angulaire nul, symétrique par échange des électrons. Elle implique alors une partie antisymétrique de spin des électrons. L'électron photocréé et l'électron déjà présent dans la bande de conduction doivent être de spin opposé. Cet état antisymétrique de spin est appelé exciton X<sup>-</sup> singulet (X<sup>-</sup><sub>s</sub>). La projection du moment cinétique total du complexe X<sup>-</sup><sub>s</sub> est donnée par la composition des moments cinétiques des trois particules. Les spins anti-parallèles des électrons apportent une contribution nulle. La projection du moment cinétique du trion X<sup>-</sup><sub>s</sub> est donc identique à celle du trou (lourd)  $\pm 3/2$ . Pour la formation d'un exciton X<sup>-</sup><sub>s</sub> en lumière polarisée  $\sigma^{\pm}$  à partir de l'état initial de l'électron de la bande de conduction,



FIG. III.4: Transitions permises pour la formation du  $X_s^-$  en polarisation circulaire sous champ magnétique (configuration Faraday). (a) facteur gyromagnétique des électrons négatif (par exemple CdTe). (b) positif (par exemple CdMnTe).



FIG. III.5: Disparition de l'exciton chargé  $X^-$  en champ magnétique due à la polarisation complète de spin par l'effet Zeeman. Le facteur gyromagnétique est ici positif.

 $h\nu_{X^-} + e_c \to X^-$ , les règles de sélection, en configuration Faraday, imposent à la projection du moment cinétique de changer de +1 (-1) en polarisation  $\sigma^+$  ( $\sigma^-$ ). En présence de champ magnétique (perpendiculaire à l'axe de croissance), l'effet Zeeman lève la dégénérescence des niveaux d'électrons et de trous. La figure III.4 montre les transitions permises en polarisation  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  dans deux cas : lorsque le facteur gyromagnétique des électrons de la bande de conduction est négatif (figure III.4.a) comme dans le CdTe, ou au contraire lorsqu'il est positif, comme dans le CdMnTe suffisamment concentré en Manganèse (figure III.4.b).

Une conséquence immédiate de ces règles de sélection est la disparition progressive dans les spectres magnétooptiques de l'exciton chargé dans l'une des deux polarisations circulaires, suivant le signe de g, lorsque le gaz présente une polarisation de spin due à l'effet Zeeman. Dans CdMnTe, dans lequel le facteur gyromagnétique effectif est positif, les électrons occupent préférentiellement les états de spin -1/2 en champ magnétique (figure III.5). La formation de l'exciton chargé X<sup>-</sup> devient alors impossible en polarisation circulaire  $\sigma^+$ , un électron de spin +1/2 étant requis.



FIG. III.6: Dépendance en champ magnétique de l'énergie de l'exciton, de l'exciton chargé et de l'exciton combiné à deux résonances cyclotron (ExCR1 et ExCR2) déterminées d'après les spectres de PLE. Tirée de la référence [63].

## 2. L'exciton combiné à une résonance cyclotron

Yakovlev *et al.* [42] ont rapporté récemment l'observation, en champ magnétique, d'un exciton combiné à une résonance cyclotron dans un puits quantique CdTe/CdMgTe faiblement dopé n (quelques  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup>). La formation de ce complexe se traduit par l'apparition d'une nouvelle structure, à plus haute énergie que l'exciton, dans les spectres de photoluminescence d'excitation et de magnéto-réflectivité (figure III.6). Le processus, proposé par Yakovlev *et al.* [42], est le suivant : un photon incident crée un exciton dans son état fondamental et simultanément excite un électron du gaz d'un niveau de Landau vers un niveau de Landau supérieur.

Plusieurs résonances combinées à un exciton ont été observées dans des puits CdTe de densité plus élevée (~  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup>) comme le montre la figure III.6 [63]. La dépendance de l'énergie en champ de ces complexes est donc essentiellement linéaire, proche d'un multiple de la résonance cyclotron de l'électron  $\hbar\omega_c$ . En fait, Yakovlev *et al.* [42] ont montré que l'énergie de ce complexe était de la forme  $n\hbar\omega_c(1+m_e/(m_e+m_h))$  avec n = 1, 2, 3... Ce complexe est proche de l'exciton chargé. Ils impliquent tous deux trois particules. Néanmoins l'exciton combiné à une résonance cyclotron n'est pas un état lié. Il est à comparer au processus de « shake-up » observé en luminescence, lorsqu'un exciton est détruit tout en excitant un électron vers les niveaux de Landau supérieurs [55]. Notons toutefois que Cox *et al.* [52] ont observé un phénomène analogue mais l'ont attribué à un état triplet de l'exciton chargé.

# 3. Fortes densités ( $\sim 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )

Lorsque la densité de porteurs augmente notablement (~  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup>), le gaz perturbe fortement les effets excitoniques. L'écrantage et surtout le remplissage de

l'espace des phases (réduction du nombre d'états accessibles pour la formation de l'exciton) par les porteurs deviennent importants. Le paramètre qui décrit qualitativement le comportement de l'exciton en présence de porteurs est donné par le nombre d'électrons libres par orbite de Bohr de l'exciton  $\pi a_0^2 n_e$ , où  $a_0$  est le rayon de Bohr de l'exciton et  $n_e$  est la densité surfacique d'électrons. Lorsque ce produit est très petit devant l'unité, l'exciton est très peu sensible à la présence du gaz d'électrons; l'énergie de liaison et la force d'oscillateur de l'exciton ne sont pas affectées. À l'inverse, lorsque  $\pi a_0^2 n_e \gg 1$ , le gaz de porteurs déstabilise l'exciton. Dans CdTe,  $\pi a_0^2 n_e^c \sim 1$  pour une densité critique  $n_e^c \sim 10^{12}$  cm<sup>-2</sup>. Nous pouvons donner de ce critère deux autres versions, presque équivalentes:

$$\pi a_0^2 n_e \sim 1$$

$$a_0 k_F \sim 1$$

$$E_F/R_0 \sim 1$$

où  $E_F$  et  $k_F$  sont respectivement l'énergie et le module du vecteur d'onde de Fermi, et  $R_0$  l'énergie de liaison de l'exciton.

Jusqu'à récemment, l'évolution des spectres d'absorption à champ nul en fonction du dopage était décrite par une raie excitonique qui se transformait lentement en une structure large et asymétrique vers les hautes énergies, appelée « singularité au niveau de Fermi » ou exciton de Mahan [43] par analogie aux spectres d'absorption des rayons X dans les métaux. Pour les dopages plus élevés (supérieurs à  $10^{12}$  cm<sup>-2</sup>), seul le spectre des transitions interbandes reste visible. Ainsi en 1993, Kheng *et al.* [1] ont interprété la structure unique du spectre d'absorption d'un puits CdTe de relativement forte concentration (1,8.10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>) comme une « singularité au niveau de Fermi » (FES sur la figure III.9). L'existence d'un tel état lié proviendrait de l'interaction coulombienne entre les N+1 électrons de la mer de Fermi et le trou photocréé (pour une revue, voir la référence [64]). L'origine de cette divergence est toutefois contestée [65]. Il a été montré d'ailleurs qu'à deux dimensions, elle ne pouvait exister que dans le cas de trous localisés [66].

La découverte de l'exciton chargé a modifié cette interprétation. L'intensité de l'exciton neutre est en effet rapidement dominée par celle de l'exciton chargé. Pour les forts dopages, la raie unique observée dans les spectres d'absorption est donc due à l'exciton chargé (figure III.7). L'exciton neutre a lui disparu rapidement ( $\sim 10^{11}\,{\rm cm^{-2}}$ pour CdTe). Ce phénomène a été observé dans les puits quantiques III-V [67, 68], et II-VI [58, 69] pour le trion  $X^-$  et pour le complexe  $X^+$  dans CdMnTe [47] et GaAs [70]. Une caractéristique étonnante de l'évolution de l'exciton chargé est que l'énergie de la transition reste constante, en absorption (figure III.7 et [69, 58]), jusqu'à des dopages importants (de l'ordre de  $4.10^{11}$  cm<sup>-2</sup> dans CdTe dopé n [69]). Ce comportement a été aussi observé par Wojtowicz et al. [46] dans un puits magnétique de  $Cd_{0,99}Mn_{0,01}Te$ , de 80 Å de largeur dopé n. Le dopage, asymétrique, est modulé spatialement jusqu'à  $4,8.10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. La figure III.8 montre la dépendance de l'énergie de la transition excitonique X<sup>-</sup> avec la densité d'électrons en quatre points de l'échantillon de densités croissantes. Elle reste bien constante à  $\pm$ 2 meV. La seule interprétation théorique de ce phénomène à ce jour a été fournie par Hawrylak [71, 72] (toutefois, pour des trous localisés). Il proviendrait de la compensation exacte de différents mécanismes (renormalisation de la bande interdite,

54



FIG. III.7: Spectres de transmission à champ nul pour différentes concentrations de trous (en unité de  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup>, en regard des spectres) d'un puits CdMnTe. X<sup>+</sup> et X sont respectivement associés à l'exciton chargé positivement et à l'exciton neutre. Tirée de la référence [47].



FIG. III.8: Dépendance de l'énergie de la transition excitonique  $X^-$  avec la densité d'électrons dans un puits semimagnétique  $Cd_{0,99}Mn_{0,01}$  Te, de 80 Å de largeur, dopé n. À dopage nul, le premier point a été obtenu en soustrayant à l'énergie de liaison de l'exciton neutre l'énergie de liaison de l'exciton chargé (~ 2,7 meV). Tirée de la référence [46].

affaiblissement de l'énergie de liaison de l'exciton et déplacement de Moss-Burstein, notamment).

En champ magnétique, les spectres magnétooptiques (émission ou absorption) sont radicalement modifiés pour ces densités ( $10^{11}$  cm<sup>-2</sup>). L'image de l'exciton, formé par une paire électron-trou en interaction coulombienne et faiblement perturbée par le champ magnétique (régime champ faible) n'est plus valable. L'écrantage et le remplissage de l'espace des phases par le gaz de porteurs amoindrissent notablement la stabilité de ce complexe. Le terme coulombien n'est plus dominant et les spectres optiques ne laissent apparaître que les transitions libres interbandes. En magnétooptique, le terme diamagnétique l'emporte et les spectres d'émission ou d'absorption montrent une série de structures associées aux transitions interbandes entre niveaux de Landau de valence et de conduction. L'apparition de ces transitions a été rapportée dans les puits de CdTe [1, 46]. La figure III.9 montre l'énergie diamagnétique de ces transitions  $(\lambda_{0-0}, \lambda_{1-1} \text{ et } \lambda_{2-2})$  en fonction du champ magnétique obtenues par Kheng [73] dans l'analyse des spectres de magnéto-absorption d'un puits quantique CdTe/CdZnTe de 100 Å dopé n,  $n_e = 1,8.10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. Elles suivent bien la dépendance en  $(n+1/2)\hbar\omega^*$ , attendue pour ce type de transitions  $(\hbar\omega^* \text{ est l'énergie})$ cyclotron réduite de la paire électron-trou).



FIG. III.9: Énergies des raies d'absorption en polarisation  $\sigma^+$  (symboles fermés) et  $\sigma^-$  (symboles ouverts) d'un puits de  $CdTe/Cd_{0,78}Zn_{0,22}Te$  de 100 Å dopé n,  $n_e = 1,8.10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. Tirée de la référence [73].

# B. Résultats expérimentaux

#### 1. Structure

Notre étude a porté sur deux puits quantiques semimagnétiques dopés n, réalisés par G. Karczewski à l'Institut de Physique de l'Académie des Sciences de Varsovie, par épitaxie par jets moléculaires. Le gaz bidimensionnel est de densité assez élevée (~  $2.10^{11}$  cm<sup>-2</sup>), dopé par modulation à saturation. Le puits est formé d'un alliage semimagnétique CdMnTe de relativement faible concentration en Manganèse  $(\sim 2\%)$ . La largeur du puits est identique pour les deux échantillons : 100 Å. Les barrières sont constituées d'un alliage  $Cd_{1-x}Mg_xTe$ , où  $x_{Mg} \sim 15$  %. La croissance des puits quantiques a été réalisée sur une couche tampon de CdMgTe transparente aux longueurs d'onde de la transition  $E_1H_1$  du puits. Un superréseau de courte période, inséré dans cette couche, limite la ségrégation des impuretés vers le puits. La couche de couverture est épaisse de 2000 Å. Pour les expériences de transmission, le substrat de GaAs, opaque, a été retiré par abrasion mécanique, puis attaqué sélectivement par une solution chimique  $(H_2O_2 + 1/20 \text{ NH}_3)$ . L'échantillon a été auparavant collé, du côté de la couche de couverture, sur une plaque de verre par une colle époxy. Un doucissage de la surface de la couche tampon permet d'éliminer la majeure partie des franges dues aux réflections multiples entre les interfaces semiconducteur-air. L'effet du collage n'apporte aucune modification de la structure de bande du puits, comme le montrent les spectres de réflectivité et de photoluminescence effectués avant et après traitement.

Le dopage, par le donneur Iode, est asymétrique, uniforme sur une épaisseur de 100 Å, côté couche de couverture. L'épaisseur du spaceur est  $L_s = 400$  Å, assurant une densité élevée d'électrons, tout en séparant largement les donneurs du puits.

La concentration en Mg des barrières est déterminée par la longueur d'onde de coupure de la transmission. En revanche, nous ne disposons d'*aucune* mesure directe de la concentration en Mn des deux puits (le dopage modifiant, notamment, la largeur de bande interdite du puits). L'estimation donnée par le constructeur, d'après la calibration des flux, est d'environ 2 %. Le tableau III.1 résume les caractéristiques de ces deux puits.

	Concentration (en %)		Largeur	Largeur	
Échantillon	$x_{Mn}$	$x_{Mg}$	du puits	du spaceur	
$S_1$ 060198B	$\sim 2$	14,7	100 Å	400 Å	
$S_2  060298A$	$\gtrsim 2$	16	100 11	100 11	

TAB. III.1: Caractéristiques des deux puits quantiques étudiés dans ce mémoire.

## 2. Mesure de la densité électronique – Effet Shubnikov-de Haas

La densité d'électrons transférés dans le puits  $n_e$ , estimée d'après l'équation III.1, est de l'ordre de 1-2.10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup> pour les deux échantillons. L'énergie de Fermi est



FIG. III.10: Magnéto-résistance de l'échantillon  $S_1$  à 1,6 K, combinaison des résistances transverses et longitudinales.

alors inférieure à 6 meV, ce qui assure que seul le premier niveau confiné du puits  $E_1$  est occupé par le gaz d'électrons (la distance  $E_1-E_2$  est de l'ordre de 60 meV dans ces échantillons). Une mesure précise de cette densité a été obtenue pour l'échantillon  $S_1$  d'après la périodicité des oscillations Shubnikov-de Hass, observées en magnétotransport. Ces expériences ont été réalisées par J. P. Vieren au LPMC de l'École Normale Supérieure. La difficulté à réaliser de bons contacts ohmiques a restreint notre étude à des mesures à quatre contacts. Le spectre en champ magnétique présente donc un mélange des résistivités longitudinale ( $\rho_{xx}$ ) et transverse ( $\rho_{xy}$ ). Les contacts ont été réalisées aux quatre coins d'un morceau de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  environ en deux étapes : légère gravure par une pointe de Tungstène et attaque à l'acide chloroaurique. Ce dernier fait diffuser l'Or qu'il contient depuis la surface jusqu'au puits, en 12 heures environ, assurant ainsi le contact ohmique.

La magnéto-résistance a été mesurée, à 1,6 K, jusqu'à 12 T, en courant alternatif d'amplitude constante (27,7 kHz, 100  $\mu$ A). La tension est mesurée par une détection synchrone. Les mesures ont été précédées, à basse température, par l'éclairement de l'échantillon par une diode électroluminescente émettant dans le rouge, reproduisant (imparfaitement) les conditions expérimentales de magnétooptique. La magnétorésistance ainsi mesurée est reportée sur la figure III.10.

Les oscillations Shubnikov-de Haas sont observées à partir de 0,6 T, ce qui montre l'excellente qualité de cet échantillon. Cependant, les amplitudes sont faibles, de l'ordre de 2 % de la résistance totale.

Les minimums de résistivité correspondent aux champs magnétiques pour lesquels le niveau de Fermi saute d'un niveau de Landau n à celui qui le précède (lorsqu'un niveau vient tout juste de se vider). Ceci se produit donc lorsque le facteur de remplissage,  $\nu = hn_e/eB$ , est un nombre entier. La figure III.11 représente l'inverse des champs correspondant aux minimums de résistivité (repérés par une



FIG. III.11: Inverse des champs magnétiques correspondant aux minimums de resistivité en fonction des valeurs entières de  $\nu$ . La pente de la droite passant par  $\nu = 1$ , 2... 6 correspond à une densité électronique  $n_e = (2, 3 \pm 0, 5).10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. Échantillon  $S_1$ .

flèche sur la figure III.10) en fonction des valeurs entières de  $\nu$ .

Au-delà de 1,5 T, la dépendance de  $B^{-1}(\nu)$  est linéaire, passant par zéro. La pente  $B^{-1}/\nu = e/n_e h$  fournit une densité électronique de 2,3.10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>. À plus petit champ, en revanche, le comportement tout en restant linéaire ne s'extrapole plus à zéro. Il provient très certainement du croisement des différents niveaux de Landau de spins opposés.

À proximité de  $\nu = 1, 2, 3$  et 4, dans le flanc bas champ de l'oscillation, la résitivité montre une anomalie qui se traduit notamment à  $\nu = 1$  par un plateau. Elle pourrait provenir du mélange des contributions des composantes transverses et longitudinales. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous envisagerons le possible croisement ou recouvrement de niveaux de Landau.

## 3. Résonance cyclotron dans l'infrarouge lointain

Des expériences de résonance cyclotron dans l'infrarouge lointain nous ont permis de confirmer que la masse effective des électrons n'était pas ou peu modifiée par le gaz de porteurs. Elles ont été réalisées par J.-P. Vieren au LPMC de l'École Normale Supérieure de Paris jusqu'à 12 T et 1,6 K sur l'échantillon  $S_1$ . Les transitions intra-niveaux sont étudiées en transmission. La lumière incidente monochromatique, non polarisée, provient d'une raie laser d'un gaz (H<sub>2</sub>O, acide formique...) excité par un laser CO<sub>2</sub> ou d'un carcinotron (pour les plus faibles énergies). La lumière transmise est détectée par une résistance Allen-Bradley disposée immédiatemment après l'échantillon. Les spectres sont obtenus en balayage en champ à énergie fixe (celle de la raie laser, ou du carcinotron). Le plan du puits est perpendiculaire au



FIG. III.12: Spectres de transmission de l'échantillon  $S_1$  en fonction du champ dans l'infrarouge lontain à différentes énergies. Les spectres sont décalés les uns par rapport aux autres d'une quantité arbitraire.

champ magnétique.

Les spectres obtenus à diverses énergies, de 1,3 à 10,5 meV, sont reportés sur la figure III.12. Les résonances cyclotrons sont repérées par le minimum de transmission.

Leur énergie est portée sur la figure III.13 en fonction du champ magnétique. Les points s'alignent sur une droite qui passe par zéro.

Rappelons que seules les transitions intrabandes entre un niveau de Landau de la bande de conduction n (partiellement ou totalement occupé) et le niveau de Landau n + 1 de même spin sont permises. L'énergie de la résonance cyclotron est  $\hbar\omega_c = (\hbar e/m_e) B$ . L'ajustement théorique des points expérimentaux par une droite passant par l'origine donne la valeur de la masse effective  $m_e = 0,105 m_0$ . Cette valeur est très proche de celle connue  $m_e = 0,096 m_0$  [38]. L'écrantage par le gaz d'électrons ne semble donc pas modifier la masse de l'électron.

Quelques oscillations sont observées dans le flanc haut champ de la résonance cyclotron sur le spectre de basse énergie à 1,3 meV (figure III.14). Elles montrent un minimum lorsque  $\nu$  est un entier. Nous les avons attribuées à des oscillations d'Ando [74], déjà observées dans des hétérostructures III-V [75] ou dans des structures Si-MOS [76]. Elles apparaissent lorsque la largeur de la résonance cyclotron est suffisamment importante pour que le niveau de Fermi traverse plusieurs niveaux de Landau. Elles sont du type Shubnikov-de Haas [33].



FIG. III.13: Énergie de la résonance cyclotron en fonction du champ magnétique. La droite, passant par l'origine, est un ajustement donnant pour masse effective de l'électron  $m_e = 0, 105 m_0$ .



FIG. III.14: Spectre de transmission en balayage en champ à 1,33 meV. Les oscillations observées sur le flanc haut champ de la résonance cyclotron (R.C.) dont le minimum correspond à  $\nu$  entier sont attribuées à des oscillations d'Ando [74].



FIG. III.15: Transmission sans champ magnétique à 1,7 K de l'échantillon  $S_1$ . La flèche indique la position de la structure B mentionnée dans le texte.

## 4. Magnétotransmission dans l'infrarouge proche

Nous présentons les résultats des mesures de magnétotransmission effectuées sur les échantillons  $S_1$  et  $S_2$ . Les expériences ont été réalisées à 1,7 K en immersion dans l'hélium superfluide. Les échantillons sont placés au centre d'une bobine supraconductrice à accès optique; leur axe de croissance est parallèle au champ. Ces mesures ont été réalisées en configuration Faraday dans notre laboratoire jusqu'à 7 T et jusqu'à 14 T au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses de Grenoble dans l'équipe de M. Potemski. Les dispositifs expérimentaux sont quelque peu différents : dans le premier cas, l'échantillon est éclairé en lumière monochromatique polarisée circulairement  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$  et un photomultiplicateur détecte la lumière transmise; dans le second cas, la lumière incidente est polychromatique, filtrée pour l'infrarouge, non polarisée et la lumière transmise est détectée en polarisation circulaire par une caméra CDD multicanale. Malgré cette différence, les spectres obtenus sont parfaitement identiques dans la gamme commune de champs (de 0 à 7 T).

Le spectre de transmission à champ nul de l'échantillon  $S_1$  est reporté sur la figure III.15. Il présente, de part et d'autre des structures associées au puits, de légères oscillations qui proviennent des réflexions multiples entre les deux interfaces semiconducteur-air. Elles rendent malaisée la normalisation des spectres, mais permettent néanmoins un dépouillement très simple des différentes raies. Les énergies des transitions seront repérées, en effet, par le minimum de transmission (ce qui n'est pas habituellement le cas en réflectivité).

Le spectre montre une raie prononcée A à 1639,5 meV, large (5 meV) et asymétrique vers les hautes énergies. Son intensité est relativement faible, inférieure à 5 % du signal. Cet échantillon montre de plus une très faible structure, B, à 1649,5 meV. Le spectre de l'échantillon S<sub>2</sub> est analogue : la structure A se trouve à 1644 meV. Néanmoins, la raie B n'est pas visible à champ nul.



FIG. III.16: Évolution du spectre de transmission de l'échantillon  $S_1$  de 0 à 1,5 T par pas de 0,25 T dans les deux polarisations circulaires à 1,7 K.

Observons le comportement de ces structures en champ magnétique. En polarisation circulaire  $\sigma^-$ , la structure *B* disparaît totalement alors que la raie *A* montre un effet Zeeman qui devient saturé vers 6 T à 1653 meV dans l'échantillon S<sub>1</sub> et à 1660 meV dans le deuxième échantillon. La forme de cette structure reste identique. *Aucune* particularité supplémentaire n'est observée jusqu'à 14 T.

En revanche, les spectres en polarisation  $\sigma^+$  sont radicalement modifiés. L'évolution en champ magnétique jusqu'à 1,5 T du spectre de transmission de l'échantillon  $S_1$  en polarisation  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  est présentée sur la figure III.16.

La structure A perd très rapidement de son intensité pour disparaître à 1,5 T. Cette décroissance se fait au profit de la structure B qui présente rapidement à 1,5 T une intensité comparable à celle de la structure A à champ nul. L'évolution des intensités de ces deux raies est reportée sur la figure III.17. Toutes deux présentent un fort effet Zeeman : il est de 9 meV à 1,5 T pour la structure A et de 14,5 meV pour la raie B.

Ces résultats sont comparables dans le deuxième échantillon S<sub>2</sub>. La structure B, inexistante à champ nul, apparaît très rapidement (B < 0.2 T), 10 meV au dessus de la structure A, et croît progressivement au détriment de la raie A qui disparaît à 1,2 T.

Au-delà de 1,5 T, pour l'échantillon  $S_1$ , la structure B évolue vers une série de transitions (notées  $L_n$ ) qui apparaissent à des valeurs particulières du champ magnétique  $B_n$ . Les figures III.18 et III.19 montrent un exemple de ces apparitions dans les spectres de transmission lorsque le champ magnétique augmente de 2,8 T à 5,4 T. De 2,8 T à 3 T, la transition  $L_3$ , apparue à 2,3 T, domine le spectre. Puis, à 3,1 T, une très faible structure  $L_2$  émerge à gauche de la raie  $L_3$ , à 1630,5 meV. Alors que le champ augmente, cette transition s'intensifie, et la raie  $L_3$  s'affaiblit. La raie  $L_2$ , qui domine maintenant le spectre est très fine (sa largeur à mi-hauteur est inférieure



FIG. III.17: Évolution des intensités des deux structures A et B en fonction du champ magnétique. En polarisation  $\sigma^-$  ( $\circ$ ) et  $\sigma^+$  ( $\bullet$ ) pour la structure A et en  $\sigma^+$  ( $\blacksquare$ ) pour la structure B.

à 2 meV) et son énergie varie peu avec le champ. Ce comportement constitue le premier régime de la raie  $L_2$ . En revanche, la raie  $L_3$  se déplace rapidement vers les hautes énergies. À 4,6 T, ce cycle se reproduit : une nouvelle raie  $L_1$  apparait à plus basse énergie, à 1628 meV. Et à son tour, alors que le champ magnétique augmente, la raie  $L_2$  perd de son intensité et son énergie croît rapidement. Ce comportement correspond au second régime de la raie  $L_2$ .

L'évolution des énergies de ces raies est reportée sur la figure III.20. Nous avons pu observer dans cet échantillon jusqu'à sept raies  $L_{0...6}$ , apparaissant à sept valeurs particulières du champ magnétique. Elles montrent toutes (sauf la raie  $L_0$ ) une variation linéaire dans leur partie haut champ. L'échantillon S<sub>2</sub> présente un comportement identique (figure III.21).

Cette évolution ressemble au spectre observé par Kheng *et al.* [1] (figure III.9) dans un puits de CdTe dopé n, de densité comparable  $(1,8.10^{11} \text{ cm}^{-2})$ . Ils ont attribué ces raies  $(\lambda_{0-0}, \lambda_{1-1} \text{ et } \lambda_{2-2})$  à des transitions inter-niveaux de Landau de la bande de valence trous lourds et de la bande de conduction. En polarisation  $\sigma^+$ , seules les transitions entre les niveaux de Landau n de la bande de valence de spin -3/2 et les niveaux de Landau n de la bande de conduction de spin -1/2 sont permises.

Deux éléments confirment cette interprétation dans nos échantillons. D'une part, l'énergie des transitions  $L_n$ , n = 2, 3, dans leur partie linéaire et à haut champ lorsque l'effet Zeeman est presque saturé, est proche de l'énergie diamagnétique  $E_n = (n + 1/2)\hbar\omega^*$  où  $\hbar\omega^*$  est la somme des énergies cyclotron de l'électron ( $\hbar\omega_c$ ) et du trou lourd ( $\hbar\omega_v$ ). La pente  $\hbar\omega^*/B = 1, 6 \pm 0, 1$  meV/T est en relativement bon accord avec les valeurs des masses effectives des électrons et des trous connues [38]  $m_e = 0,096 m_0$  et  $m_{h/\ell} = 0,193 m_0$ .

D'autre part, la disparition d'une raie  $L_n$  à un champ particulier  $B_n$  signifie que



FIG. III.18: Évolution du spectre de transmission en champ magnétique de l'échantillon  $S_1$  en polarisation  $\sigma^+$  entre 2,8 T et 3,4 T.





66



FIG. III.20: Énergies des transitions observées en polarisation  $\sigma^+$  (symboles ouverts) et  $\sigma^-$  (symboles fermés) en fonction du champ magnétique pour l'échantillon  $S_1$ . Les courbes continues sont un ajustement théorique d'après le modèle décrit dans la partie C. de ce chapitre.



FIG. III.21: Identique à la figure III.20, mais pour l'échantillon  $S_2$ .



FIG. III.22: Inverse des champs d'apparition  $B_n^{-1}$  des raies  $L_n$  en fonction du facteur de remplissage  $\nu$  de l'échantillon  $S_1$  ( $\Box$ ). Les inverses des champs correspondant à des minimums de résistivité sont aussi représentés ( $\circ$ ).

le niveau de Landau n de la bande de conduction de spin -1/2 est complétement peuplé. Les transitions vers ce niveau ne sont plus possibles. À ce champ, le facteur de remplissage  $\nu$  est un nombre entier. Nous avons tracé sur la figure III.22 l'inverse des champs d'apparition  $B_n^{-1}$  des raies  $L_n$  en fonction de n+1 pour n=0, 1... 5. Les points s'alignent, aux erreurs expérimentales près, sur une  $m\hat{e}me$  droite passant par l'origine. Cette disposition des champs d'apparition est identique à celle obtenue d'après les champs correspondant aux minimums de résistivité dans les mesures de l'effet Shubnikov - de Haas. Au champ d'apparition  $B_n$ ,  $\nu = n + 1$ . Les niveaux de Landau électroniques de spin opposé +1/2 n'interviennent donc plus au-delà de 1,5 T: le gaz d'électrons n'occupe que les niveaux de Landau de spin -1/2. Il est totalement polarisé de spin -1/2. Ce résultat est confirmé par le comportement de la raie en polarisation circulaire  $\sigma^-$  qui ne montre *aucune* irrégularité jusqu'à 14 T. La densité obtenue d'après les mesures de magnétooptique est identique aux résultats donnés par l'effet Shubnikov-de Haas. La pente donne  $n_e = \nu e B/h =$  $(2, 25 \pm 0, 05).10^{11}$  cm<sup>-2</sup> (le niveau de Fermi  $E_F = 5,40$  meV). L'échantillon S<sub>2</sub> présente un comportement identique (figure III.23). Nous pouvons ainsi déterminer sa densité de porteurs  $n_e = (2, 25 \pm 0, 05).10^{11}$  cm<sup>-2</sup>, identique à l'échantillon S<sub>1</sub>.

Le champ d'apparition de la raie  $L_0$  ne respecte pas cependant la périodicité en 1/B. Elle apparaît à un champ plus faible d'environ 0,7 T (figures III.20 et III.21). Cette anomalie peut provenir de la localisation des porteurs sur des fluctuations de potentiels [1, 73].

Observons à présent plus précisément le comportement de ces transitions peu après leur apparition. Nous avons remarqué que l'énergie d'une transition  $L_n$  varie peu, dans un premier régime, entre son champ d'apparition  $B_n$  et le champ d'apparition  $B_{n-1}$  de la raie suivante  $L_{n-1}$ . L'effet Zeeman dû aux interactions sp - d



FIG. III.23: Inverse des champs d'apparition  $B_n^{-1}$  des raies  $L_n$  en fonction du facteur de remplissage  $\nu$  de l'échantillon  $S_2$ .

avec les ions Manganèse étant inconnu (car la concentration en Manganèse dans le puits n'est pas déterminée précisément), nous nous affranchissons de sa contribution en traçant sur la figure III.24 la différence d'énergie  $\Delta_n = E_{n+1} - E_n$  de deux raies successives  $L_{n+1}$  et  $L_n$ , à un champ donné.

À haut champ, pour  $\nu < n$ , soit  $B > B_n$ , lorsque les deux niveaux de conduction n+1 et n sont vides alors toutes les différences  $\Delta_n$  s'alignent sur une droite unique de pente  $\hbar\omega^* = 1, 5 \pm 0, 1$  meV. Toutefois, cette droite ne s'extrapole pas à une énergie nulle quand B tend vers 0, mais à 1 meV environ au-dessus. En revanche, lorsque B est inférieur à  $B_n$ ,  $\Delta_n$  montre une nette rupture de pente. Par exemple, pour B > 4, 6 T, la différence  $\Delta_2$  entre les raies  $L_3$  et  $L_2$  suit bien la droite de pente  $\hbar\omega^*$ . Alors que pour B < 4, 6 T, lorsque le niveau de conduction n = 3 commence à se remplir, nous observons une cassure. La discontinuité des points correspondant à  $\Delta_1$  entre 7 et 9,2 T provient de l'existence d'un anticroisement de la raie  $L_2$  avec une raie à 1646 meV, dont nous ignorons encore l'origine. La différence  $\Delta_0$  est aussi pertubée par l'anticroisement de la raie  $L_1$  avec une autre raie toute aussi incomprise.

Cette rupture intervient lorsque le niveau de Landau électronique n devient peuplé. Lorsque le niveau de Landau n est vide (soit  $\nu < n$ , ou  $B > B_n$ , dans le second régime) la transition  $L_n$  adopte un comportement *semblable* à une transition interniveaux de Landau, alors que lorsqu'il est occupé, pour  $B < B_n$ ,  $E_n$  montre une dépendance plus faible que celle attendue pour les transitions interbandes.

Observons maintenant l'évolution de la forme des raie  $L_n$  en champ. Les amplitudes<sup>1</sup> de raies  $L_n$ , n = 1, 2, 3, 4, 5 de l'échantillon S<sub>1</sub> ont été portées sur la figure III.25. Le comportement est identique pour ces cinq raies. L'intensité de la raie  $L_n$  croît d'abord rapidement au fur et à mesure que le niveau n se dépeuple,

<sup>1.</sup> En fait, la force d'oscillateur d'une transition en transmission est extraite de la densité optique,  $(-\ln I_t/I_0)$ . Mais les franges d'interférence rendent malaisé ce traitement.



FIG. III.24: Différences d'énergie entre deux raies successives  $L_{n-1}$  et  $L_n$  en fonction du champ magnétique pour l'échantillon  $S_1$ . Les flèches indiquent les champs correspondant à des valeurs entières du facteur de remplissage  $\nu$ .



FIG. III.25: Amplitudes en fonction du champ magnétique des raies  $L_n$ , n = 1, 2, 3, 4, 5 de l'échantillon  $S_1$ .
72



FIG. III.26: Largeurs des raies  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$  et  $L_4$  en fonction du champ magnétique. Échantillon  $S_1$ .

passe par un maximum à  $B = B_{n-1}$ , pour  $\nu = n$  lorsque le niveau se vide totalement, puis décroît alors que la raie  $L_{n-1}$  apparaît. L'intensité de la raie  $L_1$  passe par son maximum bien avant  $\nu = 1$ . Cette anomalie est à relier à l'apparition précoce de la raie  $L_0$ . La largeur (à mi-hauteur) et l'intensité intégrée (produit de la largeur par la hauteur) présentent un comportement similaire. Elles sont reportées pour les raies  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$  et  $L_4$  sur les figures III.26 et III.27. La raie  $L_n$  présente une largeur minimum et une intensité intégrée maximale à  $B = B_n$ , c'est-à-dire lorsque  $\nu = n$ 

Cet affinement de la raie est très révélateur. En effet une telle finesse de raie (inférieure à 1,7 meV), proche de celle d'un exciton dans un puits non dopé, traduit la présence d'un état lié.

Nous attribuons ces raies à des transitions impliquant la formation de paires électron-trou issues des niveaux de Landau de valence et de conduction faiblement liés par l'interaction coulombienne. Ces paires constituent des « excitons associés à des niveaux de Landau ». Un comportement similaire a été observé par Skolnick *et al.* [77], en photoluminescence, dans un puits de InGaAs - InP, de densité électronique plus importante (9,2.10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>). Un tel comportement a été prédit par Bauer en 1991, dans un court article [78]. Les résultats de ses calculs du coefficient d'absorption montrent une analogie frappante avec nos données expérimentales, faisant apparaître, en particulier, les deux régimes associés à chaque raie  $L_n$ .

Revenons, à présent, sur la partie faible champ (B < 1,5 T). Nous avons montré qu'au-delà de 1,5 T, le gaz d'électrons était complétement polarisé de spin. En revanche de 0 à 1,5 T, l'effet Zeeman de la bande de conduction n'est pas suffisamment important : les électrons peuplent aussi les niveaux de spin +1/2. Nous attribuons alors la raie A à un exciton chargé négativement. Sa formation est rendue en effet possible en polarisation  $\sigma^+$  par la présence d'électrons dans l'état de spin +1/2. Son intensité décroît au fur et à mesure de la polarisation du gaz au profit de la raie B



FIG. III.27: Intensités intégrées (produit de la largeur par la hauteur) des raies  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$  et  $L_4$  en fonction du champ magnétique. Échantillon  $S_1$ .

que nous attribuons alors à un exciton neutre. Toutefois celui-ci est faiblement lié à cause de l'écrantage et du remplissage de l'espace des phases par le gaz d'électrons. Cette interprétation expliquerait le transfert d'intensité observé (figure III.17) entre ces deux structures. Un tel comportement a été, en effet, reporté dans des conditions similaires, pour un gaz de trous, par Kossacki *et al.* [47].

### C. Modèle et discussion

Nous proposons un modèle simple pour interpréter nos résultats expérimentaux. Nous avons cherché les corrections au premier ordre apportées par les interactions coulombiennes électron-trou et électron-électron [78, 79, 80, 81, 82, 83, 84] à l'énergie diamagnétique des transitions inter-niveaux de Landau. Cette restriction est certes très forte, elle nous permet néanmoins d'établir des relations analytiques, relativement simples, sans avoir recours aux formalismes plus complexes, comme celui de la fonction de Green ou aux simulations numériques.

### 1. Interaction coulombienne électron-trou

L'apparition, dans les spectres de transmission, de transitions mettant clairement en évidence les niveaux de Landau des bandes de valence et de conduction montre que l'approximation des champs faibles (lorsque l'interaction coulombienne électrontrou domine le terme diamagnétique) n'est plus adaptée. Le comportement linéaire des énergies en fonction du champ et la périodicité des transitions nous amènent à envisager l'interaction coulombienne comme une perturbation à l'énergie diamagnétique de la paire électron-trou photocréée. Celle-ci se traduit par la formation d'un état lié associé à chaque transition inter-niveau de Landau, d'une faible énergie de liaison.

Le paramètre  $\gamma$ , rapport de l'énergie diamagnétique  $\frac{1}{2}\hbar\omega^*$  à l'énergie de liaison de l'exciton dans le CdTe massif non dopé,  $R_0$ , n'est donc plus pertinent pour définir la limite champ faible / champ fort. La présence du gaz d'électrons écrante cette interaction coulombienne. Nous devons donc définir un nouveau paramètre  $\gamma^* = \frac{1}{2}\hbar\omega^*/R_0^*$  où  $R_0^*$  est l'énergie de liaison d'un exciton écranté par le gaz d'électrons. Phénoménologiquement cet écrantage consiste à considérer une nouvelle fonction diélectrique du milieu  $\epsilon^*$  (>  $\epsilon$ ).  $R_0^*$  et  $a_0^*$ , le rayon de Bohr de l'exciton massif, sont alors définis comme:

$$R_0^* = \frac{\mu e^4}{2(4\pi\epsilon^*\epsilon_0)^2\hbar^2}$$
  

$$a_0^* = \frac{\hbar^2 4\pi\epsilon^*\epsilon_0}{\mu e^2}$$
(III.2)

où  $\mu$  est la masse réduite de la paire électron-trou.  $\mu^{-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$  avec  $m_h$  la masse effective de trou dans le plan (100).

 $\epsilon^*$  sera introduite dans l'expression du potentiel coulombien  $-e^2/4\pi\epsilon^*\epsilon_0 r$ .  $\epsilon^*$  est ici supposée constante. Cette approximation est forte, car elle consiste à négliger la réponse du gaz à la création d'une paire électron-trou.

Un deuxième mécanisme, en présence du gaz de porteurs, s'oppose à la formation d'un état lié formé par une paire électron-trou en interaction coulombienne. Il s'agit du remplissage de l'espace des phases par le gaz d'électrons, c'est-à-dire l'occupation des états électroniques disponibles par les électrons du gaz. Nous avons observé, dans les spectres expérimentaux, pour chaque transition  $L_n$ , deux régimes distincts selon l'occupation ou non du niveau de Landau de conduction. Dans le second régime, lorsque le niveau est vide, la correction due à l'interaction coulombienne apporte à l'énergie diamagnétique une contribution négative, sensiblement indépendante du champ: les différences  $\Delta_n$  s'alignent sur une même droite, de pente  $\hbar\omega^*/B$ .

Dans le premier régime, lorsque  $\nu$  varie de n à n + 1, c'est-à-dire quand le niveau de Landau est partiellement peuplé, la contribution coulombienne diminue :  $\Delta_n$  diminue plus rapidement que ne décroît l'énergie diamagnétique. Nous attribuons cet effet au remplissage de l'espace des phases. Le peuplement par les électrons du gaz des états d'un même niveau de Landau n restreint le nombre d'états disponibles pour former un état lié. La création d'une paire n'est en effet possible que si l'état électronique n'est pas déjà occupé par un électron du gaz. Donc au fur et à mesure du peuplement du niveau n, le nombre de paires qui peuvent être formées sur ce niveau est proportionnel à  $1 - \tau_n$  où  $\tau_n = \nu - n$  est le taux d'occupation du niveau de Landau n.  $1 - \tau_n$  varie entre 1 et 0 quand  $n < \nu < n + 1$ . Or l'état lié est formé à partir d'une combinaison linéaire de l'ensemble des états de paire électron-trou disponibles. Son énergie de liaison sera d'autant plus faible que le nombre d'états de paires non occupés sera réduit.

Pour établir l'énergie de liaison de cet état lié, nous procéderons en deux étapes. La première consiste à ne prendre en compte que l'effet de l'écrantage. Nous en déduirons ainsi, dans l'approximation champ fort, la perturbation à l'énergie diamagnétique engendrée par la formation de cet état lié dans le cas d'une bande de conduction vide (sans effet de remplissage de l'espace des phases, mais *en présence* d'écrantage). Le remplissage de l'espace des phases sera traité dans la seconde étape.

Les résultats théoriques que nous présentons ici ont été réalisés dans le cas d'un puits *purement bidimensionnel*.

### Écrantage

L'énergie de l'état lié est déterminée par l'hamiltonien à deux particules, l'électron et le trou, liés par l'interaction coulombienne, en présence de champ magnétique. La dérivation de l'hamiltonien est similaire à celle donnée par Elliot et Loudon [85, 86]. Dans les coordonnées de l'électron et du trou (sans tenir compte du spin):

$$\mathcal{H} = \frac{(\mathbf{p}_{\mathbf{e}} + e\mathbf{A})^2}{2m_e} + \frac{(\mathbf{p}_{\mathbf{h}} - e\mathbf{A})^2}{2m_h} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon^*\epsilon_0|\mathbf{r}_{\mathbf{e}} - \mathbf{r}_{\mathbf{h}}|}$$
(III.3)

où  $\mathbf{A}$  est le potentiel vecteur ( $\mathbf{B} = \mathbf{rotA}$ ) (e > 0).

Il est commode de chercher les fonctions propres de  $\mathcal{H}$  dans la base des paires électron-trou [85, 86, 87, 88, 89]. Dans les coordonnées du centre de masse de la paire, et après une transformation canonique, l'hamiltonien III.3 de la paire électron-trou devient en coordonnées polaires  $\mathbf{r}(r, \phi)$ , dans la jauge de Landau  $\mathbf{A} = \frac{1}{2} \mathbf{B} \times \mathbf{r}$ :

$$H^{\mathbf{K}} = \frac{\hbar^2 K^2}{2M} + \frac{\hbar e}{2M} \mathbf{K} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}) - \frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta - \frac{i\hbar e}{2} (\frac{1}{m_e} - \frac{1}{m_h}) B \frac{\partial}{\partial \phi} + \frac{e^2}{8\mu} B^2 r - \frac{e^2}{4\pi\epsilon^*\epsilon_0 r}$$

où  $M = m_e + m_h$  et  $\Delta$  est le laplacien bidimensionnel.

Les coordonnées dans le centre de masse sont :

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_{\mathbf{e}} - \mathbf{r}_{\mathbf{h}}$$
$$\mathbf{R} = \frac{m_e \mathbf{r}_{\mathbf{e}} + m_h \mathbf{r}_{\mathbf{h}}}{m_e + m_h}$$

Les fonctions propres de  $\mathcal{H}$  sont :

$$\Phi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = F(\mathbf{r}, \mathbf{R}) e^{i \frac{e\mathbf{A}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{R}}{\hbar}}$$

où 
$$F(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\mathbf{K}.\mathbf{R}} \Psi_{n,M}^{\mathbf{K}}(\mathbf{r})$$

où  $F(\mathbf{r}, \mathbf{R})$  sont les fonctions propres de  $H^{\mathbf{K}}$ .  $\mathbf{K} = \mathbf{k}_{\mathbf{e}} + \mathbf{k}_{\mathbf{h}}$  est l'impulsion du centre de masse.  $\mathbf{k}_{\mathbf{e}}$  et  $\mathbf{k}_{\mathbf{h}}$  sont respectivement les impulsions de l'électron et du trou. S est la surface de l'échantillon.

En configuration Faraday, l'impulsion dans le plan (100) de la paire photocréée  $\mathbf{K} = 0$  car l'impulsion du photon est perpendiculaire au plan du puits. Nous cherchons donc les fonctions propres  $\Psi_{n,m}(\mathbf{r})$  et les énergies propres  $E_{n,m}$  de l'hamiltonien à K = 0:

$$\begin{array}{lll} H & = & -\frac{\hbar^2}{2\mu}\Delta - \frac{i\hbar e}{2}(\frac{1}{m_e} - \frac{1}{m_h})B\frac{\partial}{\partial\phi} + \frac{e^2}{8\mu}B^2r - \frac{e^2}{4\pi\epsilon^*\epsilon_0 r} \\ H & = & H_0 + H_c \end{array}$$

où  $H_c$  représente la partie coulombienne de H. Cet hamiltonien est, dans la limite  $m_h \to \infty$ , identique à celui de MacDonald et Ritchie [90] qui ont traité en détail les niveaux hydrogénoïdes en champ magnétique à deux dimensions.

Nous nous plaçons maintenant dans l'approximation champ fort, où  $H_c$  est traité comme une perturbation. Les fonctions propres et les énergies propres de  $H_0$  sont :

$$\Psi_{n,m}(\mathbf{r}) = (-1)^{m} \frac{e^{-\frac{r^{2}}{4\ell_{c}^{2}}}}{\sqrt{2\pi\ell_{c}^{2}}} \sqrt{\frac{m!}{n!}} \left(\frac{r}{\sqrt{2\ell_{c}^{2}}}\right)^{|\ell|} L_{n}^{n-m}\left(\frac{r^{2}}{2\ell_{c}^{2}}\right) e^{i\ell\phi} \text{ si } \ell \ge 0$$

$$\Psi_{n,m}(\mathbf{r}) = (-1)^{n} \frac{e^{-\frac{r^{2}}{4\ell_{c}^{2}}}}{\sqrt{2\pi\ell_{c}^{2}}} \sqrt{\frac{n!}{m!}} \left(\frac{r}{\sqrt{2\ell_{c}^{2}}}\right)^{|\ell|} L_{n}^{m-n}\left(\frac{r^{2}}{2\ell_{c}^{2}}\right) e^{i\ell\phi} \text{ si } \ell < 0$$

$$E_{n,m} = (n+\frac{1}{2})\hbar\omega^{*} - \ell\hbar\omega_{h} \qquad (\text{III.4})$$

où n = 0, 1, 2... désigne le nombre quantique principal, m = 0, 1, 2... le nombre quantique azimutal et le moment orbital de la paire électron-trou  $\ell = n - m$ .  $\ell_c = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}}$  est la longueur magnétique. Les fonctions  $L_n^{n-m}(x)$  sont les polynômes de Laguerre [91].

La conservation du moment orbital total de la paire électron-trou impose  $\ell = 0$ (soit n = m). Nous retrouvons donc bien, à l'ordre 0,  $E_n^0 = E_{n,n}^0 = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega^*$ , l'énergie diamagnétique. La fonction d'onde est  $\Psi_{n,n}(\mathbf{r})$ .

Dans le sous-espace des paires électron-trou *optiquement permises*,  $\Psi_{n,n}(\mathbf{r})$  est non dégénéré: les trois nombres quantiques  $K_x = K_y = 0$ , et m = n sont déjà fixés par les règles de sélection.

Pour évaluer la correction introduite par le terme coulombien nous devons calculer les éléments de matrice  $\langle \Psi^0_{n',m'} | H_c | \Psi^0_{n,n} \rangle$  [90, 87]. L'interaction coulombienne ne couple que les états de même moment orbital, donc parmi ces éléments de matrice seuls ceux tels que  $\ell' = \ell = 0$  (soit m' = n'). Ces éléments sont de la forme:

$$\begin{aligned} \langle \Psi_{n',n'} | H_c | \Psi_{n,n} \rangle &= -\frac{e^2}{4\pi\epsilon^*\epsilon_0} \frac{1}{\ell_c} \sqrt{\frac{\pi}{2}} C_{n,n'} \\ &= -R_0^* \frac{a_0^*}{\ell_c} \sqrt{2\pi} C_{n,n'} \end{aligned}$$

Les coefficients  $C_{n,n'}$  qui ne dépendent que de n et de n' sont définis par :

$$C_{n,n'} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{+\infty} dx e^{-x^2} L_n^0(x^2) L_{n'}^0(x^2)$$
(III.5)

Ils sont donnés dans le tableau III.2 pour  $n \le n' \le 10$ . Le tableau est symétrique,  $C_{n,n'} = C_{n',n}$ .

La correction au premier ordre de l'énergie est donnée par :

$$E_n^{e-h\ (1)} = \langle \Psi_{n,n} | H_c | \Psi_{n,n} \rangle = -R_0^* \frac{a_0^*}{\ell_c} \sqrt{2\pi} C_{n,n}$$
(III.6)

et au deuxième ordre, la correction à l'énergie est

$$E_n^{e-h\ (2)} = \sum_{n'(\neq n)} \frac{|\langle \Psi_{n',n'} | H_c | \Psi_{n,n} \rangle|^2}{(n-n')\hbar\omega^*}$$
$$= -\pi R_0^* \sum_{n'(\neq n)} \frac{(C_{n,n'})^2}{n'-n} = -\pi R_0^* \Sigma_n$$

où  $R_0^*$  et  $a_0^*$  sont définis par les expressions III.2. Les coefficients  $\sum_n$  sont reportés dans le tableau III.3.

Au premier et au deuxième ordre, la perturbation due à l'interaction coulombienne apporte une contribution négative à l'énergie diamagnétique. La correction au premier ordre  $E_n^{e-h}$ <sup>(1)</sup> croît en valeur absolue comme  $\sqrt{B}$ , alors que  $E_n^{e-h}$ <sup>(2)</sup> est indépendante du champ. La somme de ces contributions  $E_n^{e-h} = E_n^{e-h}$ <sup>(1)</sup> +  $E_n^{e-h}$ <sup>(2)</sup> représente l'énergie de liaison de l'état lié. Elle est reportée sur la figure III.28 en fonction du champ magnétique pour  $0 \le n \le 7$ , pour un Ryberg effectif  $R_0^* = 2, 5$  meV. Cette valeur provient des ajustements théoriques qui seront donnés au paragraphe C.3.

Pour les transitions de n élevés (n > 2), l'approximation champ fort est justifiée sur une large gamme de champ: la correction au deuxième ordre est faible. En revanche, elle représente environ 1 meV de l'énergie de liaison de la paire électrontrou pour n = 1. À 4,6 T, lorsque la raie  $L_1$  apparaît, celle-ci représente 12 % de l'énergie de liaison. Cette contribution est donc importante. Cet effet est encore plus marqué pour n = 0, où elle représente 25 % à 9,3 T. Les corrections au deuxième ordre deviennent importantes car le couplage d'un niveau de Landau n avec ses voisins est d'autant plus important que n est petit (tableau III.2). Nous devrons tenir compte de cette limitation dans l'analyse des résultats expérimentaux.

### Remplissage de l'espace des phases

La formation d'un état lié est donc toujours possible en présence d'un écrantage modéré. Étudions maintenant la stabilité de cet état lorsque le niveau de Landau de

	0	1		0		K	6	7	0	0	10	TAE
n, n	0	1	Z	0	4	0	0	1	0	9	10	- 1
0	1	1/2	3/8	5/16	35/128	63/256	231/1024	429/2048	6435/32768	0,18547	0,17620	.2:
1		3/4	7/16	11/32	75/256	133/512	483/2048	891/4096	13299/65536	0,19093	0,18084	Coeffic
2			41/64	51/128	329/1024	569/2048	2037/8192	3723/16384	0,21061	0,19720	0,18608	ients C
3				147/256	759/2048	1245/4096	4351/16384	7843/32768	0,21984	0,20455	0,19212	$'_{n,n'} (=$
4					0,527893	0,349274	0,289955	0,255306	0,23137	0,21340	0,19919	$X_{n,n'} \vee$
5						0,492966	0,332142	0,27828	0,24653	0,22441	0,20768	$2/\pi dd$
6							0,465287	0,31793	0,26832	0,23889	0,21826	ans la i
7								0,44257	0,30585	0,25967	0,23214	référen
8									0,42346	0,29539	0,25205	ce [92]
9										0,40705	0,28620	). $C_{n,n}$
10											0,39274	$ = C_n$
												',n .

78



TAB. III.3: Coefficients  $\sum_n$ . Tirés de la référence [90]

FIG. III.28: Énergie de liaison, jusqu'au deuxième ordre,  $E_n^{e-h}$  (< 0) (traits pleins) en champ magnétique de l'état lié d'une paire électron-trou calculée dans l'approximation champs forts ( $R_0^* = 2, 5 \text{ meV}$ ). La contribution du premier ordre est donnée par les traits pointillés.

conduction n est occupé, c'est-à-dire lorsque les électrons remplissent partiellement l'espace des états de conduction disponibles pour la formation d'une paire électrontrou en interaction coulombienne.

Considérons, auparavant, un système dont les états de la bande de conduction sont non dégénérés pour illustrer cet effet : le cas d'une bande parabolique. L'exciton est formé d'une combinaison de tous les états de paires électron-trou disponibles de vecteur d'onde  $\mathbf{k_e}$  et  $\mathbf{k_h}$  (la conservation de l'impulsion durant la transition impose  $\mathbf{k_e} = -\mathbf{k_h}$ ). À température nulle, les électrons du gaz occupent tous les états  $\mathbf{k_e}$  de plus basse énergie, tels que  $k_e \leq k_F$ , où  $\mathbf{k_F}$  est le nombre d'onde d'onde au niveau de Fermi. Seules les états de paires électron-trou dont l'électron est dans un état  $k_e > k_F$  sont possibles. L'espace des états de paires disponibles pour former l'exciton est ainsi réduit par la présence des électrons du gaz. La stabilité de cet état (donc son énergie de liaison) est d'autant plus faible que les électrons du gaz occupent un nombre important d'états. La fonction d'onde de l'exciton, formée de la combinaison linéaire de tous les états de paires électron-trou permis, doit être restreinte aux états de paires telles que  $k_e > k_F$ . Orgonasi [93] a montré par un calcul variationnel, dans le cas d'un puits purement bidimensionnel, que l'exciton n'était plus stable pour  $k_F.a_0^{2D} \ge 0,86$  ( $a_0^{2D}$  est le rayon de Bohr de l'exciton bidimensionnel, non écranté).

En champ magnétique, le traitement est plus complexe car les états d'un même niveau de Landau n de la bande de conduction sont dégénérés. Soit  $N_e^n$  le nombre d'électrons sur le niveau de Landau n et M le nombre d'états de ce niveau. Toutes les distributions de ces  $N_e^n$  électrons parmi les M états sont donc équiprobables. Les états de paires accessibles à l'état lié sont indéterminés : un état de paire sera accessible pour certaines distributions mais impossible pour d'autres distributions lorsque l'état de conduction de la paire sera déjà occupé. La fonction d'onde  $\Psi_{n,n}(\mathbf{r})$ ne peut donc être restreinte aussi simplement que dans le cas d'une bande à champ nul.

Considérons tout d'abord les deux cas limites [82]: à  $\nu = n$ , le niveau n est vide et le niveau n - 1 est totalement peuplé. Sur le niveau n, tous les états de paires électron-trou sont accessibles à l'état lié. Il ne subit alors que l'effet d'écran des électrons occupant les niveaux inférieurs. Au premier ordre en perturbation, son énergie de liaison est celle qui a été établie dans l'équation III.6. À  $\nu = (n + 1)^{-}$ , le niveau n est totalement peuplé sauf un électron. Pour une distribution donnée des électrons parmi les M états de ce niveau, un seul état de paire électron-trou est possible. Il n'existe aucun autre état de paire avec lequel il puisse se combiner pour former un état lié: l'énergie de liaison est nulle.

L'énergie de liaison, au premier ordre, varie donc de  $0 \ge -R_0^* a_0^* / \ell_c \sqrt{2\pi} C_{n,n}$  quand le taux de remplissage du niveau  $\tau_n = \nu - n$  varie de  $1 \ge 0$ . Nous supposerons donc que l'énergie de liaison varie comme  $1 - \tau_n$  le taux de dépeuplement du niveau : l'énergie de liaison sera d'autant plus importante que le nombre d'états paires électron-trou accessibles sera grand. Nous utiliserons donc l'expression suivante :

$$E_n^{e-h} \simeq -(1-\tau_n) R_0^* \frac{a_0^*}{\ell_c} \sqrt{2\pi} C_{n,n}$$
(III.7)

Ce choix nous a été suggéré par le calcul de l'énergie des transitions du spectre d'absorption réalisé par Bauer [78] en utilisant le formalisme de la fonction de Green.

L'énergie  $(n + 1/2)\hbar\omega^* + E_n^{e-h}(B)$  des transitions interniveaux de Landau en présence de l'écrantage et du remplissage de l'espace des phases est reportée sur la figure III.29 en fonction du champ magnétique pour les valeurs des paramètres  $R_0^* = 2,5$  meV, et  $\hbar\omega^*/B = 1,5$  meV/T (sans tenir compte de l'interaction sp - d avec les ions  $Mn^{2+}$ ). Les énergies diamagnétiques  $(n + 1/2)\hbar\omega^*$  sont tracées en traits pointillés. À l'apparition d'une raie  $L_n$ , l'énergie de l'état « lié » est confondue avec l'énergie diamagnétique. Alors que le niveau n se dépeuple, l'énergie de liaison croît rapidement, c'est le premier régime que nous avons observé sur nos résultats expérimentaux : l'énergie de la raie  $L_n$  croît moins rapidement que l'énergie diamagnétique. Lorsque le niveau n est vide (quand apparaît la raie  $L_{n-1}$ ) l'énergie de l'état lié suit alors sensiblement le comportement de l'énergie diamagnétique  $(1/\ell_c \text{ variant comme} \sqrt{B})$ . C'est le deuxième régime.

L'effet du remplissage des phases sur le deuxième ordre de l'énergie de liaison est plus complexe. Dans ce cas, nous ne devons tenir compte que des états de paires électron-trou impliquant les niveaux de Landau de conduction et de valence n' voisins



FIG. III.29: L'énergie  $(n+1/2)\hbar\omega^* + E_n^{e-h}(B)$  des transitions interniveaux de Landau en présence de l'écrantage et du remplissage de l'espace des phases en fonction du champ magnétique (traits pleins). L'énergie diamagnétique des paires électron-trou est tracée en pointillé.  $R_0^* = 2,5 \text{ meV}, \hbar\omega^*/B = 1,5 \text{ meV}/T$  et  $n_e = 2,3.10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . L'interaction avec les ions  $Mn^{2+}$  n'est pas prise en compte.

vide ou partiellement occupés. Mais nous n'avons pas encore établi une expression de cette correction en présence du remplissage de l'espace de phases.

### 2. Interaction d'échange électron-électron

Jusqu'à présent, nous avons uniquement considéré l'effet du gaz d'électrons sur la formation d'un état lié formé d'une paire électron-trou par l'écrantage et le remplissage de l'espace des phases. Nous n'avons pas encore envisagé l'effet du gaz sur les niveaux électroniques. Or, dans nos échantillons, la densité électronique est telle  $(2,25.10^{11} \text{ cm}^{-2})$  que les électrons ne peuvent plus être considérés comme des particules indépendantes. Le gaz doit être traité dans sa globalité, comme un ensemble de  $N_e$  particules en interaction coulombienne.

Leur hamiltonien s'écrit, en champ magnétique:

$$\mathcal{H} = \sum_{i=1}^{N_e} \frac{[\mathbf{p}_i + e\mathbf{A}(\mathbf{r}_i)]^2}{2m_e} + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}$$

Le caractère fermionique des électrons impose l'antisymétrie de la fonction d'onde à  $N_e$  particules  $\Psi(\mathbf{r_1}, \mathbf{r_2}, \ldots, \mathbf{r_{N_e}})$  de  $\mathcal{H}$  par échange des particules. Dans l'approximation à un électron de Hartree et de Hartree-Fock [94, 95],  $\Psi(\mathbf{r_1}, \mathbf{r_2}, \ldots, \mathbf{r_{N_e}})$  est donnée par le déterminant de Slater des fonctions d'onde à un électron  $\psi_i(\mathbf{r_j})$ :

$$\Psi(\mathbf{r_1}, \mathbf{r_2}, \dots, \mathbf{r_{N_e}}) = \frac{1}{\sqrt{N_e!}} \sum_{P} (\pm 1) P[\psi_1(\mathbf{r_1})\psi_2(\mathbf{r_2})\dots\psi_{N_e}(\mathbf{r_{N_e}})]$$

où P est l'opérateur permutation sur les coordonnées et son coefficient est +1 (-1) pour une permutation paire (impaire).  $\psi_i(\mathbf{r_j})$  est le produit d'une partie orbitale  $\varphi_i(\mathbf{r_j})$  et d'une fonction de spin  $\theta_i(\sigma_j)$ .  $\psi_i(\mathbf{r_j}) = \varphi_i(\mathbf{r_j})\theta_i(\sigma_j)$ .

La valeur moyenne de  ${\mathcal H}$  est alors donnée par :

$$\begin{split} \langle \Psi | \mathcal{H} | \Psi \rangle &= \sum_{i} \int d\tau_{1} \, \varphi_{i}^{*}(\mathbf{r_{1}}) \frac{[\mathbf{p} + e\mathbf{A}(\mathbf{r_{1}})]^{2}}{2m_{e}} \varphi_{i}(\mathbf{r_{1}}) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \iint d\tau_{1} d\tau_{2} \, |\varphi_{i}(\mathbf{r_{1}})|^{2} |\varphi_{j}(\mathbf{r_{2}})|^{2} \frac{e^{2}}{4\pi\epsilon\epsilon_{0}|\mathbf{r_{1}} - \mathbf{r_{2}}|} \\ &- \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \iint d\tau_{1} d\tau_{2} \, \varphi_{i}^{*}(\mathbf{r_{1}}) \varphi_{j}^{*}(\mathbf{r_{2}}) \frac{e^{2}}{4\pi\epsilon\epsilon_{0}|\mathbf{r_{1}} - \mathbf{r_{2}}|} \varphi_{i}(\mathbf{r_{2}}) \varphi_{j}(\mathbf{r_{1}}) \end{split}$$

 $\sum^{//}$  est la somme des paires *i* et *j* de *même spin* uniquement.

Cette valeur moyenne fait apparaître trois termes. Le premier représente les contributions cinétique et magnétique à l'énergie totale du gaz, c'est-à-dire l'énergie d'un gaz sans interaction. Les deux autres termes proviennent de l'interaction coulombienne. Le premier est appelé terme de Coulomb *direct*, le second terme d'*échange*. Le terme direct, positif, résulte de la répulsion électrostatique entre deux charges de même signe. Le terme d'échange est apparu dans cette équation à cause de l'antisymétrie de la fonction d'onde par échange des particules. Il découle directement du principe d'exclusion de Pauli qui interdit à deux électrons d'occuper le même état quantique. Il dépend en particulier de l'état de spin des électrons.

Dans nos échantillons, ce terme doit jouer un rôle d'autant plus important que l'interaction s - d avec les ions Manganèse assure un large effet Zeeman des bandes +1/2 et -1/2 de conduction [96] : à champ nul, les proportions d'états de spin +1/2 et -1/2 occupés sont identiques, alors qu'au-delà d'un certain champ, *seuls* les états de spin -1/2 sont occupés. Cette différence de population n'aura qu'un effet négligeable sur le terme direct qui ne dépend pas explicitement du spin. En revanche, le terme d'échange y sera très sensible. Nous devons donc évaluer la contribution de l'énergie d'échange à chaque niveau de Landau.

Les fonctions d'onde  $\varphi_i(\mathbf{r}_j)$  sont déterminées par les  $N_e$  équations de Fock :

$$\frac{[\mathbf{p} + e\mathbf{A}(\mathbf{r_1})]^2}{2m_e}\varphi_i(\mathbf{r_1}) + \sum_{j(\neq i)} \left[ \int d\tau_2 \, |\varphi_j(\mathbf{r_2})|^2 \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r_1} - \mathbf{r_2}|} \right] \varphi_i(\mathbf{r_1}) \\ - \sum_{j(\neq i)}^{\prime\prime} \left[ \int d\tau_2 \, \varphi_j^*(\mathbf{r_2}) \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\mathbf{r_1} - \mathbf{r_2}|} \varphi_i(\mathbf{r_2}) \right] \varphi_j(\mathbf{r_1}) \\ = E_i \varphi_i(\mathbf{r_1}) + \sum_{j(\neq i)} \lambda_{i,j} \varphi_j(\mathbf{r_1})$$
(III.8)

où  $E_i$  et  $\lambda_{i,j}$  sont des paramètres de Lagrange qui imposent respectivement la normalisation et l'orthogonalité des fonctions d'onde  $\varphi_i(\mathbf{r})$ .  $E_i$  s'identifie à l'énergie de la particule dans l'état *i*.

La résolution de ces équations est impossible analytiquement. Les méthodes d'approximation les plus poussées nécessitent un traitement autocohérent, ou utilisent le formalisme de la fonction de Green. Nous nous sommes limités aux corrections au premier ordre de l'énergie des particules sans interaction : les fonctions d'onde sont choisies comme celles des particules « libres »  $\varphi_i^{(0)}(\mathbf{r})$  et les sommes sur j sont limitées aux états occupés. À champ nul, les fonctions d'onde seront les ondes planes et en champ magnétique, les fonctions de Landau. Cette approximation est très forte : les termes coulombiens représentent alors un potentiel effectif moyen agissant sur l'électron dans l'état i. Elle néglige donc les excitations collectives (plasmons) et les excitations électron-trou du gaz, c'est-à dire qu'on ne prend pas en compte les corrélations électroniques.

Le terme direct n'est plus considéré par la suite : d'une part, car il est compensé en partie par l'interaction coulombienne des électrons avec les charges positives dans le plan de dopage (voir par exemple la référence [97]), et d'autre part, car, comme nous l'avons mentionné plus haut, il ne doit pas être grandement modifié lors de la polarisation du gaz. Il n'apportera, au plus, qu'un terme constant. L'énergie d'échange de la particule dans l'état *i* est obtenue en multipliant l'équation III.8 à gauche par  $\varphi_i^{(0)}(\mathbf{r})$  et en intégrant sur toute la surface, soit :

$$E_{i}^{e-e} = -\sum_{\substack{j(\neq i)\\\text{occupé}}} \frac{//}{\int \int d\tau_{1} d\tau_{2} \,\varphi_{i}^{(0)*}(\mathbf{r_{1}}) \varphi_{j}^{(0)*}(\mathbf{r_{2}}) \frac{e^{2}}{4\pi\epsilon^{*}\epsilon_{0}|\mathbf{r_{1}} - \mathbf{r_{2}}|} \varphi_{i}^{(0)}(\mathbf{r_{2}}) \varphi_{j}^{(0)}(\mathbf{r_{1}})$$
(III.9)

L'écrantage de l'interaction coulombienne a été, à nouveau, introduit phénoménologiquement par la constante diélectrique modifiée  $\epsilon^*$ .

Le calcul de l'échange dans un puits de largeur finie est complexe (cf. [97]). Nous nous contenterons ici d'établir les expressions du terme d'échange dans le cas bidimensionnel parfait. Elles sont données à température nulle.

### **Ondes** planes

Les fonctions propres des particules libres à champ nul forment la base des ondes planes (S étant la surface de l'échantillon):

$$\varphi_{\mathbf{k}}^{(0)}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$$

et l'énergie d'échange totale du gaz calculée d'après (III.9) est :

$$E^{e-e} = 2\sum_{k < k_F} E^{e-e}_{\mathbf{k}} = -N_e R_0^* \frac{8\sqrt{2}}{3\pi} \frac{1}{r_s}$$
(III.10)

où  $r_s$  est défini par  $\pi(r_s a_0^*)^2 n_e = 1$ .  $N_e$  et  $n_e$  sont respectivement le nombre et la densité d'électrons. Le facteur 2 provient de la sommation sur les deux sous-bandes de spin.

### Fonctions d'onde de Landau

Les fonctions d'onde de Landau sont les fonctions propres des particules libres en champ magnétique. En coordonnées polaires, elles s'expriment à l'aide d'un polynôme de Laguerre  $L_n^{n-m}(x)$ :

$$\begin{split} \varphi_{n,m}^{(0)}(\mathbf{r}) &= (-1)^m \frac{e^{-\frac{r^2}{4\ell_c^2}}}{\sqrt{2\pi\ell_c^2}} \sqrt{\frac{m!}{n!}} \left(\frac{r}{\sqrt{2\ell_c^2}}\right)^{|\ell|} L_n^{n-m}\left(\frac{r^2}{2\ell_c^2}\right) e^{i\ell\phi} \text{ si } \ell \ge 0 \\ \varphi_{n,m}^{(0)}(\mathbf{r}) &= (-1)^n \frac{e^{-\frac{r^2}{4\ell_c^2}}}{\sqrt{2\pi\ell_c^2}} \sqrt{\frac{n!}{m!}} \left(\frac{r}{\sqrt{2\ell_c^2}}\right)^{|\ell|} L_n^{m-n}\left(\frac{r^2}{2\ell_c^2}\right) e^{i\ell\phi} \text{ si } \ell < 0 \end{split}$$

où n = 1, 2... est l'index du niveau de Landau, m = 1, 2... le nombre azimutal et  $\ell = n - m$  le moment orbital de l'électron. Ces fonctions d'onde sont identiques à celles utilisées dans le cas de l'interaction coulombienne électron-trou (équation III.4). L'énergie propre de l'électron libre est donnée par (sans tenir compte des effets Zeeman):

$$E_{n,m,\sigma}^{(0)} = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_c$$

où  $\hbar\omega_c$  est la fréquence cyclotron de l'électron;  $\sigma$  est le spin. Les états de même n sont, rappelons-le, dégénérés. L'énergie d'échange est alors, d'après la formule III.9:

$$E_{n,m,\sigma}^{e-e} = -\sum_{\substack{n' \ m' \\ (n',m') \neq (n,m) \\ \text{occup}\acute{e}(\sigma)}} \int \int d\tau_1 d\tau_2 \, \varphi_{n,m}^{(0)*}(\mathbf{r_1}) \varphi_{n',m'}^{(0)*}(\mathbf{r_2}) \frac{e^2}{4\pi \epsilon^* \epsilon_0 r_{12}} \varphi_{n,m}^{(0)}(\mathbf{r_2}) \varphi_{n',m'}^{(0)}(\mathbf{r_1})$$

où  $r_{12} = |\mathbf{r_1} - \mathbf{r_2}|.$ 

La somme ne s'étend, bien évidemment, que sur les niveaux n' de même spin  $\sigma$ . La dégénérescence des niveaux n et n' apporte une difficulté supplémentaire. En effet, lorsque le niveau n est partiellement occupé, la probabilité d'occupation de l'état (n,m) est identique à celle de tous les autres états (n,m') de même énergie. La somme sur les états occupés doit donc prendre en compte tous les arrangements possibles des électrons parmi tous les états dégénérés de même n. Ando [83, 84] a montré que l'énergie d'échange est proportionnelle au taux d'occupation du niveau :

$$E_{n,m,\sigma}^{e-e} = -\sum_{n'(\sigma)} \tau_{n',\sigma} \sum_{m'} \iint d\tau_1 d\tau_2 \,\varphi_{n,m}^{(0)*}(\mathbf{r_1}) \varphi_{n',m'}^{(0)*}(\mathbf{r_2}) \frac{e^2}{4\pi \epsilon^* \epsilon_0 r_{12}} \varphi_{n,m}^{(0)}(\mathbf{r_2}) \varphi_{n',m'}^{(0)}(\mathbf{r_1})$$
  
$$= -\sum_{n'(\sigma)} \tau_{n',\sigma} \frac{e^2}{\epsilon^* \ell_c} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \sum_{m'} \alpha_{n,n',m,m'}$$

où  $\tau_{n',\sigma}$  est le taux d'occupation du niveau n' de spin  $\sigma$ , compris entre 0 et 1. Dans le cas d'un gaz d'électron complètement polarisé de spin -1/2,  $\tau_{n',+1/2} = 0$  quel que soit n'; et  $\tau_{n',-1/2}$  vaut 1 lorsque  $\nu \ge n' + 1$ , vaut 0 quand  $\nu < n'$  et égale  $\nu - n'$ lorsque  $n' < \nu < n' + 1$ . La somme  $\sum_{m'} \alpha_{n,n',m,m'}$  ne dépend pas de m du fait de l'invariance par translation du système. On montre qu'elle est simplement égale au coefficient  $C_{n,n'}$  défini par la formule III.5 ([92], *cf.* aussi [90]) utilisée pour calculer l'énergie de liaison en champ fort d'une paire électron-trou en interaction coulombienne (les coefficients  $C_{n,n'}$  sont donnés dans le tableau III.2). L'énergie d'échange d'un électron de spin  $\sigma$ sur un niveau n est alors donnée par :

$$E_{n,\sigma}^{e-e} = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon^*\epsilon_0\ell_c}\sqrt{\frac{\pi}{2}}\sum_{n'(\sigma)}\tau_{n'}C_{n,n'}$$
$$= -R_0^*\frac{a_0^*}{\ell_c}\sqrt{2\pi}\sum_{n'(\sigma)}\tau_{n'}C_{n,n'} \qquad (\text{III.11})$$

Nous pouvons faire deux remarques à propos de cette expression :

- l'énergie d'échange pour un niveau n est non nulle, même lorsque le niveau est vide, dès lors que des électrons de même spin occupent les niveaux inférieurs n' < n.  $E_{n,\sigma}^{e-e}$  a été définie comme l'énergie d'échange qu'aurait un électron s'il se trouvait sur le niveau n. En magnétooptique, un électron, au moins, est toujours présent sur le niveau n étudié, celui qui est excité pendant la transition depuis la bande de valence. Cet électron sera donc sensible à l'interaction d'échange avec les électrons des niveaux inférieurs, même si le niveau qu'il occupe était vide auparavant;
- la dépendance de l'énergie d'échange avec le champ dépend de deux facteurs, l'inverse de la longueur magnétique et le nombre d'états occupés. Le premier est proportionnel à  $\sqrt{B}$ . Il tend à faire croître l'énergie d'échange avec le champ. En revanche, le nombre de niveaux n' peuplés décroît avec le champ. La somme sur n' est restreinte à un nombre de niveaux de plus en plus faible. Cet effet diminue donc l'interaction d'échange. Les deux effets se compensent partiellement (figure III.30).

L'énergie d'échange  $E_{n,\sigma}^{e-e}$  est reportée sur la figure III.30 en fonction du champ magnétique pour  $R_0^* = 2,5$  meV, et  $n_e = 2,3.10^{11}$  cm<sup>-2</sup> en supposant que le gaz est totalement polarisé de spin  $\sigma$  au-delà de 1,5 T. L'effet d'échange est important, de l'ordre de 10 meV pour le niveau n = 0 et diminue quand n croît. Il décroît rapidement au fur et à mesure que les niveaux inférieurs se dépeuplent. Remarquons que pour n = 0, l'échange continue de diminuer quand  $\nu < 1$  car le taux d'occupation de ce niveau  $\tau_0 = \nu$  décroît toujours.

### 3. Analyse des résultats expérimentaux

Nous avons comparé nos résultats expérimentaux aux prédictions théoriques du modèle incluant l'interaction coulombienne électron-trou (e-h) et l'interaction d'échange (e-e) dans la gamme de champ 1,5-14 T.

La polarisation complète de spin  $\sigma = -1/2$  du gaz d'électrons au-delà de 1,5 T permet de faire abstraction des niveaux de spin  $\sigma = +1/2$  et de ne considérer qu'une seule série de niveaux de Landau ( $\sigma = -1/2$ ) de conduction se dépeuplant 86



FIG. III.30: Énergie d'échange d'un électron sur un niveau de Landau en fonction du champ magnétique en présence d'un gaz d'électrons bidimensionnel  $(n_e = 2, 3.10^{11} \text{ cm}^{-2})$  totalement polarisé de spin  $\sigma$  au-delà de 1,5 T.  $R_0^* = 2,5$  meV.

successivement sous l'action du champ magnétique. Nous n'envisagerons donc que les transitions en polarisation  $\sigma^+$ . Cette propriété simplifie considérablement le calcul des expressions des interactions électron-trou et électron-électron car il n'y a aucun transfert de porteurs d'un état de spin à l'autre sur toute la gamme de champ de 1,5 à 14 T.

Nous cherchons à reproduire le comportement en champ des énergies  $E_n$  des raies  $L_n$ . Nous les avons identifiées aux transitions  $E_1H_1$  ( $-3/2 \rightarrow -1/2$ ) entre les niveaux de Landau de même nombre quantique n, soumis aux interactions coulombiennes électron-trou et électron-électron. La comparaison est réalisée en deux étapes: tout d'abord, le comportement de chacune des différences d'énergies  $\Delta_n = E_{n+1} - E_n$ des raies  $L_{n+1}$  et  $L_n$  est reproduit théoriquement en fonction du champ magnétique. Cette étape nous permet de nous affranchir de l'interaction sp - d avec les ions Mn<sup>2+</sup> qui dépend de la concentration (inconnue) en Manganèse. Deux paramètres seulement sont ajustables, la fréquence cyclotron réduite  $(\hbar\omega^*)$  et le paramètre  $R_0^*$ (équ. III.2, ce qui revient à utiliser la constante diélectrique modifiée  $\epsilon^*$ ). Nous avons choisi de conserver cette constante commune pour les deux types d'interactions : l'interaction coulombienne entre un électron et un trou est écrantée de façon identique à l'interaction coulombienne électron-électron du gaz. La fréquence cyclotron ne peut varier que dans un intervalle restreint autour de sa valeur dans les puits non dopés, soit 1,7 meV/T. Le choix de ces deux paramètres  $(R_0^* \text{ et } \hbar \omega^*)$  doit permettre de reproduire le comportement de l'ensemble des différences  $\Delta_n$ .

Dans un second temps, la concentration en  $Mn^{2+}$  sera ajustée pour reproduire les énergies absolues de chaque transition  $L_n$  en fonction du champ magnétique.

Enfin, nous montrerons les qualités et les limitations de ce modèle.

### Ajustement théorique des différences $\Delta_n$ en champ

Soient  $E_n^e$ , l'énergie du niveau de Landau n associé au premier état électronique confiné du puits  $E_1$  et  $E_n^v$ , celle du niveau de Landau n associé au premier état confiné de la bande de valence (trou lourd)  $H_1$ . En présence des interactions sp - d et d'échange, et sous champ magnétique perpendiculaire au plan du puits, leur expression est donnée par:

$$E_n^e(B) = E_g^* + E_1 + (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_c + E^{s-d}(B) + E_n^{e-e}(B)$$
$$E_n^v(B) = -H_1 - (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_v - E^{p-d}(B)$$

l'origine des énergies étant prise au sommet de la bande de valence à champ nul.  $E_g^*$  représente ici la largeur de bande interdite du fond du puits en l'absence de confinement, renormalisée par tous les processus dus à la présence du gaz d'électrons à l'exclusion du terme d'échange. Nous supposons  $E_g^*$  indépendant du champ.  $E^{s-d}(B)$  et  $E^{p-d}(B)$  sont les contributions respectives de l'interaction sp-d des ions  $Mn^{2+}$  avec les électrons de la bande de conduction et de valence. Elles dépendent des intégrales d'échange  $N_0\alpha$  et  $N_0\beta$ , mais aussi, plus modestement, du confinement suivant l'axe de croissance (le puits est large).  $E_n^{e-e}(B)$  est l'énergie d'échange sur le niveau de Landau de conduction n.

La transition d'un électron du niveau de Landau n de la bande de valence vers le niveau n de conduction s'accompagne de la formation d'un état lié, d'énergie de liaison  $E_n^{e-h}(B)$ . L'énergie de cette transition est donnée par :

$$E_n(B) = E_n^e(B) - E_n^v(B) + E_n^{e-h}(B)$$
(III.12)  
=  $E_g^* + E_1 + H_1 + E^{sp-d}(B) + (n + \frac{1}{2})\hbar\omega^* + E_n^{e-e}(B) + E_n^{e-h}(B)$ 

 $E_n^{e-e}(B)$  et  $E_n^{e-h}(B)$  apportent toutes deux une contribution négative à  $E_n(B)$ . Il en est de même pour  $E^{sp-d}(B) = E^{s-d}(B) + E^{p-d}(B)$  en polarisation  $\sigma^+$ .

Les différences  $\Delta_n(B) = E_{n+1}(B) - E_n(B)$  ne gardent que les termes dépendant de n, soit :

$$\Delta_n(B) = \hbar \omega^* + E_{n+1}^{e-e}(B) - E_n^{e-e}(B) + E_{n+1}^{e-h}(B) - E_n^{e-h}(B)$$

Il y a lieu de considérer deux cas selon que le niveau n est peuplé ou vide:

i.  $\nu \leq \mathbf{n}$  Les niveaux n et n + 1 sont vides ( $\tau_n = \tau_{n+1} = 0$ ). Ils ne subissent donc pas l'effet du remplissage de l'espace des phases par le gaz d'électrons. En revanche, l'électron d'une paire formée sur l'un de ces niveaux est toujours sensible à l'interaction d'échange avec les électrons des niveaux inférieurs. En remplaçant  $E_n^{e-e}(B)$  et  $E_n^{e-h}(B)$  par leur expression au premier ordre (formules III.11 et III.7), la différence  $\Delta_n(B)$  est alors donnée par :

$$\Delta_n = \hbar \omega^* + R_0^* \sqrt{2\pi} \frac{a_0^*}{\ell_c} \left[ \sum_{n'} (C_{n,n'} - C_{n+1,n'}) \tau_{n'} \right] \\ + R_0^* \sqrt{2\pi} \frac{a_0^*}{\ell_c} [C_{n,n} - C_{n+1,n+1}]$$

où n'(< n) désigne les niveaux partiellement ou totalement occupés. Le premier terme en  $R_0^*$  provient de l'interaction d'échange, qui apporte une contribution positive à  $\Delta_n (C_{n,n'}-C_{n+1,n'}>0$ , pour n' < n, d'après le tableau III.2) car le niveau n est plus fortement perturbé que ne l'est le niveau n+1 par l'interaction d'échange avec les électrons du gaz présents dans les niveaux n' < n. À champ fixe, ( $\nu$  fixé), cette contribution diminue lorsque n augmente ( $C_{n+1,n'}-C_{n+2,n'} < C_{n,n'}-C_{n+1,n'}$ ). Enfin lorsque les niveaux inférieurs se dépeuplent (quand le champ magnétique croît), la somme sur n' est restreinte à un nombre de plus en plus faible de niveaux occupés : la contribution d'échange, pour une séparation  $\Delta_n$  entre deux raies, décroît. Nous avons reporté les corrections uniquement dues à l'échange sur la figure III.31.a.

Le deuxième terme en  $R_0^*$  représente la contribution de l'interaction coulombienne électron-trou au premier ordre. Elle augmente la valeur de  $\Delta_n (C_{n,n} - C_{n+1,n+1} > 0)$ : l'énergie de liaison de la paire électron-trou associée au niveau n + 1 est plus faible que celle associée au niveau n (figure III.31.b). Mais cet effet devient négligeable pour les n élevés. Les différences  $\Delta_n$  pour n = 2, 3, 4 s'alignent à moins de 0,5 meV sur la droite (en pointillé) de pente  $\hbar \omega^*/B = 1,5$  meV/T et passant par l'origine.

La combinaison de ces deux effets est donnée sur la figure III.31.c. L'interaction coulombienne électron-trou seule ne permet pas d'expliquer le décalage vers les hautes énergies des différences  $\Delta_n$ . L'effet d'échange est *nécessaire* pour reproduire ce comportement : il permet d'aligner les énergies sur une même droite, de pente  $\hbar\omega^*/B$ . Cette droite s'extrapole à une énergie positive à champ nul (~ 1,2 meV), comme dans nos résultats expérimentaux (droite en traits tirés sur la figure III.31.c).

ii.  $n < \nu < n + 1$  Dans ce régime, le niveau n est *peuplé*. La présence d'électrons sur ce niveau accroît fortement l'énergie d'échange, alors que l'énergie de liaison électron-trou est réduite par le remplissage de l'espace des phases.

L'expression des différences  $\Delta_n$  devient :

$$\Delta_n = \hbar \omega^* + R_0^* \sqrt{2\pi} \frac{a_0^*}{\ell_c} \left[ (C_{n,n} - C_{n+1,n}) \tau_n + \sum_{n'($$

L'interaction d'échange fait croître la différence  $\Delta_n$  alors que le niveau n se remplit, car un électron sur ce niveau subit maintenant une forte interaction d'échange avec les électrons qui peuplent ce niveau (figure III.31.a). En revanche l'énergie de l'état lié associé au niveau n s'effondre à cause du remplissage de l'espace des phases pour tendre vers 0 lorsque le niveau n est plein, alors que celle associée au niveau n+1 reste stable. L'interaction électron-trou apporte une contribution décroissante à  $\Delta_n$  (figure III.31.b).

Ces deux effets jouent en sens contraire. Mais l'effet du remplissage de l'espace des phases est dominant. Il est responsable de la rupture de pente observée entre les deux régimes (figure III.31.c).

Ajustement théorique Les paramètres  $R_0^*$  et  $\hbar\omega^*$  ont été ajustés pour reproduire au mieux les données expérimentales. L'énergie cyclotron  $\hbar\omega^*$  gouverne essen-



FIG. III.31: Influence de l'échange (a), de l'interaction électron-trou (b), et des deux effets combinés (c) sur les différences d'énergie  $\Delta_n = E_{n+1} - E_n$  des raies  $L_n$  en fonction du champ magnétique. Les courbes en traits pleins sont calculées pour les valeurs de  $R_0 = 2,5$  meV et de  $\hbar\omega^*/B = 1,5$  meV/T ( $n_e = 2,25.10^{11}$  cm<sup>-2</sup>) qui correspondent au meilleur ajustement théorique des points expérimentaux de la figure c. En l'absence de couplage, les différences  $\Delta_n$  seraient données par la droite en pointillé de pente  $\hbar\omega^*/B = 1,5$  meV/T (figures a et b). La droite en traits tirets (figure c) souligne le décalage (~ 1,2 meV) vers les hautes énergies des séparations  $\Delta_n$  dans le régime haut champ ( $\nu < n$ ).

tiellement la pente de la droite sur laquelle s'alignent les points dans le deuxième régime (les niveaux n et n + 1 sont vides).  $R_0^*$  agit sur la pente des droites dans le premier régime ( $n < \nu < n+1$ ). Son influence est plus faible dans le deuxième régime ( $\nu < n$ ). Néanmoins, plus  $R_0^*$  sera élevé, plus  $\Delta_1$  s'écartera de la droite commune.

Le meilleur ajustement pour l'échantillon  $S_1$  a été obtenu pour :

$$R_0^* = 2,5 \pm 0,5 \text{ meV}$$
  
 $\hbar \omega^* / B = 1,5 \pm 0,1 \text{ meV/T}$ 

avec une densité électronique de 2,25  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup> (figure III.31.c).

L'accord est satisfaisant pour l'ensemble des différences à moins de 1 meV. Ce modèle reproduit correctement les deux régimes et notamment la rupture de pente à  $\nu$  entier.

### Ajustement théorique des énergies des transitions $L_n$ en champ

L'ajustement des différences  $\Delta_n$  a permis d'évaluer les deux paramètres  $R_0^*$  et  $\hbar\omega^*$ . Pour reproduire le comportement en champ des énergies des raies  $L_n$  nous disposons d'un troisième paramètre : la concentration en Manganèse  $x_{Mn}$ . En fait une quatrième variable intervient également dans l'ajustement des énergies  $E_n$  : la largeur de bande interdite sans terme d'échange  $E_g^*$ . La saturation apparente de l'effet Zeeman due à l'interaction sp - d avec les ions  $\mathrm{Mn}^{2+}$  est suffisamment lente pour déterminer correctement la concentration en Manganèse dans la gamme de champ de 1,5 T à 14 T. L'énergie d'une raie est donnée, dans le cadre de notre modèle, par la formule III.12, en remplaçant  $E_n^{e-e}(B)$  et  $E_n^{e-h}(B)$  par leur expression au premier ordre (équ. III.11 et III.7), pour une polarisation complète de spin -1/2 du gaz :

$$E_{n}(B) = E_{g}^{*} + E_{1} + H_{1} + E^{sp-d}(B) - \frac{1}{2}(g_{e} + 3g_{h})\mu_{B}B + (n + \frac{1}{2})\hbar\omega^{*}$$

$$- R_{0}^{*}\frac{a_{0}^{*}}{\ell_{c}}\sqrt{2\pi}\sum_{n'}\tau_{n'}C_{n,n'} \qquad (\text{III.13})$$

$$- R_{0}^{*}\frac{a_{0}^{*}}{\ell_{c}}\sqrt{2\pi}C_{n,n}(1 - \tau_{n})$$

Les effets Zeeman intrinsèques respectifs des bandes de valence et de conduction ont été pris en compte  $(1/2(g_e + 3g_h)\mu_B \simeq -0,035 \text{ meV/T} [73]$  pour un puits de 100 Å). Pour une concentration  $x_{Mn}$  donnée, les effets Zeeman  $E^{s-d}(B, x_{Mn}, T)$  et  $E^{p-d}(B, x_{Mn}, T)$  des niveaux confinés du puits  $E_1$  et  $H_1$  ont été calculés de manière identique à celle du chapitre II.

Le meilleur ajustement pour l'échantillon  $S_1$ , présenté sur la figure III.20, est obtenu pour une concentration en Manganèse :

$$x_{Mn} = 1, 8 \pm 0, 2\%$$

pour une séparation en énergie entre les extremums des bandes des états confinés, sans le terme d'échange,  $E_g^* + E_1 + H_1 = 1644, 5 \pm 1$  meV.



FIG. III.32: Agrandissement de la figure III.20 de l'échantillon  $S_1$ .

Un agrandissement de cette figure est donné sur la figure III.32, pour une gamme de champ 0 < B < 7 T.

L'ajustement théorique des énergies  $E_n$  est très satifaisant : les champs d'apparition des raies  $L_{1...6}$  correspondent aux champs observés expérimentalement. Il reproduit correctement les énergies  $E_{1...6}$  à une précision proche de 0,5 meV : les deux régimes, dépendant de l'occupation ou non du niveau de conduction, sont bien décrits par ce modèle. Néanmoins, il ne prévoit pas l'apparition précoce de la raie  $L_0$  et montre un désaccord de 2 meV sur l'énergie  $E_0$ , qui était prévisible pour une approximation limitée au premier ordre. Enfin, on remarque sur la figure III.20 l'existence d'un anticroisement des raies  $L_2$  et  $L_3$  avec une transition à plus haute énergie à 1646,5 meV. Il semble qu'il en soit de même pour la raie  $L_1$  qui intersecte une raie à 1642 meV. L'origine de ces deux raies est, pour l'instant, encore inconnue.

Les résultats obtenus pour  $\hbar\omega^*$  et  $x_{Mn}$  sont cohérents avec les valeurs attendues.  $\hbar\omega^* = 1,5 \text{ meV/T}$  est faible. En imposant la masse de l'électron  $m_e = 0,105m_0$ (proche de la valeur donnée par la résonance cyclotron), la masse du trou dans le plan serait  $m_h = (0,29\pm0,06)m_0$ . Elle est plus importante que la valeur connue que nous utilisions jusqu'à présent ( $m_h = 0,193m_0$  [38]). Deux effets pourraient expliquer cet écart : la dépendance de  $m_h$  avec la largeur du puits (les calculs théoriques de Fishman [98] ont montré que la masse du trou augmentait de 25 % dans un puits de CdTe de 100 Å par rapport à sa valeur dans le massif); et la non-parabolicité de la bande de valence à  $k \neq 0$ .

La concentration en Manganèse est cohérente avec les énergies des transitions excitoniques X et  $X^-$ à champ nul. Il a été établi par différentes équipes [69, 58, 46, 47] (paragraphe III.A.3.) que l'énergie de la transition excitonique X<sup>-</sup> restait stable sur une large gamme de dopage dans CdTe (jusqu'à 4.10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup> [69]). Ce fait a été confirmé dans un puits de CdMnTe avec gradient de dopage ( $n_e$  variant de 0 à 4,8.10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>) de caractéristiques similaires ( $x_{Mn} = 1$  %) par Wojtowicz *et al.* [46] (figure III.7). En s'appuyant sur cette hypothèse, nous devrions avoir une énergie de transition excitonique X<sup>-</sup> de l'échantillon S<sub>1</sub> identique (1639,5 meV) à celle d'un puits possédant les mêmes caractéristiques (largeur, hauteur de barrière, concentration du puits) en l'*absence* de dopage. Or pour une concentration  $x_{Mn} = 1,8$  % et les paramètres connus du puits (largeur de 100 Å, concentration en Mg<sup>2+</sup> de 14,5 % dans les barrières et une énergie de liaison de l'exciton chargé de 2,7 meV [1]), le calcul donne une valeur de l'énergie de la transition excitonique X<sup>-</sup> de 1640-41 meV, à champ nul et en l'absence de dopage, proche de la valeur de 1639,5 meV mesurée expérimentalement.

Une deuxième confirmation provient de la valeur de l'énergie de la transition à 1649,5 meV. Nous avons attribué cette raie à l'exciton, avec une très faible énergie de liaison, se confondant sensiblement avec le seuil des transitions interbandes. La séparation en énergie entre les extremums des bandes des niveaux  $E_1$  et  $H_1$  est donnée, à champ nul, par la formule III.13:

$$E(B=0) = E_{q}^{*} + E_{1} + H_{1} + E^{e-e}(B=0)$$

 $E^{e-e}(B=0)$  est maintenant l'énergie d'échange *moyenne* par électron à champ nul (le gaz d'électrons n'est plus polarisé). Son expression est donnée par la relation III.10. Pour une densité électronique  $n_e = 2,25.10^{11}$  cm<sup>-2</sup> et  $R_0^* = 2,5$  meV,  $E^{e-e}(0) = -3,9$  meV. E(B=0) = 1640,6 meV. L'énergie du seuil des transitions interbandes est obtenue en ajoutant à E(B=0) le déplacement de Moss-Burstein,  $E_F(1+m_e/m_h)$  (où  $E_F = 5,4$  meV est l'énergie de Fermi), soit 1648 ± 1 meV. Cette valeur est tout à fait cohérente avec la position de la raie excitonique X (1649,5 meV), pour une énergie de liaison quasiment nulle (figure III.33).

La renormalisation de la bande interdite par le gaz de porteurs [99, 100, 101] est importante. Pour un puits non dopé, ayant les mêmes caractéristiques,  $E_g + E_1 + H_1 =$ 1661 meV, soit 20 meV au dessus de la valeur déduite dans le puits dopé. Nous retrouvons l'ordre de grandeur (entre 26 et 30 meV) mesuré dans des puits CdTe [73] et CdMnTe [46] de densité électronique équivalente.

 $x_{Mn}$  et  $\hbar\omega^*$  sont donc en bon accord avec les valeurs attendues. Ils donnent une interprétation cohérente des résultats expérimentaux. L'approximation champ fort est vérifiée, *a posteriori*, par la faible valeur de  $R_0^*$  comparée au Rydberg non écranté  $R_0^* = 9$  meV.

Observons les prédictions de notre modèle pour l'échantillon  $S_2$ . La densité électronique étant identique à l'échantillon  $S_1$ , la valeur de  $R_0^*$  est conservée. Il en est de même pour  $\hbar\omega^*$ . La concentration en Manganèse peut être estimée d'après le décalage de 4 meV des raies excitoniques à champ nul. En supposant qu'il ne provient que des ions magnétiques, il impose une concentration  $x_{Mn} = 2,1$  %. Les trois paramètres sont donc fixés. La comparaison du modèle et des résultats expérimentaux est donnée sur les figures III.21 et III.34. L'accord est à nouveau remarquable.



FIG. III.33: Seuil des transitions interbandes à champ nul.



FIG. III.34: Agrandissement de la figure III.21 de l'échantillon  $S_2$ .

### 4. Importance de l'effet d'échange électron-électron

Seules la combinaison des interactions d'échange électron-Manganèse (s - d) et électron-électron permettent d'expliquer la polarisation complète de spin -1/2 du gaz d'électrons pour un champ relativement faible. Les figures III.35.a et b représentent l'effet Zeeman des niveaux de Landau de la bande de conduction de spin -1/2 (traits pleins) et +1/2 (traits pointillés) de l'échantillon S<sub>1</sub> respectivement sans et avec l'effet d'échange électron-électron (resp. a et b) pour une concentration  $x_{Mn} = 1,8$  %.

Dans le premier cas (figure III.35.a), en l'absence d'échange électron-électron, le niveau de Fermi évolue entre les niveaux de spin +1/2 et -1/2: le gaz n'est polarisé qu'à  $\nu \leq 1$  (et sur un faible intervalle de champ, lorsque  $1 < \nu \leq 2$ ). Pour les champs inférieurs le niveau n = 0 de spin +1/2 est toujours peuplé. En présence d'échange électron-électron, en revanche, l'énergie des niveaux -1/2 est réduite et le gaz devient totalement polarisé de spin (figure III.35.b). Le niveau de Fermi évolue alors uniquement parmi les niveaux de Landau de même spin -1/2. Cette situation apparaît dès que  $\nu < 7$ . Cette configuration est bien celle que nous avons observée expérimentalement.

Un tel agencement aurait pu tout aussi bien se produire en l'absence d'échange électron-électron, mais il aurait nécessité une concentration en Manganèse supérieure à 3,8 % pour une polarisation totale à  $\nu = 6$ . Cette valeur est incompatible avec les énergies des transitions excitoniques à champ nul. La raie associée à l'exciton chargé, en supposant toujours sa stabilité en fonction du dopage, devrait se situer au moins à 33 meV au dessus de sa position mesurée expérimentalement à 1639,5 meV.

Revenons à la figure III.35.b et considérons l'évolution du niveau de Fermi. Au voisinage de chaque  $\nu$  entier, la polarisation du gaz est totale mais le niveau de Fermi n'est situé qu'à quelques dixièmes de meV sous le premier niveau de conduction +1/2  $(0^+)$ . Un effet Zeeman ou un écrantage plus faible auraient suffits pour dépolariser le gaz à proximité de chaque  $\nu$  entier en transférant les électrons dans le niveau de Landau n = 0 de spin +1/2. Nous ne pouvons écarter cette possibilité en raison des incertitudes sur les valeurs de  $R_0^*$  et de  $x_{Mn}$ . De même, l'agitation thermique et la largeur finie des niveaux de Landau peuvent tout aussi bien entraîner un transfert partiel des électrons vers ce niveau. Ces hypothèses pourraient expliquer d'ailleurs les anomalies observées sur les oscillations Shubnikov-de Hass (figure III.10) en amont de chaque minimum.

Les propriétés magnétooptiques des puits semimagnétiques soulignent l'importance de l'effet d'échange du gaz d'électrons [96]. Dans les puits non magnétiques ce mécanisme n'est pas visible car l'effet Zeeman intrinsèque est trop faible pour séparer notablement les deux composantes de spin. La polarisation totale du gaz d'électrons ne peut en effet intervenir qu'à  $\nu < 1$ , lorsque le niveau de Fermi saute du niveau de Landau n = 0 de spin +1/2 (-1/2) sur le dernier niveau peuplé n = 0 de spin -1/2 (+1/2) pour un facteur gyromagnétique positif (négatif). Les manifestations les plus évidentes de l'échange dans les puits quantiques reposaient jusqu'à présent essentiellement sur les oscillations du facteur gyromagnétique « effectif » observées au fur et à mesure du dépeuplement des niveaux de Landau [84].



FIG. III.35: Effet Zeeman des niveaux de Landau de la bande de conduction de spin -1/2 (0<sup>-</sup>, 1<sup>-</sup>... en traits pleins) et +1/2 (0<sup>+</sup>, 1<sup>+</sup>... en traits pointillés) de l'échantillon  $S_1$  sans (a) et avec (b) l'effet d'échange.  $x_{Mn} = 1,8 \%, R_0^* = 2,5 \text{ meV}, \text{ et } \hbar \omega_c/B =$ 1,1? meV/T. L'énergie de Fermi est indiquée par un trait gras.

L'excellent accord théorie-expérience est quelque peu surprenant compte tenu de la simplicité de ce modèle. Il nous encourage à développer une description plus complète des différents mécanismes que nous avons mis en évidence. Le traitement de l'interaction coulombienne électron-trou au deuxième ordre, puis aux ordres suivants, est maintenant impératif pour reproduire plus fidèlement le comportement des énergies des transitions  $L_n$  en champ faible. Il sera alors très certainement nécessaire de faire intervenir la largeur finie des niveaux de Landau, comme la température non nulle de l'échantillon. La prise en compte de la structure réelle du puits devrait apporter des corrections non négligeables dans les expressions des interactions coulombiennes.

Une question cependant a été manifestement ignorée dans le traitement de l'interaction coulombienne électron-trou tel que nous l'avons présenté dans ce mémoire : quelle est la réponse du gaz d'électrons à la création d'une paire électron-trou? Nous avons jusqu'à présent considéré les électrons uniquement comme spectacteurs de la transition, en ne prenant en compte que les effets d'écran et du remplissage de l'espace des phases. Un traitement plus complet nécessiterait en effet de prendre en compte la réponse dynamique du gaz et d'étudier son incidence sur la constante diélectrique.

## Conclusion

Les deux aspects traités dans ce mémoire, bien qu'hétérogènes, illustrent la diversité des applications des semiconducteurs semimagnétiques dans la compréhension des mécanismes qui gouvernent les propriétés des hétérostructures semiconductrices.

Dans une première partie nous avons mis en évidence dans une série de puits quantiques asymétriques le mécanisme de ségrégation aux interfaces qui résulte de l'échange des atomes entre deux monocouches adjacentes en cours de croissance. Nos résultats ont été interprétés de façon tout à fait cohérente par le modèle de l'aimantation locale. Ces résultats, obtenus sur un ensemble d'échantillons réalisés à l'Institut de l'Académie des Sciences à Varsovie, confirment la description donnée par les équipes grenobloises.

La seconde partie de ce travail a été consacrée à l'étude des propriétés magnétooptiques de puits quantiques semimagnétiques dopés n par modulation d'excellente qualité. Nous avons présenté une série des résultats originaux dans une gamme de densité électronique  $(2.10^{11} \text{ cm}^{-2})$  relativement peu étudiée jusqu'à présent dans les composés II-VI.

Leur analyse a été grandement facilitée par la polarisation de spin complète du gaz d'électrons due à la présence des ions magnétiques dans le puits. Les semiconducteurs semimagnétiques offrent ainsi un objet d'étude particulièrement simple qui se réduit à un système ne contenant qu'une seule composante de spin.

Nos résultats expérimentaux montrent l'importance des *effets à N corps*. Ils mettent en évidence l'apparition, sous champ magnétique, d'une série d'états liés formés de paires électron-trou en interaction coulombienne associés aux transitions inter-niveaux de Landau des bandes de valence et de conduction. Le comportement de chacun de ces états liés se caractérise par la présence de deux régimes, bien distincts, selon l'occupation ou non du niveau de Landau électronique correspondant. Lorsque le niveau est vide, l'interaction coulombienne est simplement affaiblie par l'*effet d'écran* des électrons occupant les niveaux inférieurs. Lorsque le niveau se peuple, l'état lié est considérablement affecté : le gaz de porteurs *occupe l'espace des phases* des états de paires électron-trou. L'énergie de liaison chute brutalement.

L'interaction d'*échange électron-électron* est manifeste. Nous avons montré qu'il était nécessaire de l'inclure pour rendre compte de la polarisation de spin aussi rapide du gaz d'électrons dans un champ relativement faible.

Un modèle simple associant ces effets reproduit correctement la dépendance en

champ des transitions observées et leur seuil d'apparition.

La qualité de nos résultats expérimentaux et l'accord avec nos interprétations théoriques appelle à approfondir ces deux aspects. Le comportement des forces d'oscillateur des transitions  $L_n$  dans les deux régimes n'a pas encore été traité dans le cadre de ce modèle. Nous avons très récemment réalisé une série d'expériences en photoluminescence qui apporterait des résultats complémentaires à ceux l'absorption. Des mesures plus fines de magnéto-transport sur une structure plus adéquate sont en cours. Elles permettront notamment de découpler les composantes longitudinale et transverse de la résistivité.

# Annexe A Méthodes magnétooptiques

Les mesures classiques de magnétooptique (absorption, réflectivité) décrites dans ce travail ont été complétées par des mesures de rotation Kerr. L'effet Kerr provient, dans les semiconducteurs semimagnétiques, de la biréfringence circulaire magnétique induite par le couplage des porteurs avec le moment magnétique des ions de l'élément de transition. Nous donnons ici le principe et la réalisation de ces mesures. Nous rappelons par ailleurs l'expression des coefficients de réflectivité et de transmission. Enfin, l'alternance de couches d'indices optiques différents dans une hétérostructure modifie la forme des spectres à cause des réflexions multiples.

### 1. Le tenseur diélectrique

Pour établir l'expression des coefficients de réflectivité du matériau, nous devons dériver l'expression du tenseur diélectrique  $\overline{\varepsilon}$ .

Les équations de Maxwell dans un milieu non magnétique sont de la forme :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \qquad \nabla \times \mathbf{B} = \frac{\overline{\varepsilon}}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}$$
$$\mathbf{D} = \overline{\varepsilon} \mathbf{E} \qquad (A.1)$$

L'équation de propagation d'une onde plane  $\mathbf{E}_{\mathbf{0}}e^{i(\omega t-q.z)}$ , de vecteur d'onde **q** parallèle à l'axe z ( $\mathbf{E} \perp \mathbf{q}$ ) et de fréquence propre  $\omega$  est tirée de l'équation A.1:

$$\overline{\varepsilon}\mathbf{E} = \frac{q^2c^2}{w^2}\mathbf{E} \tag{A.2}$$

Dans un milieu anisotrope, de symétrie cubique, placé dans un champ magnétique appliqué le long de l'axe z, le tenseur diélectrique est de la forme :

$$\overline{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & 0\\ -\varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xx} & 0\\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix}$$
(A.3)

De l'équation A.2 et de la définition A.3, il vient les équations :

$$\varepsilon_{xx}E_{0x} + \varepsilon_{xy}E_{0y} = \frac{q^2c^2}{w^2}E_{0x}$$
$$-\varepsilon_{xy}E_{0x} + \varepsilon_{xx}E_{0y} = \frac{q^2c^2}{w^2}E_{0x}$$

qui sont regroupées, en introduisant  $E^{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}}(E_{0x} \pm iE_{0y})$  et  $\varepsilon_{\pm} = \varepsilon_{xx} \mp i\varepsilon_{xy}$  dans l'expression:

$$\varepsilon_{\pm}E^{\pm} = \frac{q^2c^2}{w^2}E^{\pm} \tag{A.4}$$

Il existe donc deux modes propres de propagation dans le milieu, qui correspondent aux deux modes circulaires  $\sigma^{\pm}$  (droite et gauche). L'indice complexe du milieu est relié au tenseur diélectrique par  $\tilde{n}_{\pm}^2 = \varepsilon_{\pm}$ .

Les composantes  $\varepsilon_{xx}$  et  $\varepsilon_{xy}$  du tenseur diélectrique sont données par la valeur moyenne de la polarisation électrique dans le cadre de la théorie des perturbations dépendantes du temps [102].  $\varepsilon_{\pm}$  prend alors la forme :

$$\varepsilon_{\pm}(\omega) = 1 - \frac{4\pi e^2}{m^2 \omega \Omega} \sum_f \frac{1}{\omega_f} \left( \frac{|\langle f|p_{\mp}|i\rangle|^2}{\hbar\omega + \hbar\omega_f + i\Gamma_f} + \frac{|\langle f|p_{\pm}|i\rangle|^2}{\hbar\omega - \hbar\omega_f + i\Gamma_f} \right)$$
(A.5)

où  $|i\rangle$  est l'état initial et  $|f\rangle$  un état excité à deux particules (l'exciton) avec  $\mathbf{k_e} + \mathbf{k_h} = 0$ , d'énergie  $\hbar \omega_f$ .  $p_{\mp} = 1/\sqrt{2}(p_x \pm ip_y)$  est l'opérateur impulsion. Ω est le volume de la cellule unité.  $\Gamma$  est un terme d'élargissement.

Dans un cristal de type blende de Zinc, les élements de matrice  $\langle f|p_{\mp}|i \rangle$ sont proportionnels aux éléments de matrice  $\langle u_c|p_{\mp}|u_v \rangle$  des fonctions de Bloch des bandes  $\Gamma_6$  et  $\Gamma_8$ . Les excitations permises sont données dans le tableau I.1 en configuration Faraday pour la bande de trou lourd. Dans l'approximation d'un milieu homogène [35], cette expression est identique pour un puits quantique à un facteur de forme près  $\gamma_{\pm}$  qui dépend du recouvrement des fonctions d'onde des porteurs confinés dans le puits. Près de l'énergie  $\hbar \omega_1^{\pm}$  de la transition fondamentale  $E_1H_1$ , en ne considérant que cette transition, l'équation A.5 devient [35]:

$$\varepsilon_{\pm}(\omega) = \varepsilon_1 + \frac{4\pi e^2 P^2}{m^2 \omega^2} \gamma_{\pm} \frac{1}{\hbar \omega_1^{\pm} - \hbar \omega - i\Gamma_{\pm}}$$
(A.6)

 $\varepsilon_1$  est la constante diélectrique qui inclut les contributions des termes non résonants et des autres transitions permises.  $P = \langle S | p_x | X \rangle$ .

### 2. Spectres expérimentaux

La constante diélectrique étant calculée, nous pouvons établir les expressions des coefficients de transmission, de réflectivité et de la rotation Kerr. Elles sont données pour un échantillon massif.

#### Transmission

Le coefficient de transmission  $t = I_{\text{transmis}}/I_{\text{incident}}$  est relié à la densité optique  $\alpha$  par  $t = exp(-\alpha d)$  où d est la largeur de l'échantillon. La densité optique est proportionnelle au coefficient d'extinction  $\kappa$ ,  $(\tilde{n} = n - i\kappa)$ :

$$\alpha = \frac{2\omega}{c}\kappa$$

 $\kappa$  est relié au tenseur diélectrique par :

$$\kappa_{\pm} = \sqrt{\frac{1}{2} \left( \sqrt{\operatorname{Re}(\varepsilon_{\pm})^2 + \operatorname{Im}(\varepsilon_{\pm})^2} - \operatorname{Re}(\varepsilon_{\pm}) \right)}$$

En supposant que le terme résonant du tenseur diélectrique  $\Delta \varepsilon_{\pm}$  est petit devant  $\varepsilon_1$ , nous pouvons obtenir une expression simplifiée du coefficient d'absorption qui donne la forme générale du spectre. Soit

$$\alpha_{\pm} \simeq \frac{\omega \operatorname{Im}(\Delta \varepsilon_{\pm})}{c\sqrt{\varepsilon_{1}}}$$
$$\simeq \frac{2\pi e^{2}P^{2}}{m^{2}\omega\Omega c\sqrt{\varepsilon_{1}}} \frac{\Gamma_{\pm}}{(\hbar\omega_{1}^{\pm} - \hbar\omega)^{2} + \Gamma_{\pm}^{2}}$$

Dans une polarisation donnée, la densité optique (et donc l'absorption) présente un *maximum* centré sur l'énergie de la transition. Son amplitude est proportionnelle à la force d'oscillateur de la transition.

### Réflectivité

Le coefficient de réflectivité  $R = I_{\text{réfléchi}}/I_{\text{incident}}$  est donné par le carré de la valeur absolue du coefficient de Fresnel  $R_{\pm} = |r_{\pm}|^2$ , eux-mêmes reliés à l'indice complexe du milieu par :

$$r_{\pm} = \frac{\tilde{n}_{\pm} - 1}{\tilde{n}_{\pm} + 1} = \frac{\sqrt{\varepsilon_{\pm} - 1}}{\sqrt{\varepsilon_{\pm} + 1}}$$

Nous pouvons esquisser la forme des spectres de réflectivité dans l'approximation précédente, soit :

$$R_{\pm} = \left(\frac{\sqrt{\varepsilon_1 - 1}}{\sqrt{\varepsilon_1 + 1}}\right)^2 \left(1 + K \frac{\hbar \omega_1^{\pm} - \hbar \omega}{(\hbar \omega_1^{\pm} - \hbar \omega)^2 + \Gamma_{\pm}^2}\right)$$

où K est une quantité qui dépend peu de  $\omega$ .

Le spectre de réflectivité, dans une polarisation donnée, montre un *épaulement* à l'énergie de la transition. Ce comportement rend le dépouillement des spectres moins évident que dans le cas de la transmission.

### La rotation Kerr

Elle résulte de la biréfringence circulaire magnétique du cristal : une onde incidente polarisée linéairement dans le plan xOy deviendra elliptiquement polarisée après réflexion sur le cristal. Cette polarisation elliptique est caractérisée par sa rotation  $\theta_K$  et son ellipticité  $\varepsilon_K$ . Elles sont reliées aux coefficients de Fresnel par :

$$\frac{r_{-}}{r_{+}} = \tan\left(\frac{\pi}{4} - \varepsilon_{K}\right)\exp(-2i\theta_{K})$$

soit

$$\theta_K = -\frac{1}{2} \arg\left(\frac{r_-}{r_+}\right) \qquad \varepsilon_K = \frac{\pi}{4} - \arctan\left|\frac{r_-}{r_+}\right|$$

Aux petits angles  $\theta_K$ ,

$$\theta_K \simeq \operatorname{Im} \frac{r_+ - r_-}{r_+ + r_-} = \operatorname{Im} \frac{\sqrt{\varepsilon_+} - \sqrt{\varepsilon_-}}{\sqrt{\varepsilon_+ \varepsilon_-} - 1}$$

Nous pouvons donner encore une expression approchée:

$$\theta_K \simeq \frac{K'}{2\sqrt{\varepsilon_1}(\varepsilon_1 - 1)} \left( \frac{\Gamma_+}{(\hbar\omega_1^+ - \hbar\omega)^2 + \Gamma_+^2} - \frac{\Gamma_-}{(\hbar\omega_1^- - \hbar\omega)^2 + \Gamma_-^2} \right)$$

où K' est une quantité qui dépend peu de  $\omega$ .

 $\theta_K$  est la somme de deux termes, qui correspondent aux deux transitions permises en polarisations circulaires  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . Lorsque l'écart entre les deux transitions  $\hbar\omega_1^+ - \hbar\omega_1^-$  est grand devant les largeurs des transitions  $\Gamma$ , les spectres de rotation Kerr montrent deux maximums, centrés sur chacune de ces transitions, mais de signes opposés. En revanche, lorsque  $\hbar\omega_1^+ - \hbar\omega_1^- \ll \Gamma$ , le spectre présente un épaulement dont la hauteur est proportionnelle à l'écart  $\hbar\omega_1^+ - \hbar\omega_1^-$ , lui-même proportionnel, dans les semiconducteurs semimagnétiques, à l'aimantation des ions de l'élément de transition. Cette propriété permet de caractériser les propriétés magnétiques à très faible champ.

### 3. Structure multicouche

La forme des spectres est modifiée par les réflexions multiples dans une hétérostructure. Les coefficients de Fresnel de la structure dépendent des coefficients de Fresnel  $r_{\pm}^{i,i+1}$  à l'interface des couches successives *i*.

$$r_{\pm}^{i,i+1} = \frac{\sqrt{\varepsilon_{\pm}^{i}} - \sqrt{\varepsilon_{\pm}^{i+1}}}{\sqrt{\varepsilon_{\pm}^{i}} + \sqrt{\varepsilon_{\pm}^{i+1}}}$$

En particulier, un échantillon contenant un puits quantique peut être modélisé par une structure formée de trois couches : la couche de couverture, le puits quantique, et la couche tampon. Dans l'approximation du milieu homogène [35], la constante diélectrique du puits quantique est donnée par l'équation A.6. Le calcul des coefficients ne pose pas de difficulté, et est aisement généralisable à une structure plus complexe (par la méthode des matrices de transfert, notamment).

Dans le chapitre II nous avons évoqué la diversité des formes des spectres de réflectivité et d'effet Kerr résultant des reflexions multiples au sein de la structure. Elles sont illustrées par les figures II.9 et II.10: dans un même spectre, deux transitions peuvent montrer une forme très différente suivant la disposition des puits dans la structure.

### 4. Mesures d'effet Kerr

Les mesures d'effet Kerr ont été réalisées par une méthode très similaire à celle décrite par Sato [103]. La lumière incidente, linéairement polarisée  $\mathbf{E} = 1/\sqrt{2}E(\mathbf{e_x}+\mathbf{e_y})$ ( $\mathbf{e_x}$  et  $\mathbf{e_y}$  sont les vecteurs unitaires) traverse un modulateur élastooptique dont les axes (x, y) sont inclinés à 45 ° par rapport à l'axe de la polarisation. Une modulation périodique introduit une retardation  $\delta = \delta_0 \sin 2\pi f t$  entre les composantes orthogonales (x, y) à la fréquence f = 50 kHz.

$$\mathbf{E} = \frac{1}{\sqrt{2}} E(\mathbf{e}_{\mathbf{x}} + \mathbf{e}_{\mathbf{y}} e^{i\delta})$$

Soit, dans les coordonnées circulaires,

$$E^{+} = \frac{1}{2}E(1+ie^{i\delta})$$
$$E^{-} = \frac{1}{2}E(1-ie^{i\delta})$$

Après réflexion sur l'échantillon, ces composantes deviennent respectivement,

$$E^{+} = \frac{1}{2}E(1+ie^{i\delta})r_{+}$$
$$E^{-} = \frac{1}{2}E(1-ie^{i\delta})r_{-}$$

La composante parallèle à l'axe Ox est ensuite sélectionnée par un analyseur :

$$E_x = \frac{1}{2\sqrt{2}} E\left[r_+(1+ie^{i\delta}) + r_-(1-ie^{i\delta})\right]$$

et le détecteur (un photomultiplicateur) détecte une intensité:

$$\Phi = I_0 \left[ |r_+|^2 + |r_-|^2 + \sin \delta \left( |r_-|^2 - |r_+|^2 \right) - 2\cos \delta \operatorname{Im}(r_+ r_-^*) \right] \propto E_x E_x^* \quad (A.7)$$

L'ellipticité et la rotation Kerr sont données approximativement par :

$$|r_{-}|^{2} - |r_{+}|^{2} \simeq 4R \varepsilon_{K}$$
  
Im $(r_{+}r_{-}^{*}) \simeq R \sin 2\theta_{K} \simeq 2R \theta_{K}$ 

où  $R = (|r_{-}|^{2} + |r_{+}|^{2})/2$  est le coefficient moyen de réflectivité.

 $\cos \delta = \cos(\delta_0 \sin 2\pi ft)$  et  $\sin \delta = \sin(\delta_0 \sin 2\pi ft)$  peuvent être développées en séries de Bessel  $J_n(x)$ :

$$\sin \delta \simeq 2J_1(\delta_0) \sin 2\pi f t$$
  
$$\cos \delta \simeq J_0(\delta_0) + J_2(\delta_0) \sin 4\pi f t$$

En choisissant l'amplitude de la retardation telle que  $J_0(\delta_0) = 0$ , l'équation A.7 devient :

$$\Phi \simeq I_0 R \left[ 1 - 4J_1(\delta_0) \sin(2\pi f t) \varepsilon_K - 4J_2(\delta_0) \sin(4\pi f t) \theta_K \right]$$

Le signal, détecté à la fréquence 2f, est proportionnel à  $R \theta_K$ . La rotation Kerr est obtenue d'après le rapport de ce signal sur le signal de réflectivité.

### Bibliographie

- K. Kheng, R. T. Cox, Y. Merle d'Aubigné, F. Bassani, K. Saminadayar, et S. Tatarenko. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 175, (1993).
- [2] D. C. Tsui, H. L. Störmer, et A. C. Gossard. *Phys. Rev. Lett.*, 48, 1559, (1982).
- [3] E. Y. Andrei, G. Deville, D. C. Glatti, F. I. B. Williams, E. Paris, et B. Étienne. *Phys. Rev. Lett.*, **60**, 2765, (1988).
- [4] A. Haury, A. Wasiela, A. Arnoult, J. Cibert, S. Tatarenko T. Dietl, et Y. Merle d'Aubigné. Phys. Rev. Lett, 79, 511, (1997).
- [5] J. K. Furdyna et J. Kossut, éditeurs. Diluted Magnetic Semiconductors, volume 25 de Semiconductors and Semimetals. Williardson Beer, 1988.
- [6] R. H. Parmenter. *Phys. Rev.*, **100**, 580, (1955).
- [7] E. O. Kane. J. Phys. Chem Solids, 1, 249, (1957).
- [8] J. M. Luttinger et W. Kohn. Phys. Rev., 97, 869, (1955).
- [9] W. Grieshaber, A. Haury, J. Cibert, Y. Merle d'Aubigné, A. Wasiela, et J. A. Gaj. Phys. Rev. B, 53, 4891, (1996).
- [10] S. B. Oseroff. *Phys. Rev. B*, **25**, 6584, (1982).
- [11] T. Kasuya. Prog. Theor. Phys., 16, 45, (1956).
- [12] J. A. Gaj, R. Planel, et G. Fishman. Solid. Stat. Comm, 29, 435, (1979).
- [13] B. E. Larson, K. C. Kass, H. Ehrenreich, et A. E. Carlson. Phys. Rev. B, 37, 4137, (1988).
- [14] J. A. Gaj, W. Grieshaber, C. Bodin-Deshayes, J. Cibert, G. Feuillet, Y. Merle d'Aubigné, et A. Wasiela. *Phys. Rev. B*, **50**, 5512, (1994).
- [15] J. M. Moison, C. Guille, F. Houzay, F. Barthe, et M. Van Rompay. *Phys. Rev. B*, 40, 6149, (1989).
- [16] J.-M. Gérard. Appl. Phys. Lett, **61**, 2096, (1992).
- [17] J.-M. Gérard, C. d'Anterroches, et J.-Y. Marzin. Journ. Cryst. Growth, 127, 536, (1993).

- [18] J. F. Zheng, J. D. Walker, M. B. Salmeron, et E. R. Weber. *Phys. Rev. Lett*, 72, 2414, (1994).
- [19] J.-M. Gérard et J.-Y. Marzin. Phys. Rev. B, 45, 6313, (1992).
- [20] B. Jusserand, F. Mollot, J. M. Moison, et G. Le Roux. Appl. Phys. Lett., 57, 5560, (1990).
- [21] W. Grieshaber, J. Cibert, J. A. Gaj, Y. Merle d'Aubigné, et A. Wasiela. *Phys. Rev. B*, **50**, 2011, (1994).
- [22] G. Schmitt, B. Kuhn-Heinrich, U. Zehnder, W. Ossau, T. Litz, A. Waag, et G. Landwehr. Acta Phys. Pol. A, 88, 897, (1995).
- [23] C. Weisbuch, R. Dingle, A. C. Gossard, et W. Wiegmann. Sol. Stat. Comm, 38, 709, (1981).
- [24] M. Tanaka et H. Sakaki. Journ. Cryst. Growth, 81, 153, (1987).
- [25] S. Maćkowski, Nguyen The Koi, P. Kossacki, A. Golnick, J. A. Gaj, A. Lemaître, C. Testelin, C. Rigaux, G. Karczewski, T. Wojtowicz, et J. Kossut. *Journ. Cryst. Growth*, 184, 966, (1998).
- [26] J. Bénard, éditeur. Adsorption on Metal Surfaces. Elsevier, New York, 1983.
- [27] D. Mc Lean. Grain Boundaries in Metals. Oxford University Press, Oxford, 1957.
- [28] H. Mariette, F. Kany, J.-M. Hartmann, et H. Ulmer-Tuffigo. Appl. Surf. Sci., 123/124, 710, (1998).
- [29] F. Kany. Etude des propriétés magnéto-optiques d'hétérostructures quantiques à base de semiconducteurs semimagnétiques. Thèse de doctorat, Université de Grenoble I, 1997.
- [30] O. Dehaese, X. Wallart, et F. Mollot. Appl. Phys. Lett., 66, 52, (1995).
- [31] L. Landau et E. Lifchitz. *Physique statistique*. Éditions Mir, 1967.
- [32] M. Larive, J. Nagle, J. P. Landesman, X. Marcadet, C. Motte, et P. Bois. J. Vac. Sci. Technol. B, 11, 1413, (1993).
- [33] G. Bastard. Wave mecanics applied to semiconductor heterostructures. Les Éditions de la Physique, 1988.
- [34] A. Lemaître, C. Testelin, C. Rigaux, S. Maćkowski, Nguyen The Koi, J. A. Gaj, G. Karczewski, T. Wojtowicz, et J. Kossut. *Phys. Rev. B*, 57, 4708, (1998).
- [35] C. Testelin, C. Rigaux, et J. Cibert. Phys. Rev. B, 55, 2360, (1997).
- [36] R. Leavitt et J. Little. *Phys. Rev. B*, **42**, 11774, (1990).

- [37] P. Peyla, R. Romestain, Y. Merle d'Aubigné, G. Fishman, A. Wasiela, et H. Mariette. *Phys. Rev. B*, **52**, 12026, (1995).
- [38] Ch. Neumann, A. Nöthe, et N. O. Lipari. *Phys. Rev. B*, **37**, 922, (1988).
- [39] P. H. Jouneau, A. Tardot, G. Feuillet, H. Mariette, et J. Cibert. J. Appl. Phys., 75, 7310, (1994).
- [40] D. Tönnies, G. Bacher, A. Forchel, A. Waag, T. Litz, et G. Landwehr. Japan J. Appl. Phys., 33, L247, (1994).
- [41] D. Tönnies, G. Bacher, A. Forchel, A. Waag, et G. Landwehr. Appl. Phys. Lett., 64, 766, (1994).
- [42] D. R. Yakovlev, V. P. Kochereshko, R. A. Suris, H. Schenk, W. Ossau, A. Waag, G. Landwehr, P. C. M. Christianen, et J. C. Maan. *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 3974, (1997).
- [43] G. D. Mahan. *Phys. Rev.*, **153**, 882, (1967).
- [44] M. S. Skolnick, J. M. Rorison, K. J. Nash, D. J. Mowbray, P. R. Tapster, S. J. Bass, et A. D. Pitt. Phys. Rev. Lett., 58, 2130, (1987).
- [45] W. Chen, M. Fritze, A. V. Nurmikko, D. Ackley, C. Colvard, et H. Lee. Phys. Rev. Lett, 64, 2434, (1990).
- [46] T. Wojtowicz, M. Kutrowski, G. Karczewski, J. Kossut, F. J. Teran, et M. Potemski. *Phys. Rev. B*, **59**, R10437, (1999).
- [47] P. Kossacki, J. Cibert, D. Ferrand, Y. Merle d'Aubigné, A. Arnoult, A. Wasiela, S. Tatarenko, et J. A. Gaj. Soumis.
- [48] L. Gravier, M. Potemski, P. Hawrylak, et B. Étienne. Phys. Rev. Lett, 80, 3344, (1998).
- [49] G. Karczewski, J. Jarosziński, A. Barez, M. Kutrowski, T. Wojtowicz, et J. Kossut. J. Cryst. Growth, 184/185, 814, (1998).
- [50] M. A. Lampert. Phys. Rev. Lett., 1, 450, (1958).
- [51] B. Stébé et A. Ainane. Superlattices Microstruct., 5, 545, (1989).
- [52] R. T. Cox, V. Huard, K. Kheng, S. Lovisa, R. B. Miller, K. Saminadayar, A. Arnoult, J. Cibert, S. Tatarenko, et M. Potemski. Acta Phys. Pol. A, 94, 99, (1998).
- [53] G. Finkelstein, H. Shtrikman, et I. Bar-Joseph. Phys. Rev. Lett., 74, 976, (1995).
- [54] A. J. Shields, M. Pepper, M. Y. Simmons, et D. A. Ritchie. *Phys. Rev. B*, 52, 7841, (1995).
- [55] G. Finkelstein, H. Shtrikman, et I. Bar-Joseph. Phys. Rev. Lett., 53, R1709, (1996).
- [56] A. J. Shields, J. L. Osborne, M. Y. Simmons, M. Pepper, et D. A. Ritchie. *Phys. Rev. B*, **52**, 5523, (1995).
- [57] A. Haury, A. Arnoult, V. A. Chitta, J. Cibert, Y. Merle d'Aubigné, S. Tatarenko, et A. Wasiela. Superlattices Microstruct., 23, 1097, (1998).
- [58] T. Wojtowicz, M. Kutrowski, G. Karczewski, et J. Kossut. Acta Phys. Pol. A, 94, 199, (1998).
- [59] S. Lovisa, R. T. Cox, N. Magnea, et K. Saminadayar. Phys. Rev. B, 56, R12787, (1997).
- [60] K. Kheng, K. Saminadayar, et N. Magnea. J. Cryst. Growth, 184/185, 849, (1998).
- [61] B. Stébé, G. Munschy, L. Stauffer, F. Dujardin, et J. Murat. Phys. Rev. B, 56, 12454, (1997).
- [62] K. Kheng, R. T. Cox, M. Mamor, K. Saminadayar, et S. Tatarenko. J. Phys. IV (France), 3, C5, 95, (1993).
- [63] V. P. Kochereshko, D. Yakovlev, R. A. Suris, W. Ossau, G. Landwehr, T. Wojtowicz, M. Kutrwski, G. Karczewski, et J. Kossut. J. Cryst. Growth, 184/185, 826, (1998).
- [64] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, et D. A. B. Miller. Adv. Phys, 38, 89, (1989).
- [65] T. Mélin. Spectroscopie optique des réseaux de fils quantiques GaAs/AlAs épitaxiés sur surfaces vicinales : confinement quantique et interaction coulombienne entre 2D et 1D. Thèse de doctorat, École Polytechnique, 1998.
- [66] P. Nozières. J. Phys. I, 4, 1275, (1994).
- [67] H. Buhmann, L. Mansouri, J. Wang, P. H. Breton, N. Mori, L. Eaves, M. Henini, et M. potemski. *Phys. Rev. B*, **51**, 7969, (1995).
- [68] A. J. Shields, M. Pepper, M. Y. Simmons, D. A. Ritchie, et G. A. C. Jones. *Phys. Rev. B*, **51**, 18049, (1995).
- [69] V. Huard *et al.* Communication privée.
- [70] B. E. Cole, T. Takamasu, K. Takehana, R. Goldhahn, D. Schulze, G. Kido, J. M. Chamberlain, G. Gobsch, M. Henini, et G. Hill. *Physica B*, 249-251, 607, (1998).
- [71] P. Hawrylak. Phys. Rev. B, 44, 3821, (1991).
- [72] S. A. Brown, Jeff F. Young, J. A. Brum, P. Hawrylak, et Z. Wasilewski. *Phys. Rev. B*, 54, R11082, (1996).

- [73] K. Kheng. L'exciton chargé négativement  $X^-$  dans les puits quantiques CdTe/CdZnTe. Thèse de doctorat, Université Grenoble I, 1995.
- [74] T. Ando. J. Phys. Soc. Japan, 38, 989, (1975).
- [75] P. Voisin, Y. Guldner, J.-P. Vieren, M. Voos, J. C. Maan, P. Delescluse, et Nuyen T. Linh. *Physica B*, **117**/**118**, 634, (1983).
- [76] G. Abstreiter, J. P. Kothaus, J. F. Koch, et G. Dorda. Phys. Rev. B, 14, 2480, (1976).
- [77] M. S. Skolnick, K. J. Nash, S. J. Bass, P. E. Sommonds, et M. J. Kane. Solid State Comm., 67, 637, (1988).
- [78] G. E. W. Bauer. Solid State Comm., 78, 163, (1991).
- [79] G. E. W. Bauer. *Phys. Rev. B*, **45**, 9153, (1992).
- [80] S. Katayama et T. Ando. Solid State Comm., 70, 97, (1989).
- [81] T. Uenoyama et L. J. Sham. *Phys. Rev. B*, **39**, 11044, (1989).
- [82] P. Hawrylak et M. Potemski. *Phys. Rev. B*, **56**, 12386, (1997).
- [83] T. Ando et Y. Uemura. J. Phys. Soc. Japan, 36, 959, (1974).
- [84] T. Ando et Y. Uemura. J. Phys. Soc. Japan, 37, 1044, (1974).
- [85] R. J. Elliott et R. Loudon. J. Phys. Chem. Solids, 8, 382, (1959).
- [86] R. J. Elliott et R. Loudon. J. Phys. Chem. Solids, 15, 196, (1960).
- [87] C. Statfford, S. Schmitt-Rink, et W. Schaefer. Phys. Rev. B, 41, 10000, (1990).
- [88] O. Akimoto et H. Hasegawa. J. Phys. Soc. Japan., 22, 181, (1967).
- [89] M. Shinada et K. Tanaka. J. Phys. Soc. Japan, 29, 1258, (1970).
- [90] A. H. MacDonald et D. S. Ritchie. *Phys. Rev. B*, **33**, 8336, (1986).
- [91] I. S. Gradshteyn et I. M. Ryzhik. Tables of integrals, series and products. Academic Press, 1965.
- [92] A. H. MacDonald, H. C. A. Oji, et K. L. Liu. Phys. Rev. B, 34, 2681, (1986).
- [93] J. Orgonasi. Propriétés optiques des puits quantiques à modulation de dopage. Thèse de doctorat, Université Paris VI, 1988.
- [94] F. Seitz. The Modern Theory of Solids. Unabridged Dover, 1987.
- [95] R. Kubo et T. Nagamiya. Solid State Physics. McGraw-Hill, Inc, 1969.
- [96] J. X. Shen, Y. Oka, W. Ossau, F. Fischer, A. Waag, et G. Landwehr. J. Appl. Phys., 85, 5947, (1999).

- [97] O. Betbeder-Matibet, M. Combescot, et C. Tanguy. Phys. Rev. Lett., 72, 4125, (1994).
- [98] G. Fishman. *Phys. Rev. B*, **52**, 11132, (1995).
- [99] S. Schmitt-Rink et C. Ell. J. Lumin., **30**, 585, (1985).
- [100] D. A. Kleinman et R. C. Miller. *Phys. Rev. B*, **32**, 2266, (1985).
- [101] C. Delalande, G. Bastard, J. Orgonasi, J. A. Brum, H. W. Liu, M. Voos, G. Weimann, et W. Schlapp. *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 2691, (1987).
- [102] I. M. Boswarva, R. E. Howard, et A. B. Lidiard. Proc. R. Soc. London Ser. A, 269, 125, (1962).
- [103] N. Sato. Japan J. Appl. Phys., 59, 2514, (1986).