



HAL
open science

Étude magnéto-optique des transitions de phase topologique dans les alliages Pb Sn Se et leurs hétérostructures

Gauthier Krizman

► **To cite this version:**

Gauthier Krizman. Étude magnéto-optique des transitions de phase topologique dans les alliages Pb Sn Se et leurs hétérostructures. Physique [physics]. Université Paris sciences et lettres, 2020. Français. NNT : 2020UPSLE019 . tel-03271063

HAL Id: tel-03271063

<https://theses.hal.science/tel-03271063>

Submitted on 25 Jun 2021

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

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



THÈSE DE DOCTORAT

DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à l'Ecole Normale Supérieure

**Étude magnéto-optique des transitions de phase
topologique dans les alliages $Pb_{1-x}Sn_xSe$ et leurs
hétérostructures**

Soutenue par

Gauthier KRIZMAN

Le 06/10/2020

Ecole doctorale n° 397

**Physique et Chimie
des matériaux**

Spécialité

Physique

Composition du jury :

Dimitri RODITCHEV
DR CNRS, LPEM ESPCI-PSL *Président*

Frédéric TEPPE
DR CNRS, LCC Université de Montpellier *Rapporteur*

Mark GOERBIG
DR CNRS, LPS Université Paris-Saclay *Rapporteur*

Emmanuelle DELEPORTE
Pr ENS Paris-Saclay, LuMIn *Examineur*

Yves GULDNER
Pr émérite, LPENS Ecole Normale Supérieure *Directeur de thèse*

Louis-Anne de VAULCHIER
CR CNRS, LPENS Ecole Normale Supérieure *Co-Directeur de thèse*



Remerciements

Je tiens à remercier le plus chaleureusement possible Yves et Louis-Anne qui m'ont accompagné tout au long de cette thèse dans la joie et la bonne humeur. Leur sourire et joie de vivre ont été le premier moteur de mon travail. Leur connaissance de la physique et de la vie m'a beaucoup inspiré. Je voudrais également remercier Badih qui a été un exemple pour moi. Merci pour son encadrement, ses nombreuses idées innovantes, pour les nombreuses bières partagées ensemble et son invitation à l'Université Notre-Dame. Thanyanan, Robson, Francesca et Gérald ont aussi beaucoup participé à l'encadrement de ma thèse en me procurant des conditions d'apprentissage remarquables et je leur en suis gré.

Je voudrais remercier Jean-Marc et Sukhdeep, chef du Laboratoire et du groupe Nano-THz respectivement, pour m'avoir permis de réaliser ma thèse dans le meilleur environnement possible, en gérant les locaux, les contrats et la politique du laboratoire de manière exceptionnelle.

Cette thèse n'aurait pas été possible sans de nombreuses personnes vitales au bon fonctionnement du laboratoire. Olivier et Florent du service de cryogénie ont été impressionnants de souplesse et de disponibilité pour nous fournir l'hélium et l'azote dont on a tant besoin. Je voudrais remercier Olga et Anne pour leur accueil et leur patience aux tâches administratives. Aurélie, José et Michaël ont été d'une aide précieuse en salle blanche avec leurs conseils avisés. Je tiens à remercier également Philippe et Anne pour leur conseil en électronique lorsque cela était nécessaire.

Je suis également très reconnaissant du travail de Gunther et Günther à Linz sans lequel cette thèse n'aurait pas pu se tenir. Leur expertise a largement contribué aux résultats de cette thèse et leur extrême gentillesse à son bon déroulement. Je tiens également à remercier les autres collaborateurs de cette thèse : Milan pour son accueil chaleureux au LNCMI de Grenoble ; Timo, Manik et Susanne pour nous fournir d'excellents échantillons de Cd_3As_2 ainsi que des discussions conviviales au March Meeting ; Philippe et Jean-Philippe à l'IES de Montpellier pour nos rencontres amicales aux réunions du projet de caméra infrarouge.

Mes pensées vont également à Korhan responsables de nombreux restaurants du V^{ème} dont le « Kehribar », ainsi que Dominique pour son service au « Petit Cardinal ». Ils nous ont servi de délicieux plats pour manger le midi, c'est de là que beaucoup d'idées et de réflexions proviennent.

A titre plus personnel, je remercie ma famille et surtout mes frères et mes parents pour leur accueil les week-ends et durant la période de confinement, ainsi que pour tous les moments partagés et leur soutien inconditionnel. Je remercie ma compagne Pauline ainsi que sa famille pour les moments ensemble durant cette thèse qui ont été ressourçant et inspirant. Je remercie mon ami Antoine pour les nombreux dîners œnologiques et discussions animées, sources de bonheur ; ainsi que Yanis, Matthieu, Alexandra, Anna, Anton, Benoît, Marie, Cédric, Charles, Chloé, Florent, Jonathan, Juliette, Louise, Manon, Marie, Mathieu, Rafael, Thomas, Tom, Vincent, Gallien, Martin, Mathieu. Je remercie aussi l'équipe de foot qui m'a permis de faire du sport à Paris.

Notations

a_0 : paramètre de maille

B : champ magnétique

Δ : demi-gap d'un matériau 3D

δ : demi-gap d'un matériau 2D

δ_{ij} : symbole de Kronecker

e : charge élémentaire

E_F : niveau de Fermi

g : facteur de Landé

h : constante de Planck

I, U, I_1, U_1 : paramètres d'échange

J : moment orbital total

K : facteur d'anisotropie

k_B : constante de Boltzmann

k_z : vecteur d'onde selon la direction normale à la surface de l'échantillon

k_{\parallel} : vecteur d'onde dans le plan de la surface de l'échantillon

λ : longueur de pénétration

μ_B : magnéton de Bohr

m_0 : masse de l'électron libre

n : indice de Landau

ω : pulsation cyclotron

\mathbf{p} : opérateur impulsion

T : température

$\xi = eB/\hbar$: inverse de la longueur magnétique

\uparrow, \downarrow : indices de spin de l'électron

Acronymes

B : Barrière

EHQS : Effet Hall Quantique de Spin

EHQA : Effet Hall Quantique Anormal

ENS : Ecole Normale Supérieure

ETS : Etat Topologique de Surface

FIR : Infrarouge Lointain

FTIR : Interféromètre à Transformée de Fourier

IES : Institut d'Electronique et des Systèmes

IR : Infrarouge

LNCMI : Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses

MB : Minibande

MBE : Epitaxie par Jet Moléculaire

MCT : Mercure Cadmium Tellure

MIR : Infrarouge Moyen

MQW : Multi Puits Quantiques

MWIR : Mid-Wave InfraRed

NSL : Superréseau trivial

QW : Puits Quantique

RC : Résonance Cyclotron

SQUID : "Superconducting Quantum Interference Device"

SL : Superréseaux

SMD : Semi-Métal de Dirac

SMLPN : Semi-Métal à Ligne de Points Nodaux

SMW : Semi-Métal de Weyl

T2SL : Superréseau de Type II

TSL : Superréseau topologique

EVP : Etats de Volkov-Pankratov

VTI : Compartiment à Température Variable

ZB : Zone de Brillouin

Table des matières

Remerciements.....	3
---------------------------	----------

Notations.....	5
-----------------------	----------

Acronymes.....	7
-----------------------	----------

Chapitre 1 – Introduction à la topologie et aux méthodes expérimentales	15
--	-----------

I. Le concept de topologie dans la matière condensée	15
---	-----------

i. L'effet Hall quantique	15
ii. Une définition de la topologie en physique.....	16
iii. Les états de bord topologiques.....	17
iv. L'effet Hall quantique de spin dans HgCdTe	19
v. L'effet Hall quantique anormal dans (Bi,Sb) ₂ Te ₃ dopés aux ions magnétiques.....	21
vi. L'axion	22
vii. Le fermion de Weyl.....	22

II. Dispositif expérimental pour la magnéto-optique	24
--	-----------

i. Généralités.....	24
ii. Interféromètre à transformée de Fourier.....	25
iii. Bobine supraconductrice	27
a) Cryostat	27
b) Bobine supraconductrice.....	28
iv. Récupération du signal à basse température	28
a) Canne de mesure.....	28
b) Echantillons	29
c) Bolomètre et préamplificateurs	29
v. Récupération du signal à plus haute température	29
a) Canne de mesure.....	29
b) Echantillons	30
c) Détecteur MIR et bolomètre FIR	30

Chapitre 2 – Transitions de phase topologique dans un alliage Pb_{1-x}Sn_xSe massif... 33	33
--	-----------

I. Description théorique de la structure de bande de PbSnSe.....	33
---	-----------

i.	Structure cristalline.....	33
ii.	Symétrie des bandes interagissant au point L	34
iii.	Perturbation $k \cdot p$ au voisinage du point L	35
a)	Hamiltonien $k \cdot p$ et anisotropie	35
b)	Pris en compte des bandes éloignées	36
iv.	Topologie et structure de bande	38
II.	Effet d'un champ magnétique externe sur la structure de bande de PbSnSe	39
i.	Niveaux de Landau.....	39
ii.	Effet Zeeman et facteur de Landé.....	40
iii.	Description des niveaux de Landau de PbSnSe.....	42
iv.	Anisotropie.....	43
v.	Règles de sélection magnéto-optique	45
a)	Transitions interbandes.....	46
b)	Transitions intrabandes.....	47
III.	Mise en évidence de la transition de phase topologique induite par la composition chimique	49
i.	Croissance et caractérisations structurales de $Pb_{1-x}Sn_xSe$	49
ii.	Magnéto-optique dans les alliages de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ à 4.2 K	50
a)	Variations des paramètres en fonction de la composition chimique.....	52
b)	Détermination du niveau de Fermi	54
c)	Résonances cyclotrons dans PbSnSe	55
IV.	Mise en évidence de la transition de phase topologique induite par la température.....	57
V.	Mise en évidence de la transition de phase topologique induite par la contrainte	60
i.	La contrainte thermique	60
ii.	Magnéto-optiques de films de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ sur différents substrats	61
iii.	Etude des films $Pb_{1-x}Sn_xSe$ (001) sur substrat KCl	63
VI.	Mise en évidence de la transition de phase topologique induite par le champ magnétique et discussion sur la nature de cette transition	65
i.	Inversion des niveaux de Landau $n = 0$ avec le champ magnétique.....	65
ii.	Anti-croisement des niveaux de Landau $n = 0$	68
iii.	Réflexion sur la nature de la transition de phase topologique.....	70

Chapitre 3 – Les états topologiques d'interface dans les hétérostructures à base de $Pb_{1-x}Sn_xSe$

I. Description théorique d'une hétérostructure à multi puits quantiques topologiques

i.	Paramétrisation du problème.....	73
a)	Hétérostructures à base de PbSnSe topologique.....	73
a)	Quelques propriétés du matériau barrière $Pb_{1-y}Eu_ySe$	74
b)	Modélisation du confinement quantique dans le cadre de la théorie des fonctions enveloppes.....	75
ii.	Résolution du problème pour $k_{\parallel} = \mathbf{0}$ et influence des paramètres structuraux.....	75
a)	Energie des états liés des puits quantiques.....	75
b)	Fonctions enveloppes des états liés.....	79
c)	Influence des autres paramètres structuraux.....	82
iii.	Structure de bande des puits quantiques pour $k_{\parallel} \neq \mathbf{0}$	82
iv.	Niveaux de Landau des états liés des puits quantiques.....	84
v.	Règles de sélection et forces d'oscillateur des transitions magnéto-optiques.....	86
II.	Résultats expérimentaux sur les hétérostructures à multi-puits quantiques topologiques	88
i.	Croissance et caractérisations.....	88
ii.	Observation des états topologiques de surface en magnéto-optique.....	89
iii.	Hétérostructure de systèmes multi-vallées.....	92
a)	Effet sur le confinement des états à $k_{\parallel} = \mathbf{0}$	92
b)	Effet de couplage entre niveaux de Landau.....	93
iv.	Etude en température des états topologiques de surface.....	96
v.	Puits quantiques étroits.....	99
III.	Couplage des puits par effet tunnel : superréseaux	101
i.	Emergence des minibandes.....	101
ii.	Inversion des états topologiques de surface.....	102
iii.	Dispersion et niveaux de Landau des minibandes.....	104
IV.	Résultats expérimentaux dans les superréseaux	106
i.	Croissance et caractérisation des superréseaux.....	106
ii.	Mise en évidence des minibandes topologiques.....	107
a)	Observation magnéto-optique des minibandes.....	107
b)	Inversion de la symétrie des états topologiques de surface.....	108

Chapitre 4 – Quelques effets pseudo-relativistes dans PbSnSe : effet Hall de spin et effet Hall quantique anormal..... 113

I.	Effet Hall quantique de spin dans les hétérostructures à base de sels de plomb.....	113
i.	Condition d'existence des états de bord.....	113
ii.	Cas des puits quantiques découplés.....	115
iii.	Cas des superréseaux.....	115

iv. Un cas intermédiaire : le double puits quantique	117
II. Effet d'un dopage de PbSnSe par des ions magnétiques	120
i. Dopage magnétique de PbSnSe massif.....	120
a) Ions paramagnétiques dilués dans un solide	120
b) Interaction d'échange dans la théorie <i>k.p</i>	121
c) Pris en compte de la non-sphéricité des bandes.....	123
d) Détermination magnéto-optique des paramètres d'échange	125
e) Obtention de semi-métaux 3D dans Mn-PbSnSe	127
ii. Hétérostructures à base de Mn-PbSnSe	129
a) Effet Hall quantique anormal dans un puits quantique	129
b) Cas des superréseaux	130
Conclusion	135
Références.....	137
Annexe A – Etats de Volkov-Pankratov dans les alliages ternaires $Pb_{1-x}Sn_xSe$.....	145
Annexe B – Détermination de la structure de bande d'un semi-métal de Dirac 3D : Cd_3As_2.....	151
Annexe C – Caractérisation d'un superréseau de type II en vue de la fabrication d'une caméra infrarouge fonctionnant à haute température.....	161

Chapitre 1 – Introduction à la topologie et aux méthodes expérimentales

I. Le concept de topologie dans la matière condensée

i. L'effet Hall quantique

En 1980 est découvert l'effet Hall quantique.¹ Ce phénomène a bouleversé la physique des semiconducteurs et sa mise en évidence a été récompensée par le prix Nobel de physique de 1985. L'effet Hall quantique est la quantification exacte de la conductance transverse dans un matériau à deux dimensions (puits quantique ou gaz d'électrons 2D). Cette conductance est également appelée conductance de Hall et sa quantification s'accompagne de l'annulation de la conductance longitudinale. Ce phénomène est possible grâce à la quantification en niveaux de Landau du système qui intervient sous un champ magnétique externe.

Dans un matériau 2D, la quantification en niveaux de Landau implique l'émergence de niveaux électroniques discrets, montrés sur la Fig. 1-1(a). Ces états n'ont aucune dispersion. Comme les électrons ne peuvent pas sortir du matériau, un potentiel supplémentaire perturbe les niveaux de Landau. Ce potentiel est infini au bord et nul au cœur du matériau, d'où la forme des niveaux sur la Fig. 1-1(a). Si le niveau de Fermi se situe entre deux niveaux de Landau, alors le volume du matériau ne conduit pas. La conductance longitudinale est nulle car les niveaux de Landau sont totalement remplis d'électrons ou totalement vides. Le système est isolant. Cependant, le niveau de Fermi croise certains niveaux de Landau sur les bords. Pour chaque croisement, un état métallique 1D est obtenu et le courant est alors transporté par ces états localisés sur les bords. Le nombre d'états de bord correspond au nombre de niveaux de Landau remplis dans le cœur du matériau. La résistance de Hall est donnée par :

$$R_{xy} = \frac{B}{en}$$

où B est le champ magnétique externe et n la densité de porteurs. Cette dernière est égale à eB/h pour un niveau de Landau. Si l'on appelle ν le nombre de niveaux de Landau peuplés dans le volume, on obtient :

$$R_{xy} = \frac{h}{\nu e^2} = \frac{25812.8 \dots}{\nu} \Omega$$

La résistance transverse est donc quantifiée car elle ne dépend pas du type de matériau étudié, ni des dimensions géométriques, mais seulement des constantes fondamentales h et e . Cette quantification est utilisée dans le domaine de la métrologie (définition du Ohm) et a permis une détermination précise de la constante de structure fine.¹ De plus, la résistance longitudinale s'annule alors qu'un courant circule sur les bords de l'échantillon. Les états de bords sont chiraux : un électron sur le bord droit avance alors qu'un électron sur le bord gauche recule, comme représenté schématiquement sur la Fig. 1-1(b). Cette propriété provient directement du potentiel de confinement aux bords (voir Fig. 1-1(a)). Elle permet une circulation du courant de bord sans dissipation car la rétrodiffusion sur le canal de conduction 1D est interdite. En effet, si l'électron avance (recule), alors il doit rejoindre le bord d'en face s'il veut reculer (avancer). Ceci est peu probable car la largeur de l'échantillon est très grande devant la longueur de pénétration des états de bords.

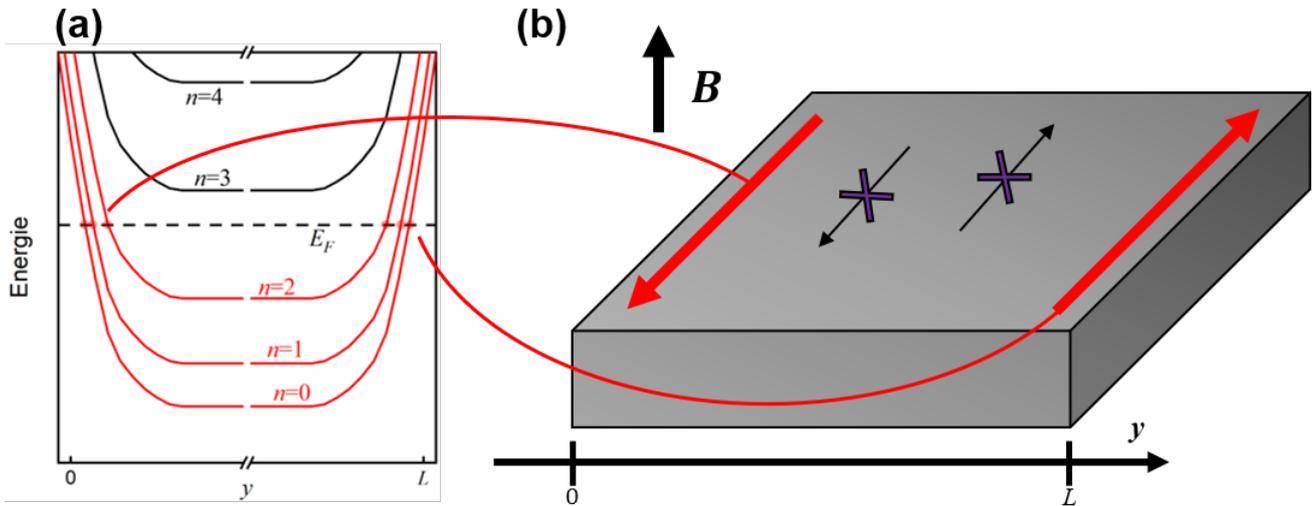


Figure 1-1. (a) Dispersion dans l'espace réel des niveaux de Landau d'un matériau 2D de largeur L . Les niveaux remplis (vides) d'électrons sont en rouge (noir). Le niveau de Fermi est placé en pointillé. Les états de bord sont marqués d'un point rouge. (b) Schéma du matériau 2D en gris, de largeur L . Les électrons conduisent le courant dans une direction bien précise par le biais des états de bord en rouge. Le volume du matériau ($0 < z < L$) n'est pas conducteur.

Le courant porté par les états de bord est non-dissipatif, comme pour un matériau supraconducteur.² Un courant persistant peut s'écouler sans perte d'énergie du système, notamment celle sous forme de chaleur par effet Joule. Toutefois, les applications dans le domaine de l'électronique ont été très limitées à cause du fort champ magnétique externe nécessaire à l'établissement de ce phénomène. C'est la notion de topologie qui a ravivé l'espoir d'obtenir des états de bord en l'absence de champ magnétique.

ii. Une définition de la topologie en physique

La topologie est aujourd'hui l'un des sujets les plus étudiés en physique des semi-conducteurs.^{3,4} Il a notamment valu l'attribution du prix Nobel de physique en 2016 à Kosterlitz, Thouless et Haldane pour les notions théoriques qui ont été introduites.^{5,6} Ainsi, certaines phases de la matière peuvent être décrites à l'aide de la notion de topologie. Ceci a permis d'évoluer dans la compréhension de la matière condensée et d'accéder à de nouvelles phases dites « exotiques » présentant des effets totalement nouveaux. Le concept de topologie a donc redéfini la manière d'aborder la physique de la matière condensée et de nombreux systèmes ont été redécouverts en considérant leur lien avec la topologie, comme HgCdTe, PbSnSe, Cd₃As₂, Bi₂Se₃, les superréseaux de type II... Cette partie n'a pas la prétention d'introduire les notions théoriques à la base de la topologie en physique. Elle tentera seulement d'examiner quelques propriétés expérimentales liées à ce concept.

La notion de topologie classe les matériaux selon deux nouvelles phases de la matière condensée : la phase triviale et la phase non-triviale ou « topologique ».⁷ La phase d'un matériau peut être prédite théoriquement en considérant les symétries du cristal ainsi que les symétries des points spéciaux de sa zone de Brillouin.⁸ Dans cette thèse expérimentale, il suffit de considérer la définition suivante :

La différence entre un matériau trivial et un matériau topologique se trouve dans l'ordre de la symétrie des bandes de conduction et de valence. Lorsque l'ordre trivial des symétries des états de conduction et de valence est inversé, le matériau est dans sa phase topologique.

Pour les semiconducteurs II-VI par exemple, la phase triviale est définie avec une bande de conduction de symétrie orbitale s et une bande de valence de type p . Lorsque la bande de symétrie p est la bande de conduction, c'est-à-dire que les bandes sont inversées, le système est topologique. Cette définition est réductrice car elle cache tout un domaine théorique très intéressant mais situé au-delà du travail de cette thèse.

Cette définition d'un matériau topologique s'applique à toutes les dimensions possibles du système étudié. Si le matériau est à trois dimensions (3D), c'est l'ordre de symétrie des bandes qui dicte le caractère topologique. Si le matériau est un puits quantique, ce sont les états confinés fondamentaux et leur symétrie qui donneront la nature topologique du puits quantique. Et ainsi de suite pour un fil quantique. La juxtaposition d'un matériau trivial avec un matériau topologique engendre une propriété fondamentale de la matière énoncée dans le paragraphe suivant.⁹

iii. Les états de bord topologiques

Pour modéliser l'inversion de symétrie des bandes dans un matériau topologique, un gap négatif lui est conféré. Ainsi, la nature topologique du système étudié est définie par le signe de son gap. La principale propriété qui découle de la notion de topologie est la suivante :

Un matériau topologique de dimension N admet un état de gap nul de dimension $N - 1$ en ses bords.

Cette propriété peut être démontrée facilement en résolvant l'équation de Dirac à une dimension. Cette équation décrit une fonction d'onde quantique relativiste d'une particule de spin $1/2$.¹⁰ Comme nous allons le voir dans cette thèse, elle est à la base de la description d'un matériau topologique et s'écrit en 1D pour une seule composante de spin :

$$\begin{pmatrix} \Delta(z) - E & -i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} \\ -i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} & -\Delta(z) - E \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \chi_e(z) \\ \chi_h(z) \end{pmatrix} = 0$$

Où v_z est la vitesse effective des particules (électrons) dans le matériau, $\Delta(z)$ est le demi-gap du matériau considéré et $\chi_{e,h}$ sont les deux composantes du spineur. On modélise le système par :

$$\Delta(z) = \begin{cases} \Delta_1 < 0, & z < 0 \\ \Delta_2 > 0, & z > 0 \end{cases}$$

Le système considéré présente donc une interface à $z = 0$ entre un matériau de gap négatif (topologique) et une phase triviale de gap positif. Cette phase peut être un matériau trivial ou bien simplement le vide.¹¹ La condition de Dirichlet impose que la fonction d'onde s'annule loin de l'interface. Cette condition aux limites permet une résolution analytique simple. On résout d'abord l'équation de Dirac 1D dans chacun des deux systèmes séparément (on a deux équations différentielles du second ordre), puis, on raccorde les solutions à l'interface pour que la fonction d'onde soit continue. On pose pour cela :

$$k_{1,2}^{\pm} = \pm \frac{\sqrt{\Delta_{1,2}^2 - E^2}}{\hbar v_z}$$

A noter que ces solutions n'existent que si $E < |\Delta_1|$ et $E < |\Delta_2|$, c'est-à-dire que l'état cherché se trouve dans le gap des matériaux. Pour satisfaire la condition de Dirichlet, on ne garde que les vecteurs d'ondes k_1^+ et k_2^- . Les solutions sont donc de la forme :

$$\begin{pmatrix} \chi_{e,1}(z) \\ \chi_{h,1}(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{e,1} \\ \chi_{h,1} \end{pmatrix} e^{k_1^+ z} \quad \text{et} \quad \begin{pmatrix} \chi_{e,2}(z) \\ \chi_{h,2}(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{e,2} \\ \chi_{h,2} \end{pmatrix} e^{k_2^- z}$$

Si l'on injecte ces solutions dans l'équation de Dirac 1D, on trouve :

$$\chi_{h,1,2} = -\frac{i\hbar v_z k_{1,2}^\pm}{\Delta_{1,2} + E} \chi_{e,1,2}$$

Et la condition de continuité de la fonction d'onde à l'interface ($x = 0$) s'écrit :

$$\begin{pmatrix} \chi_{e,1} \\ \chi_{h,1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{e,2} \\ \chi_{h,2} \end{pmatrix} \Leftrightarrow \frac{k_1^+}{\Delta_1 + E} = \frac{k_2^-}{\Delta_2 + E} \Leftrightarrow -\frac{\sqrt{\Delta_1^2 - E^2}}{\sqrt{\Delta_2^2 - E^2}} = \frac{\Delta_1 + E}{\Delta_2 + E} \Leftrightarrow \boxed{E = 0}$$

Il existe donc une solution au milieu du gap des deux systèmes 1 et 2. Pour $E = 0$, la fonction d'onde est, après normalisation :

$$z \mapsto \sqrt{\frac{1}{\hbar v_z} \frac{\Delta_1 \Delta_2}{\Delta_1 - \Delta_2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} \exp\left(-\frac{\Delta(z)}{\hbar v_z} z\right)$$

Le carré de l'amplitude de cette fonction est tracé sur la Fig. 1-2 (les amplitudes des deux composantes sont égales). La densité de probabilité est maximale à l'interface et principalement localisée près de cette dernière.

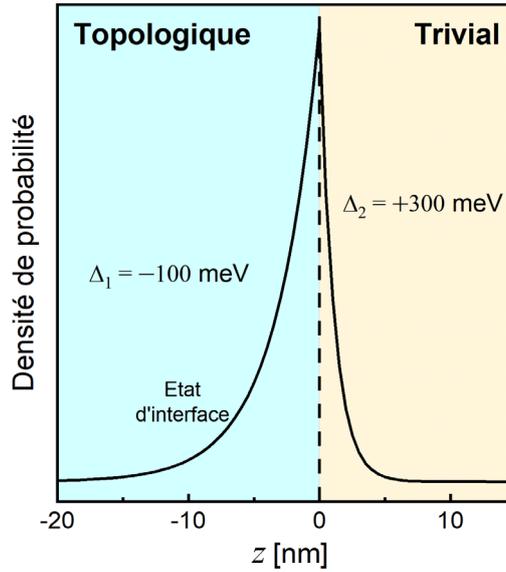


Figure 1-2. Carré de l'amplitude d'une des composantes de la fonction d'onde de l'état d'interface. Cet état est une solution mathématique de l'équation de Dirac lorsqu'un matériau de gap négatif ($\Delta_1 = -100$ meV ici) est placé au contact d'un matériau de gap positif ($\Delta_2 = +300$ meV ici). La probabilité de présence de l'électron dans l'état de bord est maximale à l'interface entre ces deux matériaux ($z = 0$).

En résumé, on a démontré qu'une interface entre deux matériaux dans des phases topologiques différentes admet un état d'interface au milieu du gap ($E = 0$). Cette solution mathématique n'est pas trouvée pour $\Delta_1 > 0$ (i.e dans le cas où les deux matériaux sont triviaux) et est donc spécifique à la nature topologique du système. On peut étendre cette démonstration aux dimensions supérieures. Un gap négatif permet donc d'obtenir des états de bord sans aucune autres conditions, en particulier sans champ magnétique externe. Cette propriété ouvre la voie à de nombreuses applications en physique fondamentale comme en physique appliquée. Un petit aperçu des conséquences d'une telle propriété est donné dans les paragraphes suivants.

iv. L'effet Hall quantique de spin dans HgCdTe

Si l'on considère un matériau 2D topologique, alors il possède des états de bord 1D.¹² Ces états de bord topologiques ont été observés dans un puits quantique HgTe/CdTe.¹³ En effet il existe un régime d'épaisseur de puits pour lequel les états confinés ont des parités inversées et donc pour lequel le matériau 2D est topologique. Le puits est alors dans une phase où il est possible d'observer l'effet Hall quantique de spin.

Les alliages $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ sont des matériaux de très bonnes qualités cristallines et possèdent des propriétés électroniques bien connues.^{14,15} Elles sont bien modélisées par un hamiltonien de Kane dans lequel quatre bandes sont considérées :^{16,17}

- Deux bandes issues d'orbitales de type p . A $\mathbf{k} = 0$, elles sont dégénérées à $E = 0$. La bande notée Γ_8^l possède une masse effective légère et la bande Γ_8^h est pratiquement plate.
- Une bande de parité s séparée à $\mathbf{k} = 0$ de $\Gamma_8^{l,h}$ par l'énergie de gap E_g . Elle est notée Γ_6 . Dans la direction k_z , elle interagit seulement avec Γ_8^l . C'est pour cela que Γ_8^l est une bande légère et Γ_8^h est une bande lourde.
- Une bande de type p appelée bande de spin-orbite et notée Γ_7 . A $\mathbf{k} = 0$, elle a pour énergie $-\Delta_{SO} < 0$. Elle est assez loin des trois autres bandes (environ 1 eV) et est donc souvent négligée.

La structure de bande de HgTe à $T = 4.2$ K est montrée en fonction de k_z sur la Fig. 1-3(a), en négligeant la bande spin-orbite. La bande s est en dessous des deux bandes p : $\Gamma_8^{l,h}$. Le matériau est donc topologique avec $E_g = -300$ meV.

Considérons maintenant un puits quantique à base de HgTe dans lequel le confinement est imposé selon k_z . Dans cette direction et à $k_x = k_y = 0$, la bande Γ_8^h n'interagit pas avec les deux autres bandes. Les problèmes sont donc découplés : des états confinés, notés « HHn », sont issus de Γ_8^h ; et des états, notés « En », ou « LHN » sont issus des bandes Γ_6 et Γ_8^l ($n=1, 2, \dots$). D'autres états, notés « ETS » et « ETS' », sont issus de l'inversion de parité entre Γ_6 et Γ_8^l , ce sont les états de surface topologiques en k_z . Les détails de ce calcul, ainsi que les propriétés des ETS seront traités dans le chapitre III pour le matériau PbSnSe. Les énergies des états confinés à $k_x = k_y = 0$ d'un puits HgTe sont donnés sur la Fig. 1-3(b) en fonction de l'épaisseur du puits.

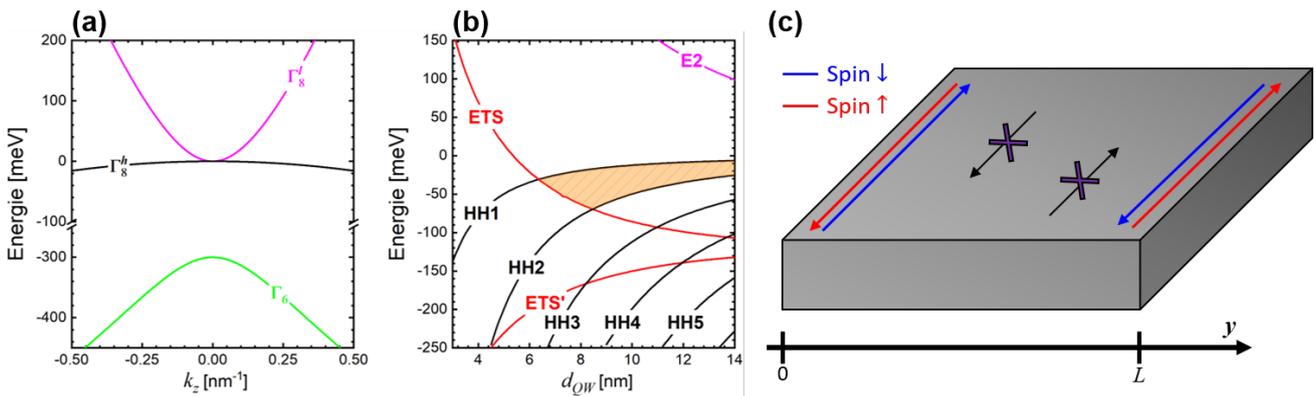


Figure 1-3. (a) Structure de bande de HgTe massif selon la direction k_z , sans la bande spin-orbite. (b) Energies des états confinés à $k_x = k_y = 0$ d'un puits HgTe en fonction de son épaisseur d_{QW} . Le calcul a été effectué pour des barrière infiniment hautes. Les ETS sont en rouge et les états issus de la bande Γ_8^h (Γ_8^l) sont en noir (bleu). La zone orange hachurée démarque la zone d'effet Hall quantique de spin. (c) Schéma d'un puits quantique HgTe de largeur L . Le volume est isolant tant que le niveau de Fermi se situe dans la zone orange de (b). Les états de bord sont polarisés de spin avec les électrons de spin \uparrow en rouge allant dans un sens et les électrons de spin \downarrow en bleu allant dans l'autre.

On remarque que pour une certaine épaisseur ($d_{QW} = 6.3$ nm), l'état ETS croise l'état HH1. ETS étant de type s et HH1 de parité p , le puits est trivial pour $d_{QW} < 6.3$ nm car l'état p est en dessous de l'état s . Pour $d_{QW} > 6.3$ nm, le puits est topologique et admet donc des états de bord. Ils sont différents de ceux de l'effet Hall quantique car doublement dégénérés à cause du spin. Les états de bord correspondant aux deux spins ont des chiralités opposées. Dans l'effet Hall quantique, les électrons de tous les états de bord de droite avancent et ceux des états du bord gauche reculent (voir Fig. 1-1(b)). Autrement dit, les électrons tournent tous dans le sens anti-horaire, avec ν états de bord. Dans l'effet Hall quantique de spin, les électrons de spin \uparrow tournent dans le sens anti-horaire et les électrons de spin \downarrow tournent dans le sens inverse, comme le montre la Fig. 1-3(c). Il y a seulement deux états de bord, chacun portant un spin. La conductance d'un tel système est donc de $2e^2/h$ ($\nu = 2$). Elle est quantifiée car, pour rétrodiffuser, un électron doit soit changer de bord, ce qui est peu probable ; soit inverser son spin, ce qui est impossible en l'absence d'impuretés magnétiques. On a donc un courant de spin. Cette propriété pourrait être très intéressante pour conduire un courant sans dissipation mais aussi dans le domaine de l'électronique de spin pour injecter un courant de spin.

Pour assurer un volume isolant, il faut placer le niveau de Fermi dans le gap du matériau 2D. Autrement dit, il faut que le niveau de Fermi soit dans la zone orange de la Fig. 1-3(b). Ainsi, le courant ne peut être porté que par les états de bord topologique. **On voit donc la nécessité d'avoir à disposition un système topologique à « grand gap » négatif pour obtenir un effet Hall quantique de spin stable et non perturbé par la conduction du volume.**

L'effet Hall quantique de spin a également été observé dans un puits quantique composé de InAs et GaSb entre deux barrières AISb.^{18,19} Un tel puits est dit de « type II » car le décalage des bandes de valence et de conduction à l'interface entre InAs et GaSb va dans le même sens.²⁰ Le schéma de l'alignement de bande de ce puits est représenté sur la Fig. 1-4. Dans cette structure, les trous et les électrons sont séparés spatialement : les trous sont confinés dans GaSb alors que les électrons sont dans InAs. C'est pour cette raison que l'on peut trouver une configuration pour laquelle le puits est topologique, bien que InAs et GaSb massifs ne le soient pas. Si le confinement est assez important dans les deux puits (typiquement pour des épaisseurs de puits ~ 10 nm), l'état électronique fondamental de InAs (E1) se situe en dessous de l'état de trous lourds fondamental de GaSb (HH1), comme représenté schématiquement sur la Fig. 1-4. Ainsi l'état de parité p est au-dessus de l'état de symétrie s et le système est topologique.

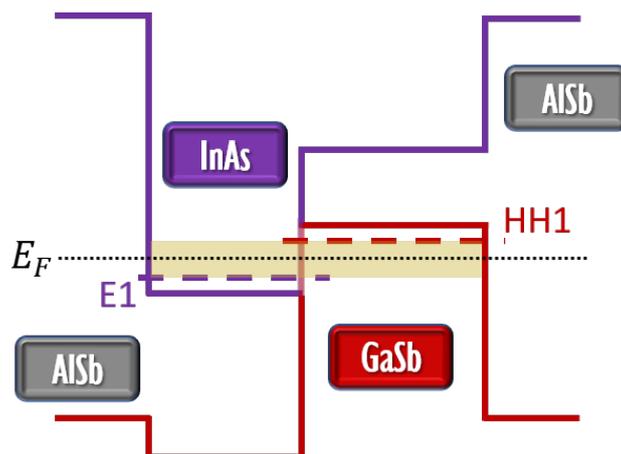


Figure 1-4. Alignement de bande d'une hétérostructure AISb / InAs / GaSb / AISb. La bande de conduction (valence) de type s (p) est de couleur violette (rouge). L'énergie des deux états fondamentaux est tracée schématiquement en pointillés gras. Le niveau de Fermi est placé en pointillés fins dans la zone du gap de l'hétérostructure, en jaune, qui accueille les états de bord.

Si l'on place le niveau de Fermi dans le gap négatif de cette hétérostructure (zone colorée en jaune sur la Fig. 1-4), alors seuls les états de bord topologiques sont peuplés et l'effet Hall quantique de spin peut être observé. Une hétérostructure assez similaire est étudiée en annexe C dans sa phase triviale. En effet, ce sont, à peu de chose près, les mêmes systèmes qui sont étudiés actuellement pour fabriquer des photo détecteurs à haute performance dans la gamme du moyen et lointain infrarouge.

v. L'effet Hall quantique anormal dans $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ dopés aux ions magnétiques

L'effet Hall quantique anormal a été observé pour la première fois dans un film mince de $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ dopé au chrome.²¹⁻²³ Un état de bord polarisé de spin est obtenu à champ magnétique quasi-nulle et à très basse température.

Bi_2Te_3 est un isolant topologique à « grand gap ». Deux bandes de symétrie inversée sont séparées de ~ 200 meV. Les masses effectives de ce matériau sont lourdes et ses qualités cristallines ne sont pas très bonnes. Bi_2Te_3 est généralement allié à de l'antimoine dans le but de placer le niveau de Fermi dans la bande interdite.²⁴

La bande de conduction d'un alliage massif de $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ étant de symétrie p , ce dernier possède un état de surface topologique. Lorsqu'une direction est réduite à l'échelle de quelques nanomètres, cet état de surface topologique 2D devient l'état fondamental du film mince de $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$.²⁵ Sa dispersion linéaire et dégénérée de spin est schématisée sur la Fig. 1-5(a). Lorsque l'on ajoute au système un matériau ferromagnétique tel que le chrome, la dégénérescence de spin est levée et on obtient les dispersions décrites schématiquement sur la Fig. 1-5(b). Les états de spin \downarrow (en bleu) se retrouvent dans un ordre trivial alors que les états du spin \uparrow (en rouge) sont de symétrie inversée. De ce fait, seule la configuration des états de spin \uparrow induit l'émergence d'un état de bord.

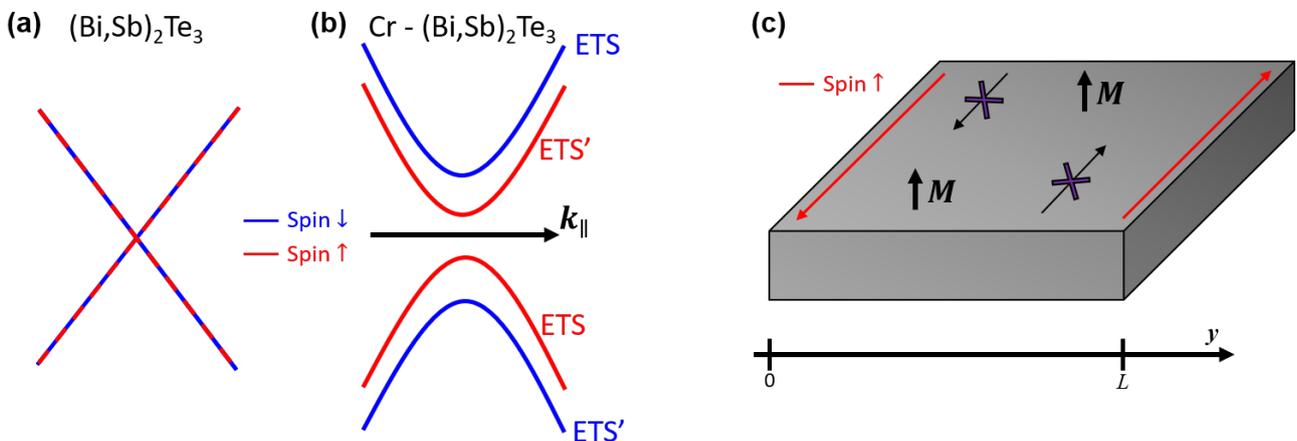


Figure 1-5. (a) Dispersion des états fondamentaux d'un film mince de $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$. Les deux composantes de spin (en bleu et rouge) sont dégénérées. (b) Dispersion des états fondamentaux d'un film mince de $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ dopé au chrome ferromagnétique. Les deux composantes de spin (en bleu et rouge) ne sont pas dégénérées. Les états rouges sont de parités inversées alors que les états bleus sont triviaux. (c) Schéma de l'effet Hall quantique anormal. Un seul état de bord est présent et porte qu'une seule composante de spin.

Contrairement au cas de l'effet Hall quantique de spin, l'état de bord n'est pas dégénéré mais polarisé de spin. Un schéma de l'effet Hall quantique anormal est montré sur la Fig. 1-5(c). Un seul état de bord conduit les électrons d'un spin bien défini. La conductance est donc de e^2/h . Elle est quantifiée grâce à la chiralité de l'état de bord topologique, comme dans l'effet Hall quantique. Une telle quantification de conductance a été

mesurée dans ce système pour des températures < 100 mK. Cet effet a également été observé dans $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ dopé au vanadium ou dans $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ encapsulé par $\text{Zn}_{1-x}\text{Cr}_x\text{Te}$, mais toujours à très faible température.²⁶ Plus récemment, cet effet a été mis en évidence à $T = 1.4$ K dans $\text{Mn-Bi}_2\text{Te}_4$ où des couches ferromagnétiques entières de manganèse s'intercalent dans la structure cristalline de Bi_2Te_3 , créant de ce fait une forte interaction d'échange.²⁷

Observer un effet Hall quantique anormal stable à $T \geq 1.6$ K est d'un intérêt majeur pour la recherche fondamentale. En effet, une interface entre un supraconducteur et un état de bord permettrait d'observer et de manipuler des fermions de Majorana.²⁸ C'est une quasi-particule très prometteuse pour l'information quantique car ses interférences suivent une logique non-abélienne et y stocker un qubit permettrait de s'affranchir du phénomène de décohérence.²⁹ Elle est sa propre antiparticule, ce qui implique qu'elle n'est pas chargée et donc invisible par une mesure de transport.³⁰ Cependant, une paire de fermions de Majorana peut être convertie de manière réversible en un fermion de Dirac chargé.³¹ Cette conversion peut être effective à l'interface entre un supraconducteur où se trouve les fermions de Majorana et un matériau à effet Hall quantique anormal.³²

Les fermions de Majorana sont un exemple de nouvelles quasi-particules dont l'émergence peut être provoquée en utilisant la topologie dans la matière condensée. D'autres excitations exotiques, présentées dans la suite, pourraient être observées grâce à la physique très riche des isolants topologiques.

vi. L'axion

L'axion est une particule hypothétique introduite par les physiciens théoriciens Frank Wilczek et Steven Weinberg afin de résoudre le problème de la violation de la symétrie CP (charge + moment).^{33,34} Bien que l'expérience montre que la symétrie CP est conservée, les théories de l'interaction forte (théorie de gauge non-abélienne) prévoient une brisure de cette symétrie. Ce problème rejoint de surcroît une question très fondamentale sur l'Univers : pourquoi le monde préserve-t-il l'invariance par inversement du temps ?³⁵

L'axion résout non seulement ces contradictions fondamentales mais il a été calculé de surcroît que leur masse totale était de l'ordre de celle de la matière noire cosmologique.³⁶ Cette particule est donc au centre de grandes problématiques de la physique d'aujourd'hui. Cependant, son existence n'a jamais été démontrée car l'axion n'est pas chargé et sa masse est supposée extrêmement faible.³⁴

Toutefois, l'étude des quasi-particules en matière condensée pourrait s'avérer d'une grande utilité dans cette problématique. L'axion pourrait potentiellement être mis en évidence grâce aux propriétés particulières des états de bord topologiques. En effet, il est montré que la polarisabilité magnéto-électrique des états de bord d'un matériau topologique pourrait être étroitement liée au champ de l'axion.³⁷ Cette grandeur, mesurable par effet Faraday THz sous un champ magnétique pourrait permettre d'obtenir une signature de l'axion.^{38,39}

vii. Le fermion de Weyl

Les états de bord topologiques sont solutions de l'équation de Dirac (voir partie I.iii). Ces solutions sont des spineurs à quatre composantes décrivant les spins \uparrow et \downarrow de la particule (électron) et son antiparticule (trou). Ce sont des fermions de Dirac de masse nulle. Leur dispersion est un cône de Dirac doublement dégénéré de spin, représenté schématiquement sur la Fig. 1-6(a).

La solution à l'équation de Dirac polarisée de spin donne un fermion de Weyl.⁴⁰ On a alors un spineur à deux composantes : particule et antiparticule dont la chiralité est bien définie. Cette situation peut être trouvée

dans un matériau topologique à partir d'une déformation du cristal ou d'un dopage magnétique qui lève la dégénérescence de spin ou la dégénérescence de Kramers du cône de Dirac.⁴¹ Par exemple, sur la Fig. 1-6(b), un effet Zeeman augmente (diminue) l'énergie de la dispersion des particules de spin \uparrow (\downarrow) et deux cônes de Weyl de chiralités opposées apparaissent aux points noirs de la figure.

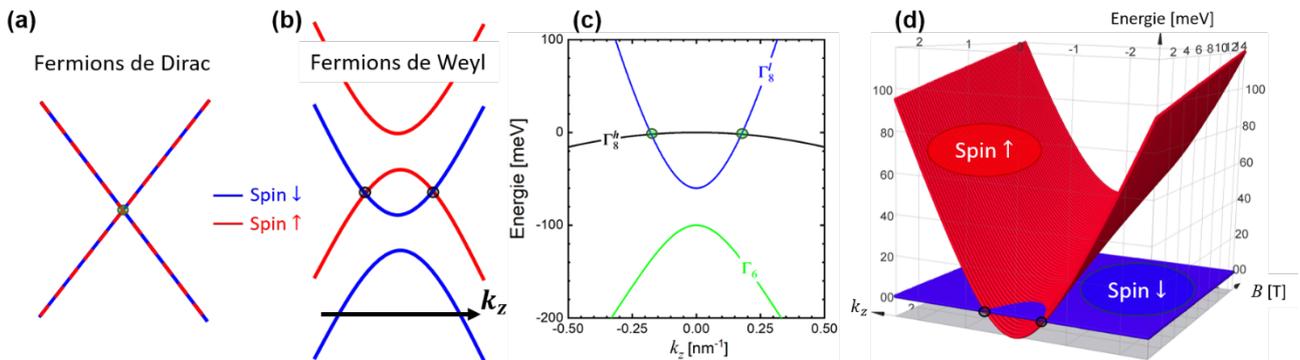


Figure 1-6. (a) Dispersion schématique de fermions de Dirac de masse nulle, dégénérée de spin. (b) Dispersion de deux cônes de Weyl de chiralités opposées qui apparaissent sous l'effet d'un dopage magnétique. (c) Dispersion selon k_z de la structure de bande de Cd_3As_2 sans la bande spin-orbite. Les nœuds de Dirac sont marqués par des ronds verts. (d) Deux niveaux de Landau de spin opposé, responsables des nœuds de Weyl (points noirs) dans Cd_3As_2 sous un champ magnétique.

Un exemple de matériau à partir duquel des fermions de Weyl peuvent se manifester est Cd_3As_2 .^{42,43} Il a été étudié durant cette thèse et une partie des résultats obtenus sont présentés en Annexe B. L'objet de notre étude est de préciser la structure de bande de ce matériau. Sa structure cristalline est celle de HgCdTe , par exemple, avec un paramètre de maille légèrement allongé selon $z//[001]$. La maille est donc tétragonale, ce qui est équivalent à une maille cubique avec une compression biaxiale dans le plan xy . On peut ainsi modéliser la structure de bande de Cd_3As_2 comme celle de HgCdTe (voir partie I.iv) avec un paramètre supplémentaire δ représentant la contrainte biaxiale.⁴⁴ Cette dernière a pour effet de lever la dégénérescence à $\mathbf{k} = 0$ des bandes $\Gamma_8^{h,l}$, comme montré sur la Fig. 1-6(c). Ces deux bandes se croisent donc en $(0; 0; \pm k_0)$ en formant deux cônes de Dirac car les bandes sont doublement dégénérées à cause du spin.

Si un champ magnétique est orienté selon z , la dégénérescence de Kramers est levée et on obtient, entre autres, les deux niveaux de Landau dont la dispersion en k_z est donnée sur la Fig. 1-6(d). Ils sont de spin opposé et se croisent en deux nœuds de Weyl à $k_z = \pm k_0(B)$ (points noirs). Cd_3As_2 est donc un semi-métal de Weyl lorsqu'un champ magnétique est appliqué.

Les états de surface topologiques dus à l'inversion de parité des bandes sont bien en dessous du niveau de Fermi car ils sont à peu près au milieu du gap entre Γ_8^l et Γ_6 . Il existe néanmoins d'autres états topologiques de surface spécifiques aux semi-métaux, ce sont les états de Dyakonov et Khaetskii.⁴⁵ Cd_3As_2 admet donc un état de surface topologique (toujours dû à l'inversion des bandes Γ_8^l et Γ_6) qui se superpose quasiment avec la bande de conduction. La surface de Fermi 2D de cet état, à l'énergie des nœuds de Dirac, est constituée de deux arcs de Fermi reliant la projection 2D des deux nœuds de Dirac.^{46,47} De tels états de surface chiraux ont déjà démontré un courant polarisé de spin ou une conversion photovoltaïque très efficace.⁴⁸

II. Dispositif expérimental pour la magnéto-optique

i. Généralités

La magnéto-optique est la méthode expérimentale utilisée dans cette thèse pour caractériser les propriétés électroniques fondamentales des matériaux topologiques. Elle consiste à mesurer, en fonction d'un fort champ magnétique externe, la transmission de la lumière infrarouge à travers l'échantillon étudié. Lorsque l'énergie du photon infrarouge incident correspond à l'écart entre deux niveaux électroniques (l'un peuplé en électrons et l'autre vide), le photon est absorbé et un électron est excité. Les bases théoriques de la magnéto-optique ont été posées en 1959.⁴⁹ Sans champ magnétique, l'absorption du continuum d'états électroniques n'est que peu exploitable : il donne une valeur peu précise du gap. Le champ magnétique permet de discrétiser les niveaux électroniques en niveaux de Landau, ce qui donne une absorption discrète de l'échantillon pour chaque transition magnéto-optique. La structure des niveaux de Landau est obtenue et mène à la détermination de la structure de bande du matériau étudié. Cette technique qui utilise la gamme spectrale du moyen et lointain infrarouge est particulièrement adaptée à l'étude de la matière topologique dont les énergies de gap sont faibles (< 0.3 eV). De plus, le signal optique traverse l'échantillon en entier et l'expérience est donc sensible à son volume ainsi qu'à sa surface et ses interfaces. On rappelle que l'intensité lumineuse transmise à travers un échantillon d'épaisseur L s'écrit :

$$I_0 e^{-\alpha(\omega)L}$$

où I_0 est l'intensité incidente et $\alpha(\omega)$ le coefficient d'absorption du matériau à la fréquence ω . Dans la suite, le signal de transmission à un champ $B \neq 0$ est divisé par celui obtenu à $B = 0$ car cela permet de s'affranchir des absorptions liées au dispositif expérimental comme celle des fenêtres, de la séparatrices ou des filtres disposés sur le chemin optique. L'intensité calculée devient dans la limite d'une faible absorption :

$$\frac{I_0 e^{-\alpha_B(\omega)L}}{I_0 e^{-\alpha_0(\omega)L}} = e^{-[\alpha_B(\omega) - \alpha_0(\omega)]L} \sim 1 - [\alpha_B(\omega) - \alpha_0(\omega)]L$$

La magnéto-optique permet donc de mesurer une différence entre coefficients d'absorption. Ces derniers sont étroitement liés à la densité d'état du matériau qui contient de nombreuses informations sur sa structure de bande.

Une telle mesure peut être effectuée grâce à un interféromètre couplé à une bobine supraconductrice. L'échantillon est placé dans la bobine par l'intermédiaire d'une canne. Ces trois éléments majeurs du dispositif expérimental sont détaillés séparément dans les paragraphes suivants. La canne est différente selon le type de mesure effectuée : à $T = 4.2$ K ou à plus haute température. La mise en fonctionnement de l'expérience pour $T > 4.2$ K a fait l'objet d'un développement au cours de cette thèse. Le schéma général du dispositif expérimental est donné sur la Fig. 1-7. La lumière infrarouge provient de l'interféromètre et est guidée jusqu'à l'échantillon par l'intermédiaire d'un miroir parabolique et de la canne de mesure. Celle-ci est placée dans la bobine supraconductrice de sorte que l'échantillon soit au cœur du champ magnétique. Une fois le signal de transmission infrarouge récupéré et transcrit électroniquement, il est amplifié puis envoyé à l'interféromètre et à l'ordinateur où il peut être affiché.

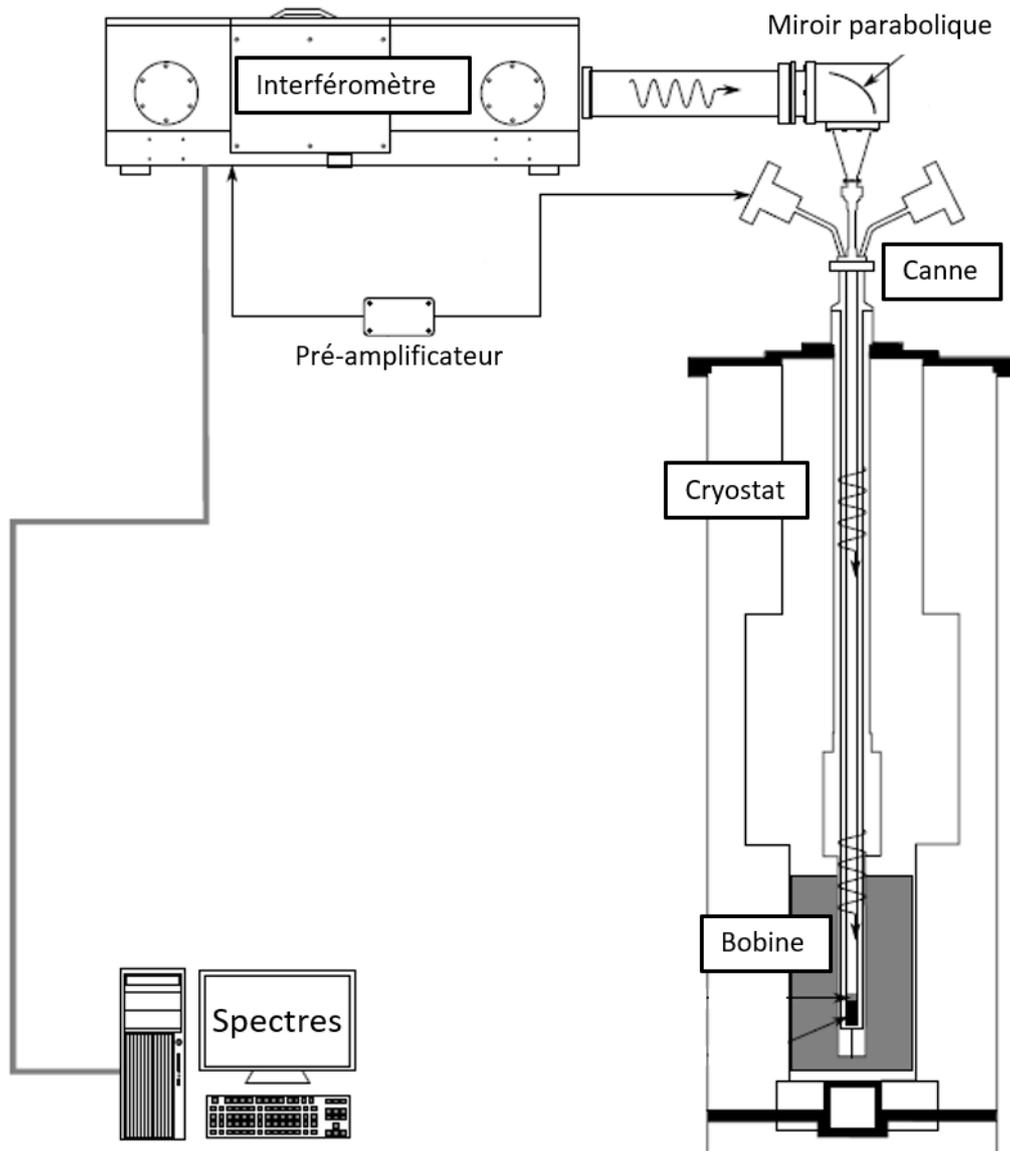


Figure 1-7. Schéma du dispositif expérimental avec les trois parties importantes : l'interféromètre, la canne reliée à ce dernier par un miroir parabolique, et la bobine + cryostat dans lesquels est plongée la canne de mesure.

ii. Interféromètre à transformée de Fourier

L'interféromètre à transformée de Fourier est le modèle « Vertex 80V » de la société Brüker. Il est commandé par le logiciel « OPUS » permettant trois fonctions :

- Une fonction d'affichage de spectres
- Une fonction de calculs simples comme lisser ou dériver une courbe ; calculer l'absorbance ; diviser deux spectres ...
- Une fonction de commande de l'interféromètre pour y faire le vide, démarrer la mesure et gérer ses paramètres (nombre de scans, résolution, ...), ...

L'interféromètre est schématisé sur la Fig. 1-8. Il possède deux sources lumineuses : un global rayonnant dans l'infrarouge moyen (MIR) entre 100 et 7350 cm^{-1} (12 et 900 meV) ; une lampe au mercure efficace dans l'infrarouge lointain (FIR) entre 30 et 300 cm^{-1} (4 et 40 meV). L'intensité du faisceau du global peut être choisie

à l'aide de diaphragmes sur une roue tournante dont les diamètres varient de 0.25 à 8 mm. Le faisceau parallèle issu de l'une des sources est envoyé sur la séparatrice. Celle-ci renvoie la moitié du signal vers un miroir fixe et laisse passer l'autre moitié vers un miroir mobile qui se déplace sur un coussin d'azote gazeux grâce à un moteur. L'interféromètre dispose de deux séparatrices différentes. La première est constituée de KBr et opère dans le MIR. Elle absorbe les signaux de fréquences $< 300 \text{ cm}^{-1}$ ($< 40 \text{ meV}$). La deuxième est efficace entre 30 et 1000 cm^{-1} (entre 4 et 125 meV). Elle est constituée de multicouches de « Mylar » (CsI). Finalement, quatre combinaisons de séparatrice + source sont possibles et sont utilisées dans les situations adéquates.

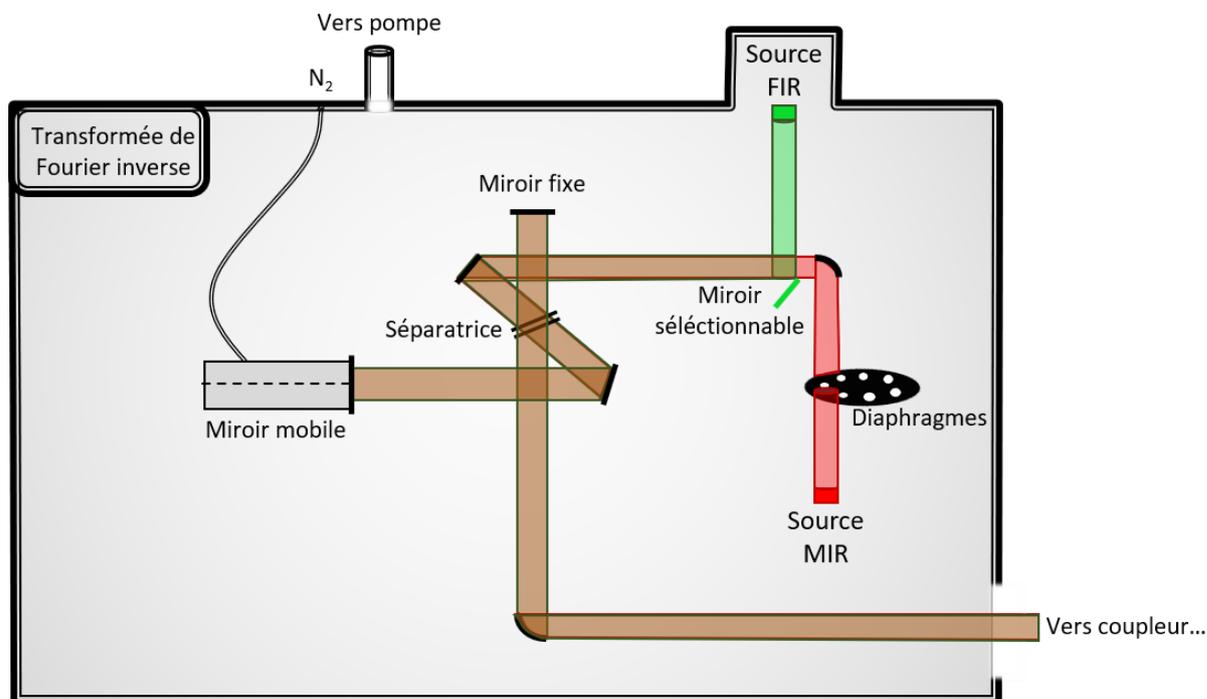


Figure 1-8. Schéma de principe de l'interféromètre à transformée de Fourier. Le faisceau de lumière est en rouge (vert) si la gamme spectrale est le MIR (FIR).

Les deux faisceaux interfèrent après réflexion sur le miroir fixe et sur le miroir mobile. La différence de marche entre les deux faisceaux est égale à $2x$, où x est le déplacement du miroir mobile. Le déphasage correspondant est égal à $4\pi\sigma x$, σ étant le nombre d'onde du faisceau incident. L'interférogramme est une fonction de la position du miroir mobile x qui contient l'information, par sa transformée de Fourier inverse, de l'intensité lumineuse mesurée. En émettant toutes les longueurs d'onde en même temps, on peut donc par le phénomène d'interférence et grâce à l'interférogramme, séparer leur contribution.

Pour traiter le signal, on utilise la fonction d'apodisation nommée « fonction quatre points ». Elle a la forme d'un trapèze et a été optimisée pour donner la meilleure résolution spectrale possible. L'autre moyen utilisé pour augmenter le rapport « signal sur bruit » est l'accumulation de spectres. Le nombre de spectres enregistrées pour une mesure est typiquement de 64 scans pour les expériences à $T = 4.2 \text{ K}$ et de 128 ou 256 scans pour les températures plus élevées.

Le vide ($\sim 1 \text{ mbar}$) est effectué à l'aide d'une pompe primaire dans tout l'interféromètre pour éviter les absorptions parasites des molécules non-symétriques présentes dans l'air comme H_2O , CO_2 , ... dont les modes de vibration sont situés dans l'infrarouge. La lumière est finalement envoyée vers la sortie de l'interféromètre donnant sur le coupleur également sous vide. Il est pourvu d'un miroir parabolique en or qui permet de

réfléchir le signal lumineux à l'intérieur de la canne de mesure plongée dans le cryostat et la bobine supraconductrice (voir Fig. 1-7).

iii. Bobine supraconductrice

La bobine et le cryostat ont été fabriqués par Oxford Instruments. Leur schéma simplifié est donné sur la Fig. 1-9.

a) Cryostat

Le cryostat est un assemblage de quatre parties :

- Le « VTI » pour « Variable Temperature Insert » est un anti-cryostat de 3.7 cm de diamètre qui accueille la canne de mesure. La température de ce compartiment est contrôlée via « l'ITC503 » fourni par Oxford Instruments couplé à une sonde (une résistance Cernox) logée au fond du VTI,
- Le compartiment de vide interne permet d'isoler le VTI du réservoir d'hélium liquide. Grâce à celui-ci, la température du VTI, et donc de l'échantillon, peut être variée de 1.6 à 220 K,
- Le réservoir d'hélium liquide, d'une contenance de 85 L, dans lequel est inséré la bobine supraconductrice. Un capillaire avec une visse pointeau entre ce réservoir et le VTI existe pour pouvoir refroidir l'échantillon,
- Le compartiment de vide externe isole le réservoir d'hélium liquide de l'extérieur.

Le réservoir d'hélium liquide est rempli trois fois par semaine par l'intermédiaire d'une canne de transfert. L'hélium gaz évaporé est acheminé dans le circuit de récupération de l'ENS. Le vide des deux compartiments d'isolation est réalisé à l'aide d'une pompe turbo lors de chaque mise à froid du cryostat.

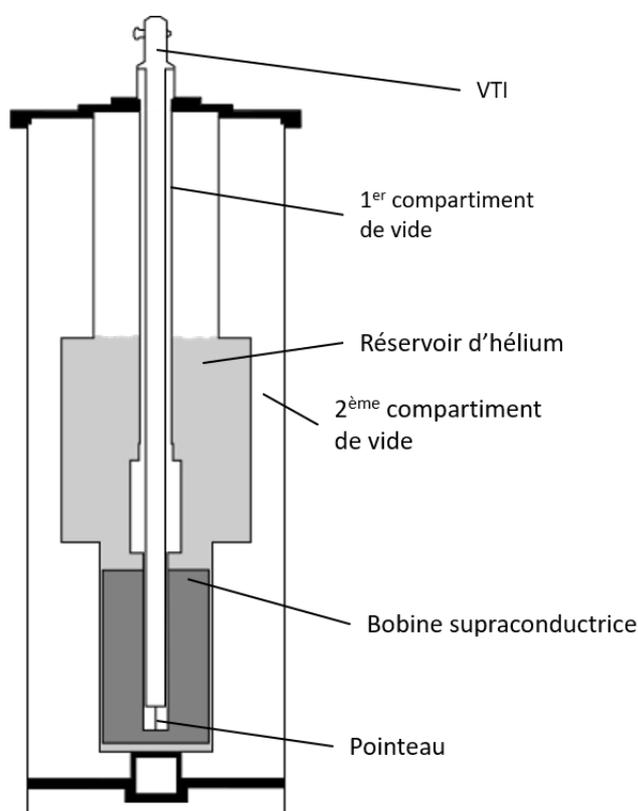


Figure 1-9. Schéma de la bobine supraconductrice plongée dans le cryostat.

b) Bobine supraconductrice

Le champ magnétique est créé par induction grâce à un courant supraconducteur dans un solénoïde. L'alimentation est gérée par « l'IPS120-10 » et est connectée au solénoïde par un interrupteur qui délimite également la partie supraconductrice de la partie conductrice classique. Par sa qualité de supraconducteur, le solénoïde ne dissipe pas de chaleur et permet donc la conduction d'un fort courant ($< 105 \text{ A}$) qui, par induction, produit un champ magnétique élevé ($\leq 15 \text{ T}$) selon l'axe de la bobine. Le sens du courant peut être inversé pour donner un champ magnétique de sens opposé. Le champ est monté ou descendu progressivement à la vitesse de $\sim 1 \text{ T/min}$. A un champ donné, le solénoïde peut être isolé grâce à l'interrupteur, il passe alors en mode persistant. Le courant supraconducteur ne perd pas d'énergie dans ce circuit fermé et ainsi, le champ peut être maintenu tout en coupant l'alimentation.

Le champ magnétique peut atteindre 17 T si la température de la bobine supraconductrice est $\sim 2.2 \text{ K}$. Pour ce faire, il faut pomper l'hélium pour que le liquide atteigne son point lambda. Au lieu de pomper tout le bain d'hélium, le pompage est localisé sur un refroidisseur lambda situé au niveau supérieur de la bobine. La convection permet ainsi de garder le bas du bain où est inséré la bobine à une température constante de 2.2 K .

iv. Récupération du signal à basse température

a) Canne de mesure

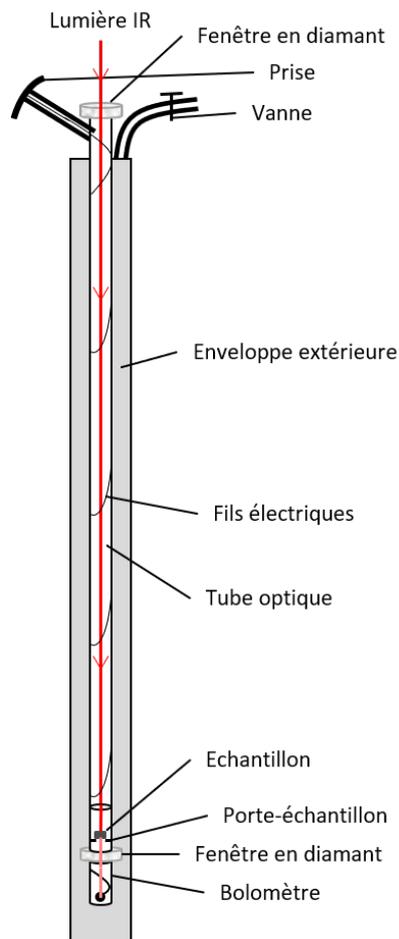


Figure 1-10. Canne de mesure opérationnelle à basse température.

La canne de mesure à basse température est schématisée sur la Fig. 1-10. Au sommet de celle-ci, une fenêtre en diamant permet de transmettre sans absorption le rayonnement infrarouge tout en pouvant faire le vide dans la canne. Une vanne est installée et permet de gérer la pression dans la canne. Lorsqu'elle est plongée dans le cryostat, toutes traces d'eau doivent être enlevées et remplacées par de l'hélium gaz (~100 mbar) permettant les échanges thermiques et donc une thermalisation de la canne à basse température.

Le signal optique traverse la fenêtre de diamant, voyage dans un tube cylindrique et enfin débouche sur l'échantillon et le bolomètre dont les spécificités sont données dans la suite. Le bolomètre convertit le signal lumineux en un signal électrique qui remonte la canne par des fils contre la paroi extérieure du tube optique. Tout ceci est protégé par une enveloppe extérieure amovible.

b) Echantillons

L'échantillon étudié est placé en bas de la canne de façon à être au centre du champ magnétique une fois la canne plongée dans la bobine. Il est collé avec de la laque à l'argent sur une des plateformes indépendantes et percées d'un trou de diamètre variant de 0.5 à 5 mm. Dans cette disposition (voir Fig. 1-10), le champ magnétique est perpendiculaire à la surface de l'échantillon. On peut également tilter l'échantillon en le déposant sur un des deux blocs percés dont les surfaces sont inclinées à 40 et 60°. La section effective du trou de ces blocs est de 6 mm. Le signal infrarouge passe à travers l'échantillon et est transmis jusqu'au bolomètre en traversant une fenêtre de diamant.

c) Bolomètre et préamplificateurs

Le bolomètre est constitué d'un matériau Si composite qui absorbe le rayonnement infrarouge incident. Les variations de résistance du bolomètre induit par l'échauffement lié à l'absorption IR sont converties en signal électrique. Ce type de bolomètre fonctionne à très basse température. Son fonctionnement optimal étant à 1.6 K, il peut être utilisé jusqu'à $T \sim 8$ K. Le signal électrique est ensuite envoyé au préamplificateur. Il a pour rôle d'amplifier le signal avant de le transmettre à l'interféromètre qui se charge du calcul de la transformée de Fourier inverse. Le gain du préamplificateur peut être changé en utilisant différentes résistances de sortie. Trois gains ont été optimisés suivant la température de mesure :

- Un gain de 200 pour une mesure à $T = 1.6$ K,
- Un gain de 2000 pour $T = 4.2$ K,
- Un gain de 5000 pour $T = 8$ K.

Le bolomètre étant solidaire à la canne de mesure, celle-ci doit rester à très basse température. Pour monter à plus haute température, il faut découpler la canne du bolomètre et donc utiliser un autre type de canne.

v. Récupération du signal à plus haute température

a) Canne de mesure

L'entrée de la radiation IR dans la canne s'effectue à travers une fenêtre KBr. Le bolomètre étant extérieur à la canne, le signal lumineux doit en ressortir. Elle est donc composée de deux tubes cylindriques, un pour l'aller et un pour le retour, comme représenté schématiquement sur la Fig. 1-11. La lumière ressort horizontalement après réflexion sur un miroir plan. Sa position est réglable et est optimisée à chaque manipulation. Après la traversée d'une autre fenêtre KBr, la sortie jusqu'au détecteur s'effectue sur quelques centimètres dans

l'atmosphère, ce qui engendre de faibles absorptions parasites dues notamment à H₂O (entre 1350 et 1950 cm⁻¹) et au CO₂ (vers 2350 cm⁻¹).

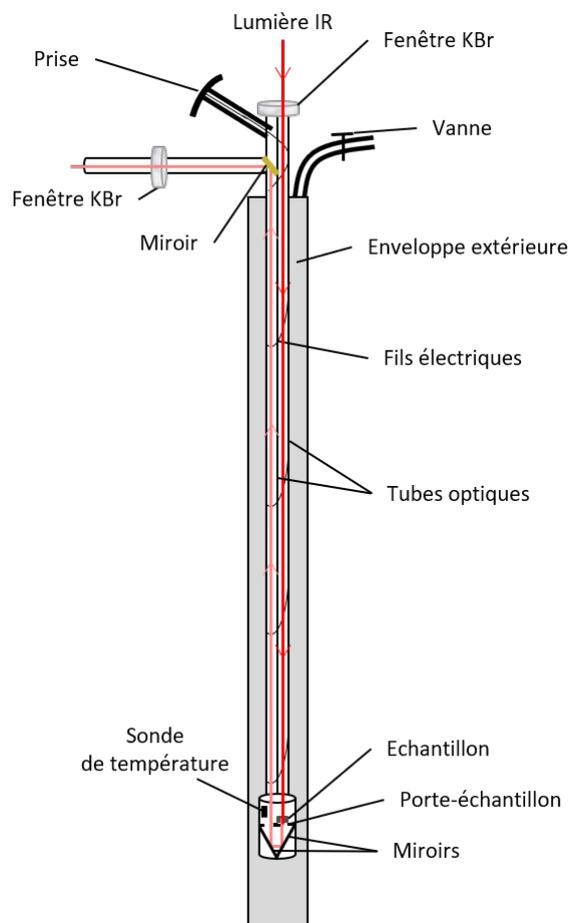


Figure 1-11. Canne utilisée pour les mesures magnéto-optique à $T > 8$ K.

Une sonde de température « Cernox » a été installée dans la canne au niveau de l'échantillon. C'est une résistance dont la tension aux bornes dépend de la température. Un calibrage a été effectué à 4.2, 77 et 300 K pour que l'ITC503 affiche la température de l'échantillon étudié. La connectique passe par la prise de la canne.

b) Echantillons

L'échantillon est placé en bas de la canne sur un bloc (voir Fig. 1-11). L'échantillon est collé avec de la laque à l'argent sur un des supports au diamètre différent (de 1 à 10 mm). Il est placé dans un des deux trous du bloc de la canne. Deux miroirs tiltés de 45 ° réfléchissent la lumière du tube aller vers le tube retour.

c) Détecteur MIR et bolomètre FIR

On dispose de deux détecteurs différents, un dans chaque gamme spectrale (MIR et FIR). Pour le MIR, un détecteur MCT refroidi à la température de l'azote liquide est utilisé. Un miroir parabolique est installé à la sortie de la canne et focalise le signal transmis sur le détecteur qui est protégé par une fenêtre en KRS-5 (TlBr-

TII). Il opère à partir de 600 cm^{-1} et le signal détecté est amplifié par une électronique directement fournie par Brüker.

Le deuxième détecteur est actif dans le FIR, de 30 cm^{-1} jusqu'à 650 cm^{-1} . C'est le même type de bolomètre Si composite évoqué plus haut. Il est placé dans son cryostat car il doit être refroidi à 4.2 K . Lors de la mesure, le bolomètre est placé directement à la sortie de la canne. Il est isolé par un filtre en polyéthylène et l'électronique d'amplifications du signal est intégrée (le gain est de 1000).

Chapitre 2 – Transitions de phase topologique dans un alliage $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ massif

Les sels de plomb (PbS , PbSe , PbTe , ...) forment l'une des plus vieilles familles de semiconducteurs étudiés.⁵⁰⁻⁵² Ce sont des semiconducteurs de type IV-VI possédant des petites énergies de gap. Ils ont permis de donner lieu à de nombreuses applications telles que des diodes électroluminescentes, des dispositifs thermoélectriques, des lasers ou des détecteurs dans l'infrarouge moyen et lointain.⁵³⁻⁵⁶ Les sels de plomb sont fondamentalement différents des semiconducteurs III-V ou II-VI, ce qui offre une diversité intéressante et justifie l'intérêt pour cette famille. Dans cette partie, une étude théorique et expérimentale approfondie de la structure de bande de l'alliage ternaire $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ est réalisée. L'impact sur celle-ci de plusieurs paramètres comme la composition chimique de l'alliage, la température, l'état de contrainte, et le champ magnétique est mis en évidence par la magnéto-optique en se focalisant sur les notions de topologie et d'effets relativistes. En particulier, la structure de bande de PbSnSe , et donc son caractère topologique, sera déterminée en fonction des paramètres extérieurs. Cette ingénierie de bande nous permettra de définir un isolant topologique avec la plus grande énergie de gap possible, ce qui est essentiel pour de potentielles applications.

I. Description théorique de la structure de bande de PbSnSe

i. Structure cristalline

La structure cristalline de PbSnSe est de type NaCl, c'est-à-dire cubique faces centrées.⁵⁷ Elle est représentée en Fig. 2-1(a). Les liaisons sont donc très majoritairement ioniques entre le cation Pb^{2+} ou Sn^{2+} et l'anion Se^{2-} . Cette structure possède un centre d'inversion et donc garantit automatiquement la dégénérescence de spin ($E_{\uparrow}(\mathbf{k}) = E_{\downarrow}(\mathbf{k})$) de sa structure de bande, comme nous allons le confirmer plus tard. De plus, la dégénérescence de Kramers, en l'absence de champ magnétique et d'impureté magnétique, est vérifiée ($E_{\uparrow}(\mathbf{k}) = E_{\downarrow}(-\mathbf{k})$). Un niveau d'énergie sera donc dégénéré quatre fois. Dans l'espace réciproque, la zone de Brillouin (ZB) d'un tel cristal forme un octaèdre tronqué représenté sur les Fig. 2-1(b,c) avec des points de hautes symétries comme les points Γ ou L .

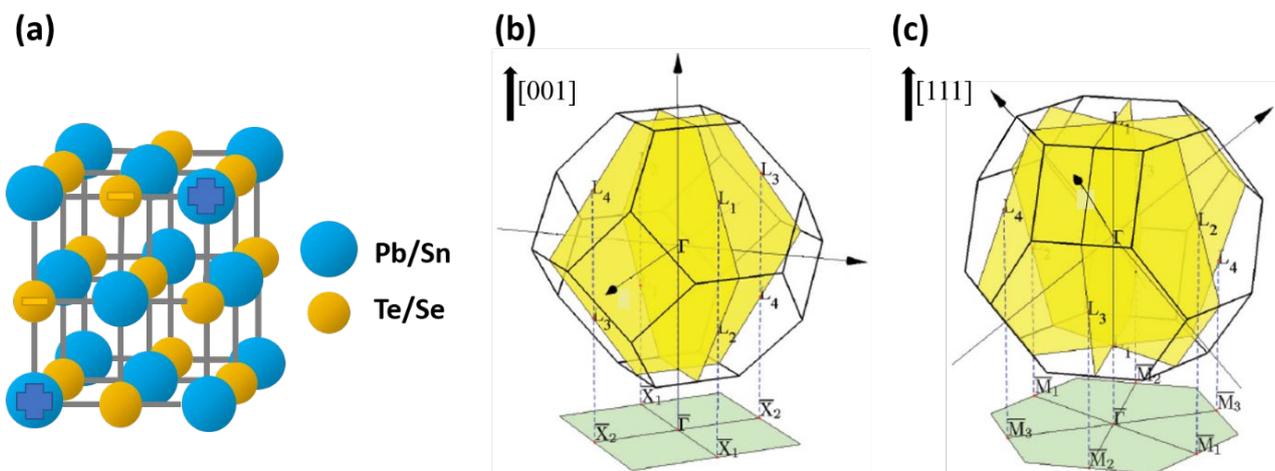


Figure 2-1. (a) Structure cristalline cubique faces centrées d'un sel de plomb. (b,c) Cristal d'un sel de plomb dans l'espace réciproque selon les directions [001] et [111] respectivement. La projection de la ZB est dessinée en dessous.

Des calculs de pseudo potentiel ont établi que PbSe était un semiconducteur à gap direct situé au point L de sa ZB.⁵⁷⁻⁵⁹ Il y a huit points L par ZB, représentés sur les Fig. 2-1(b,c). Ces points L sont deux à deux identiques en considérant la symétrie par rapport aux plans (110) et (1 $\bar{1}$ 0) dessinés en jaune. PbSe admet donc quatre extrema de bandes différents, chacun d'eux formant ce que l'on appelle une vallée.

ii. Symétrie des bandes interagissant au point L

Aux quatre points L , on doit désormais trouver le nombre et la symétrie des bandes qui vont définir les bases des propriétés électroniques dans ces matériaux. Pour ce faire, il faut trouver les fonctions propres solutions de l'hamiltonien de l'électron dans un solide :

$$\frac{\hat{p}^2}{2m_0} + \hat{V}(r) + \frac{\hbar^2}{4m_0^2c^2} (\Delta\mathbf{V} \times \mathbf{p}) \cdot \boldsymbol{\sigma}$$

On utilise alors la théorie des groupes pour résoudre le problème en ne prenant en compte que les deux premiers termes de l'Hamiltonien représentant le potentiel cinétique et le potentiel cristallin. On trouve que six bandes (douze en comptant la dégénérescence de spin) sont attendues près du niveau de Fermi.⁵¹ Le 3^{ème} terme, représentant l'interaction spin-orbite, est ensuite diagonalisé dans la base de ces six bandes. À la suite de cela, il ne reste que deux fonctions de Bloch au point L de PbSnSe et proches de son niveau de Fermi. Les quatre autres bandes sont, elles, repoussées à environ 1 eV au-dessus et en dessous des deux bandes d'intérêt dont les fonctions de Bloch sont données par :^{51,60,61}

$$\begin{aligned} L_6^+\alpha &= \begin{pmatrix} -i\cos\theta^+R \\ -\sin\theta^+S_+ \end{pmatrix} & L_6^-\alpha &= \begin{pmatrix} \sin\theta^-Z \\ \cos\theta^-X_+ \end{pmatrix} \\ L_6^+\beta &= \begin{pmatrix} \sin\theta^+S_- \\ i\cos\theta^+R \end{pmatrix} & L_6^-\beta &= \begin{pmatrix} -\cos\theta^-X_- \\ \sin\theta^-Z \end{pmatrix} \end{aligned}$$

Ces fonctions sont exprimées dans la base des spins « up » et « down » : $\uparrow = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$; $\downarrow = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$. α et β dénotent une paire de Kramers. Elles sont reliées par l'opérateur de renversement du temps $i\sigma_y K_0$ où K_0 est l'opérateur pour prendre le complexe conjugué. Il est important de noter que, dû à l'interaction spin-orbite, les fonctions de Bloch $L_6^\pm\alpha$ et $L_6^\pm\beta$ ne sont pas pures de spin, d'où la nécessité d'introduire une nouvelle paire de Kramers α et β . Ce mélange est quantifié par les paramètres $\cos\theta^\pm$ et $\sin\theta^\pm$ qui ont été évalués comme suit pour PbSe : $\cos\theta^+ = 0.99$ et $\cos\theta^- = 0.82$.⁶⁰ De là, on peut déduire que les bandes $L_6^+\alpha$ et $L_6^+\beta$ sont pratiquement pures de spin et peuvent être notées $L_6^+\uparrow$ et $L_6^+\downarrow$ respectivement. Les bandes $L_6^-\alpha$ et $L_6^-\beta$, dans une approximation un peu plus grossière, peuvent être considérées comme respectivement \downarrow et \uparrow . En résumé, α renvoie plutôt au spin « up » pour la bande L_6^+ et au spin « down » pour L_6^- . Cette remarque nous permettra d'éviter quelques confusions dans la suite.

Ces fonctions de Bloch font également intervenir quatre fonctions atomiques différentes : R , Z , X_\pm et S_\pm . R est une fonction isotrope issue d'un état atomique de type s , Z et $X_\pm = X \pm iY$ transforment comme des fonctions atomiques p avec $m_z = 0$ et $m_z = \pm 1$ respectivement. X , Y et Z sont alignées selon les axes cristallographiques $[\bar{1}\bar{1}2]$, $[1\bar{1}0]$ et $[111]$ respectivement. La dernière fonction spatiale $S_\pm = S_X \pm iS_Y$ se comportent comme une fonction atomique d avec $m_z = \pm 1$.⁵⁰ On voit donc que, contrairement au spin, la parité des fonctions de Bloch est bien définie. Ainsi, les fonctions L_6^+ sont paires avec un mélange d'orbitale s et d et les fonctions L_6^- sont impaires comme les fonctions atomiques p . A noter ici que ces fonctions de Bloch sont spécifiques à PbSnSe et qu'elles peuvent être légèrement différentes pour d'autres sels de plomb comme par exemple PbSnTe.

iii. Perturbation $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ au voisinage du point L

Pour une description plus précise de la structure de bande au voisinage du point L , la théorie $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ est sans doute la théorie la plus efficace connue à ce jour. Elle permet en particulier une description à base de paramètres directement accessibles expérimentalement comme l'énergie de gap, la vitesse électronique, la masse effective ou le facteur de Landé.

a) Hamiltonien $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ et anisotropie

La théorie $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ peut modéliser l'interaction exacte entre les deux bandes L_6^+ et L_6^- décrites plus haut et accessibles expérimentalement car proche du niveau de Fermi. L'influence des autres bandes situés plus loin en énergie sera évoquée dans la suite, mais sans ces dernières, la structure de bande au voisinage du point L est décrite par l'hamiltonien suivant :^{50,62,63}

$$H_0 = \begin{pmatrix} -\Delta & 0 & \hbar P_z k_z / m_0 & \hbar P_{\parallel} k_{-} / m_0 \\ 0 & -\Delta & \hbar P_{\parallel} k_{+} / m_0 & -\hbar P_z k_z / m_0 \\ \hbar P_z k_z / m_0 & \hbar P_{\parallel} k_{-} / m_0 & \Delta & 0 \\ \hbar P_{\parallel} k_{+} / m_0 & -\hbar P_z k_z / m_0 & 0 & \Delta \end{pmatrix}$$

Cette matrice est exprimée dans la base des fonctions de Bloch $L_6^+ \alpha$; $L_6^+ \beta$; $L_6^- \alpha$; $L_6^- \beta$. 2Δ est l'énergie de gap du système, $k_{\pm} = k_x \pm ik_y$, et m_0 est la masse de l'électron libre. A noter que l'origine des k est prise au point L . P_{\parallel} et P_z sont les éléments de matrice interbande du moment dans le plan xy et selon la direction z respectivement. Ils modélisent directement l'interaction des bandes de symétries opposées. En clair, $P_{\parallel,z} = \langle L_6^+ \alpha | \mathbf{p} | L_6^- \beta, \alpha \rangle$, donc on peut écrire, au vu du paragraphe précédent,

$$P_{\parallel} = -[i \cos \theta^+ \cos \theta^- \langle R | \mathbf{p}_{\pm} | X_{\mp} \rangle \pm \sin \theta^+ \sin \theta^- \langle S_{\pm}^* | \mathbf{p}_{\pm} | Z \rangle]$$

$$P_z = [i \cos \theta^+ \sin \theta^- \langle R | \mathbf{p}_z | Z \rangle \mp \sin \theta^+ \cos \theta^- \langle S_{\pm}^* | \mathbf{p}_z | X_{\pm} \rangle]$$

On s'aperçoit alors que les éléments de matrice P_{\parallel} et P_z n'ont a priori aucune raison d'être égaux. En calculant les valeurs propres de H_0 , on trouve les surfaces à énergie constante, dégénérées de spin, dans l'espace réciproque. Elles sont solutions de l'équation suivante :

$$1 = \frac{k_x^2 + k_y^2}{a^2} + \frac{k_z^2}{b^2}$$

Où $a^2 = \frac{(E-\Delta)(E+\Delta)m_0^2}{\hbar^2 P_{\parallel}^2}$ et $b^2 = \frac{(E-\Delta)(E+\Delta)m_0^2}{\hbar^2 P_z^2}$. La surface de Fermi est une des solutions de cette équation pour l'énergie correspondant à l'énergie de Fermi E_F . On voit donc que la surface de Fermi de PbSnSe est a priori une ellipsoïde de demi-axes a et b , isotrope dans le plan xy . On peut définir un facteur d'anisotropie K :

$$K = \frac{b}{a} = \frac{P_{\parallel}}{P_z}$$

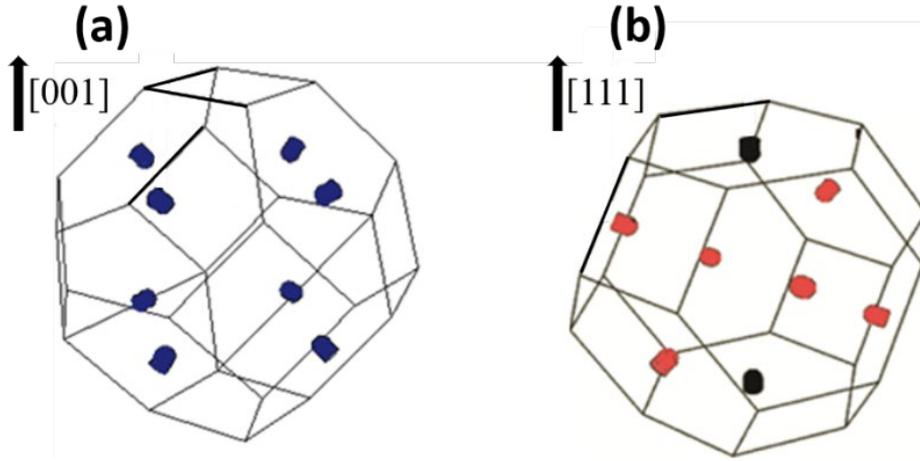


Figure 2-2. Représentation de la moitié de la surface de Fermi pour chaque vallée dans un cristal orienté selon [001] (a) et [111] (b). Chacun d'eux possèdent huit vallées deux à deux identiques.

On a donc une surface de Fermi ellipsoïdale par point L de la ZB, dont le plus grand axe est orienté différemment selon les vallées et l'orientation du cristal. Les demi-surfaces de Fermi à tout point L sont représentées en Fig. 2-2 pour les orientations [001] et [111].

b) Pris en compte des bandes éloignées

On peut prendre en compte les bandes lointaines de L_6^+ et L_6^- en les traitant au second ordre en k . Ces bandes sont au nombre de quatre (huit en comptant la dégénérescence due au spin) :^{60,63}

- Deux bandes ~ 1 eV au-dessus de L_6^- de symétrie impaire (de type L_6^-),
- Deux bandes ~ 1 eV en dessous de L_6^+ de symétrie paire (de type L_6^+).

Ainsi, comme des bandes de symétries opposées se repoussent pour $k \neq 0$, l'effet des bandes éloignées ici est de repousser L_6^+ vers les basses énergies et L_6^- vers les hautes énergies. De plus, les bandes éloignées se trouvant toutes à environ 1 eV de L_6^+ et de L_6^- , on peut penser que cet effet préservera la symétrie électron-trou du système. Cette hypothèse sera vérifiée expérimentalement par la suite. Dans l'hamiltonien $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$, l'effet des bandes lointaines se traduit par un terme de correction à la masse effective à $k_{\parallel} = 0$:^{62,64}

$$\frac{1}{m_{L_6^{\pm}}} = \mp \frac{P_{\parallel}^2}{\Delta m_0^2} \mp \frac{1}{\tilde{m}}$$

$$\frac{1}{\mu_{L_6^{\pm}}} = \mp \frac{P_z^2}{\Delta m_0^2} \mp \frac{1}{\tilde{\mu}}$$

Où $m_{L_6^{\pm}}$ et $\mu_{L_6^{\pm}}$ sont les masses effectives des bandes L_6^+ et L_6^- dans le plan xy et selon la direction z respectivement. Celles-ci sont le résultat de deux contributions : l'interaction exacte entre L_6^+ et L_6^- (terme inversement proportionnel à Δ) déjà prise en compte dans H_0 ; et l'interaction entre L_6^+ (L_6^-) et les deux bandes éloignées du dessus (dessous). $\tilde{m} > 0$ et $\tilde{\mu} > 0$ sont donc les contributions des bandes éloignées à $m_{L_6^{\pm}}$ et $\mu_{L_6^{\pm}}$. On peut alors définir l'hamiltonien $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ complet dans la même base que H_0 décrivant la structure de bande de PbSnSe :

$$H(k) = \begin{pmatrix} -\Delta - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} - \frac{\hbar^2 k_z^2}{2\tilde{\mu}} & 0 & \hbar v_z k_z & \hbar v_{\parallel} k_{-} \\ 0 & -\Delta - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} - \frac{\hbar^2 k_z^2}{2\tilde{\mu}} & \hbar v_{\parallel} k_{+} & -\hbar v_z k_z \\ \hbar v_z k_z & \hbar v_{\parallel} k_{-} & \Delta + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2\tilde{\mu}} & 0 \\ \hbar v_{\parallel} k_{+} & -\hbar v_z k_z & 0 & \Delta + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2\tilde{\mu}} \end{pmatrix}$$

Où $k_{\parallel}^2 = k_x^2 + k_y^2$. On a défini ici $v_{\parallel} = P_{\parallel}/m_0$ et $v_z = P_z/m_0$ les vitesses électroniques transverses et longitudinales respectivement. La résolution de $H(k)$ donne la dispersion dans l'espace réciproque des quatre bandes d'énergie $L_6^+ \alpha$; $L_6^+ \beta$; $L_6^- \alpha$; $L_6^- \beta$:

$$E(k) = \pm \sqrt{\Delta^2 + \hbar^2 \left(v_{\parallel}^2 + \frac{\Delta}{\tilde{m}} \right) k_{\parallel}^2 + \hbar^2 \left(v_z^2 + \frac{\Delta}{\tilde{\mu}} \right) k_z^2}$$

Ainsi, la structure de bande consiste en deux bandes miroirs séparées par une énergie égale à 2Δ comme tracées sur la Fig. 2-3(a). On vérifie ici la dégénérescence de spin, même à $k \neq 0$ ainsi que la symétrie électron trou de notre modèle. Les figures 2-3(b,c) marquent la différence entre l'interaction des bandes selon k_{\parallel} ou k_z respectivement. Elles illustrent également la correction due aux bandes lointaines (traits pleins et traits pointillés). On peut vérifier que cette correction est faible et donc que le traitement en perturbation est justifié. De plus, en se référant aux valeurs expérimentales typiques pour $\tilde{\mu}$, on voit que l'on peut aisément négliger la contribution des bandes éloignées à la masse effective longitudinale (Fig. 2-3(c)). La projection de la surface de Fermi pour $k_y = 0$ est montrée en Fig. 2-3(d). Elle consiste en une ellipse étirée selon k_z et incarne l'anisotropie du système.

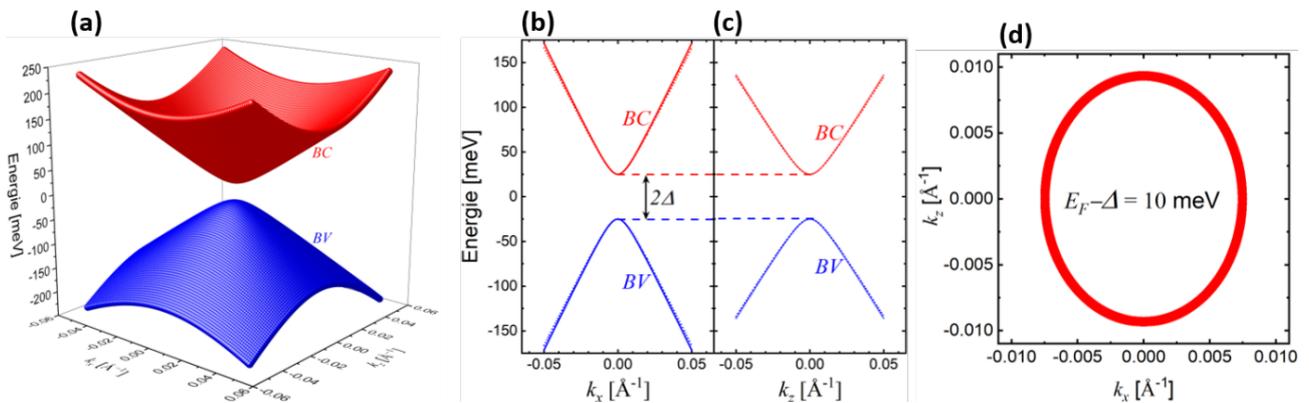


Figure 2-3. (a) Calcul de la structure de bande (bandes de valence « BV » et de bande de conduction « BC ») en fonction de k_x et k_z à $k_y = 0$. Les paramètres sont $\Delta = 25$ meV, $v_{\parallel} = 5 \times 10^5$ m/s, $v_z = 4 \times 10^5$ m/s, $\tilde{m} = 0.28m_0$, $\tilde{\mu} = 0.80m_0$. Ils sont typiques des valeurs expérimentales trouvées pour $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$, comme nous le verrons par la suite. (b,c) Structures de bande calculées pour $k_y = k_z = 0$ et $k_y = k_x = 0$ respectivement. En trait plein (pointillé) le calcul a été effectué avec (sans) les bandes lointaines. Les deux types de traits sont quasiment confondus. (d) Ellipse de Fermi à $k_y = 0$ et pour $E_F = 35$ meV. Les échelles sont identiques.

iv. Topologie et structure de bande

On peut remarquer que si l'on pose $v_D^2 = v_{\parallel}^2 + \frac{\Delta}{m}$, alors la structure de bande de PbSnSe est de type Dirac.⁶⁵ En effet, un électron de PbSnSe obéit à l'équation de Dirac, comme ceux dans le graphène.⁶⁶ Ils se comportent comme des fermions de Dirac massifs. On a finalement une structure de bande très simple avec seulement deux bandes symétriques, mais légèrement anisotrope. On peut également s'attendre à retrouver des effets pseudo-relativistes comme dans le graphène.^{67,68}

Comme nous allons le voir par la suite à travers de nombreuses expériences, le gap de PbSnSe peut être facilement varié avec divers paramètres extérieurs ou structuraux. Ceci donne un avantage certain sur le graphène dont le gap nul est robuste. En particulier, le gap de PbSnSe peut être négatif, c'est-à-dire que la symétrie des bandes peut être inversée. Dans l'état « normal » ou « trivial » des sels de plomb (par exemple pour PbSe), la bande L_6^- est la bande de conduction et L_6^+ est la bande de valence. Si le gap est négatif, alors la bande L_6^+ devient la bande de conduction (voir Fig. 2-4). Dans ce cas, il a été montré que PbSnSe était un isolant topologique cristallin. Dans cette phase de la matière, on admet pour le moment que PbSnSe possède à sa surface des états électroniques de gaps nuls, dont la dispersion linéaire est montrée en bleu sur la Fig. 2-4. On démontrera ce résultat dans le chapitre 3.

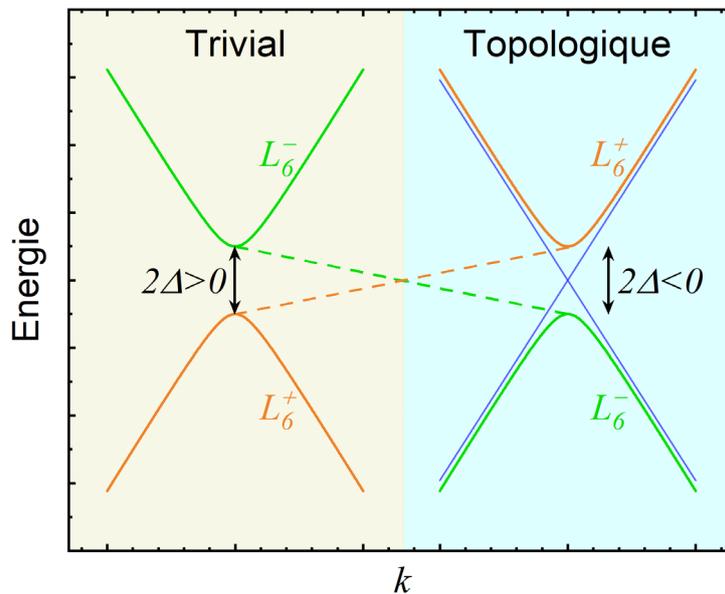


Figure 2-4. Structure de bande typique de PbSnSe dans sa phase triviale à gauche, et dans sa phase topologique à droite. Les bandes sont inversées dans le cas topologique (zone surlignée en bleu pâle) ce qui mène à l'émergence d'un état de gap nul et donc de dispersion linéaire (en bleu) localisé à la surface du matériau.

II. Effet d'un champ magnétique externe sur la structure de bande de PbSnSe

i. Niveaux de Landau

Nous allons maintenant traiter des propriétés électroniques de PbSnSe soumis à un champ magnétique externe selon l'axe z . Les électrons parcourent alors des orbites de rayons quantifiés dans le plan xy . Les énergies électroniques sont discrétisées et n'ont plus qu'une dispersion à une dimension selon k_z . Dans notre modèle, l'effet du champ magnétique est de remplacer $\hbar\mathbf{k}$ par $\hbar\mathbf{k} + e\mathbf{A}$ où \mathbf{A} est le potentiel vecteur dont le champ dérive. Dans la jauge de Landau, $\mathbf{A} = (0, Bx, 0)$. Il s'ensuit la non-commutation de k_x avec k_y : $[k_x, k_y] = -i\xi$, où l'on a posé $\xi = eB/\hbar$. k_x et k_y ne sont donc plus de bon nombres quantiques et doivent être remplacés par leurs opérateurs respectifs. k_z , lui, reste un bon nombre quantique. On se ramène alors aux opérateurs d'échelles $\hat{a} = (k_x - ik_y)/\sqrt{2\xi}$ et $\hat{a}^+ = (k_x + ik_y)/\sqrt{2\xi}$ (ainsi que $\hat{N} = \hat{a}^+\hat{a}$) qui vérifient $[\hat{a}, \hat{a}^+] = 1$. L'hamiltonien $H(k)$ se transforme donc en :

$$\begin{pmatrix} -\Delta - \frac{\hbar^2\xi}{2\tilde{m}}(2\hat{N} + 1) & 0 & \hbar v_z k_z & \hbar v_{\parallel}\sqrt{2\xi}\hat{a} \\ 0 & -\Delta - \frac{\hbar^2\xi}{2\tilde{m}}(2\hat{N} + 1) & \hbar v_{\parallel}\sqrt{2\xi}\hat{a}^+ & -\hbar v_z k_z \\ \hbar v_z k_z & \hbar v_{\parallel}\sqrt{2\xi}\hat{a} & \Delta + \frac{\hbar^2\xi}{2\tilde{m}}(2\hat{N} + 1) & 0 \\ \hbar v_{\parallel}\sqrt{2\xi}\hat{a}^+ & -\hbar v_z k_z & 0 & \Delta + \frac{\hbar^2\xi}{2\tilde{m}}(2\hat{N} + 1) \end{pmatrix}$$

On sait que $\hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle$, $\hat{a}^+|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle$ et $\hat{N}|n\rangle = n|n\rangle$ où les $|n\rangle$ sont les fonctions de l'oscillateur harmonique avec n entier naturel positif ou nul. L'idée ici est de remarquer que si sur les composantes $L_6^+\alpha$; $L_6^+\beta$; $L_6^-\alpha$; $L_6^-\beta$ on prend comme vecteur de base $(|n-1\rangle; |n\rangle; |n-1\rangle; |n\rangle)$, l'hamiltonien s'écrit simplement :

$$H_L(B) = \begin{pmatrix} -\Delta - \frac{\hbar eB}{2\tilde{m}}(2n-1) & 0 & \hbar v_z k_z & v_{\parallel}\sqrt{2e\hbar Bn} \\ 0 & -\Delta - \frac{\hbar eB}{2\tilde{m}}(2n+1) & v_{\parallel}\sqrt{2e\hbar Bn} & -\hbar v_z k_z \\ \hbar v_z k_z & v_{\parallel}\sqrt{2e\hbar Bn} & \Delta + \frac{\hbar eB}{2\tilde{m}}(2n-1) & 0 \\ v_{\parallel}\sqrt{2e\hbar Bn} & -\hbar v_z k_z & 0 & \Delta + \frac{\hbar eB}{2\tilde{m}}(2n+1) \end{pmatrix}$$

Il est désormais exprimé dans la base $(L_6^+\alpha|n-1\rangle; L_6^+\beta|n\rangle; L_6^-\alpha|n-1\rangle; L_6^-\beta|n\rangle)$. On voit alors que pour $n=0$, l'hamiltonien $H_L(B)$ est ramené à une matrice 2x2 dans la base $(L_6^+\beta|0\rangle; L_6^-\beta|0\rangle)$:

$$\begin{pmatrix} -\Delta - \frac{\hbar eB}{2\tilde{m}} & -\hbar v_z k_z \\ -\hbar v_z k_z & \Delta + \frac{\hbar eB}{2\tilde{m}} \end{pmatrix}$$

Les niveaux de Landau d'indice $n=0$ sont donc pathologiques car ne font intervenir qu'une des deux composantes de la paire de Kramers : la composante β .

Nous avons calculé ici l'effet d'un champ magnétique externe sur les énergies électroniques d'un alliage $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ massif. Cela nous a mené à la quantification de Landau. Les énergies électroniques sont alors discrétisées et ne possèdent plus qu'une dispersion à une dimension, selon k_z . Il convient maintenant de développer l'effet Zeeman induit par le champ sur l'électron du solide.

ii. Effet Zeeman et facteur de Landé

On sait que l'électron libre admet un moment magnétique dû, en partie, à son moment orbital \mathbf{L} (mouvement circulaire de sa charge autour du noyau). Un champ magnétique externe \mathbf{B} exerce une force qui donne une énergie $\mu_B \mathbf{L} \cdot \mathbf{B}$ où $\mu_B = e\hbar/2m_0$ est le magnéton de Bohr. Le moment magnétique de l'électron libre a également une origine intrinsèque : le spin de l'électron \mathbf{S} dont l'énergie dans un champ magnétique s'écrit $g_0 \mu_B \mathbf{S} \cdot \mathbf{B}$ avec $g_0 \sim 2$. Si l'on définit le moment angulaire total $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$, alors l'hamiltonien décrivant l'énergie du moment magnétique de l'électron libre dans un champ magnétique s'écrit : $H = g \mu_B \mathbf{J} \cdot \mathbf{B}$ où g est appelé facteur de Landé ou facteur g . Il s'exprime en fonction de L et S .

Dans un solide, chaque bande possède des moments magnétiques de spin et orbital bien précis. Dans notre cas, les bandes L_6^\pm ont un moment angulaire total de $1/2$. L'hamiltonien de Zeeman s'écrit ici :

$$H_Z = \pm \frac{1}{2} g \mu_B B$$

Le problème est donc maintenant de trouver l'expression de ce facteur g . Nous pouvons dès à présent poser $|g_{L_6^+}| = |g_{L_6^-}| = g$ grâce à la symétrie électron trou de notre système. Pour avoir une idée de la valeur du facteur g de PbSnSe , nous allons reprendre l'hamiltonien H_0 décrivant seulement l'interaction entre les bandes L_6^+ et L_6^- . Le but est alors de reprendre la théorie $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ pour détailler l'effet du champ magnétique. La théorie de la perturbation au second ordre nous donne l'énergie des bandes $L_6^+ \alpha$ et $L_6^+ \beta$:

$$E_{L_6^+ \alpha, \beta} + \Delta = -\frac{1}{2\Delta} [\langle L_6^+ \alpha, \beta | H_0 | L_6^- \alpha \rangle \langle L_6^- \alpha | H_0 | L_6^+ \alpha, \beta \rangle + \langle L_6^+ \alpha, \beta | H_0 | L_6^- \beta \rangle \langle L_6^- \beta | H_0 | L_6^+ \alpha, \beta \rangle]$$

$$\Leftrightarrow E_{L_6^+ \alpha, \beta} + \Delta = -\frac{[\hbar^2 v_z^2 k_z^2 + \hbar^2 v_{\parallel}^2 k_{\mp} k_{\pm}]}{2\Delta}$$

Or, on a vu plus haut qu'en présence d'un champ magnétique, k_x ne commutait plus avec k_y : $[k_x, k_y] = -i\xi$. On a donc :

$$E_{L_6^+ \alpha, \beta} = -\Delta - \frac{1}{2\Delta} [\hbar^2 v_z^2 k_z^2 + \hbar^2 v_{\parallel}^2 k_{\parallel}^2 \pm \hbar^2 v_{\parallel}^2 \xi]$$

Un calcul similaire peut être effectué pour $E_{L_6^- \alpha, \beta}$. On remarque que sans champ magnétique, on a $[k_x, k_y] = 0$ et on retrouve :

$$E_{L_6^+ \alpha, \beta} = -\Delta - \frac{\hbar^2 k_z^2 v_z^2}{2\Delta} - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2 v_{\parallel}^2}{2\Delta}$$

En particulier, on reconnaît les masses effectives longitudinales et transverses émanant du modèle à deux bandes évoqué plus haut. Le champ magnétique, lui, a pour effet de briser la symétrie de Kramers, soit lever la dégénérescence de spin. Les niveaux de spin différents seront alors séparés d'une énergie $\hbar^2 v_{\parallel}^2 \xi / \Delta$. Pour la bande L_6^+ , on peut voir que c'est la composante α qui sera au-dessus en

énergie pour $B \neq 0$. C'est le contraire pour les bandes L_6^- : la composante α est en dessous de sa partenaire β . Ceci peut paraître plus logique si l'on prend l'approximation des spins purs dans PbSnSe (voir plus haut : $L_6^+ \alpha \equiv L_6^+ \uparrow$ et $L_6^- \alpha \equiv L_6^- \downarrow$), ainsi la composante \uparrow a toujours l'énergie la plus grande.

En identifiant cette énergie $\hbar^2 v_{\parallel}^2 \xi / \Delta$ avec celle de Zeeman, on trouve :

$$g\mu_B B = -\frac{\hbar^2 v_{\parallel}^2 \xi}{\Delta} = -\frac{\hbar e B v_{\parallel}^2}{\Delta} = \frac{\hbar e B}{m_{eff}}$$

$$\Leftrightarrow \frac{\hbar e B}{2m_0} g = \frac{\hbar e B}{m_{L_6^+}} \Leftrightarrow g = \frac{2m_0}{m_{eff}}$$

En guise d'ordre de grandeur, la masse effective transverse de PbSnSe est typiquement autour de $0.01m_0$ et alors $g \sim 200$. L'effet Zeeman est donc très important dans notre matériau. A noter que ce résultat diffère sensiblement du modèle de Kane décrivant les semiconducteurs III-V, II-VI ou même II-V, où l'on trouve pour la bande de type s :

$$g = \frac{m_0}{m_{eff}}$$

Le facteur 2 est spécifique d'un hamiltonien de type Dirac.

On remarque que le traitement des niveaux de Landau dans le paragraphe précédent a déjà considéré ce terme dans l'hamiltonien $H_L(B)$ car la non-commutation de k_x et k_y a été prise en compte. Ce résultat ($g = 2m_0/m_{eff}$) nous montre que dans un modèle à deux bandes, deux niveaux de Landau d'indices successifs et de composantes de Kramers opposées sont dégénérés. Cette dégénérescence est levée si l'on prend en compte la correction du facteur g par les bandes lointaines, qui, elle, n'a pas été prise en compte dans $H_L(B)$. De la même manière que pour les masses effectives, l'effet des bandes éloignées peut se traduire par un terme supplémentaire $\tilde{g} > 0$, symétrique pour L_6^+ et L_6^- :

$$g_{L_6^+ \alpha, \beta} = g \pm \tilde{g}$$

$$g_{L_6^- \alpha, \beta} = g \mp \tilde{g}$$

Ainsi, l'effet des bandes éloignées va dans le même sens que l'interaction à deux bandes (voir paragraphe I.c.ii) Le résultat trouvé plus haut nous permet d'écrire :

$$\tilde{g}\mu_B B = \frac{\hbar e B}{\tilde{m}}$$

Cette approximation est extrêmement simplificatrice et justifiée par le calcul précédent et par les valeurs expérimentales recensées qui sont $5 < \tilde{g} < 10$ et $0.2m_0 < \tilde{m} < 0.4m_0$. On peut assez aisément négliger la correction du facteur g selon l'axe z , comme on a négligé $\tilde{\mu}$. Il suffit alors de rajouter dans $H_L(B)$ les termes diagonaux de type Zeeman. L'hamiltonien décrivant intégralement $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ dans la base $(L_6^+ \alpha | n-1 \rangle ; L_6^+ \beta | n \rangle ; L_6^- \alpha | n-1 \rangle ; L_6^- \beta | n \rangle)$ est donc le suivant :

$$H_n(B) = \begin{pmatrix} -\Delta - \hbar\tilde{\omega}(n-1) & 0 & \hbar v_z k_z & v_{\parallel} \sqrt{2e\hbar B n} \\ 0 & -\Delta - \hbar\tilde{\omega}(n+1) & v_{\parallel} \sqrt{2e\hbar B n} & -\hbar v_z k_z \\ \hbar v_z k_z & v_{\parallel} \sqrt{2e\hbar B n} & \Delta + \hbar\tilde{\omega}(n-1) & 0 \\ v_{\parallel} \sqrt{2e\hbar B n} & -\hbar v_z k_z & 0 & \Delta + \hbar\tilde{\omega}(n+1) \end{pmatrix}$$

Et les deux niveaux $n = 0$ vérifient dans la base $(L_6^+ \beta | 0 \rangle ; L_6^- \beta | 0 \rangle)$:

$$H_0(B) = \begin{pmatrix} -\Delta - \hbar\tilde{\omega} & -\hbar v_z k_z \\ -\hbar v_z k_z & \Delta + \hbar\tilde{\omega} \end{pmatrix}$$

où l'on a défini $\tilde{\omega} = eB/\tilde{m}$ la correction des bandes lointaines sur la pulsation cyclotron dans le modèle à deux bandes : $\omega = eBv_{\parallel}^2/\Delta$.

iii. Description des niveaux de Landau de PbSnSe

Les valeurs propres de $H_n(B)$ sont analytiques pour $k_z = 0$, l'hamiltonien est alors transformé en deux matrices 2x2 découplées. Pour $n > 0$, les solutions sur les composantes ($L_6^+\alpha|n-1\rangle$; $L_6^-\beta|n\rangle$) sont :

$$E_{L_6^+\alpha, L_6^-\beta} = \hbar\tilde{\omega} \mp \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 n + (\hbar\tilde{\omega})^2 n^2}$$

Et celles sur les composantes ($L_6^+\beta|n+1\rangle$; $L_6^-\alpha|n\rangle$) s'écrivent :

$$E_{L_6^+\beta, L_6^-\alpha} = -\hbar\tilde{\omega} \mp \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 n + (\hbar\tilde{\omega})^2 n^2}$$

Pour rappel, on a défini $v_D^2 = v_{\parallel}^2 + \Delta/\tilde{m}$. Les niveaux $n = 0$, toujours pour $k_z = 0$, s'expriment sur les composantes $L_6^+\beta|0\rangle$ et $L_6^-\beta|0\rangle$ respectivement :

$$E_{L_6^+\beta} = -\Delta - \hbar\tilde{\omega}$$

$$E_{L_6^-\beta} = \Delta + \hbar\tilde{\omega}$$

Ces niveaux de Landau sont tracés sur la Fig. 2-5 dans les cas trivial ($\Delta > 0$) et topologique ($\Delta < 0$). On peut commenter ces résultats :

- (i) Les niveaux de Landau sont en première approximation ceux du graphène. On retrouve une des spécificités de l'équation de Dirac. Ils dispersent presque en \sqrt{B} , ce qui vient directement de la structure de bande quasi-linéaire due à la faible valeur de Δ . Ce phénomène est aussi appelé la non-parabolicité, qui est bien connu dans les semiconducteurs à petit gap.¹⁷
- (ii) L'effet des bandes éloignées est de repousser les composantes L_6^+ vers les basses énergies et les composantes L_6^- vers les hautes énergies, et ce quel que soit le caractère topologique de PbSnSe, car l'ordre des bandes lointaines, lui, ne s'inverse pas. Cette tendance est très claire pour les niveaux $n = 0$ (voir Fig. 2-5) et peut donc simplement s'expliquer en termes de symétrie des fonctions de Bloch.
- (iii) On a vu que le facteur de Landé est équivalent à l'énergie qui sépare deux niveaux de Landau d'indices successifs. On voit sur la Fig. 2-5(a) par exemple que le niveau 0α se retrouve proche du niveau 1β . Il est donc plus commode de « décaler » l'indice des composantes α et ainsi obtenir la nomenclature décrite à droite des flèches sur la Fig. 2-5. Ainsi, les niveaux $n\alpha$ seront désormais nommés $(n+1)\alpha$. On utilisera cette dernière pour interpréter les résultats expérimentaux qui vont suivre.

Les expressions analytiques ont été écrites pour un matériau trivial dans lequel $\Delta > 0$ (Fig. 2-5(a)). Dans le cas topologique, les expressions des niveaux $n = 0$ restent inchangées, comme le montre la Fig. 2-5(b). En revanche, les niveaux de Landau d'indices supérieurs s'écrivent alors :

$$E_{L_6^+\alpha, L_6^-\beta} = \hbar\tilde{\omega} \pm \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 n + (\hbar\tilde{\omega})^2 n^2}$$

$$E_{L_6^{\pm\beta}, L_6^{\pm\alpha}} = -\hbar\tilde{\omega} \pm \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 n + (\hbar\tilde{\omega})^2 n^2}$$

Ainsi, l'ordre des composantes α et β est échangé selon le caractère topologique de PbSnSe. On peut s'en convaincre si l'on considère les composantes majoritaires de spin dans PbSnSe. Elles sont représentées sur la Fig. 2-5 en rouge et en bleu pour les spins \uparrow et \downarrow respectivement. Le spin \uparrow a toujours l'énergie la plus grande.

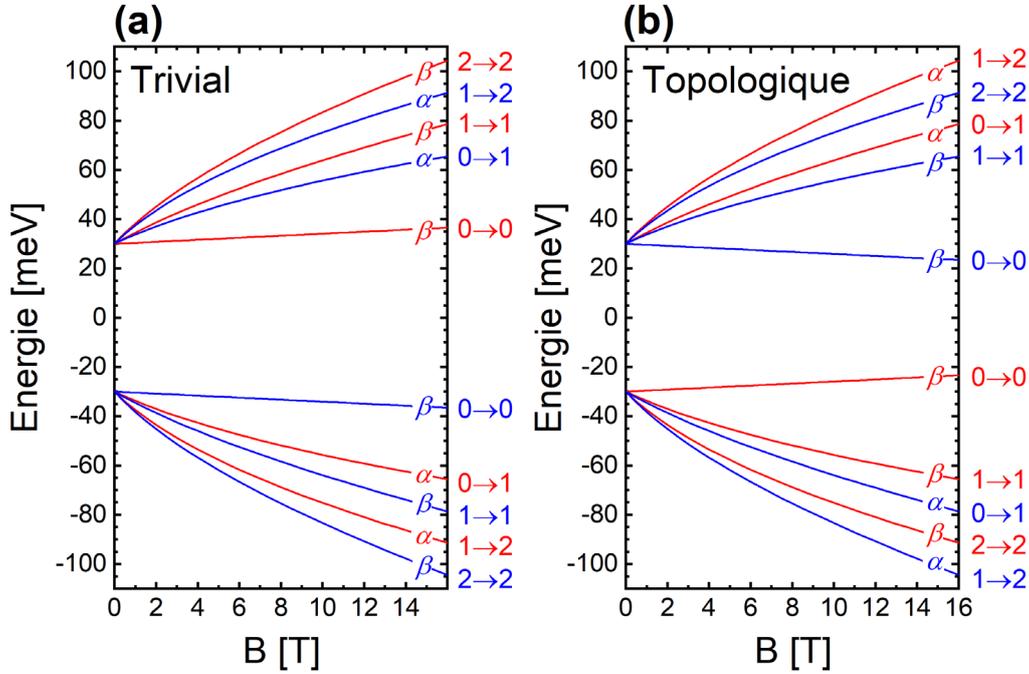


Figure 2-5. Niveaux de Landau à $k_z = 0$ typiques d'un alliage PbSnSe trivial **(a)** et topologique **(b)**. Chaque niveau est indexé par un indice n à droite et une composante de Kramers α ou β sur la figure. Les couleurs correspondent à la composante de spin majoritaire pour chaque niveau : le spin \uparrow est en rouge et le spin \downarrow en bleu. Les indices n à gauche de la flèche correspondent aux indices bruts théoriques. La nouvelle nomenclature, utilisée expérimentalement et pour laquelle les indices des composantes α ont été décalés, est écrite à droite des flèches.

iv. Anisotropie

On a vu que les surfaces d'énergie constante de PbSnSe sont des ellipsoïdes dont le grand axe est orienté différemment selon les vallées et l'orientation du cristal (voir partie I.iii.a).⁶⁹ Par rapport à un champ magnétique orienté selon l'axe de croissance de PbSnSe, trois types de surface d'énergie constante, dessinées sur la Fig. 2-6, sont observées.

Ainsi, pour PbSnSe orienté selon [001], on a quatre vallées dont l'angle entre leur plus grand axe et [001] vaut 53° . Pour l'orientation cristalline [111], deux types de vallées sont présents : la vallée longitudinale a son plus grand axe selon la direction [111] et les trois vallées obliques sont tiltées d'un angle de 70.5° . Le champ magnétique fait circuler les électrons sur des orbites cyclotrons d'énergie constante dans le plan perpendiculaire à sa direction. La forme de ses orbites vient donc de la projection de la section d'ellipsoïde coupant le plan perpendiculaire à \mathbf{B} . Ces coupes sont représentées sur la Fig. 2-6. Pour la vallée longitudinale, l'orbite cyclotron est circulaire alors que les vallées obliques ont des orbites cyclotrons elliptiques. La masse cyclotron, donnée par la variation de l'aire de la section extrême, est donc différente selon la vallée. Plus la vallée est tiltée, plus elle sera lourde. Pour rendre

compte de ce phénomène, il a été montré qu'il suffit de changer la valeur de v_{\parallel} selon la vallée. On peut faire subir une rotation à la base de l'hamiltonien pour faire coïncider l'axe z avec le grand axe des vallées obliques et cela revient à changer la valeur de v_{\parallel} .^{61,69} On peut donc définir $v_D(0) = v_{D,l}$ comme étant la vitesse de la vallée longitudinale et $v_D(70.5^\circ) = v_{D,o}$ celle des vallées obliques. On peut par une simple moyenne géométrique sur les masses cyclotrons dériver une formule pour $v_D(\theta)$:⁷⁰

$$v_D(\theta) = v_{D,l} \left(\frac{1}{K^2} \sin^2 \theta + \cos^2 \theta \right)^{1/4}$$

Pour les vallées obliques, on a donc :

$$\begin{cases} \text{Pour } B//[111], \theta = 70.5^\circ, & v_{D,o} = v_{D,l} \left(\frac{8}{9} \frac{1}{K^2} + \frac{1}{9} \right)^{1/4} \\ \text{Pour } B//[001], \theta = 53^\circ, & v_{D,o} = v_{D,[001]} \left(\frac{16}{25} \frac{1}{K^2} + \frac{9}{25} \right)^{1/4} \end{cases}$$

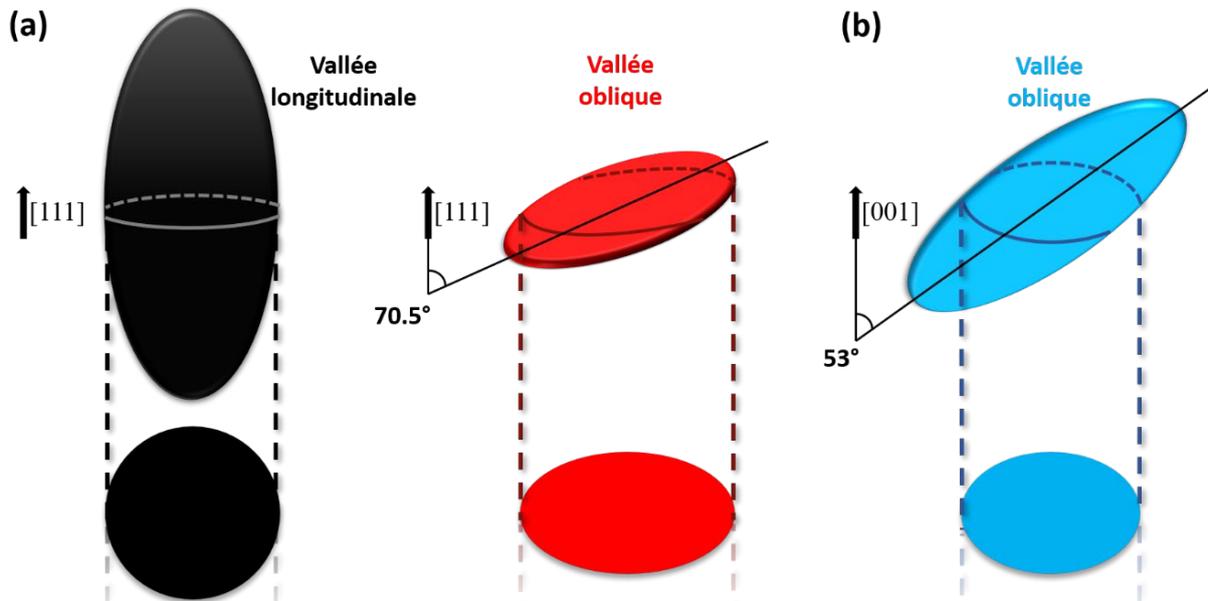


Figure 2-6. Illustration des différentes surfaces d'énergie constante que PbSnSe peut exhiber pour $B//[111]$ (a) et $B//[001]$ (b). En (a) sont représentées la vallée longitudinale en noir et les vallées obliques en rouge. La vallée longitudinale a son grand axe orienté selon $[111]$ alors que celui des vallées obliques fait un angle égal à 70.5° avec B . La forme de l'orbite électronique pour chaque vallée est projetée en dessous de l'ellipsoïde. Pour $B//[001]$ (b), il n'y a que des vallées obliques tiltées de 53° par rapport à B .

On peut remarquer que le facteur d'anisotropie n'a de sens que pour la vallée longitudinale : $K = v_{D,l}/v_{z,l}$. En aucun cas K n'est égal à $v_{D,o}/v_{z,o}$ car $v_{D,o}$ ne correspond pas à une section extrême de la surface d'énergie constante (voir Fig. 2-6). Une simple moyenne arithmétique sur les masses cyclotrons permet d'avoir accès à $v_{z,o}$:

$$v_z(\theta) = v_{D,l} \left(\sin^2 \theta + \frac{1}{K^2} \cos^2 \theta \right)^{1/2}$$

Donc :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Pour } B//[111], \theta = 70.5^\circ, \quad v_{z,o} = v_{D,l} \left(\frac{8}{9} + \frac{1}{9K^2} \right)^{1/2} \\ \text{Pour } B//[001], \theta = 53^\circ, \quad v_{z,o} = v_{D,[001]} \left(\frac{16}{25} + \frac{9}{25K^2} \right)^{1/2} \end{array} \right.$$

En résumé, la forme des niveaux de Landau ne change pas selon les vallées mais seulement la « pente » de leur dispersion définie par le paramètre $v_D(\theta)$. A noter que, rigoureusement, le paramètre \tilde{m} qui corrige la masse cyclotron devrait également dépendre de la vallée. Toutefois, cet effet étant très faible, on le négligera complètement dans la suite.⁷⁰

v. Règles de sélection magnéto-optique

Nous allons maintenant rapprocher la théorie de l'expérience de magnéto-optique. Dans cette expérience, nous allons devoir interpréter des absorptions entre niveaux de Landau. Ces énergies d'absorption seront comparées avec les niveaux de Landau calculés plus haut. Le tout est de savoir entre quels niveaux de Landau l'électron transite.

Le champ électromagnétique de l'onde incidente, de la forme $E_0 \cos(\omega t - \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \boldsymbol{\varepsilon}$, dérive d'un potentiel vecteur $\mathbf{A} = \frac{iE_0}{2\omega} [\exp(i(\omega t - \mathbf{q} \cdot \mathbf{r})) - \exp(-i(\omega t - \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}))] \boldsymbol{\varepsilon}$. La perturbation dépendante du temps s'écrit donc dans l'approximation dipolaire :

$$V = \frac{e}{2m_0} [\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}] = \frac{ieE_0}{2\omega m_0} [e^{i\omega t} - e^{-i\omega t}] \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p}$$

La probabilité d'une transition magnéto-optique d'un état i d'énergie E_i vers un état f d'énergie E_f est donc donnée par la règle d'or de Fermi :

$$P_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | V | i \rangle|^2 \delta[E_f - E_i - \hbar\omega] = \frac{\pi e^2 E_0^2}{2\hbar\omega^2 m_0^2} |\langle f | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | i \rangle|^2 \delta[E_f - E_i - \hbar\omega]$$

Celle-ci est donc proportionnelle au terme $\delta[E_f - E_i - \hbar\omega]$ entre l'état final et initial de la transition. Pour une transition impliquant deux bandes, il faut sommer sur tous les états i et f de ces bandes. Lorsque les dispersions des deux bandes sont de concavités opposées, le terme $\sum_{i,f} \delta[E_f - E_i - \hbar\omega]$ est fortement lié à la densité d'état jointe. Des niveaux de Landau ne dispersant que dans une dimension (selon k_z) ont une densité d'état jointe qui diverge en $k_z = 0$ et donc $P_{i \rightarrow f}$ sera infinie en ce point. On peut donc d'ores et déjà conclure que toute transition magnéto-optique interbande se tiendra en bord de bande, à $k_z = 0$. Les transitions intrabandes n'ont, elles, aucun impératif pour avoir lieu à $k_z = 0$. Le cas des intrabandes sera plus amplement décrit dans la suite.

Le reste des règles de sélection est donné par l'élément de matrice $|M|^2 = |\langle \phi_f | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | \phi_i \rangle|^2$, où $\boldsymbol{\varepsilon}$ est le vecteur polarisation (il est commode d'écrire $\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} = \varepsilon_+ p_+ + \varepsilon_- p_- + \varepsilon_z p_z$) et $\phi_{i,f}$ les fonctions d'onde des états initiaux et finaux. La partie onde plane de ϕ nous indique que les transitions magnéto-optique conservent le vecteur d'onde. En omettant ce terme, on peut écrire ϕ comme produit d'une fonction de Bloch avec une fonction d'oscillateur harmonique et des vecteurs propres de $H_n(B)$:

$$(\alpha_{+,n} \times L_6^+ \alpha \times |n-1\rangle) + (\beta_{+,n} \times L_6^+ \beta \times |n\rangle) + (\alpha_{-,n} \times L_6^- \alpha \times |n-1\rangle) + (\beta_{-,n} \times L_6^- \beta \times |n\rangle)$$

La variation rapide des fonctions de Bloch à l'échelle des k permet de réécrire l'élément de matrice sous la forme :

$$M = \langle \phi_f | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | \phi_i \rangle = \alpha, \beta_{\pm, n_f}^* \alpha, \beta_{\pm, n_i} \langle n_f | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | n_i \rangle [\langle L_6^{\pm} \alpha, \beta | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | L_6^{\pm} \alpha, \beta \rangle + \langle L_6^{\pm} \alpha, \beta | L_6^{\pm} \alpha, \beta \rangle]$$

Les transitions interbandes (intra-band) impliquent que le second (premier) terme entre crochets est nul.

a) Transitions interbandes

Pour alléger les calculs, les règles de sélection sont déterminées en séparant les cas selon la polarisation de l'onde lumineuse incidente.

En configuration de Faraday, l'onde électromagnétique incidente se propage parallèlement au champ magnétique appliqué. Pour un champ magnétique selon z , on a donc $\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} = \varepsilon_+ p_+ + \varepsilon_- p_-$. Les seuls éléments de matrice non nuls sont donc ceux du type $\langle L_6^{\pm} \alpha | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | L_6^{\mp} \beta \rangle$ ou $\langle L_6^{\pm} \beta | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | L_6^{\mp} \alpha \rangle$. On peut dès à présent conclure qu'une transition interbande ne peut se tenir qu'en renversant la composante α ou β , c'est-à-dire en conservant le spin pur majoritaire.

En ne gardant que les termes non nuls, si l'on considère l'élément de matrice M_{\pm} pour une transition d'un niveau de Landau n vers un niveau n' avec une polarisation droite ou gauche respectivement on obtient :

$$M_- / \varepsilon_- P_{\parallel} = [\alpha_{+, n'}^* \beta_{-, n} + \alpha_{-, n'}^* \beta_{+, n}] \langle n' - 1 | n - 1 \rangle + [\beta_{+, n}^* \alpha_{-, n'} + \beta_{-, n}^* \alpha_{+, n'}] \langle n' | n - 2 \rangle$$

$$M_+ / \varepsilon_+ P_{\parallel} = [\beta_{+, n'}^* \alpha_{-, n} + \beta_{-, n'}^* \alpha_{+, n}] \langle n' | n \rangle + [\alpha_{+, n}^* \beta_{-, n'} + \alpha_{-, n}^* \beta_{+, n'}] \langle n' - 1 | n + 1 \rangle$$

On remarque donc que la polarisation gauche active les transitions de type $\beta \rightarrow \alpha$ avec soit $n \rightarrow n$ soit $n \rightarrow n - 2$. A l'inverse, la polarisation droite permet les transitions de type $\alpha \rightarrow \beta$ avec soit $n \rightarrow n$ soit $n \rightarrow n + 2$. Ces transitions interbandes permises sont dessinées sur la Fig. 2-7(a). Dans la nomenclature expérimentale (indices à droite des flèches sur la figure) les interbandes obéissent aux règles de sélection $\alpha \leftrightarrow \beta$ (soit $\Delta\sigma = 0$) et $\Delta n = \pm 1$, ce qui est bien plus pratique.

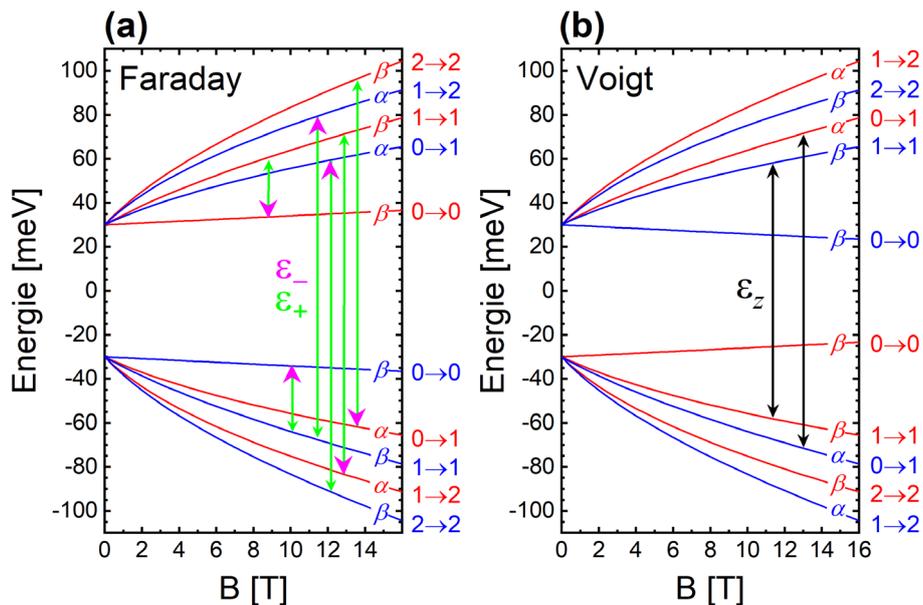


Figure 2-7. Niveaux de Landau de PbSnSe avec quelques transitions marquées pour illustrer les règles de sélection magnéto-optique en géométrie de Faraday (a) et de Voigt (b). Les transitions autorisées sont de couleur verte, magenta, ou noire si elles sont permises par une polarisation ε_+ , ε_- (a) ou ε_z (b) respectivement.

Dans la géométrie Voigt, la radiation infrarouge se propage perpendiculairement au champ magnétique appliqué. On considère ici $\boldsymbol{\varepsilon} // \mathbf{B}$ et donc $\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} = \varepsilon_z p_z$. Les seuls éléments de matrice non nuls sont alors ceux du type $\langle L_6^\pm \alpha | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | L_6^\mp \alpha \rangle$ et $\langle L_6^\pm \beta | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} | L_6^\mp \beta \rangle$ et donc les transitions impliqueront des niveaux de même composante de Kramers (soit $\Delta\sigma = \pm 1$). On calcule l'élément de matrice :

$$M_z / \varepsilon_z P_z = [\alpha_{+,n'}^* \alpha_{-,n} + \alpha_{-,n'}^* \alpha_{+,n}] \langle n' - 1 | n - 1 \rangle - [\beta_{+,n'}^* \beta_{-,n} + \beta_{-,n'}^* \beta_{+,n}] \langle n' | n \rangle$$

De ce fait, les transitions autorisées sont celles pour lesquelles $\Delta n = 0$. Cette règle reste vraie dans l'autre nomenclature. Les transitions interbandes permises sont tracées Fig. 2-7(b).

b) Transitions intrabandes

La probabilité d'une transition intrabande, aussi appelée résonance cyclotron, est donnée par un élément de matrice de la forme :

$$M = \alpha, \beta_{\pm, n_f}^* \alpha, \beta_{\pm, n_i} \langle n_f | n_i \rangle \langle L_6^\pm \alpha, \beta | L_6^\pm \alpha, \beta \rangle$$

Les éléments non nuls sont alors ceux entre même composantes de Kramers. En effet, par exemple :

$$\langle L_6^+ \alpha | L_6^+ \beta \rangle = \text{icos}\theta^+ \text{sin}\theta^+ \langle R | S_- \rangle - \text{icos}\theta^+ \text{sin}\theta^+ \langle S_+ | R \rangle = 0$$

Les transitions intrabandes doivent donc vérifier $\alpha \rightarrow \alpha$ ou $\beta \rightarrow \beta$ (ou bien $\Delta\sigma = 0$, car l'électron reste au sein d'une même bande). Plus précisément, les éléments de matrice pour une transition entre un niveau n vers n' pour chaque polarisation sont donnés par :

$$\begin{aligned} M_- / \varepsilon_- &= [\alpha_{+,n'}^* \alpha_{+,n} + \alpha_{-,n'}^* \alpha_{-,n}] \langle n' - 1 | n - 2 \rangle + [\beta_{+,n'}^* \beta_{+,n} + \beta_{-,n'}^* \beta_{-,n}] \langle n' | n - 1 \rangle \\ M_+ / \varepsilon_+ &= [\alpha_{+,n'}^* \alpha_{+,n} + \alpha_{-,n'}^* \alpha_{-,n}] \langle n' - 1 | n \rangle + [\beta_{+,n'}^* \beta_{+,n} + \beta_{-,n'}^* \beta_{-,n}] \langle n' | n + 1 \rangle \\ M_z / \varepsilon_z &= [\alpha_{+,n'}^* \alpha_{+,n} + \alpha_{-,n'}^* \alpha_{-,n}] \langle n' - 1 | n - 1 \rangle + [\beta_{+,n'}^* \beta_{+,n} + \beta_{-,n'}^* \beta_{-,n}] \langle n' | n \rangle = 0 \end{aligned}$$

Il n'y donc pas de résonance cyclotron en géométrie Voigt. La géométrie Faraday permet d'observer des transitions intrabandes vérifiant $\Delta\sigma = 0$ et $\Delta n = \pm 1$ (\pm pour ε_\pm). Ces règles persistent dans la nomenclature expérimentale. Les transitions intrabandes principales sont tracées sur la Fig. 2-7(a).

Les règles de sélections magnéto-optique pour PbSnSe sont résumées sur le Tableau I, en considérant les deux nomenclatures possibles. En pratique, nous ne nous placerons jamais dans la configuration Voigt puisqu'alors le champ magnétique n'est plus aligné avec [111] ou [001] et le problème d'anisotropie de vallée devient très complexe (voir paragraphe II.iv). Expérimentalement, nous serons donc toujours en géométrie de Faraday avec une polarisation circulaire mélangée ($\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{p} = \varepsilon_+ p_+ + \varepsilon_- p_-$). Dans cette situation les énergies de transitions interbandes à $k_z = 0$ et intrabandes à k_z quelconque se résument à :

$$\begin{aligned} E_{inter} &= \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 (n \pm 1) + (\hbar\tilde{\omega})^2 (n \pm 1)^2} + \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 n + (\hbar\tilde{\omega})^2 n^2} \\ E_{intra} &= \left| \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 (n \pm 1) + (\hbar\tilde{\omega})^2 (n \pm 1)^2 + \hbar^2 v_z^2 k_z^2} \right. \\ &\quad \left. - \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 n + (\hbar\tilde{\omega})^2 n^2 + \hbar^2 v_z^2 k_z^2} \right| \end{aligned}$$

n est ici l'indice renormalisé pour lequel l'indice des composantes α a été incrémenté de 1.

Tableau I. Règles de sélection magnéto-optique pour PbSnSe dans les différents types de transition, configuration et polarisation.

Type	Configuration	Polarisation	Spin effectif	Spin	Indice	Indice renormé
Interbande	Faraday	ϵ_-	$\beta \rightarrow \alpha$	$\uparrow \rightarrow \uparrow$ $\downarrow \rightarrow \downarrow$	$n \rightarrow n - 2$ $n \rightarrow n$	$n \rightarrow n \pm 1$
		ϵ_+	$\alpha \rightarrow \beta$	$\uparrow \rightarrow \uparrow$ $\downarrow \rightarrow \downarrow$	$n \rightarrow n + 2$ $n \rightarrow n$	$n \rightarrow n \pm 1$
	Voigt	ϵ_z	$\alpha \rightarrow \alpha$ $\beta \rightarrow \beta$	$\uparrow \rightarrow \downarrow$ $\downarrow \rightarrow \uparrow$	$n \rightarrow n$	$n \rightarrow n$
Intrabande	Faraday	ϵ_-	$\alpha \rightarrow \alpha$ $\beta \rightarrow \beta$	$\uparrow \rightarrow \uparrow$ $\downarrow \rightarrow \downarrow$	$n \rightarrow n - 1$	$n \rightarrow n - 1$
		ϵ_+	$\alpha \rightarrow \alpha$ $\beta \rightarrow \beta$	$\uparrow \rightarrow \uparrow$ $\downarrow \rightarrow \downarrow$	$n \rightarrow n + 1$	$n \rightarrow n + 1$
	Voigt	ϵ_z	$\alpha \rightarrow \alpha$ $\beta \rightarrow \beta$	$\uparrow \rightarrow \uparrow$ $\downarrow \rightarrow \downarrow$	$n \rightarrow n$	$n \rightarrow n$

Cela met un point final à l'étude théorique des propriétés électroniques basiques d'un alliage $Pb_{1-x}Sn_xSe$ massif. Ces fondations nous seront très utiles par la suite pour pouvoir interpréter de la meilleure des manières les expériences de magnéto-optique. Elles serviront également de point de départ pour l'étude des hétérostructures à base de PbSnSe, ainsi qu'à cerner aisément d'autres effets pseudo-relativistes comme l'effet Hall quantique de spin ou l'effet Hall quantique anormal.

III. Mise en évidence de la transition de phase topologique induite par la composition chimique

i. Croissance et caractérisations structurales de $Pb_{1-x}Sn_xSe$

Dans cette partie, les échantillons étudiés sont des films épais de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ($\sim 2 \mu m$) épitaxiés par jets moléculaires (MBE) par l'équipe de G. Bauer et G. Springholz à l'Université de Linz. Les films sont épitaxiés sur un substrat de BaF_2 orienté selon [111]. Ce substrat est très isolant et donc optiquement transparent dans notre gamme de mesure. Toutefois, il possède une large bande de « reststrahlen », c'est-à-dire une bande d'absorption due aux phonons, de 180 à 480 cm^{-1} (22 à 60 meV).

Pour le moment, tous les échantillons discutés sont épitaxiés selon [111]. Un grand nombre d'échantillons a été fabriqué dans une large gamme de concentration en étain : $[0 ; 30] \%$. L'épitaxie par jet moléculaire est précédée à partir de deux sources : $PbSe$ et Sn . La teneur en étain est contrôlée par le flux d'atome Sn dans la chambre de croissance, lui-même contrôlé par la température de la cellule d'étain. Sa teneur est alors ciblée avec une erreur de $\pm 1 \%$. Des échantillons de très haute mobilité avec une faible densité de porteurs sont ainsi obtenus. Typiquement, ces films épais ont des mobilités de quelques $10000 \text{ cm}^2/V.s$ à basse température et des densités de porteurs de l'ordre de 10^{17} cm^{-3} .⁷¹

Le désaccord entre les paramètres de maille du substrat et de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ provoque la relaxation du matériau par rapport à son substrat dès 10 nm d'épaisseur. Un réseau dense de dislocations se construit alors et assure le lien entre substrat et matériau.⁷² Les dislocations dans $PbSe$ au-delà de ces 10 nm , du fait de la structure cristalline, sont très mobiles. Ceci permet une diminution exponentielle de la densité de dislocations avec l'épaisseur du matériau et donc une amélioration considérable de la qualité cristalline. Cependant, la qualité des échantillons se détériore avec x , car la structure de type $NaCl$ devient de moins en moins souple à cause de la différence de rayons ioniques entre Pb^{2+} et Sn^{2+} . Cela diminue la mobilité des dislocations, ce qui affecte la qualité des propriétés électroniques. De plus, une importante concentration de Sn conduit à l'apparition de lacunes. Les échantillons à forte teneur en étain sont donc généralement de type p . Pour $x > 0.20$, un dopage modéré au bismuth est nécessaire pour garder une densité de porteur correcte. Pour toutes ces raisons, la qualité cristalline se détériore pour $x > 0.30$ et ne permet plus une étude des propriétés électroniques.

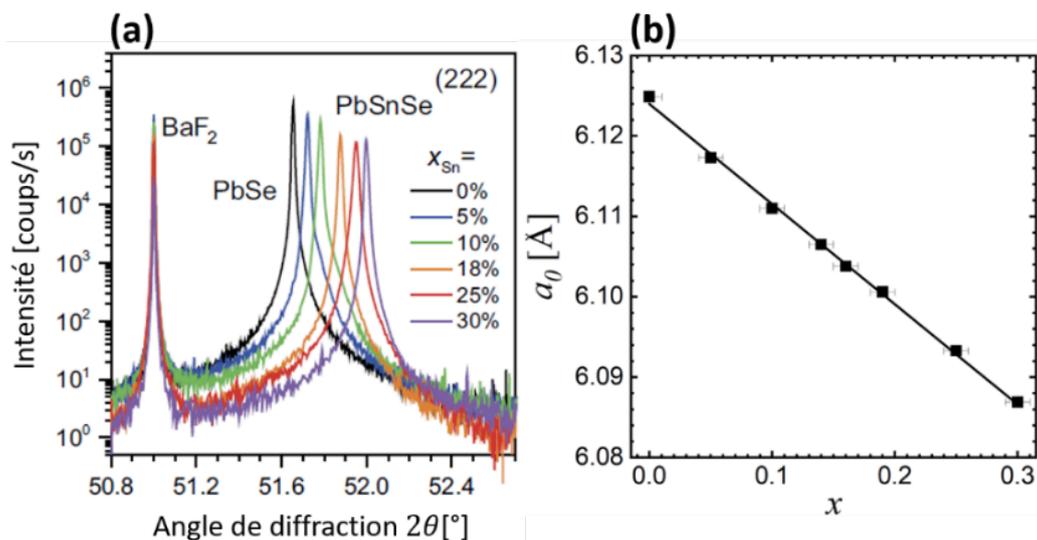


Figure 2-8. (a) Spectres de diffraction aux rayons X autour du pic (222) pour des alliages de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ avec $0 < x < 0.3$. (b) Variation du paramètre de maille a_0 en fonction de la teneur en étain. La ligne continue représente la loi de Vegard pour les alliages $Pb_{1-x}Sn_xSe$.

L'étude des diffractions du cristal aux rayons X en variant la composition chimique de l'alliage $Pb_{1-x}Sn_xSe$ est présentée sur la Fig. 2-8(a).⁶⁵ Le pic de diffraction des plans (222) permet d'obtenir d'une façon très précise le paramètre de maille selon [111] a_0 du matériau. La loi de Bragg fournit par exemple pour PbSe ($2\theta = 51.63^\circ$ sur la Fig. 2-8(a)) :

$$\frac{2a_0 \sin\theta}{\sqrt{2^2 + 2^2 + 2^2}} = \lambda(Cu-K\alpha) = 1.54 \text{ \AA} \Leftrightarrow a_0 = \frac{\lambda\sqrt{12}}{2\sin\theta} = 6.125 \text{ \AA}$$

Le pic (222) possède une largeur à mi-hauteur très faible, ce qui témoigne d'une structure cristalline très précise et régulière. Ce pic se décale vers les grands angles de diffraction à mesure que la teneur en étain augmente. Le paramètre de maille de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ diminue donc lorsque x augmente, comme l'illustre la Fig. 2-8(b). On le comprend tout à fait vu que l'ion étain II qui substitue le cation plomb II est plus petit. La dépendance linéaire en x de a_0 , loi de Vegard, s'écrit :

$$a_0(x) = 6.124 - 0.1246 x \quad (\text{\AA})$$

Le pic de diffraction du substrat est également observé sur la Fig. 2-8(a). Le paramètre de maille du substrat est plus grand que celui de PbSe. On peut calculer un désaccord de $\sim -1\%$ entraînant la relaxation du matériau pour des épaisseurs de plus de 10 nm. Le pic attribué à BaF_2 est bien séparé de celui de $Pb_{1-x}Sn_xSe$, ce qui confirme que le film est relaxé par rapport au substrat.

ii. Magnéto-optique dans les alliages de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ à 4.2 K

Nous avons mesuré en magnéto-optique de nombreux échantillons pour lesquels x varie de 0 à 0.30. Dans cette partie, les expériences ont été réalisées à 4.2 K et en configuration Faraday. Les spectres magnéto-optiques de certains échantillons, notés « M-x » pour « massif-teueur en étain » sont présentés en Fig. 2-9(a,b,c,d). Ils montrent la transmission de l'échantillon à un champ magnétique donné, normalisée par la transmission à champ nul. De cette manière, l'expérience s'affranchit des absorptions liées au dispositif expérimental (séparatrice, fenêtre, filtres éventuels, ...) et les absorptions magnéto-optiques sont mises en évidence.

De nombreux pics d'absorption sont observés pour chaque spectre. La haute mobilité des échantillons permet une quantification de Landau dès les très faibles champs (~ 1 T pour M-10 ou M-14 par exemple) et des raies d'absorptions très fines repérées par des flèches sur les Fig. 2-9(a,b,c,d). L'idée est de suivre l'évolution des minima d'absorptions en fonction du champ magnétique. Elles sont répertoriées par des points sur les Fig. 2-9(e,f,g,h). Ces énergies sont ensuite comparées aux transitions entre niveaux de Landau calculées théoriquement (voir paragraphe II) et tracées en lignes pleines sur ces mêmes figures. Pour ajuster la théorie à l'expérience, on dispose de trois paramètres dans le modèle pour chaque type de vallée :

- (i) Le gap 2Δ , dont la valeur absolue est déterminée par l'énergie d'extrapolation des absorptions (surtout celle correspondant à la première interbande) jusqu'à $B = 0$. Le gap $2|\Delta|$ est déduit de manière très précise à ± 2.5 meV près.
- (ii) La vitesse électronique des vallées longitudinales $v_{D,l}$ et obliques $v_{D,o}$ qui déterminent « la pente » des transitions. On les obtient généralement avec une barre d'erreur de $\pm 0.05 \times 10^5$ m/s.
- (iii) L'effet des bandes éloignées \tilde{m} qui déterminent « la pente » des transitions à fort champ. Cette correction étant assez faible, l'erreur faite est souvent de $\pm 0.08 m_0$. C'est pourquoi \tilde{m} est pris indépendant de x .

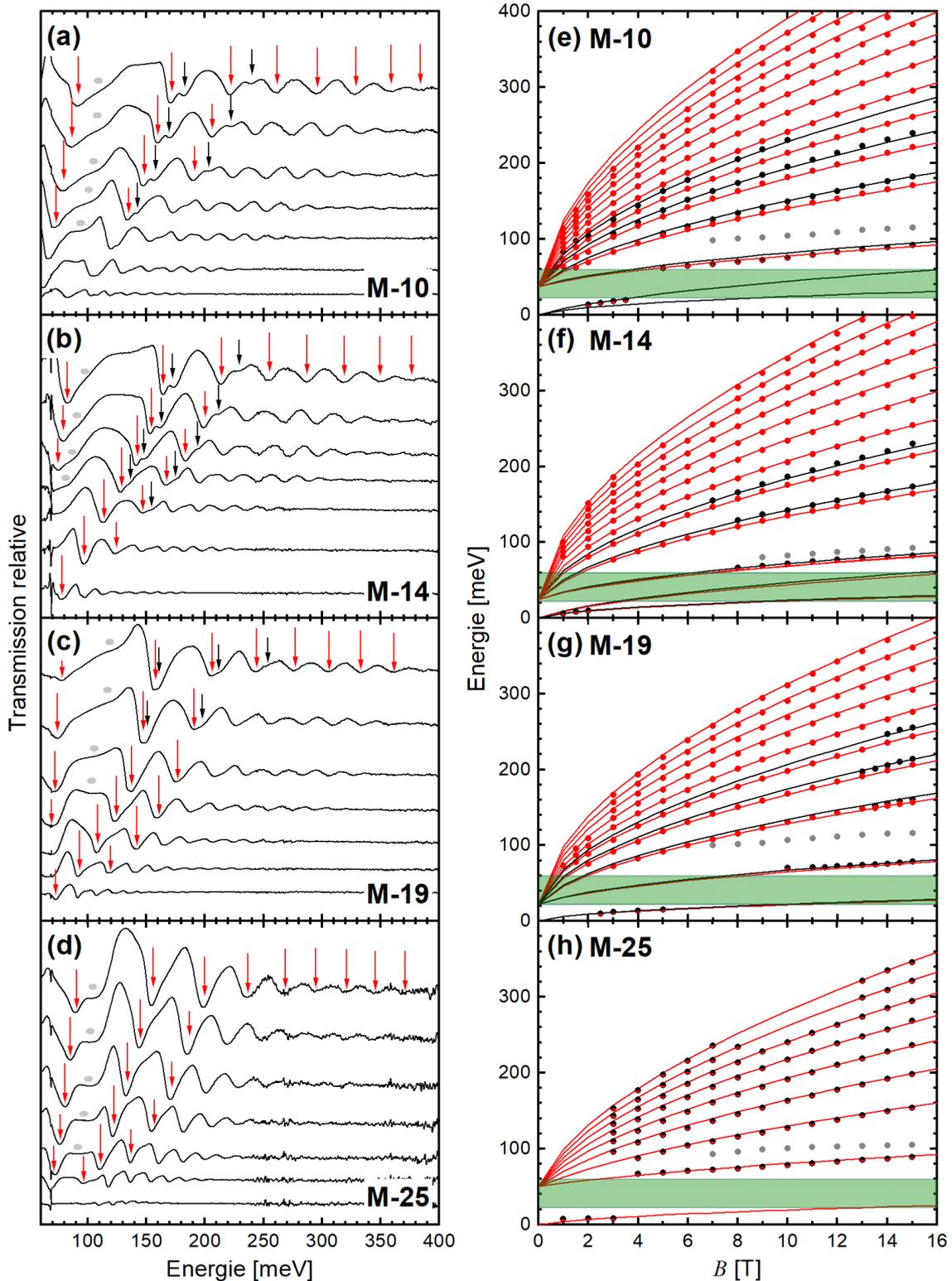


Figure 2-9. Spectres de transmission magnéto-optiques normalisés par le spectre obtenu à $B = 0$ pour l'échantillon M-10 (a), M-14 (b), M-19 (c) et M-25 (d). Les spectres sont tracés pour des champs allant de 3 à 15 T par pas de 2 T. Les absorptions observées sont marquées par des points gris, ou des flèches rouges et noires pour les vallées obliques et longitudinale respectivement. (e,f,g,h) Accord théorie expérience pour M-10, M-14, M-19 et M-25 respectivement. Les énergies des minima d'absorption sont reportées par des points et les lignes pleines représentent les transitions calculées en fonction du champ pour les vallées obliques en rouge et la vallée longitudinale en noir. Les paramètres ont été ajustés pour obtenir le meilleur accord entre la théorie et l'expérience. Les rectangles verts rendent compte de la bande de reststrahlen du substrat.

L'expérience est très bien rendue par notre modèle, comme nous le montre les Fig. 2-9(e,f,g,h). L'accord est très satisfaisant et permet une détermination précise des paramètres de la structure de bande. En effet, l'ajustement d'une dizaine de transitions ne s'effectue qu'avec trois paramètres. On observe, pour M-10 par exemple, des transitions entre des niveaux d'indices n très élevés ($n = 11$ et $n = 12$ par exemple) avec toujours un très bon accord, ce qui est remarquable. De plus, la finesse des raies ainsi que l'absence de dédoublement confirment la symétrie électron-trou quasi-parfaite de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$.

Les deux types de vallée sont résolus pour certains échantillons (voir Fig. 2-9(e,f,g)). En effet, deux séries de transitions entre niveaux de Landau (noire et rouge) sont observées. Elles amènent à la même énergie de gap mais à des vitesses différentes comme anticipé au paragraphe (II.iv). A basse énergie, en dessous du restrahten de BaF_2 , et à bas champ, on observe les résonances cyclotrons 1-2 ou 0-1. Pour ces intrabandes, les transitions théoriques ont été calculées à $k_z = 0$ seulement, pour simplifier. Ces transitions, ainsi que les absorptions marquées par des points gris seront discutées et interprétées plus loin.

a) Variations des paramètres en fonction de la composition chimique

L'ajustement des énergies de transitions théoriques sur les énergies d'absorption expérimentales a été effectué pour chaque échantillon de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ dans la gamme $0 < x < 0.30$.⁷³ Certains sont affichés sur la Fig. 2-9, l'intégralité des résultats est donnée par le Tableau II et tracée sur la Fig. 2-10.

On remarque que dans un premier temps, la valeur absolue du gap décroît lorsque x augmente, elle converge vers 0 puis, le gap se rouvre pour les grandes valeurs de x , comme illustré sur la Fig. 2-10(a). Ceci est la preuve expérimentale de l'inversion de gap dans $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$. La valeur minimale de $|\Delta|$ marque le point critique de la transition de phase topologique situé à $x_c \sim 0.16$. Pour $x > x_c$, $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ est dans son état topologique et atteint $2\Delta = -100$ meV pour $x = 0.30$. La variation du gap en fonction de la composition chimique peut se résumer par la relation empirique :

$$2\Delta(x) = 145 - 1410x + 4980x^2 - 9940x^3 \quad (\text{meV})$$

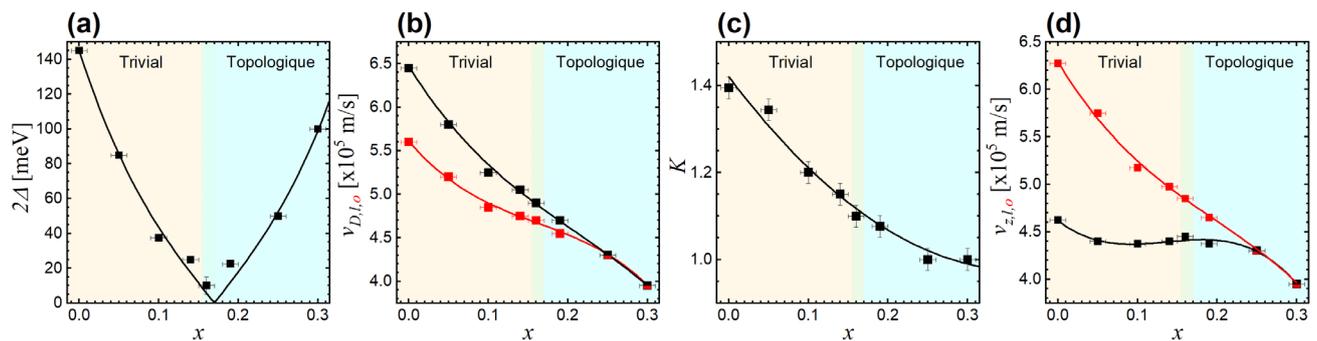


Figure 2-10. Variation de $2\Delta(x)$ (a), $v_{D,l}(x)$ (en noir) et $v_{D,o}(x)$ (en rouge) (b), $K(x)$ (c), et de $v_{F,l}(x)$ (en noir) et $v_{F,o}(x)$ (en rouge) (d) à $T = 4.2$ K. Les points sont tirés directement de l'expérience et les lignes sont les lois empiriques déterminées. La zone où $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ est trivial (topologique) est en jaune (bleu) pâle, avec une zone de transition floue $0.155 < x < 0.175$.

La variation avec x des vitesses électroniques de chaque vallée $v_{D,l}$ et $v_{D,o}$ est tracée sur la Fig. 2-10(b). On en tire les formules empiriques suivantes, représentées en lignes pleines :

$$v_{D,l} = 6.47 - 14.6 x + 39.5 x^2 - 62.8 x^3 \quad (\times 10^5 \text{ m/s})$$

$$v_{D,o} = 5.61 - 10.7 x + 45.3 x^2 - 93.3 x^3 \quad (\times 10^5 \text{ m/s})$$

Le facteur d'anisotropie $K(x)$ est tracé sur la Fig. 2-10(c). Il est déduit de l'expérience par :

$$\frac{1}{K^2} = \frac{9}{8} \left[\left(\frac{v_{D,o}}{v_{D,l}} \right)^4 - \frac{1}{9} \right]$$

D'où :

$$K(x) = 3.29 x^2 - 2.42 x + 1.42$$

Le facteur d'anisotropie exprime également le rapport entre le grand et petit axe de l'ellipsoïde dans l'espace réciproque. Il a été défini à partir de la vallée longitudinale soit $v_{D,l}/v_{z,l}$ mais on peut également en tirer $v_{z,o}$ (voir paragraphe II.iv). On peut donc aisément déduire $v_{z,l}$ et $v_{z,o}$ en fonction de x , comme représenté sur la Fig. 2-10(d). Les formules empiriques tracées sont obtenues par :

$$v_{z,l} = 4.62 - 6.57 x + 53.8 x^2 - 131 x^3 \quad (\times 10^5 \text{ m/s})$$

$$v_{z,o} = 6.29 - 13.9 x + 41.6 x^2 - 70.4 x^3 \quad (\times 10^5 \text{ m/s})$$

On vérifie que $v_{D,o} \leq v_{D,l}$, ou que $K \geq 1$ dans toute la gamme, car l'orbite cyclotron des vallées obliques est plus grande que celle de la vallée longitudinale (voir Fig. 2-6). Le fait que $v_{z,l} < v_{z,o}$ indique également que la masse effective longitudinale est plus lourde que la transverse. Les surfaces d'énergie constante sont donc des ellipsoïdes étirés selon l'axe z , comme dessiné sur la Fig. 2-3(d) ou la Fig. 2-6. Pour $x > 0.20$, K est très proche de 1 car la différence entre les énergies de transitions des deux vallées n'est plus résolue expérimentalement (voir Fig. 2-9). On peut en déduire que pour $0.20 < x < 0.30$, les deux types de vallées sont quasi-sphériques et que, $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ peut alors être considéré comme quasi-isotrope.

Tableau II. Paramètres de structure de bande de quelques échantillons à teneur en étain variable.

Paramètres	M-0	M-5	M-10	M-14	M-16	M-19	M-25	M-30
2Δ [meV]	145	85	37.5	25	10	-22.5	-50	-100
$v_{D,l}$ [$\times 10^5$ m/s]	6.45	5.80	5.25	5.05	4.90	4.70	4.30	3.95
$v_{z,l}$ [$\times 10^5$ m/s]	4.625	4.40	4.375	4.40	4.45	4.375	4.30	3.95
$v_{D,o}$ [$\times 10^5$ m/s]	5.60	5.20	4.85	4.75	4.70	4.55	4.30	3.95
$v_{z,o}$ [$\times 10^5$ m/s]	6.275	5.75	5.175	4.975	4.85	4.65	4.30	3.95
K	1.39	1.34	1.20	1.15	1.10	1.075	1.00	1.00
\tilde{m} [m_0]	0.28	0.28	0.28	0.28	0.28	0.28	0.28	0.28

Les vallées obliques étant trois fois plus nombreuses, on peut s'attendre à ce que les transitions entre niveaux de Landau dont elles sont issues soient plus intenses que celles de la vallée longitudinale. Cet effet est clairement observé sur les spectres représentés Fig. 2-9(a,b,c). Toutefois, il est très difficile de quantifier le ratio exact car de nombreux facteurs peuvent influencer l'intensité des raies magnéto-optiques. En particulier, pour une transition observée, il y a en tout huit transitions à la même énergie comme le montre la Fig. 2-7(a). L'énergie de toutes ces transitions est dégénérée dans notre modèle, mais cela reste toutefois une

approximation. En réalité, les différences entre ces huit énergies de transition contribuent à l'élargissement des raies. De la même manière, on a vu que dans toute la gamme $v_{z,o} \geq v_{z,l}$, ce qui implique que la masse effective de la dispersion 1D des niveaux de Landau est plus légère pour les vallées obliques. Cela implique une plus basse mobilité des électrons issues de la vallée longitudinale et donc des raies magnéto-optiques plus larges. Ce phénomène est bien observé sur les Fig. 2-9(a,b,c) et rajoute une difficulté pour évaluer les forces d'oscillateurs relatives aux deux types de vallée.

En résumé, tous les paramètres de la structure de bande d'un alliage $Pb_{1-x}Sn_xSe$ massif peuvent être déterminés par la magnéto-optique avec une très grande précision. Ceci permet d'évaluer le caractère topologique de $Pb_{1-x}Sn_xSe$. L'étude des propriétés électroniques, et surtout topologiques, de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ en fonction de la composition chimique amène à faire de même en variant d'autres paramètres comme la température, la contrainte mécanique ou encore le champ magnétique. Avant de réaliser ces études, il reste un dernier paramètre à identifier : le niveau de Fermi de l'échantillon. Le paragraphe qui suit précise comment déterminer le niveau de Fermi en magnéto-optique.

b) Détermination du niveau de Fermi

Une transition magnéto-optique ne peut intervenir qu'entre un niveau de départ rempli et un niveau d'arrivée vide. En d'autres termes, à basse température, les deux niveaux impliqués dans la transition doivent se trouver de part et d'autre du niveau de Fermi, comme indiqué sur la Fig. 2-11(a). Pour déterminer le niveau de Fermi, on peut donc suivre une transition donnée et relever le champ auquel elle disparaît. En ce point, un des niveaux de Landau a traversé le niveau de Fermi. L'énergie de ce niveau au champ donné est l'énergie de Fermi. Pour M-25 à 4.2 K par exemple, dont les niveaux de Landau ont été tracés sur la Fig. 2-11(a), la transition 1-2 s'éteint à 3 T (voir Fig. 2-9(d,h)). Le niveau 2 a alors pour énergie ~ 45 meV (la séparation entre 2α et 2β est négligeable à 3 T), ce qui donne $E_F - \Delta = 20$ meV. On peut remonter ainsi à la densité de porteur par vallée :

$$n_v = \frac{(E_F^2 - \Delta^2)^{3/2}}{3\pi^2 \hbar^3 v_{D,l}^2 v_{z,l}}$$

Pour M-25 à 4.2 K, on détermine $n_v = 7.9 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ dans chaque vallée, soit $n_{tot} = 3.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ au total (quatre fois plus). Le niveau de Fermi relatif au bas de bande est sensiblement le même dans tous les échantillons étudiés et donc la densité de porteur également. Cependant, le niveau de Fermi évolue avec le champ magnétique car la densité d'état 1D des niveaux de Landau change. Le nombre de porteur, lui, peut être considéré constant, ce qui nous permet de remonter à $E_F(B)$ avec :

$$n_v = \frac{eB}{4\pi^2 \hbar} \sum_{n,\sigma} \int_{-\infty}^{+\infty} f(E_{n,\sigma}(k_z), E_F, T) dk_z$$

Où f est la fonction de distribution de Fermi-Dirac. $E_F(B)$ est calculé à $T = 0$ K pour M-25 et est tracée en pointillés sur la Fig. 2-11(a). Son expression vaut :

$$n_v = \frac{eB}{2\pi^2 \hbar^2 v_{z,l}} \sum_{n,\sigma} \sqrt{E_F^2 - E_{n,\sigma}^2(0)}$$

En limite quantique, c'est-à-dire quand seul le niveau fondamental est pourvu d'électrons, toujours à $T = 0$ K, on peut tirer :⁷⁴

$$E_F(B) = \sqrt{(-\Delta - \hbar\omega)^2 + \left(\frac{2\pi^2\hbar^2 n_v v_{z,l}}{eB}\right)^2}$$

A noter que le terme $(-\Delta - \hbar\omega)$ se transformerait en $(\Delta + \hbar\omega)$ pour un matériau trivial. On remarque alors que le remplissage sera sans doute un peu différent selon le type de vallée à cause du terme $v_{z,l}$ ou $v_{z,o}$. On voit aussi que lorsque le niveau 0^c est à moitié rempli, la transition 0^c-1^v à $k_z = 0$ peut très bien être observée, en revanche, la transition symétrique 1^v-0^c est interdite à $k_z = 0$ à cause du niveau de Fermi. Elle ne peut se tenir qu'à $|k_z| \geq k_F$. Ce phénomène est illustré par la Fig. 2-11(b) sur laquelle la dispersion 1D des niveaux de Landau de M-25 a été calculée pour $B = 9$ T. Le niveau de Fermi à 9 T y a également été reportée.

Le décalage de la transition 1^v-0^c est observé expérimentalement dans tous les échantillons. Il est représenté par des points gris sur la Fig. 2-9. La transition 1^v-0^c présente donc une énergie plus grande de $2E_F(B)$. De plus, à $k_z = k_F$, la densité jointe des niveaux de Landau n'est plus du tout extrême comme elle l'est à $k_z = 0$. Cela explique les formes et largeurs anormales observées pour ces raies d'absorption. En effet, la densité d'état électronique s'écrit dans notre cas :

$$\rho(E) = \frac{2E}{\hbar v_{z,l}} \sum_{n,\sigma} [E^2 - E_{n,\sigma}^2(0)]^{-1/2}$$

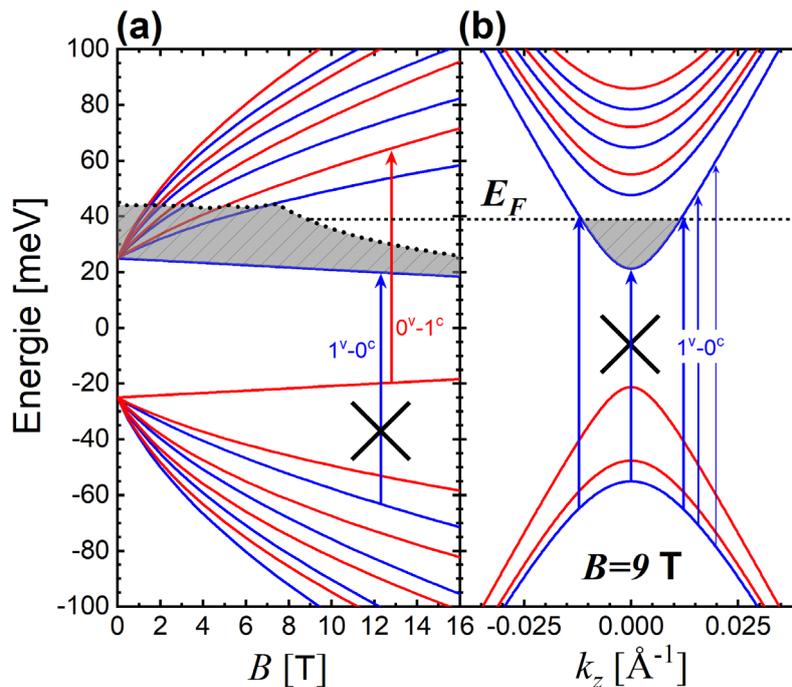


Figure 2-11. (a) Niveaux de Landau à $k_z = 0$ et niveau de Fermi calculés pour M-25 en fonction du champ magnétique. La transition 1^v-0^c ne peut pas avoir lieu à $k_z = 0$. **(b)** Dispersion en k_z des niveaux de Landau à $B = 9$ T. La transition 1^v-0^c peut intervenir à partir de $k_z = k_F$.

c) Résonances cyclotrons dans PbSnSe

Pour rappel, une transition intrabande n'a pas lieu forcément à $k_z = 0$ (voir partie II.v). Pour illustrer ceci, la dispersion en k_z des premiers niveaux de Landau de la bande de conduction de l'échantillon M-19 à 4.2 K et 9 T est tracée sur la Fig. 2-12. Le niveau de Fermi pour $B = 9$ T a également été placé à partir de la valeur de $n_v = 5.2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ déduite par l'expérience, correspondant à $E_F - \Delta = 25$ meV. Les flèches indiquent la seule

transition intrabande permise ici : la résonance cyclotron fondamentale RC0-1. L'énergie de cette transition est calculée par :

$$E_{intra} = \sqrt{\Delta^2 + 2e\hbar B v_D^2 + (\hbar\tilde{\omega})^2 + \hbar^2 v_z^2 k_z^2} - \sqrt{\Delta^2 + \hbar^2 v_z^2 k_z^2}$$

Le niveau 0 a une dispersion beaucoup plus linéaire que le niveau 1, c'est la non-parabolicité. Les dispersions des niveaux 0 et 1 sont donc largement non-parallèles, ce qui mène à un élargissement de l'énergie de transition. La largeur de cette transition est tracée en fonction de k_z sur la Fig. 2-12 en noire en dessous des dispersions. On voit que la raie d'absorption correspondant à la transition RC0-1 aura donc une largeur intrinsèque de 11 meV ici, ce qui est loin d'être négligeable. Evidemment, la transition n'est autorisée que si $-k_F < k_z < k_F$ et l'énergie de transition intrabande est maximale à $k_z = 0$. A cause donc de la non-parabolicité, et également du fait d'une énergie de Fermi non négligeable, la résonance cyclotron est d'autant plus large que le gap du matériau est petit.

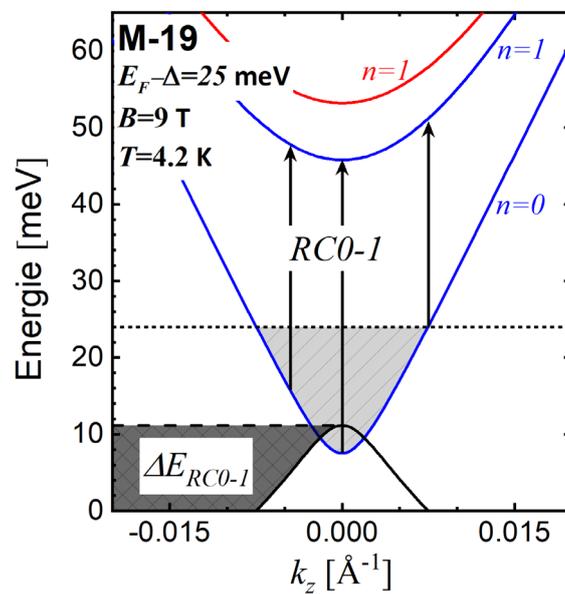


Figure 2-12. Dispersion en k_z des premiers niveaux de Landau de conduction ($n = 0$ et $n = 1$) à 4.2 K et $B = 9$ T pour M-19. Les flèches noires représentent la résonance cyclotron autorisée en configuration Faraday, qui peut avoir lieu à tout k_z vérifiant $-k_F < k_z < k_F$. La différence entre l'énergie de la RC0-1 à k_z et $k_z = k_F$ est représentée par la courbe noire. Le niveau de Fermi à 9 T a été calculée pour les vallées obliques à partir de la valeur de E_F déterminée par l'expérience.

IV. Mise en évidence de la transition de phase topologique induite par la température

Dans le cadre de ce travail, les mêmes alliages $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ avec $0 < x < 0.30$ ont été mesurés en magnéto-optique pour des températures comprises entre 4.2 K et 200 K.⁷³ Le dispositif expérimental pour permettre des mesures à $T > 4.2$ K est décrit dans la partie II du chapitre 1. Quelques résultats de ces mesures sont donnés sur la Fig. 2-13. Les spectres magnéto-optiques en MIR et FIR des échantillons M-25 et M-0 à 80 K et 200 K sont présentés en Fig. 2-13(a,b,c,d). La comparaison avec la théorie est montrée sur les Fig. 2-13(e,f,g,h), de la même manière que sur la Fig. 2-9.

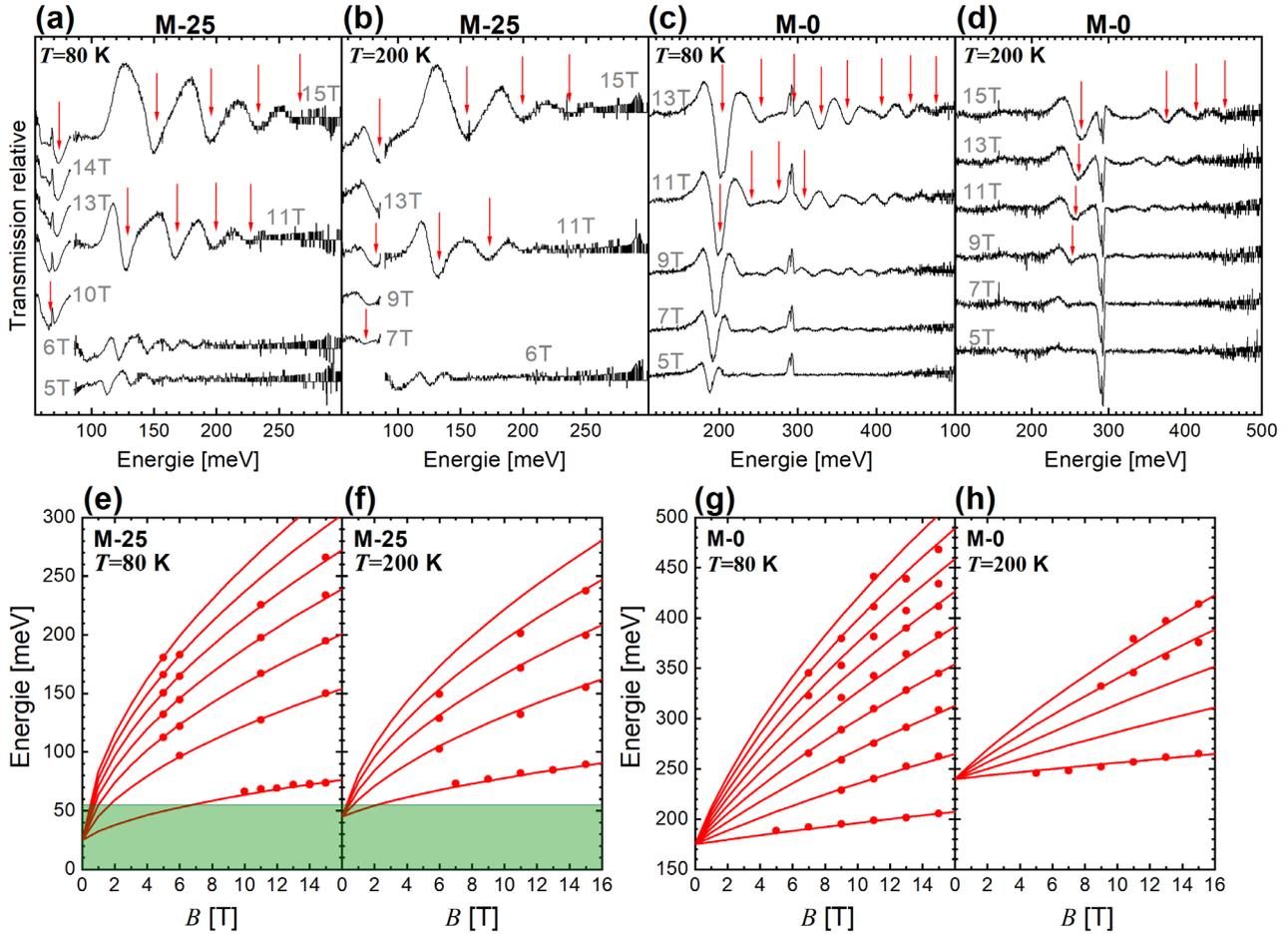


Figure 2-13. Spectres normalisés de M-25 à $T = 80$ K (a) et $T = 200$ K (b). Les spectres dans les gammes moyen-infrarouge et infrarouge lointain ont été enregistrés avec deux détecteurs différents, d'où les coupures aux alentours de 80 meV ($\sim 650 \text{ cm}^{-1}$). Les flèches indiquent certains minima d'absorptions. (e,f) Comparaisons théorie-expériences à 80 et 200 K respectivement. Les absorptions sont représentées par les points et les calculs des transitions par des lignes pleines. Les rectangles verts traduisent la zone inaccessible par l'expérience : reststrahlen du substrat et absorptions des fenêtres. Même principe pour l'échantillon M-0 avec (b,c) et (g,h).

La quantification de Landau toujours observée à 200 K est tout à fait remarquable et témoigne de la haute mobilité des échantillons. Les raies d'absorption s'élargissent à haute température à cause de l'énergie d'activation thermique $k_B T$ qui augmente (~ 16 meV à 200 K contre ~ 0.4 meV à 4.2 K). Cet élargissement nous empêche de résoudre l'anisotropie de vallée et nous prive de son étude en fonction de la température. Nous avons accès à une valeur de ν_D moyenne mais plutôt pondérée sur $\nu_{D,o}$ car les vallées obliques sont trois

fois plus nombreuses. La valeur du gap peut, elle, toujours être tirée avec une grande précision à toute température. L'accord théorie expérience est toujours excellent, comme nous le montre les Fig. 2-13(e,f,g,h). On peut noter que le phénomène de non-parabolicité est bien illustré sur ces figures où l'échantillon de petit gap M-25 possède des transitions variant en \sqrt{B} (voir Fig. 2-13(e,f)) et l'échantillon « grand gap » M-0 des transitions sensiblement linéaires en B (voir Fig. 2-13(g,h)).

La variation en température du gap reportée sur la Fig. 2-14(a) pour toutes les compositions analysées s'écrit empiriquement :

$$2\Delta(x, T) = 2\Delta(x, 4.2 \text{ K}) - 45 + \sqrt{45^2 + 0.64^2(T - 4.2)^2} \quad (\text{meV})$$

La dépendance en température peut donc être considérée comme indépendante de la composition de l'alliage, dans la gamme $0 < x < 0.30$ et $4.2 < T < 200 \text{ K}$. $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ voit son gap augmenter avec la température et la saturation du gap à basse température est rendue par la racine carrée. On peut également dire que la bande L_6^+ descend par rapport à la bande L_6^- lorsque la température augmente. Un échantillon trivial à 4.2 K est donc trivial à toute température. A l'opposé, un échantillon topologique à 4.2 K a un gap négatif qui devient positif à une certaine température critique T_c marquant la transition de phase topologique. Selon la loi empirique, on a :

$$T_c = 4.2 + \frac{\sqrt{[2\Delta(x, 4.2 \text{ K}) - 45]^2 - 45^2}}{0.64} \quad (\text{K})$$

Cette formule n'a évidemment de sens que pour $x > 0.16$, soit pour un matériau topologique à 4.2 K. Il est important de remarquer que la dynamique du gap en température donne aussi une preuve de son signe. **En effet, si les transitions magnéto-optiques, pour un même champ, évoluent vers les basses énergies alors que T augmente, on peut conclure que la valeur absolue du gap a diminué et donc que son signe est négatif.** On peut également remarquer que la loi empirique décrit mal le voisinage de la transition de phase topologique, près de laquelle un saut dans la variation du gap est observé (pointillés sur la Fig. 2-14(a)). La température permet d'induire une transition de phase topologique avec un paramètre extérieur continument ajustable, donc d'approcher le plus près et facilement possible du point critique. Malgré cela, une transition franche accompagnée d'un état de gap nul n'a été observée dans aucun échantillon. La nature de la transition de phase, aux vues de ces preuves expérimentales, sera discutée plus en détail à la fin de ce chapitre.

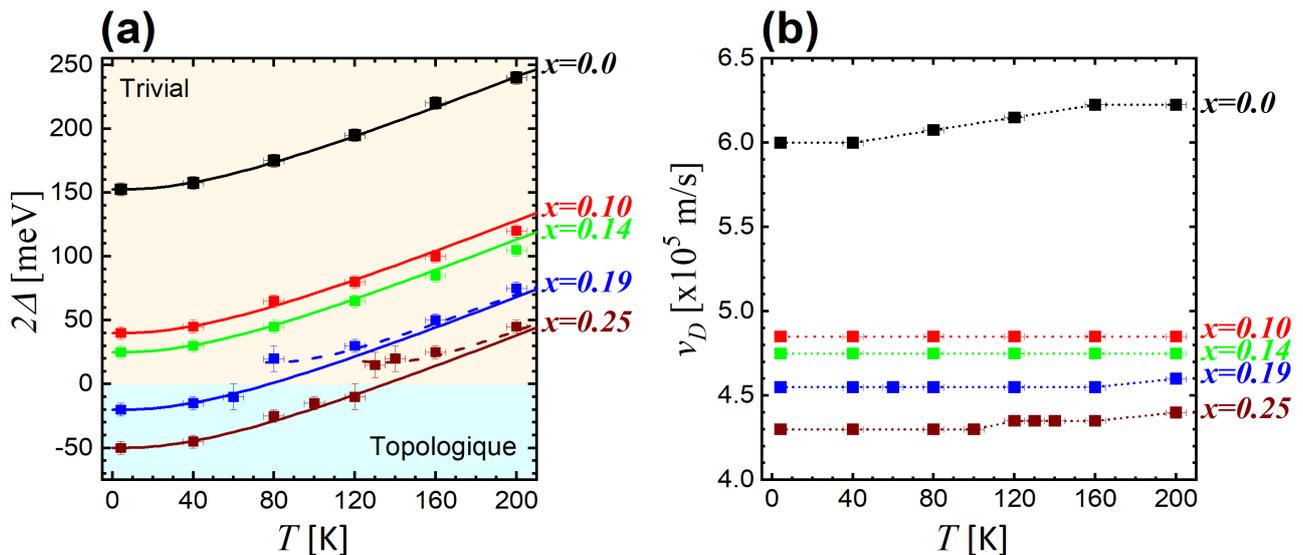


Figure 2-14. Variation de l'énergie de gap (a) et de la vitesse des porteurs (b) en fonction de la température pour plusieurs alliages $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ de différentes compositions.

La variation de v_D avec la température est totalement négligeable dans $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$, comme nous le montre la Fig. 2-14(b). C'est aussi le cas pour tous les semiconducteur III-V et $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$.⁷⁵ On peut donc noter $v_D(x, T) = v_D(x)$ et se ramener à la formule établie dans la partie précédente. \tilde{m} a été considéré indépendant de T et égal à $0.28m_0$.

En résumé, les propriétés électroniques de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ restent remarquables à haute température, ce qui est important pour d'éventuelles futures applications. Ceci a permis d'ailleurs la réalisation d'efficaces lasers infrarouges à base de PbSnSe fonctionnant à 223 K.⁵⁹ La température ramène les alliages topologiques dans une configuration triviale. En effet, l'augmentation de la température a pour effet de dilater l'échantillon, donc d'augmenter son paramètre de maille. Ce résultat est cohérent avec l'étude en fonction de x , qui en remplaçant le plomb par l'étain diminuait le paramètre de maille et réduisait l'énergie de gap. On voit toutefois que ces résultats sont pour le moment insuffisants pour disposer d'un matériau topologique à haute température avec un grand gap (en valeur absolue). Le dernier paramètre qui peut influencer directement sur le paramètre de maille de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ et donc sur sa topologie, est la contrainte mécanique.

V. Mise en évidence de la transition de phase topologique induite par la contrainte

i. La contrainte thermique

Nous avons vu dans la partie III de ce chapitre que les échantillons de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ étaient relaxés par rapport à leur substrat. En effet, un désaccord de $\sim -1\%$ ou $\sim +2.5\%$ (avec BaF_2 ou KCl par exemple) ne peut être supportée que pour des épaisseurs de quelques nanomètres. Matériau et substrat ont donc leur propre paramètre de maille d'équilibre à la température de croissance et le lien entre les deux matériaux est assuré par un réseau dense de dislocations localisées à l'interface. C'est à travers ces dislocations que la contrainte thermique s'exprime. En effet, le substrat et $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ne se rétractent (dilatent) pas généralement de façon identique lorsque la température diminue (augmente). Pour des films de quelques centaines de nanomètres d'épaisseur, c'est le substrat qui dicte l'expansion thermique de l'échantillon et le film est alors contraint. Si, lorsque la température chute, le substrat se rétracte plus vite que le film, alors ce dernier sera compressé ; et vice versa. La variation en température du coefficient d'expansion thermique β de différents matériaux est tracée sur la Fig. 2-15(a). Par exemple, lors d'un changement de température, un substrat KCl se dilate ou se rétracte avec beaucoup plus d'amplitude que $PbSe$. A l'opposé, InP , lui, se dilate ou se rétracte très peu comparé à $PbSe$. Ces substrats provoquent donc les effets de contraintes thermiques compressives et de tensions schématisés sur les Fig. 2-15(b,c). Ce sont des contraintes biaxiales dans le plan du film épitaxié.⁷²

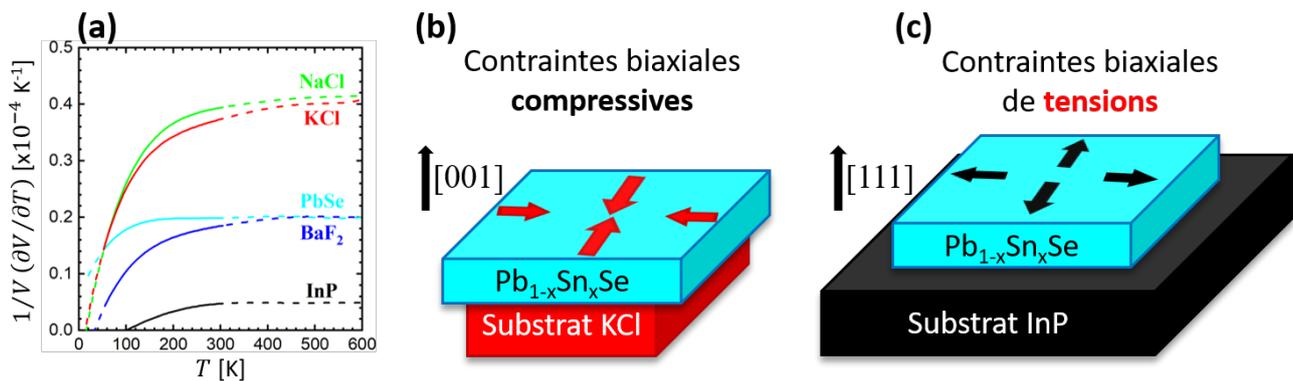


Figure 2-15. (a) Courbes des coefficients d'expansion thermique en fonction de la température des différents matériaux étudiés ici. (b,c) Schémas des contraintes thermiques biaxiales exercées sur $Pb_{1-x}Sn_xSe$ par un substrat KCl et InP . Sur KCl (InP), le film se trouve en compression (tension).

Les échantillons sont épitaxiés à une température de 593 K à laquelle il y a équilibre structural et donc aucune contrainte n'est présente. Une fois le film fabriqué, le refroidissement provoque une contrainte thermique. On peut facilement calculer la contrainte thermique ε_{th} induite par un substrat sur un film de $PbSe$, qui est relaxé à la température de croissance 593 K, lorsqu'il est refroidi à température ambiante 293 K :

$$\varepsilon_{th} = (\beta_{PbSe} - \beta_{Sub})\Delta T = (\beta_{PbSe} - \beta_{Sub}) * 300$$

car les coefficients de dilatation thermique sont sensiblement indépendants de T dans cette plage de température (voir Fig. 2-15(a)). Différentes valeurs de contraintes thermiques sont listées dans le Tableau III pour plusieurs matériaux, ainsi que d'autres paramètres intéressants pour notre étude.⁷² Tous les substrats sont assez isolants et n'absorbent pas (à l'exception de leur reststrahlen) dans notre gamme infrarouge. Nous avons étudié les propriétés électroniques de films $Pb_{1-x}Sn_xSe$ de 400 nm d'épaisseur épitaxiés sur les substrats $NaCl$ et KCl qui induisent des contraintes compressives. Les films sont alors orientés suivant la direction [001],

ce qui change de précédemment. Dans ces échantillons, il n’y a qu’un seul type de vallée (voir section II.iv). Nous avons également étudié des films de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ (~ 400 nm) sur le substrat InP (001) qui provoque une contrainte thermique de tension. Enfin, nous avons mesuré des films de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ (~ 400 nm) sur BaF_2 (111). Ces échantillons ont été fabriqués en même temps que ceux épitaxiés sur différents substrats. Ce sont des échantillons témoins. On peut remarquer que le coefficient de dilatation thermique de BaF_2 est très similaire à celui de PbSe (voir Fig. 2-15(a)). C’est en partie ce pourquoi ce substrat a été choisi au départ pour étudier les propriétés électroniques de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$. BaF_2 confère une très bonne stabilité mécanique face à la répétition de cycles thermiques. C’est un substrat bien adapté pour étudier les propriétés électroniques intrinsèques de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ orientés [111].

Tableau III. Paramètres structuraux, de contraintes, électroniques et phoniques de quelques matériaux.

Matériau	PbSe	InP	BaF ₂	KCl	NaCl
Structure cristalline	NaCl	Blende	CaF ₂	NaCl	NaCl
Paramètre de maille à 300 K [Å]	6.124	5.869	6.198	6.290	5.640
Orientation cristalline	(001)	(001)	(111)	(001)	(001)
Coefficient d’expansion thermique entre 300 et 600 K [$\times 10^{-6}$ K ⁻¹]	19.4	4.8	18.8	39	40
Contrainte thermique due au refroidissement à 300 K [%]	0	+0.44	+0.02	-0.59	-0.62
Energie de gap à 300 K [eV]	0.15	1.6	10.5	6.4	9
Bande de restrahlen [meV]	20	35-45	20-60	10-35	20-30

ii. Magnéto-optiques de films de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ sur différents substrats

Nous avons mesuré l’énergie de gap en fonction de x et de T pour des films de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ de 400 nm d’épaisseur épitaxiés sur différents substrats : BaF_2 (111), KCl (001), NaCl (001) ainsi que InP (001). De plus, certains films sur KCl ont été transférés sur Si. Le substrat KCl peut aisément être dissout dans de l’eau à 50 °C. Le film est ensuite récupéré et déposé sur un morceau de silicium. On obtient alors des films indépendants de tout substrat donc libérés de toute contrainte.

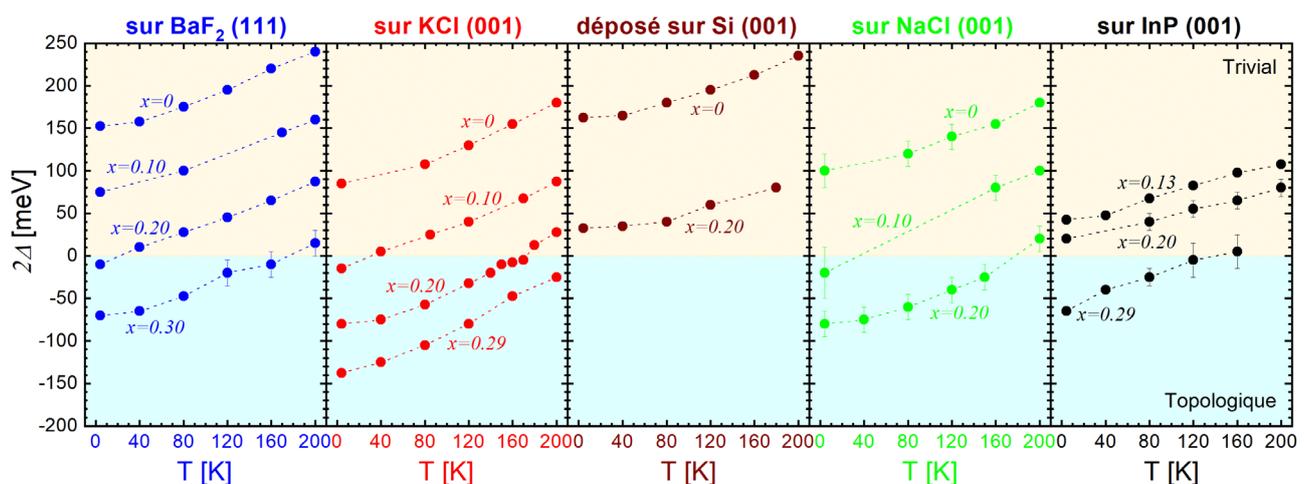


Figure 2-16. Variation de l’énergie de gap de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ sur différents substrats en fonction de la température pour plusieurs valeurs de x .

Les résultats des expériences de magnéto-optique sont résumés sur la Fig. 2-16, sur laquelle $2\Delta(x, T)$ a été tracé pour $Pb_{1-x}Sn_xSe$ sur différents substrats. Les contraintes compressives imposées par KCl ou NaCl abaissent largement le gap de PbSnSe. Pour $x = 0.20$ par exemple, le gap mesuré à 4.2 K est de -80 meV alors qu'il n'est que de -10 meV pour un film sur BaF_2 (111). Lorsque le film de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ orienté [001] est déposé sur Si, on retrouve quasiment les mêmes résultats que pour les films sur BaF_2 (111). Ceci montre que l'orientation cristalline n'a que très peu d'influence sur le gap de $Pb_{1-x}Sn_xSe$, car le substrat BaF_2 n'impose lui aussi que de très faibles contraintes thermiques. Enfin, la contrainte de tension biaxiale exercée par InP ne semble avoir qu'une influence négligeable sur le gap. Le gap est à peine augmenté comparé à celui des films sur BaF_2 . On peut l'expliquer par la présence d'une interdiffusion consécutive des atomes d'indium vers $Pb_{1-x}Sn_xSe$. Cette dernière relaxe la contrainte thermique et donc annihile ses effets. On voit également que le point à 4.2 K de $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Se$ sur InP ne suit pas la variation tracée par les autres points à plus haute température. La mesure à 4.2 K a été effectuée lors d'un premier cycle thermique 300-4.2-300 K. Les autres points ont été relevés lors d'un second cycle 300-40-80-120-160-200-300 K. Ces mesures démontrent que le film n'est pas robuste face à plusieurs cycles thermiques, ses propriétés électroniques n'étant pas reproductibles d'un cycle à un autre. **Le substrat InP n'est donc pas un substrat adéquat pour nos études. A l'opposé, les films développés sur les autres substrats, en particulier BaF_2 et KCl, ont donné d'excellents résultats.**

On est amené désormais à répondre à la question de la qualité des propriétés électroniques de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ sur ces différents substrats. Pour illustrer cela, la Fig. 2-17(a) représente les spectres magnéto-optiques obtenus à 120 K et 15 T de $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Se$ selon les différents substrats. Les spectres pour les échantillons sur BaF_2 et KCl sont de très bonnes qualités avec des raies fines et intenses jusqu'à bas champ magnétique et haute température. En revanche, les échantillons sur InP et NaCl sont, eux, de piètres qualités. Les raies d'absorption sont à peine relevables car elles sont soit d'une très faible intensité, soit très larges. On peut invoquer les raisons suivantes : (i) la diffusion de In dans $Pb_{1-x}Sn_xSe$ détériore la qualité du film ; (ii) la contrainte thermique imposée par NaCl jusqu'à des températures cryogéniques est trop importante et provoque la cassure du film avec un grand nombre de dislocations qui abaissent la qualité de l'échantillon. Le cas de NaCl est illustré sur la Fig. 2-17(b), où l'on aperçoit les dislocations microniques après un cycle thermique jusqu'à 4.2 K. D'ailleurs le même phénomène a été observé uniquement pour un échantillon $x = 0.30$ sur KCl, comme nous le montre la Fig. 2-17(c), sur laquelle on voit qu'une partie seulement de l'échantillon a craqué. Les échantillons sur KCl doivent donc se trouver à la limite de la contrainte supportable.

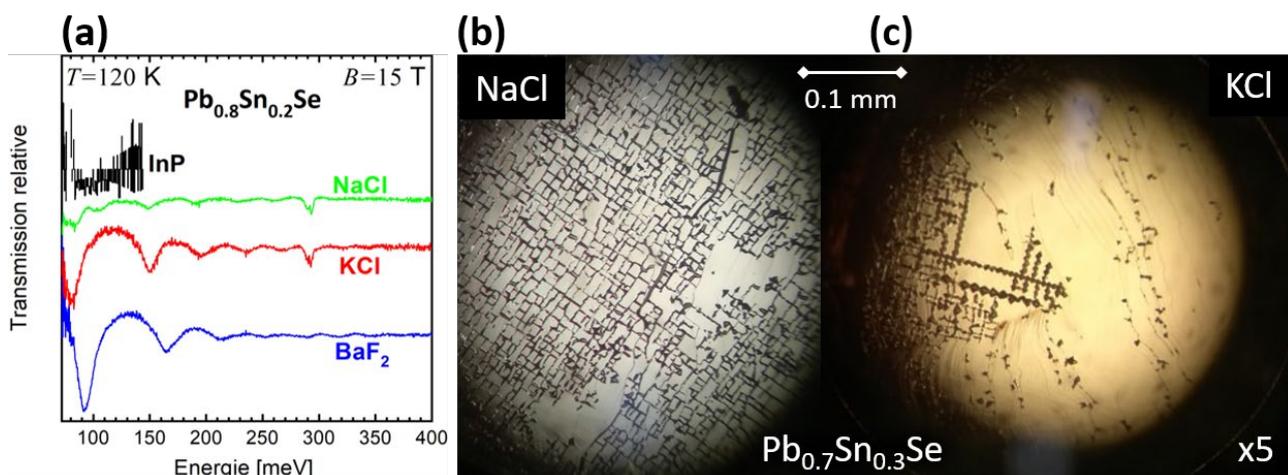


Figure 2-17. (a) Spectres magnéto-optiques à $T = 120$ K des films $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Se$ sur les différents substrats mesurés à 15 T et normalisés par celui à champ nul. **(b,c)** Photos prises à travers un microscope d'un film de $Pb_{0.7}Sn_{0.3}Se$ sur NaCl (b) et sur KCl (c) après un cycle thermique 300-4.2-300 K.

iii. Etude des films $Pb_{1-x}Sn_xSe$ (001) sur substrat KCl

Enfin, une attention plus particulière est portée sur les films épitaxiés sur KCl (001). **En effet, ce substrat a donné de très bons résultats et tend à renforcer le caractère topologique de $PbSnSe$.** Un bel exemple est $Pb_{0.71}Sn_{0.29}Se$ qui possède le plus grand gap topologique observé dans cette thèse, tout en disposant d'une qualité cristalline remarquable. Quelques-uns de ses spectres sont montrés sur la Fig. 2-18(a) à $T = 4.2$ K et en Fig. 2-18(c) pour $T = 200$ K. Les accords théorie-expérience pour ces deux températures respectives sont tracés sur les Fig. 2-18(b,d). Ils sont excellents et démontrent une énergie de gap négative de -137.5 ± 2.5 meV à 4.2 K ($v_D = 3.60 \times 10^5$ m/s) et un matériau toujours topologique à 200 K avec un gap ajusté à -25 meV ($v_D = 4.05 \times 10^5$ m/s).

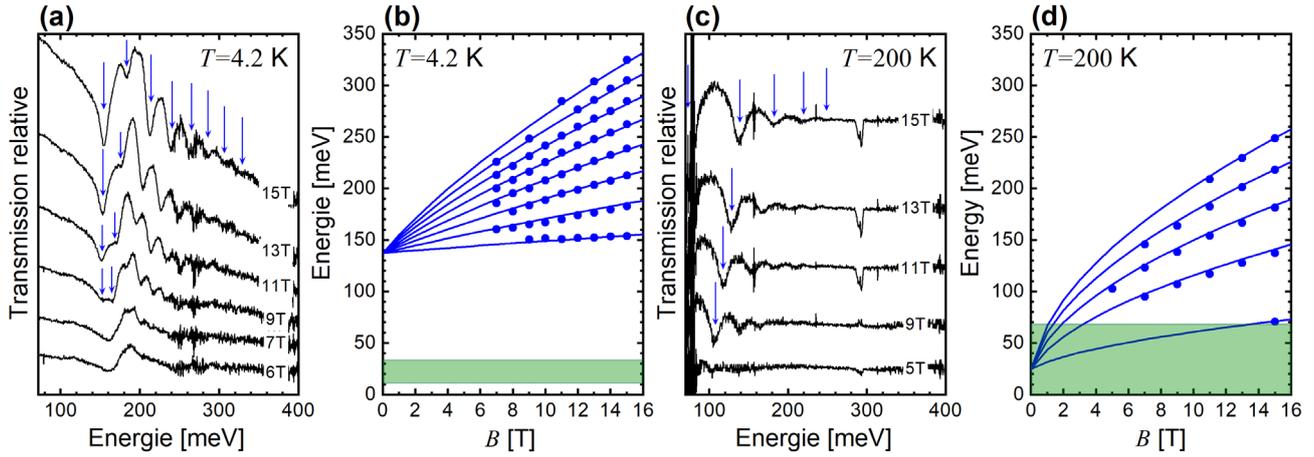


Figure 2-18. Spectres normalisés de $Pb_{0.71}Sn_{0.29}Se$, épitaxié sur KCl, à quelques champs magnétiques à $T = 4.2$ K (a) et $T = 200$ K (c). Les flèches marquent quelques raies d'absorptions. (b,c) Comparaison théorie-expérience pour $T = 4.2$ K et $T = 200$ K. Les rectangles verts soulignent la zone non accessible due au reststrahlen à 4.2 K et au reststrahlen plus fenêtres à 200 K.

L'étude des paramètres de structure de bande dans les gammes $0 < x < 0.3$ et $4.2 < T < 200$ K mène à la Fig. 2-19. Les Fig. 2-19(a,b) montrent les variations de 2Δ avec x et T respectivement. Les lignes pleines représentent les lois empiriques définies par :

$$2\Delta(x, T) = 35 - 760x + \sqrt{45^2 + 0.72^2(T - 4.2)^2} \quad (\text{meV})$$

La composition critique à $T = 4.2$ K est alors de $x_c \sim 0.10$, ce qui est bien moindre que son homologue sur BaF_2 . La transition de phase topologique intervient environ avec 6 % d'étain en moins. La température critique de transition de phase pour $Pb_{1-x}Sn_xSe$ sur KCl (001) s'écrit (pour $x > 0.10$) :

$$T_c = 4.2 + \frac{\sqrt{[35 - 760x]^2 - 45^2}}{0.72} \quad (\text{K})$$

Par rapport à un échantillon sur BaF_2 avec la même valeur de gap à 4.2 K, la température critique est atteinte un peu avant. En effet, le paramètre de maille de KCl se dilate plus vite que celui de BaF_2 lorsque l'on chauffe (voir Fig. 2-15(a)), ce qui amplifie la variation du gap.

Les Fig. 2-19(c,d) montrent la variation de la vitesse électronique v_D avec x et T respectivement. Elle chute linéairement avec x et sa variation avec T n'est pas négligeable, elle est à peu près linéaire avec un coefficient directeur dépendant de x :

$$v_D(x, T) = 5.54 - 6.82 x + (T - 4.2)\sqrt{1 + 5.5^2 x^2} \cdot 10^{-3} \quad (\times 10^5 \text{ m/s})$$

Le meilleur accord théorie-expérience à toute composition et toute température est obtenu pour $\tilde{m} = 0.23m_0$.

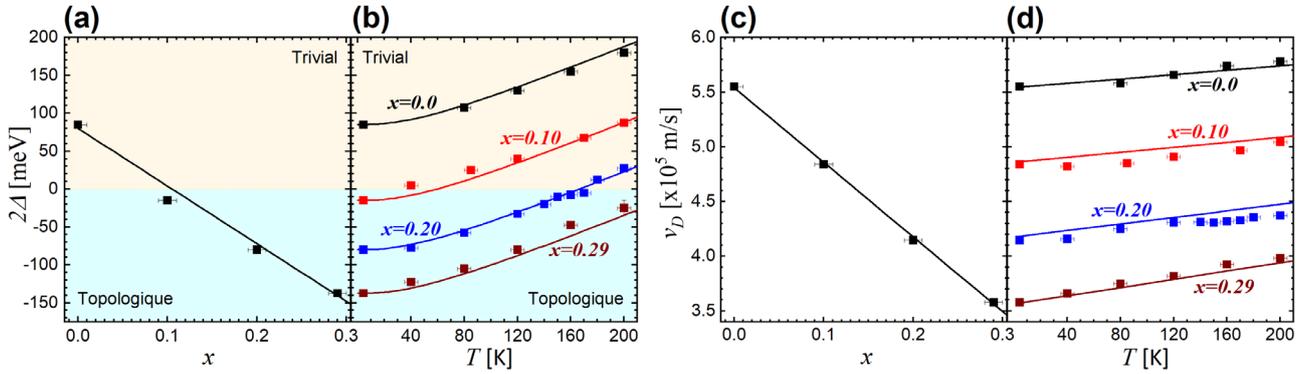


Figure 2-19. Dépendance en x (a) et en T (b) de l'énergie de gap de PbSnSe épitaxiés sur KCl (001). (c,d) Dépendance en x (c) et en T (d) de la vitesse électronique v_D . Les lignes pleines correspondent aux formules énoncées dans le texte.

On peut donc conclure que KCl est un substrat particulièrement adapté à l'étude des propriétés topologiques de PbSnSe pour les raisons suivantes :

- (i) Il renforce considérablement le caractère topologique de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ en augmentant la valeur absolue de son gap par rapport à celle mesurée sur BaF_2 de ~ 70 meV pour x et T donnés. De grands gaps topologiques peuvent ainsi être obtenus.
- (ii) La qualité cristalline est excellente. La densité de porteur est tout à fait raisonnable et se situe autour de 10^{17} cm^{-3} , car on trouve typiquement $E_F - \Delta \sim 20$ meV. La mobilité est élevée ce qui permet une quantification de Landau à bas champ et l'observation de raies fines.
- (iii) Les films sont robustes face à des cycles thermiques répétés.
- (iv) Le reststrahlen de KCl est réduit. Le substrat n'absorbe qu'entre 10 et 32 meV. Ainsi, le substrat n'empêche pas l'observation des transitions magnéto-optiques de l'échantillon même si son gap est proche de zéro.
- (v) L'orientation (001) ne possède qu'un seul type de vallée, toutes les vallées étant obliques et équivalentes.

VI. Mise en évidence de la transition de phase topologique induite par le champ magnétique et discussion sur la nature de cette transition

i. Inversion des niveaux de Landau $n = 0$ avec le champ magnétique

Les niveaux de Landau $n = 0$ ont été étudiés théoriquement dans la partie II.iii. Pour rappel ils sont donnés à $k_z = 0$ par :

$$E_{n=0} = \begin{cases} -\Delta - \hbar\tilde{\omega}, & \text{pour la bande } L_6^+ \\ \Delta + \hbar\tilde{\omega}, & \text{pour la bande } L_6^- \end{cases}$$

Ainsi, le niveau L_6^+ évolue vers les basses énergies lorsque le champ magnétique augmente ; alors que le niveau L_6^- monte avec le champ.^{74,76,77} Cette dépendance des niveaux $n = 0$ est donc un témoin direct de leur symétrie.⁷⁸ Cela donne deux situations bien différentes, visibles sur la Fig. 2-5, selon le caractère topologique de PbSnSe. En effet, lorsque la bande de conduction est L_6^+ , le gap se ferme en champ magnétique et à l'opposé lorsque L_6^- est la bande de conduction, le gap s'ouvre. La Fig. 2-20 représente le calcul de la dispersion en k_z des niveaux de Landau $n = 0$ évoluant avec le champ magnétique. Les Fig. 2-20(a,b) illustrent respectivement la fermeture et l'ouverture du gap en fonction du champ magnétique dans le cas topologique pour M-19 ($2\Delta \sim -22.5$ meV) et trivial pour M-14 ($2\Delta = +25$ meV). L'échelle des couleurs représente le calcul de la symétrie des états électroniques. Vu que les deux niveaux $n = 0$ sont des niveaux β , ce calcul représente également le mélange de spin \uparrow et \downarrow des deux niveaux. On s'aperçoit alors que la symétrie et le spin des niveaux se mélangent avec k_z d'autant plus rapidement que le gap est petit. En revanche à $k_z = 0$, les niveaux sont purs de symétrie et de spin β (donc plutôt \uparrow pour L_6^- , et \downarrow pour L_6^+). Dans le cas topologique, le niveau $n = 0$ L_6^+ (en majorité orange) passe en dessous du niveau L_6^- (en majorité vert) à un champ magnétique critique B_c . On peut écrire :

$$B_c = -\frac{\tilde{m}\Delta}{\hbar e}$$

On trouve $B_c \sim 27$ T pour l'échantillon M-19 à 4.2 K car $2\Delta = -22.5 \pm 2.5$ meV et $\tilde{m} = 0.28m_0$. Pour $B > B_c$, on se retrouve dans une situation très particulière dans laquelle les niveaux de Landau $n = 0$ ont un ordre trivial (L_6^+ en dessous de L_6^-). Le champ magnétique a alors induit une transition de phase topologique.

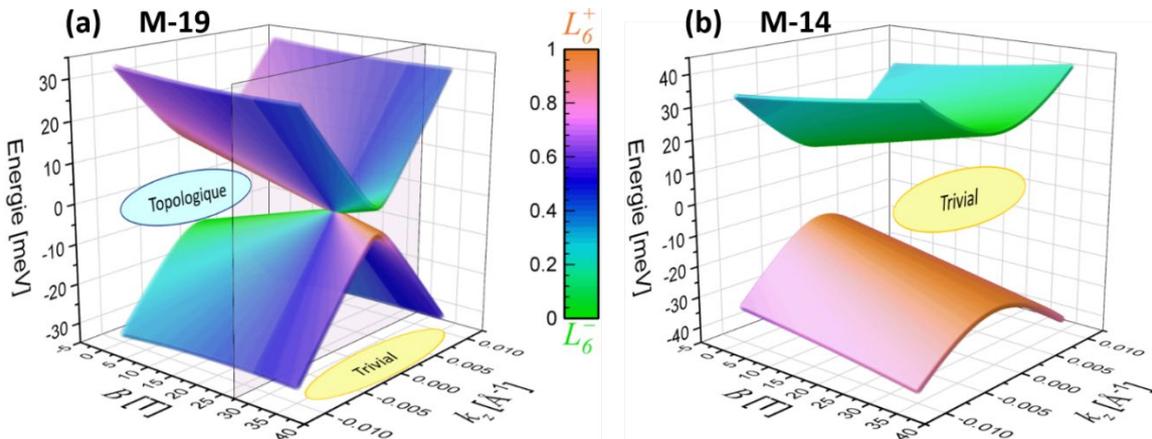


Figure 2-20. Dispersion calculée en k_z et en B des niveaux de Landau fondamentaux $n = 0$ dans le cas d'un matériau topologique (a) et trivial (b). La symétrie et le spin des états sont calculés et représentés par l'échelle de couleur du milieu. La transition de phase topologique dans (a) est marquée par le plan yz à $B = B_c$. Les paramètres utilisés sont $2\Delta = -22.5$ meV, $v_z = 4.50 \times 10^5$ m/s et $\tilde{m} = 0.28m_0$ dans (a) et $2\Delta = +25$ meV, $v_z = 4.70 \times 10^5$ m/s et $\tilde{m} = 0.28m_0$ dans (b).

Pour démontrer et explorer ce changement de phase avec le champ magnétique, nous avons utilisé le montage magnéto-optique du LNCMI de Grenoble pour effectuer les expériences dans les échantillons M-14 et M-19 jusqu'à 34 T. Les spectres obtenus pour l'échantillon trivial M-14 sont reportés sur la Fig. 2-21(a). La comparaison théorie-expérience correspondante est présentée sur la Fig. 2-21(b). L'accord est toujours excellent pour les hauts champs magnétiques, ce qui prouve la validité de notre modèle ainsi que des paramètres extraits. En particulier, le paramètre \tilde{m} est déterminé avec plus de précision ici car l'ajustement théorique à haut champ y est plus sensible. On déduit les mêmes paramètres que dans la partie III.ii.a. On peut conclure donc que pour M-14, les transitions suivent leur cours et leur dépendance en champ magnétique est tout à fait régulière, même à très haut champ.

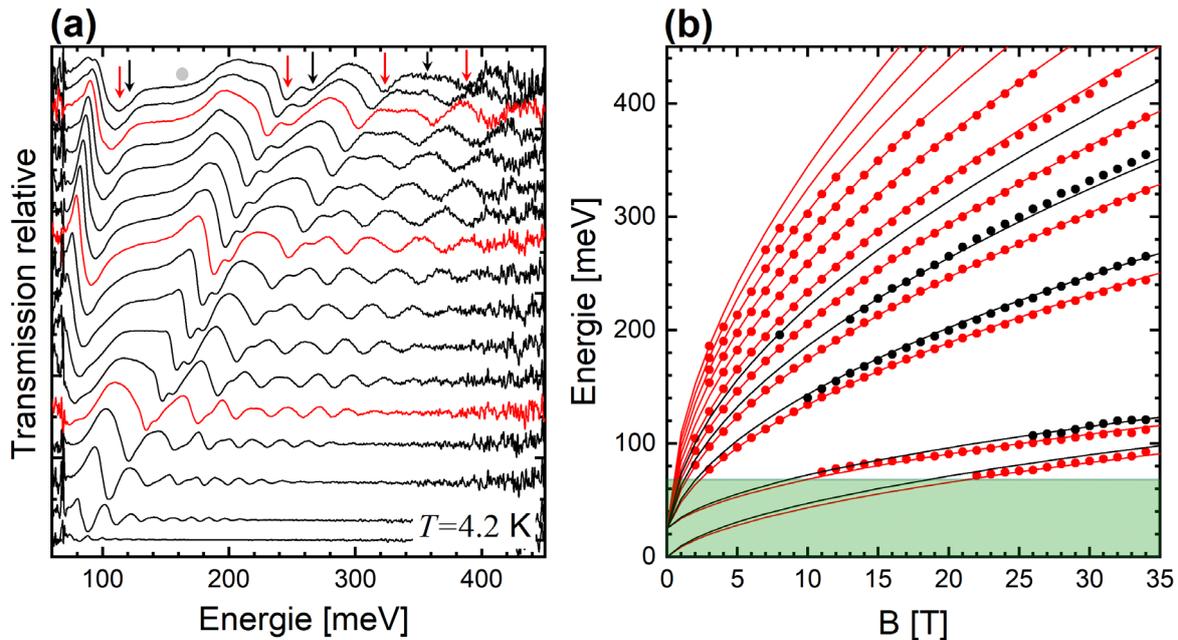


Figure 2-21. (a) Spectres normalisés de M-14 à 4.2 K pour des champs allant de 2 à 34 T par pas de 2 T. Les spectres en rouge représentent les multiples de 10 T. (b) Accord théorie-expérience. La série rouge (noire) incarne les transitions et absorptions issues des vallées obliques (de la vallée longitudinale).

A l'opposé, on voit sur la Fig. 2-22(a), où sont montrés les spectres magnéto-optiques de M-19, que les absorptions magnéto-optiques ne sont pas du tout régulières à très haut champ et basse énergie. La Fig. 2-22(b) montrant l'accord théorie-expérience, confirme bien la détermination des paramètres effectuées en partie III.ii.a. Cet accord est excellent pour les transitions de hautes énergies. Un zoom sur la partie basse énergie est montré sur la Fig. 2-22(c). Les absorptions à basse énergie ne sont expliquées que partiellement par notre modèle.

A basse énergie, l'intensité de l'absorption marquée par les flèches rouges sur la Fig. 2-22(a) diminue alors que le champ approche B_c . Cette absorption finit par être imperceptible pour $B \sim B_c$, alors que l'absorption montrée par des flèches bleues apparaît au voisinage de B_c et gagne en amplitude et en largeur à mesure que le champ augmente. A très haut champ ($B > 27$ T), une superposition de gaussiennes permet de révéler qu'au moins deux absorptions se cachent derrière ce large minimum. Pour expliquer ces observations, nous allons nous référer au Tableau I de la partie II.v.b, qui résume les règles de sélections magnéto-optique ; ainsi qu'aux niveaux de Landau de M-19 à $k_z = 0$ tracés sur la Fig. 2-22(d).

Il y a entre les niveaux 0 et 1 seulement deux transitions autorisées : une interbande et une intrabande. Elles sont représentées par des flèches rouges et bleues respectivement sur la Fig. 2-22(d). L'inversion des niveaux

0 amène l'interbande qui est en rouge à devenir une résonance cyclotron pour $B > B_c$; et la résonance cyclotron en bleue à devenir l'interbande pour $B > B_c$. Ce changement de caractère de la transition, dû au changement de concavité des niveaux 0 (voir Fig. 2-20(a)), est aussi illustré sur la Fig. 2-22(d). Les deux transitions sont représentées en rouge et bleu par un trait gras si ce sont des interbandes et un trait fin si ce sont des intrabandes.

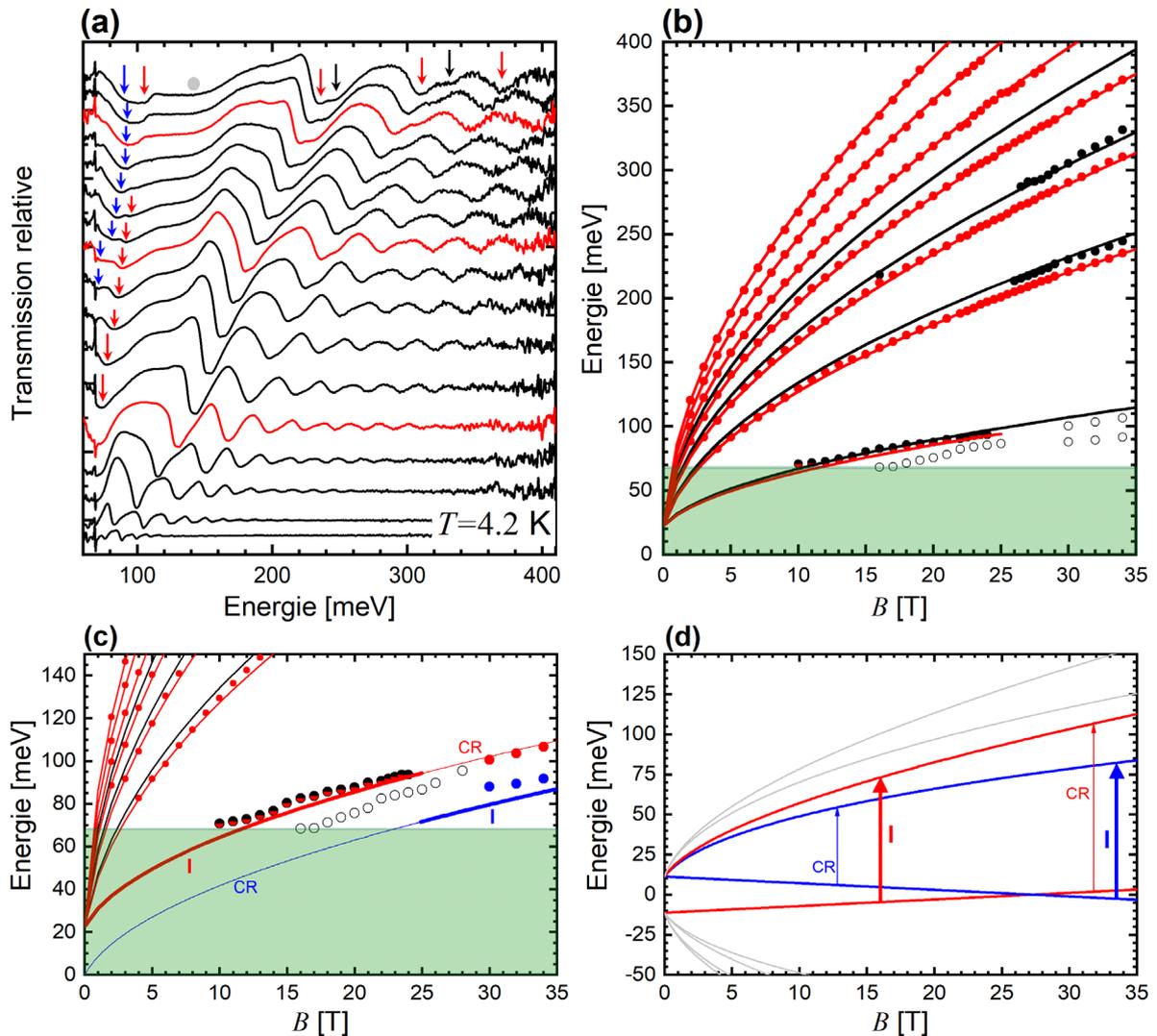


Figure 2-22. (a) Spectres normalisés de M-19 à 4.2 K pour $B = 2$ T à $B = 34$ T par pas de 2 T. Les multiples de 10 T sont en rouge. (b) Ajustement de la théorie (lignes) sur les résultats expérimentaux (points). La couleur noire (rouge) est attribuée à la vallée longitudinale (aux vallées obliques). (c) : zoom aux basses énergies de (b). Les deux transitions autorisées sont en rouges et en bleues. Les interbandes (intrabandes) sont en traits gras (fins). Les cercles correspondant à quelques absorptions à basse énergie restent inexplicés. (e) Niveaux de Landau de M-19 à 4.2 K. Les transitions d'intérêts sont représentées par des flèches. Les niveaux de spin majoritairement \uparrow (\downarrow) sont en rouge (bleu).

L'intensité de l'interbande rouge s'affaiblit donc considérablement avec le champ jusqu'à 26 T. Elle devient alors résonance cyclotron, et comme le gap à ce champ est quasi nul, l'absorption est attendue à être extrêmement large (voir partie III.ii.c). La raie attribuée à l'interbande rouge devient effectivement de moins en moins perceptible à l'approche du champ critique. A mesure que le champ augmente, la dispersion en k_z du niveau 0 de conduction devient de plus en plus parabolique et donc la résonance cyclotron s'affine. On arrive alors à repointer la raie d'absorption à très haut champ (points rouges sur la Fig. 2-22(c)). La transition

bleue à $B < B_c$ est une intrabande masquée par le reststrahlen. Pour $B > B_c$, elle devient une interbande et donc prend de plus en plus d'ampleur avec le champ. Les points bleus dépouillés à haut champ tendent alors de rejoindre la transition bleue calculée. Ainsi, ce jeu d'intensité de raies d'absorptions prouve le changement de concavité des dispersions des niveaux de Landau $n = 0$ et donc leur inversion. Cependant, des raies d'absorptions au voisinage de B_c restent inexplicées, comme le montre la Fig. 2-22(c).

ii. Anti-croisement des niveaux de Landau $n = 0$

Le balancement de l'intensité des raies est loin d'être abrupte, il s'effectue plutôt sur une plage de champ très large $15 < B < 35$ T. Cela laisse à penser que les niveaux $n = 0$ ne se croisent pas comme dans la Fig. 2-22(e) mais s'anti-croisent. On peut donc réinterpréter ces résultats en prenant en compte un anti-croisement des niveaux $n = 0$ solutions, à $k_z = 0$, de l'équation aux valeurs propres :

$$\begin{pmatrix} -\Delta - \hbar\tilde{\omega} & W \\ W & \Delta + \hbar\tilde{\omega} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \chi_+ \\ \chi_- \end{pmatrix} = E_{\pm} \begin{pmatrix} \chi_+ \\ \chi_- \end{pmatrix}$$

où W est un paramètre réel empirique avec $2W$ qui représente l'énergie d'évitement des niveaux à B_c . Les valeurs propres de cette matrice donnent les énergies des niveaux de Landau $n = 0$:

$$E_{\pm} = \pm \sqrt{(\Delta + \hbar\tilde{\omega})^2 + W^2}$$

Les vecteurs propres décrivent le mélange des deux niveaux. Ils sont solutions du système :

$$\begin{cases} \chi_+ = \frac{-\Delta - \hbar\tilde{\omega} - \sqrt{(\Delta + \hbar\tilde{\omega})^2 + W^2}}{W} \chi_- \\ \chi_+^2 + \chi_-^2 = 1 \end{cases}$$

On peut alors écrire les fonctions d'onde totales des niveaux 0 :

$$|0_{\pm}\rangle = \chi_{\mp} |0, L_6^+ \downarrow\rangle + \chi_{\pm} |0, L_6^- \uparrow\rangle$$

Les niveaux $n = 1$ à $k_z = 0$ sont, eux, naturellement mélangés L_6^+/L_6^- mais restent quasi-purs de spin (voir l'hamiltonien $H_n(B)$ dans la partie II.ii). Ainsi, on peut écrire :

$$|1^{\uparrow}\rangle = a_+^{\uparrow} |1, L_6^+ \uparrow\rangle + a_-^{\uparrow} |1, L_6^- \uparrow\rangle$$

$$|1^{\downarrow}\rangle = a_+^{\downarrow} |1, L_6^+ \downarrow\rangle + a_-^{\downarrow} |1, L_6^- \downarrow\rangle$$

Les coefficients $a_{\pm}^{\uparrow, \downarrow}$ sont calculés numériquement, ce sont deux des vecteurs propres de $H_1(B)$. Ce mélange de symétrie et de spin des niveaux $n = 0$ implique l'activation de transitions jusqu'à présent interdites. Le calcul des éléments de matrice évaluant la probabilité de transition mène à des expressions très simples pour les quatre transitions $0_{\pm} - 1^{\uparrow, \downarrow}$ possibles. Les deux transitions usuelles sont une interbande I ($0_- - 1^{\uparrow}$) et une intrabande CR ($0_+ - 1^{\downarrow}$) dont les éléments de matrice interbandes sont :

$$M_I/P_{\parallel} = a_+^{\uparrow} \chi_- \quad ; \quad M_{CR}/P_{\parallel} = a_-^{\downarrow} \chi_-$$

Les deux autres transitions possibles sont une interbande I' ($0_- - 1^{\downarrow}$) et une intrabande CR' ($0_+ - 1^{\uparrow}$) dont les éléments de matrice interbandes sont :

$$M_{I'}/P_{\parallel} = a_-^{\downarrow} \chi_+ \quad ; \quad M_{CR'}/P_{\parallel} = a_+^{\uparrow} \chi_+$$

Si $W = 0$, on a $\chi_+ = 0$ et donc $M_{I'} = M_{CR'} = 0$. On retrouve bien le fait que I' et CR' soient des transitions interdites. Toutefois, le mélange des niveaux $n = 0$ active ces transitions au voisinage de B_c . Loin de l'anti-croisement, on retrouve bien sûr un mélange quasi-nul et donc quasiment la même situation qu'avec un simple croisement

La comparaison théorie-expérience est montrée sur les Fig. 2-23(a,b) avec les quatre transitions désormais possibles. Les interbandes sont toujours représentées en gras et les intrabandes en traits fins. Les transitions autorisées grâce à l'anti-croisement rendent bien compte des points intermédiaires laissés en suspens jusqu'ici. L'ajustement a été réalisé avec $W = 5$ meV. A $B = B_c$, vu que les niveaux ne se croisent pas, les transitions font un saut en énergie de $\pm 2W = 10$ meV. On retrouve alors à très haut champ, et donc relativement loin de l'anti-croisement, la situation décrite en Fig. 2-22. Les niveaux de Landau s'anti-croisant sont représentés sur la Fig. 2-23(c), avec la quantification du mélange des niveaux 0 par l'échelle de couleur.

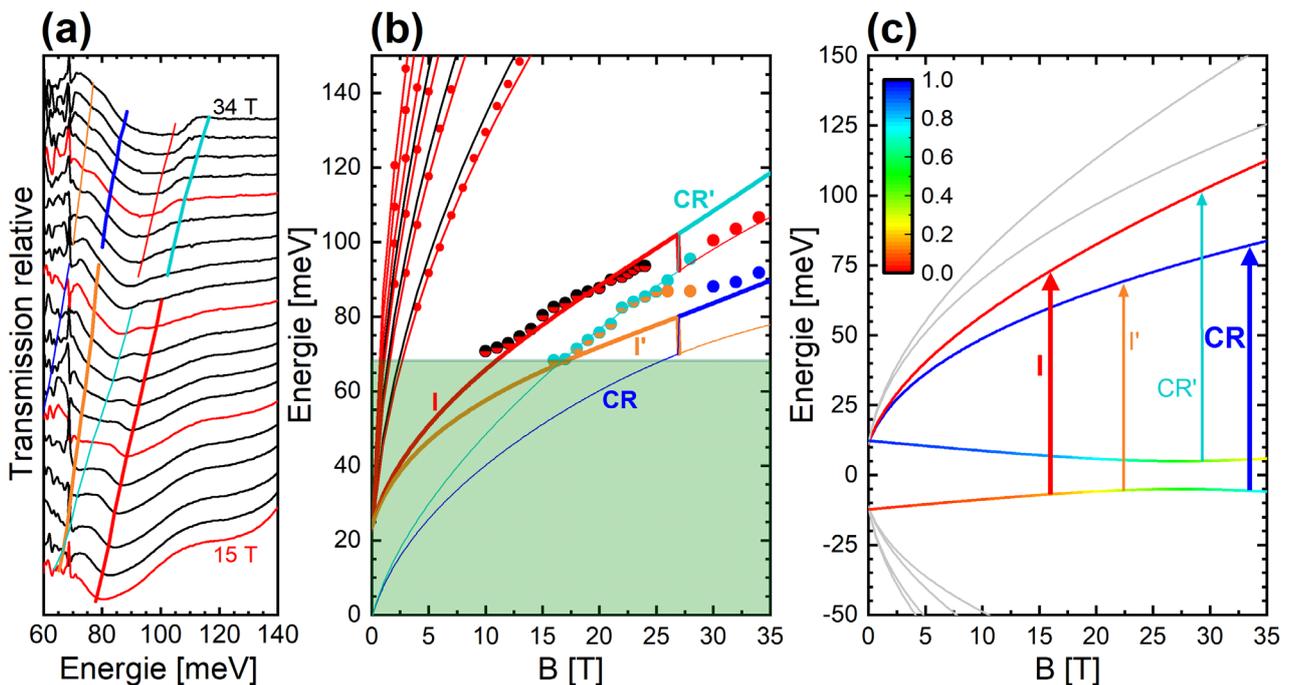


Figure 2-23. (a) Spectres à basses énergies de M-19 à 4.2 K de 15 à 34 T. Les multiples de 5 T sont tracés en rouge. Les énergies de transition ont été reportées. (b) Comparaison de la théorie (lignes) avec l'expérience (points). Les deux transitions autorisées I et CR sont en rouge et en bleu, les deux interdites sans anti-croisement I' et CR' sont en orange et bleu clair. Les points expérimentaux sont alors très bien interprétés. Les traits gras (fins) représentent les interbandes (intrabandes). (c) Niveaux de Landau de M-19 à 4.2 K. Les niveaux de Landau $n = 0$ s'anti-croisent et le mélange de leur symétrie et spin est calculé et représenté par une échelle de couleur en haut à gauche. Les transitions possibles sont représentées par des flèches.

On peut aller plus loin en utilisant nos connaissances sur les variations du gap en fonction de divers paramètres extérieurs :

$$B_c(x, T) = -\frac{\tilde{m}\Delta(x, T)}{\hbar e}$$

Ainsi, toujours pour l'échantillon M-19, $B_c \sim 16$ T à $T = 40$ K et $B_c \sim 11$ T à 60 K comme représenté sur la Fig. 2-24(a). Le niveau 0 de conduction y a été tracé, il croise celui de valence au milieu du gap. Nous pouvons alors effectuer les expériences de magnéto-optique à l'ENS puisque le voisinage du point de transition de phase topologique devient accessible avec notre dispositif expérimental. Les spectres de 15 à 16 T obtenus à 40 K et

60 K sont montrés sur les Fig. 2-24(b,c) respectivement. On voit alors les deux transitions qu'on attribue à l'interbande usuelle I en rouge et la résonance cyclotron normalement interdite CR' en bleu clair. Une modélisation des raies d'absorption par des gaussiennes permet d'extraire l'intensité de ces deux absorptions. Le rapport d'intensité entre CR' et I est reporté par des points sur la Fig. 2-24(d). Ces résultats expérimentaux sont comparés au calcul du ratio des forces d'oscillateurs (avec $W = 5$ meV) représenté par les lignes pleines. A noter ici, par soucis de continuité de la figure, qu'on a représenté $M_{CR'}^2/M_I^2$ si celui-ci est inférieur à 1, l'inverse sinon.

Ce rapport exprime directement le caractère topologique de l'échantillon à un champ donné. En effet, s'il est inférieur à 1, l'échantillon est topologique, et vice versa. C'est d'ailleurs ce qui est observé directement sur les spectres (Fig. 2-24(b,c)). A 40 K, le champ critique n'est pas encore atteint et la raie d'absorption correspondant à la transition I est clairement plus intense, bien que son intensité diminue à l'approche de B_c (40 K). A 60 K, le champ critique est dépassé et on voit que l'absorption attribuée à CR' est bien plus importante que celle attribuée à I, qui tend à disparaître. Ce balancement dans les intensités de raie démontre la transition de phase topologique induite par le champ magnétique, accompagnée par un anti-croisement. Elle a également été observée dans l'échantillon M-25. Cependant, les résultats expérimentaux sont moins précis car les températures pour atteindre B_c sont plus élevées et donc les raies magnéto-optiques plus larges.

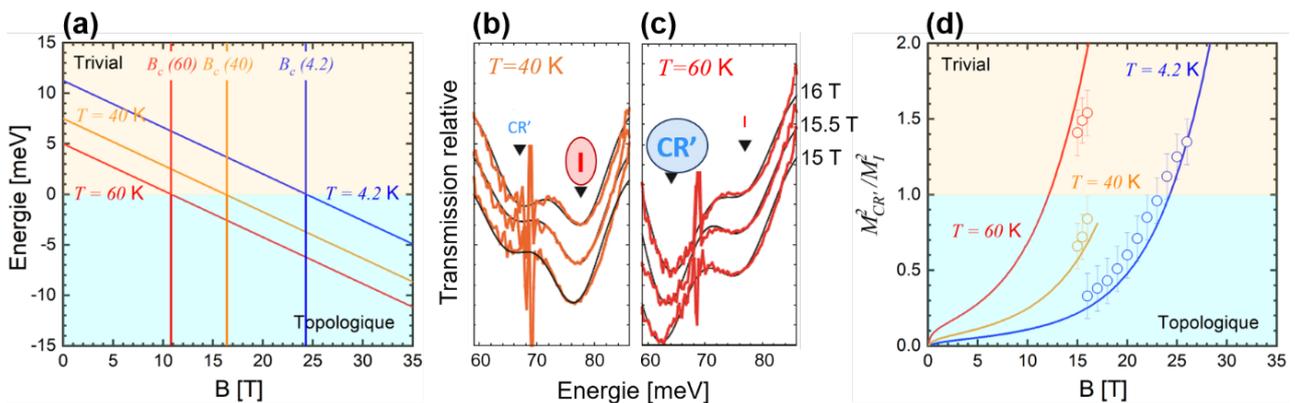


Figure 2-24. (a) Niveau de Landau $n = 0$ de conduction illustrant la dépendance du champ critique avec la température, liée à la diminution de $|\Delta(T)|$ avec T . Le gap à 4.2 K est pris ici égal à -20 meV. (b,c) Spectres magnéto-optique à $T = 40$ K et 60 K respectivement. Les raies d'absorption attribuées aux transitions I et CR' sont modélisées par une superposition de gaussiennes (courbes noires). (d) Ratio des intensités des raies modélisées entre CR' et I et calcul des forces d'oscillateurs de CR' relativement à I.

iii. Réflexion sur la nature de la transition de phase topologique

Ce chapitre a démontré la grande versatilité des propriétés électroniques des alliages massifs $Pb_{1-x}Sn_xSe$. L'énergie de gap est très sensible tant aux paramètres structuraux (composition chimique et contraintes mécaniques) qu'aux paramètres environnementaux comme la température ou le champ magnétique externe. Le gap peut donc être varié de $+250$ meV à -140 meV suivant les conditions imposées. En particulier, le caractère topologique de PbSnSe est exacerbé par l'ingénierie de croissance (composition chimique et effet de contrainte).

On peut également remarquer que toutes les transitions de phase topologique observées dans ce chapitre s'accompagnent d'un saut du gap de quelques meV, qu'elles soient induites par la composition chimique, la température ou le champ magnétique. Une transition de phase continue avec un passage par un échantillon de gap nul n'est jamais observée.⁷⁹ Il est difficile de pointer une raison théorique à cela car le potentiel qui

provoquerait l'anti-croisement et donc qui mixerait les niveaux électroniques serait un potentiel couplant deux spins opposés, ce qui n'est, en absence de magnétisme, pas commun. Une théorie poussée sur la nature de cette transition de phase dépasse le cadre de cette thèse. G. Bastard a calculé dans l'approximation de Born l'effet du désordre d'alliage dans $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$, qui conduit à un évitement de l'ordre du meV. Cependant, s'il on veut aller plus loin (au-delà de l'approximation de Born) et obtenir un résultat plus quantitatif, un calcul numérique « self-consistent » est nécessaire. Des calculs par des méthodes numériques poussées, qui vont notamment au-delà de l'approximation du cristal virtuel, montrent que la transition de phase topologique dans les sels de plomb ne s'effectue pas en un point critique mais sur un domaine plus vaste.^{80,81} Ces résultats vont dans le sens de nos observations et pourraient rendre compte d'un phénomène intrinsèque de ces alliages ternaires. Cette question mérite sûrement une plus ample et plus précise investigation.

Un autre paramètre rentrant en ligne de compte dans cette étude est que toutes les vallées ne sont en réalité pas équivalentes. Cela peut donner lieu à un point critique différent selon la vallée. Il n'y aurait donc pas une transition de phase topologique mais quatre, ce qui pourrait élargir le domaine de transition.

Enfin, pour clore ce chapitre, les transitions magnéto-optiques provenant des états topologiques de surface n'ont pas été clairement observées. On a donc démontré l'inversion de la symétrie des bandes dans $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ mais nous n'avons pas prouvé l'effet de cette inversion, à savoir l'apparition de cônes de Dirac à la surface du matériau. Cela peut se comprendre en considérant le ratio surface sur volume extrêmement réduit pour des échantillons de 2 μm ou même 400 nm d'épaisseur. Les absorptions des états de surface sont alors largement masquées par celles du massif. De plus, le niveau de Fermi situé dans la bande de conduction du massif, est relativement haut par rapport aux états topologiques de surface qui se trouvent au milieu du gap. Cela empêche d'observer les transitions fondamentales issues des états de surface. Le dernier argument que l'on peut avancer est le fait que la surface du film et l'interface film/substrat ne sont pas de bonne qualité : l'une est pleine de liaisons pendantes et l'autre de dislocations. Cette mauvaise qualité n'est pas favorable pour l'observation des états topologiques en magnéto-optique.

Pour pallier ce problème et avoir accès aux états topologiques de surface, il faut augmenter le rapport surface sur volume et améliorer la qualité des interfaces. Nous avons donc étudié des hétérostructures à base de PbSnSe à multiples interfaces dont les résultats sont présentés dans le chapitre suivant. Notre connaissance de la structure de bande du matériau massif sous différentes conditions, établie tout au long de ce chapitre, sera très utile.

Chapitre 3 – Les états topologiques d’interface dans les hétérostructures à base de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$

Dans le chapitre II, la nature topologique des alliages $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ à trois dimensions a été caractérisée en magnéto-optique en fonction de plusieurs paramètres extérieurs. Le chapitre III vise à mettre en évidence les états topologiques de surface par la magnéto-optique lorsque l’alliage est topologique. Pour cela, le rapport surface sur volume des échantillons étudiés est considérablement augmenté en travaillant sur des hétérostructures à base de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$. La structure de bande de PbSnSe étant très simple, de telles hétérostructures offrent une plateforme idéale pour étudier les états topologiques de surface et/ou d’interface. La théorie des fonctions enveloppes permet une approche naturelle et quantitative de ce problème. Elle permet d’établir un lien de causalité entre l’alignement de bandes 3D des hétérostructures et les propriétés des états topologiques de surface et/ou d’interface. La magnéto-optique nous permettra tout au long de ce chapitre d’observer et de caractériser les états topologiques 2D, ainsi que leur sensibilité aux paramètres comme la température, le confinement quantique ou le couplage par effet tunnel.

I. Description théorique d’une hétérostructure à multi puits quantiques topologiques

i. Paramétrisation du problème

a) Hétérostructures à base de PbSnSe topologique

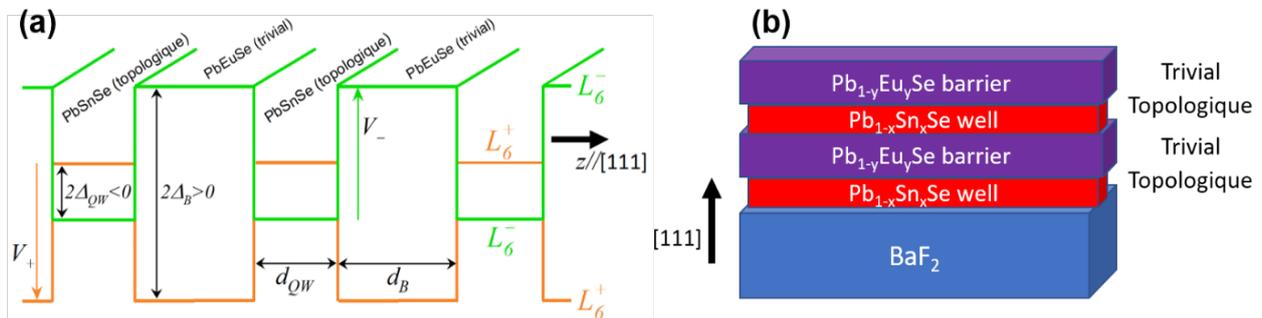


Figure 3-1. (a) Schéma de l’alignement de bandes, selon l’axe de croissance $z//[111]$, d’une hétérostructure $\text{PbSnSe}/\text{PbEuSe}$. La bande L_6^+ (L_6^-) est en orange (vert). PbSnSe est ici topologique, de gap négatif ($2\Delta_{QW} < 0$) et PbEuSe est trivial avec donc un gap positif ($2\Delta_B > 0$). L’épaisseur des puits (barrières) est notée d_{QW} (d_B). Le décalage des bandes L_6^\pm aux interfaces est noté V_\pm . (b) Représentation schématique de l’empilement des couches selon l’axe $[111]$ de l’hétérostructure.

Nous allons considérer tout au long de ce chapitre un empilement de plusieurs couches de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ et $\text{Pb}_{1-y}\text{Eu}_y\text{Se}$ successives, comme il est représenté sur la Fig. 3-1(b). Tous les échantillons étudiés sont épitaxiés par jet moléculaire sur BaF_2 (111).⁸² Un tel empilement de N périodes nous permet d’avoir accès à $2N - 1$ interfaces entre matériaux topologiques ($\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$) et triviaux ($\text{Pb}_{1-y}\text{Eu}_y\text{Se}$). L’énergie de gap du matériau puits $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ est négative ($2\Delta_{QW} < 0$) et celle du matériau barrière $\text{Pb}_{1-y}\text{Eu}_y\text{Se}$ positive ($2\Delta_B > 0$).⁸³ L’empilement de couches de topologie successivement différente induit l’alignement de bande schématisé

sur la Fig. 3-1(a), car les bandes de même symétrie se raccordent aux interfaces. Ainsi, la bande de symétrie L_6^+ (en orange) est la bande de conduction du puits mais la bande de valence de la barrière ; et inversement pour L_6^- (en vert). Cette inversion de symétrie à chaque interface confère à ce type d'hétérostructure des propriétés électroniques étonnantes, comme nous allons l'étudier en détail.

Le gap relativement grand de la barrière permet de confiner les électrons dans un puits de potentiel avec une hauteur de barrière notée V_{\pm} pour les bandes L_6^{\pm} . Le décalage de bande aux interfaces est quasi-symétrique pour les électrons et les trous, comme cela a été montré dans des études antérieures et sera confirmé par nos expériences de magnéto-optique.⁸² Cette symétrie simplifie le problème et est d'autant plus justifiée que seuls les états fondamentaux nous intéresseront. L'épaisseur des deux couches est notée d_{QW} et d_B pour le puits et la barrière respectivement. Avant de s'attaquer à la résolution théorique de ce problème, il convient de décrire un peu plus précisément le matériau barrière $Pb_{1-y}Eu_ySe$.

a) Quelques propriétés du matériau barrière $Pb_{1-y}Eu_ySe$

La structure de bande 3D du matériau puits en fonction de divers paramètres est bien connue car elle a été étudiée en détail dans le chapitre II. Quelques notions de celle du matériau barrière sont utiles pour connaître l'alignement de bande complet des hétérostructures topologiques. Ajouter un peu d'euprium II dans PbSe permet d'ouvrir le gap, car l'ion Eu^{2+} est plus gros que Pb^{2+} .^{61,83} Le paramètre de maille de $Pb_{1-y}Eu_ySe$ est logiquement supérieur à celui de PbSe. Sa dépendance avec y à 300 K est tracée sur la Fig. 3-2(a) et suit la loi de Vegard :⁸⁴

$$a_0(y) = 6.125 + 0.19 y \quad (\text{\AA})$$

La dépendance en y et T du gap de $Pb_{1-y}Eu_ySe$ ($2\Delta_B$), tracée sur les Fig. 3-2(b,c), s'écrit :

$$2\Delta_B(y, T) = 146 + \frac{0.475 T^2(1 - 3y)}{T + 40.7} + 3000 y \quad (\text{meV})$$

Le gap augmente donc de ~ 30 meV par % d'euprium. Ainsi, par exemple, $Pb_{0.95}Eu_{0.05}Se$ a un gap de +300 meV à $T = 4.2$ K. La dépendance en température est très similaire à celle déterminée pour $Pb_{1-x}Sn_xSe$ dans le chapitre précédent, comme nous le montre la Fig. 3-2(c) pour différents teneurs en euprium. Cette loi empirique sera confirmée dans les parties suivantes par la magnéto-optique.

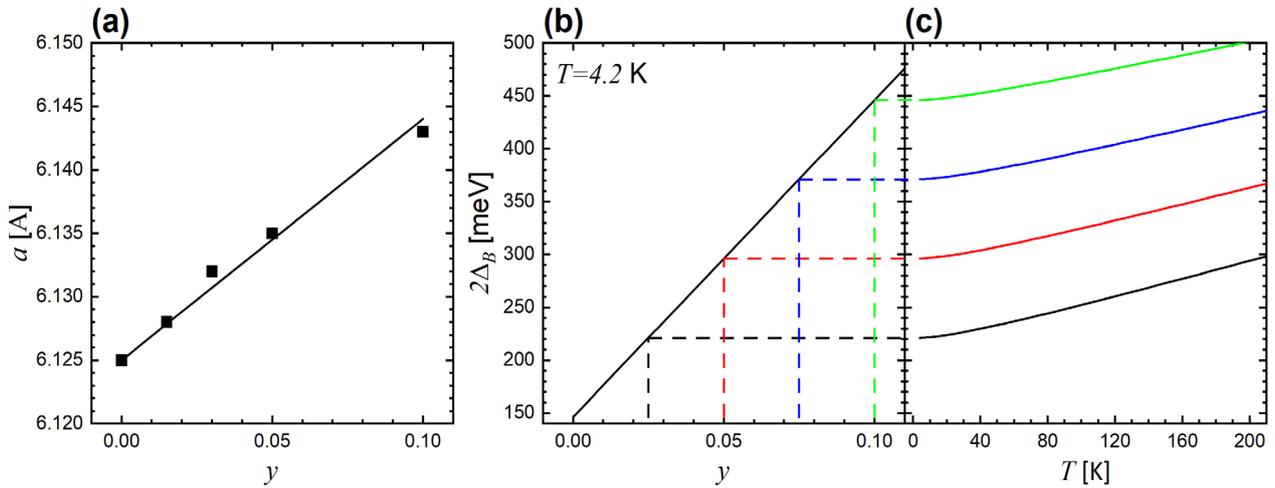


Figure 3-2. (a) Paramètre de maille à 300 K de $Pb_{1-y}Eu_ySe$ (points) et la loi de Vegard correspondante (ligne pleine). (b) Variation de l'énergie de gap $2\Delta_B$ avec la composition chimique de $Pb_{1-y}Eu_ySe$ à 4.2 K. (c) Variation de l'énergie de gap $2\Delta_B$ avec la température de l'alliage pour différentes compositions.

Enfin, Eu^{2+} est un ion paramagnétique dont le moment magnétique peut interagir avec les électrons libres et perturber leurs propriétés. Ce phénomène sera étudié en détail dans le chapitre IV. Nous allons voir que cette interaction est négligeable dans le cas de Eu^{2+} ,⁶¹ d'autant plus que ces ions se trouvent dans la barrière et les électrons libres dans le puits. Ce n'est donc qu'une interaction de proximité et c'est pourquoi on ne tient pas compte des propriétés paramagnétiques du matériau barrière dans ce chapitre.

b) Modélisation du confinement quantique dans le cadre de la théorie des fonctions enveloppes

On peut modéliser l'alignement de bande de l'hétérostructure selon z , schématisée en Fig. 3-1, par un potentiel dépendant de z qui prend en compte le décalage des bandes entre puits et barrières. On définit alors deux fonctions par morceaux $V_{\pm}(z)$ décrivant les minimums et maximums des bandes L_6^{\pm} en fonction de z :

$$V_{\pm}(z) = \begin{cases} 0, & \text{dans le puits} \\ \mp V, & \text{dans la barrière} \end{cases}$$

avec $V > 0$. On retrouve ici la symétrie électron-trou qui nous permet d'écrire $V = \Delta_B - \Delta_{QW}$. L'origine des énergies est prise au milieu des gaps des matériaux. A cause de ce potentiel, l'électron de PbSnSe perd son état d'onde plane dans la direction z , donc k_z n'est plus un bon nombre quantique. Il doit être remplacé par son opérateur $-i \partial / \partial z$ et l'hamiltonien à résoudre s'écrit alors :

$$H_{QW}(k) = \begin{pmatrix} -\Delta_{QW} - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + V_+(z) & 0 & -i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} & \hbar v_{\parallel} k_{-} \\ 0 & -\Delta_{QW} - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + V_+(z) & \hbar v_{\parallel} k_{+} & i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} \\ -i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} & \hbar v_{\parallel} k_{-} & \Delta_{QW} + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + V_-(z) & 0 \\ \hbar v_{\parallel} k_{+} & i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} & 0 & \Delta_{QW} + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + V_-(z) \end{pmatrix}$$

Il est exprimé dans la même base des fonctions de Bloch que dans le chapitre II : $L_6^+ \alpha$; $L_6^+ \beta$; $L_6^- \alpha$; $L_6^- \beta$. Pour le moment, les barrières sont considérées comme suffisamment épaisses pour empêcher toute interaction entre les électrons des différents puits quantiques, par effet tunnel. On peut donc théoriquement ne prendre en compte à ce stade qu'un unique puits quantique.

Il a été assumé implicitement que les fonctions de Bloch sont identiques dans la barrière et dans le puits. On peut s'en convaincre en considérant que les matériaux sont deux alliages ternaires proches de PbSe. Ceci est l'hypothèse fondamentale de la théorie des fonctions enveloppes.¹⁷ Elle permet d'écrire H_{QW} de la même façon des deux côtés l'interface. En particulier, cette hypothèse nécessite de prendre v_z et v_{\parallel} indépendants de z , ce qui est à première vue une approximation peu justifiée (voir chapitre II). Ce problème sera plus amplement discuté par la suite.

ii. Résolution du problème pour $k_{\parallel} = 0$ et influence des paramètres structuraux

a) Energie des états liés des puits quantiques

Nous allons commencer par résoudre le problème pour $k_x = k_y = 0$. L'hamiltonien $H_{QW}(0)$ se découple alors en deux hamiltoniens indépendantes, un pour chaque composante de spin α et β :

$$\mathcal{H}_\alpha = \begin{pmatrix} -\Delta_{QW} + V_+(z) & -i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} \\ -i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} & \Delta_{QW} + V_-(z) \end{pmatrix} \quad \text{dans la base } L_6^+ \alpha ; L_6^- \alpha,$$

$$\mathcal{H}_\beta = \begin{pmatrix} -\Delta_{QW} + V_+(z) & i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} \\ i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} & \Delta_{QW} + V_-(z) \end{pmatrix} \quad \text{dans la base } L_6^+ \beta ; L_6^- \beta.$$

La résolution des équations aux valeurs propres définies par \mathcal{H}_α et \mathcal{H}_β mènent à l'énergie des états liés du puits. Les vecteurs propres de ce problème sont les fonctions enveloppes χ_α et χ_β , fonctions de z . Ce sont des fonctions déterminées à $k_{||} = 0$ décrivant par le carré de leur module, la densité de probabilité électronique de l'état confiné. Dans notre modèle à deux bandes, χ_α et χ_β ont chacune une composante L_6^+ et une composante L_6^- . On peut les écrire sous forme de spineurs :

$$\chi_\alpha = \begin{pmatrix} F_+ \\ 0 \\ F_- \\ 0 \end{pmatrix} ; \quad \chi_\beta = \begin{pmatrix} 0 \\ F_+ \\ 0 \\ -F_- \end{pmatrix}$$

F_\pm est donc la composante sur L_6^\pm de la fonction enveloppe de l'état du puits et vérifient la condition de normalisation :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} [|F_+(z)|^2 + |F_-(z)|^2] dz = 1$$

Le problème sur la composante α mène à une équation différentielle du second ordre pour F_+ , et une expression de F_- en fonction de F_+ :

$$\begin{cases} [V_+(z) - \Delta_{QW} - E]F_+(z) + \hbar^2 v_z^2 \frac{\partial}{\partial z} \left[\frac{1}{\Delta_{QW} - E + V_-(z)} \frac{\partial F_+}{\partial z} \right] = 0 \\ F_-(z) = \frac{i\hbar v_z}{\Delta_{QW} - E + V_-(z)} \frac{\partial F_+}{\partial z} \end{cases}$$

Il s'agit alors de résoudre l'équation différentielle sur F_+ et ensuite déduire F_- à partir de la seconde équation. On peut facilement résoudre l'équation différentielle du 2nd ordre en considérant séparément les deux côtés de l'interface. Il faudra ensuite raccorder les solutions aux interfaces.¹⁷ F_+ vérifie dans le puits :

$$\frac{\partial^2 F_+}{\partial z^2} + \frac{1}{\hbar^2 v_z^2} (E + \Delta_{QW})(E - \Delta_{QW}) F_+(z) = 0$$

Et dans la barrière :

$$\frac{\partial^2 F_+}{\partial z^2} + \frac{1}{\hbar^2 v_z^2} (E + \Delta_{QW} + V)(E - \Delta_{QW} - V) F_+(z) = 0$$

On pose k_z^2 et ρ_z^2 , les carrés des vecteurs d'onde selon z dans le puits et la barrière respectivement :

$$k_z^2 = \frac{1}{\hbar^2 v_z^2} (E + \Delta_{QW})(E - \Delta_{QW})$$

$$\rho_z^2 = \frac{1}{\hbar^2 v_z^2} (E + \Delta_{QW} + V)(E - \Delta_{QW} - V) = \frac{1}{\hbar^2 v_z^2} (E + \Delta_B)(E - \Delta_B)$$

Une simple étude de signe nous permet d'évaluer les domaines d'énergie dans lesquels les solutions seront complexes ou réelles. Ces domaines sont illustrés sur la Fig. 3-3 en rouge (bleu) s'ils admettent des solutions réelles (complexes). Dans le puits, les états pour lesquels les vecteurs d'onde sont réels ont des solutions de la forme $F_+ = A \cos(k_z z) + B \sin(k_z z)$ où A et B sont des constantes à déterminer et :

$$k_z = \frac{1}{\hbar v_z} \sqrt{(E + \Delta_{QW})(E - \Delta_{QW})}$$

La spécificité de ces hétérostructures est de posséder une zone du puits dans laquelle le vecteur d'onde est imaginaire. Cette zone est le gap du matériau puits $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$: $E < |\Delta_{QW}|$ et est montrée par la zone hachurée sur la Fig. 3-3. Les solutions sont alors de la forme $F_+ = A \cosh(\kappa_z z) + B \sinh(\kappa_z z)$ où :

$$\kappa_z = \frac{1}{\hbar v_z} \sqrt{(E + \Delta_{QW})(\Delta_{QW} - E)}$$

Ces états confinés sont donc des ondes évanescentes. C'est également la forme de fonction que l'on retrouve dans la barrière avec $F_+ = A \cosh(\rho_z z) + B \sinh(\rho_z z)$ et :

$$\rho_z = \frac{1}{\hbar v_z} \sqrt{(E + \Delta_{QW} + V)(V + \Delta_{QW} - E)} = \frac{1}{\hbar v_z} \sqrt{(E + \Delta_B)(\Delta_B - E)}$$

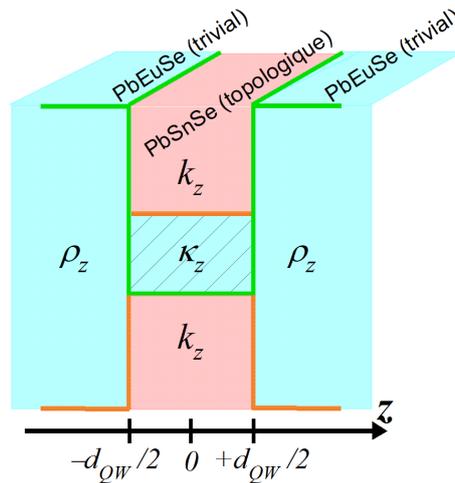


Figure 3-3. Schéma d'un puits quantique topologique unique et de son alignement de bandes. Les domaines dans lesquels le vecteur d'onde selon z des états liés est réel (imaginaire) sont en rouge (bleu). L'origine de l'axe z est placée au milieu du puits.

On peut simplifier la forme des fonctions d'onde en considérant les symétries du problème. Si l'on prend l'origine de l'axe z au milieu du puits (voir Fig. 3-3), les potentiels $V_{\pm}(z)$ sont pairs. Ceci implique que les fonctions enveloppes ont une parité bien définie. Dans le puits, elles peuvent donc avoir les formes suivantes : $A \cos(k_z z)$, $A \sin(k_z z)$, $A \cosh(k_z z)$ ou encore $A \sinh(k_z z)$. De plus, la grande épaisseur des barrières impose l'annulation des fonctions d'onde de la barrière loin des interfaces. F_+ peut donc avoir l'une des quatre formes suivantes :

$$F_+^{pair,propagatif}(z) = \begin{cases} A \cos(k_z z), & |z| \leq d_{QW}/2 \\ B \exp\left[-\rho_z \left(z - \frac{d_{QW}}{2}\right)\right], & z \geq d_{QW}/2 \\ B \exp\left[\rho_z \left(z + \frac{d_{QW}}{2}\right)\right], & z \leq -d_{QW}/2 \end{cases}$$

$$F_+^{impair,propagatif}(z) = \begin{cases} A \sin(k_z z), & |z| \leq d_{QW}/2 \\ B \exp\left[-\rho_z \left(z - \frac{d_{QW}}{2}\right)\right], & z \geq d_{QW}/2 \\ -B \exp\left[\rho_z \left(z + \frac{d_{QW}}{2}\right)\right], & z \leq -d_{QW}/2 \end{cases}$$

$$F_+^{pair,evanescent}(z) = \begin{cases} A \cosh(\kappa_z z), & |z| \leq d_{QW}/2 \\ B \exp\left[-\rho_z \left(z - \frac{d_{QW}}{2}\right)\right], & z \geq d_{QW}/2 \\ B \exp\left[\rho_z \left(z + \frac{d_{QW}}{2}\right)\right], & z \leq -d_{QW}/2 \end{cases}$$

$$F_+^{impair,evanescent}(z) = \begin{cases} A \sinh(\kappa_z z), & |z| \leq d_{QW}/2 \\ B \exp\left[-\rho_z \left(z - \frac{d_{QW}}{2}\right)\right], & z \geq d_{QW}/2 \\ -B \exp\left[\rho_z \left(z + \frac{d_{QW}}{2}\right)\right], & z \leq -d_{QW}/2 \end{cases}$$

Les constantes A et B sont déterminées avec les conditions aux limites qui raccordent aux interfaces les fonctions du puits et de la barrière. En effet, la fonction enveloppe doit obéir à la conservation du courant de probabilité à travers les interfaces, ce qui se traduit par F_+ et $\mu^{-1}(z) \frac{\partial F_+}{\partial z}$ continus aux interfaces.¹⁷ $\mu(z)$ est la masse effective du matériau puits ou barrière :

$$\frac{1}{\mu(z)} = \frac{2v_z^2}{\Delta_{QW} - E + V_-(z)}$$

La première condition (F_+ continue aux interfaces) donne une relation entre A et B qui, combinée à la condition de normalisation, permet d'obtenir les fonctions enveloppes des états confinés.

La condition aux limites supplémentaire aboutit à quatre équations pour les quatre formes possibles de F_+ :

$$\tan\left(\frac{k_z d_{QW}}{2}\right) = \frac{\rho_z}{k_z} \frac{\Delta_{QW} - E}{\Delta_{QW} + V - E}, \quad \text{pour les états pairs et propagatifs}$$

$$\cotan\left(\frac{k_z d_{QW}}{2}\right) = -\frac{\rho_z}{k_z} \frac{\Delta_{QW} - E}{\Delta_{QW} + V - E}, \quad \text{pour les états impairs et propagatifs}$$

$$\tanh\left(\frac{\kappa_z d_{QW}}{2}\right) = -\frac{\rho_z}{\kappa_z} \frac{\Delta_{QW} - E}{\Delta_{QW} + V - E}, \quad \text{pour les états pairs et évanescents}$$

$$\cotanh\left(\frac{\kappa_z d_{QW}}{2}\right) = -\frac{\rho_z}{\kappa_z} \frac{\Delta_{QW} - E}{\Delta_{QW} + V - E}, \quad \text{pour les états impairs et évanescents}$$

Il suffit alors de résoudre numériquement ces équations pour accéder aux énergies des états confinés. On obtient les résultats présentés sur la Fig. 3-4(a,b). Sur la Fig. 3-4(a), les énergies des états liés sont calculées en fonction de l'épaisseur du puits pour $2\Delta_{QW} = -40$ meV, $2\Delta_B = +300$ meV et $v_z = 4.50 \times 10^5$ m/s. La Fig. 3-4(b) représente la variation de l'énergie des états confinés en fonction de $2\Delta_{QW}$ pour les mêmes paramètres $2\Delta_B$ et v_z et $d_{QW} = 25$ nm. L'influence des paramètres $2\Delta_B$ et v_z sera discutée plus loin.

On remarque sur la Fig. 3-4(a), lorsque le confinement est assez faible, que deux états (et deux états seulement) se trouvent dans la zone bleue hachurée. Ces deux états, représentés en rouge, sont donc des ondes évanescentes dans le puits. Les autres états en noir sont de nature propagative. Dans la limite des très faibles confinements, c'est-à-dire pour $d_{QW} \rightarrow +\infty$, le cas massif doit être retrouvé. Les états propagatifs

convergent alors vers les extrema de bandes pour former les bandes L_6^+ et L_6^- . C'est pourquoi ils seront parfois appelés « états massifs ». Les états évanescents, eux, convergent tous deux au milieu du gap de PbSnSe. **On peut donc considérer que ces deux états sont les états topologiques de surface car leur énergie est attendue au milieu du gap.** De plus, les calculs n'aboutissent pas à de tels états lorsque le matériau puits n'est pas topologique.

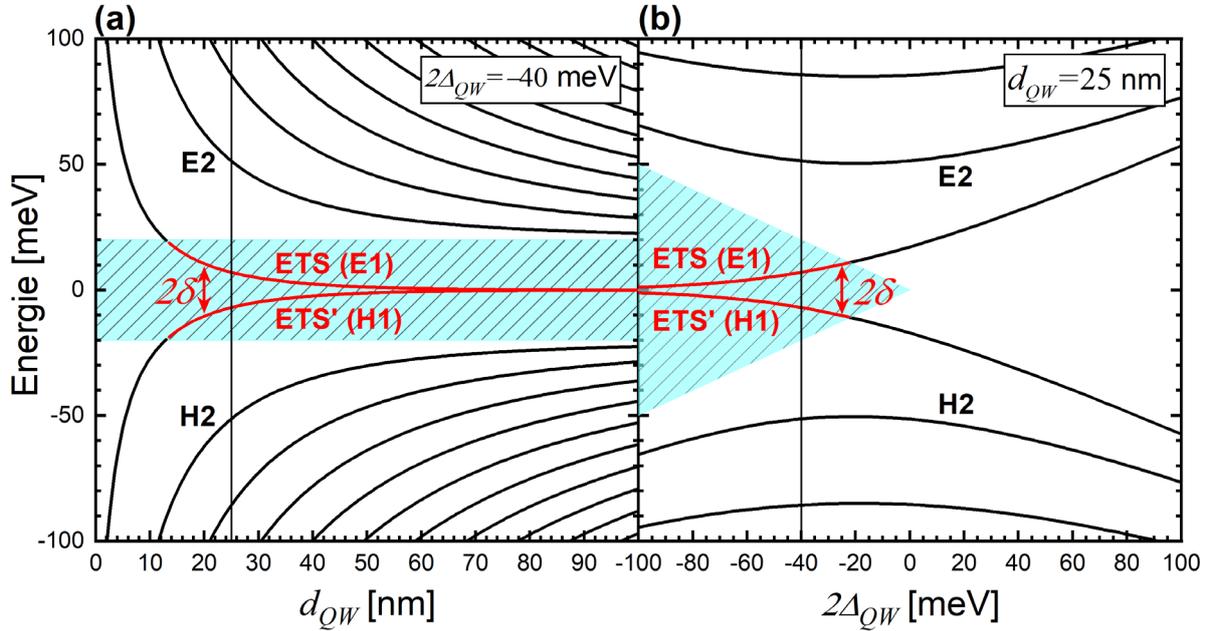


Figure 3-4. Variation de l'énergie des états confinés d'un puits quantique en fonction de son épaisseur (a) et du gap de son matériau puits (b). La zone du gap du matériau puits accueillant des états évanescents en rouge est hachurée en bleu ciel. Ces états évanescents sont notés « Etats Topologiques de Surface » et sont séparés d'un gap d'hybridation 2δ . Les n-ième états confinés sont en noir et notés conventionnellement Hn et En pour « hole » et « electron » respectivement.

On peut également voir les choses autrement et décrire la Fig. 3-4(a) dans l'autre sens. On part donc du fait que le matériau massif admet un état topologique de surface (ETS) à chacune de ses interfaces. Lorsque l'on réduit la taille du massif jusqu'à des épaisseurs de quelques dizaines de nanomètres, les deux interfaces se rapprochent l'une de l'autre. Les fonctions d'onde des ETS, localisées chacune à une interface, commencent alors à se recouvrir. Ceci mène à un couplage des deux ETS qui lève leur dégénérescence et ouvre un gap entre eux. On parle alors d'hybridation des états topologiques de surface et de gap d'hybridation que l'on note 2δ .⁸⁵ On remarque que les ETS évoluent de façon continue vers des états massifs dès lors que le confinement est trop important ou que le matériau puits n'est plus topologique. Ils perdent leur propriété évanescence mais restent les états fondamentaux du puits H1 et E1 séparé d'une énergie 2δ .

b) Fonctions enveloppes des états liés

On a donc résolu le problème à $k_{||} = 0$ mais en ne considérant que la composante $L_6^+ \alpha$. Les énergies des états confinés sont identiques pour la composante β car on obtient la même équation différentielle du second ordre ; c'est la dégénérescence de Kramers. Les solutions sur la composante $L_6^+ \beta$ sont aussi égales à F_+ . Ces fonctions vérifient bien l'alternance de parité des états confinés. En effet, l'état E1 est impair, H1 et E2 sont pairs alors que E3 et H2 sont impairs, et ainsi de suite. Cependant, dans un modèle à deux bandes comme le nôtre, cela n'a pas vraiment de signification car on doit aussi considérer les composantes sur L_6^- de la fonction enveloppe. Pour mémoire, la composante $L_6^- \alpha$ du n-ième état confiné d'énergie E_n se déduit de F_+ par :

$$F_-(z) = \frac{i\hbar v_z}{\Delta_{QW} - E_n + V_-(z)} \frac{\partial F_+}{\partial z}$$

Elle diffère d'une phase π par rapport à son homologue sur la composante $L_6^- \beta$. Alors que F_+ est purement réelle, F_- est une fonction imaginaire pur qui est proportionnelle à la dérivée en z de F_+ . Cela implique que les parités de F_+ et F_- sont opposées pour le même état confiné. Ces fonctions F_+ et F_- sont représentées sur la Fig. 3-5(a,b) respectivement pour un puits de 25 nm d'épaisseur, avec $2\Delta_{QW} = -40$ meV, $2\Delta_B = +300$ meV et $v_z = 4.50 \times 10^5$ m/s. On peut remarquer la différence entre les fonctions évanescentes et les fonctions propagatives. En effet, les fonctions évanescentes sont principalement localisées aux interfaces du puits. Les états propagatifs ont, eux, plus d'amplitude au cœur du puits. De ce fait, la densité de probabilité des états évanescents est très majoritaire aux interfaces, l'électron a beaucoup plus de chance de se trouver sur les interfaces.

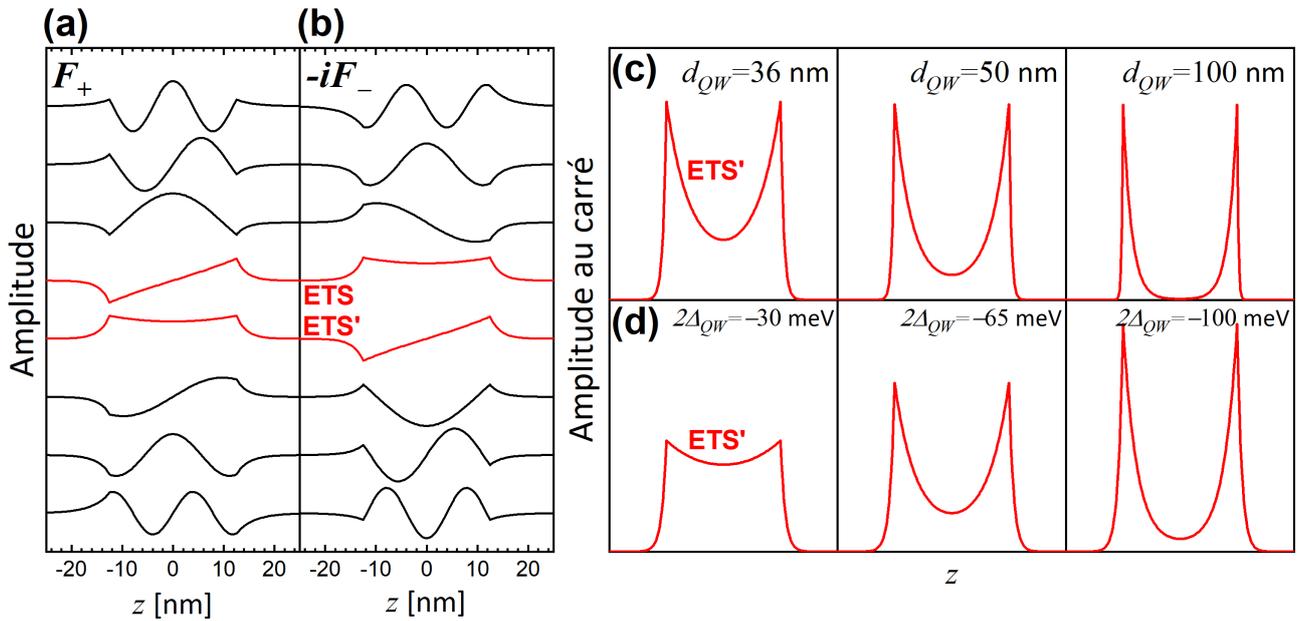


Figure 3-5. Fonction F_+ (a) et $-iF_-$ (b) d'un puits de 25 nm d'épaisseur, avec $2\Delta_{QW} = -40$ meV, $2\Delta_B = +300$ meV et $v_z = 4.50 \times 10^5$ m/s. Les fonctions des différents états ont été décalées pour des raisons de lisibilité, et les fonctions des états évanescents sont en rouge. (c) $|F_+|^2$ de l'état ETS' pour différentes épaisseurs du puits avec $2\Delta_{QW} = -40$ meV. (d) $|F_+|^2$ de l'état ETS' pour différentes énergies de gap du matériau puits avec $d_{QW} = 25$ nm.

La composante F_+ de l'état ETS' (H1) est tracée pour plusieurs épaisseurs du puits sur la Fig. 3-5(c). Plus on se rapproche du cas massif, plus les interfaces sont distantes et plus les électrons sont localisés à la surface. On a le même phénomène en fonction du gap du matériau puits, illustré sur la Fig. 3-5(d). Un grand gap topologique concentre les électrons de l'ETS aux interfaces.

La localisation aux interfaces des états évanescents provient directement de la forme de leur fonction en exponentielle à valeur réelle : $\exp(-\kappa_z z)$. On peut donc définir une longueur caractéristique λ , qui est la longueur de pénétration de l'ETS dans le puits :

$$\lambda = \frac{1}{\kappa_z} = \frac{\hbar v_z}{\sqrt{(E + \Delta_{QW})(\Delta_{QW} - E)}} = \frac{\hbar v_z}{\sqrt{\Delta_{QW}^2 - E^2}}$$

Les énergies des deux états évanescents étant à $\pm\delta$, on peut écrire :

$$\lambda = \frac{\hbar v_z}{\sqrt{\Delta_{QW}^2 - \delta^2}}$$

Cette formule n'a de sens que si $\delta < |\Delta_{QW}|$, c'est-à-dire seulement si l'état est évanescent. On comprend mieux les variations de F_+ en fonction de d_{QW} et de Δ_{QW} illustrées sur les Fig. 3-5(c,d).

Dans la limite d'un PbSnSe massif, on a $\delta = 0$ donc $\lambda = \hbar v_z / |\Delta_{QW}|$. On peut alors calculer la longueur de pénétration des ETS dans le massif, qui est donc de l'ordre du nanomètre.

Une autre information très importante que nous renseignent les fonctions enveloppes est la symétrie de l'état confiné. Il suffit de calculer l'amplitude carrée de la composante L_6^+ :

$$c_+^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} |F_+|^2 dz$$

Et celle sur L_6^- découle alors de la condition de normalisation de la fonction enveloppe :

$$c_-^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} |F_-|^2 dz = 1 - \int_{-\infty}^{+\infty} |F_+|^2 dz = 1 - c_+^2$$

La Fig. 3-6 reproduit la Fig. 3-4 en introduisant le calcul de la symétrie des états confinés par une échelle de couleur. Cette échelle représente la valeur de c_+^2 de chaque état, c'est-à-dire l'amplitude carrée de la composante L_6^+ . Les deux ETS ont ainsi un ordre trivial : l'état L_6^+ majoritairement est en dessous de celui majoritaire en L_6^- , comme le montrent les Fig. 3-6(a,b). Lorsque $d_{QW} \rightarrow +\infty$, la symétrie des ETS est mélangée équitablement et les états massifs tendent vers une symétrie inversée mimant alors le matériau puits topologique. La Fig. 3-4(b) montre que la symétrie des états massifs suit, avec un léger décalage, la symétrie des bandes du matériau puits. Pour $d_{QW} = 25$ nm par exemple, l'inversion de symétrie des états H2 et E2 intervient à $\Delta_{QW} \sim -20$ meV.

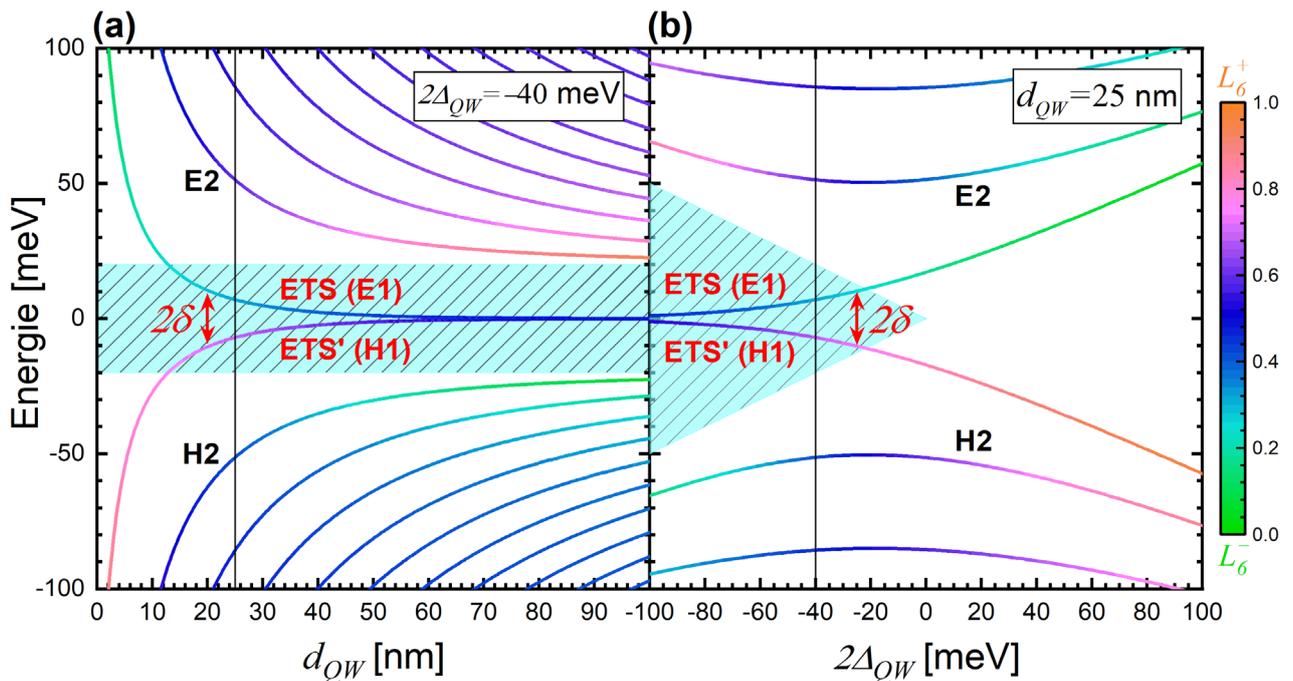


Figure 3-6. (a) et (b) : voir Fig. 4. La symétrie L_6^+ / L_6^- des états confinés est représentée par l'échelle de couleur.

Cette considération des symétries des états confinés nous amènera par la suite à la question du caractère topologique 2D d'une hétérostructure. Ce problème sera discuté plus en détail dans le chapitre suivant.

c) Influence des autres paramètres structuraux

Les Fig. 3-7(a,b) représentent le calcul des états confinés à $k_{\parallel} = 0$ en variant deux autres paramètres du système : v_z et Δ_B . On voit que ces derniers n'influencent pas énormément l'énergie des états confinés, et surtout celle des états fondamentaux.

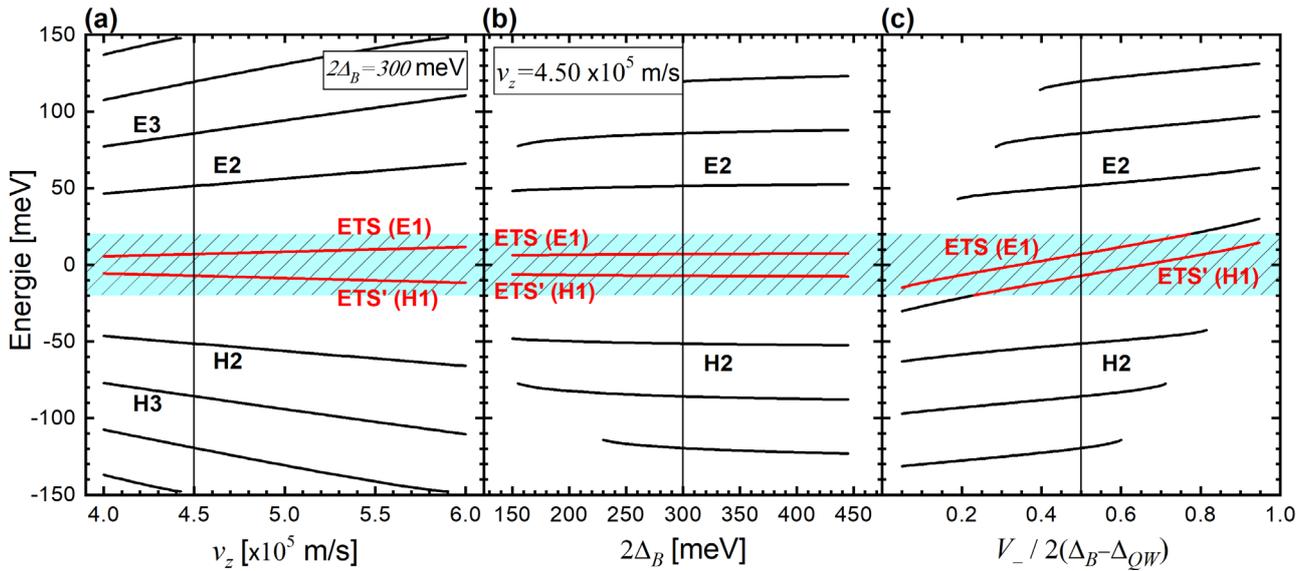


Figure 3-7. Energie des états confinés à $k_{\parallel} = 0$ en fonction de v_z (a), $2\Delta_B$ (b) et l'asymétrie des hauteurs de barrière (c).

On peut également explorer l'effet d'une asymétrie dans les décalages de bande, c'est-à-dire si $V_+ \neq V_-$. On quantifie cette asymétrie par le rapport entre le décalage de la bande L_6^- et le gap de la barrière moins le gap du puits : $V_- / 2(\Delta_B - \Delta_{QW})$. On a alors $V_+ = V_- - 2(\Delta_B - \Delta_{QW})$. La Fig. 3-7(c) représente l'énergie des états confinés en fonction de ce rapport. Il faudrait que l'asymétrie soit très importante pour commencer à avoir de réelles conséquences sur les états fondamentaux. En particulier, le gap d'hybridation 2δ est très peu impacté. Une forte asymétrie contredirait les résultats déjà établis et nous pouvons donc raisonnablement utiliser un décalage de bande symétrique pour notre modélisation.⁸² **En résumé, seuls les paramètres Δ_{QW} et d_{QW} ont un impact majeur sur l'énergie des états liés à $k_{\parallel} = 0$.**

iii. Structure de bande des puits quantiques pour $k_{\parallel} \neq 0$

Le calcul de la dispersion des états confinés est réalisé par une méthode des perturbations. Cette technique est bien connue dans le cadre de la théorie des fonctions enveloppes.⁸⁶ Elle consiste à exprimer les termes de perturbation au 1^{er} ordre en k_{\parallel} dans la base des fonctions enveloppes des différents états confinés. On définit alors la matrice de perturbation comme :

$$\tilde{H}_k = \begin{pmatrix} -\frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} & 0 & 0 & \hbar v_{\parallel} k_{-} \\ 0 & -\frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} & \hbar v_{\parallel} k_{+} & 0 \\ 0 & \hbar v_{\parallel} k_{-} & \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} & 0 \\ \hbar v_{\parallel} k_{+} & 0 & 0 & \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} \end{pmatrix}$$

Elle est écrite dans la même base des fonctions de Bloch que pour les fonctions enveloppes, et ne contient que les termes en k_{\parallel} . La dispersion des états confinés est alors obtenue en diagonalisant la matrice, exprimée dans la base des fonctions enveloppes χ_{α} et χ_{β} déterminées plus haut, dont les éléments incluent les termes de perturbation au 1^{er} ordre et sont du type :

$$E_i \delta_{ij} + \langle \chi_{\alpha,\beta}^{(i)} | \tilde{H}_k | \chi_{\alpha,\beta}^{(j)} \rangle$$

Les états confinés α interagissent entre eux à travers les termes provenant des bandes lointaines, de même pour les états β . L'interaction exacte entre les bandes L_6^{\pm} mène à l'interaction entre états confinés α et β . Pour résumer, les quatre types d'éléments de matrice possibles sont de la forme :

$$\langle \chi_{\alpha}^{(i)} | \tilde{H}_k | \chi_{\alpha}^{(j)} \rangle = \langle \chi_{\beta}^{(i)} | \tilde{H}_k | \chi_{\beta}^{(j)} \rangle = -\frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} (F_{+}^{(i)} F_{+}^{(j)} + F_{-}^{(i)} F_{-}^{(j)}) dz \right] = -\frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} C_{ij}$$

$$\langle \chi_{\alpha}^{(i)} | \tilde{H}_k | \chi_{\beta}^{(j)} \rangle = -\hbar v_{\parallel} k_{-} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} (F_{+}^{(i)} F_{-}^{(j)} + F_{+}^{(j)} F_{-}^{(i)}) dz \right] = -\hbar v_{\parallel} k_{-} A_{ij}$$

$$\langle \chi_{\beta}^{(i)} | \tilde{H}_k | \chi_{\alpha}^{(j)} \rangle = \hbar v_{\parallel} k_{+} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} (F_{+}^{(i)} F_{-}^{(j)} + F_{+}^{(j)} F_{-}^{(i)}) dz \right] = \langle \chi_{\alpha}^{(i)} | \tilde{H}_k | \chi_{\beta}^{(j)} \rangle^*$$

En se rappelant que F_{+} est purement réelle et F_{-} purement imaginaire. La matrice à diagonaliser s'exprime dans la base $(\chi_{\alpha}^{(0)}, \chi_{\alpha}^{(1)}, \dots, \chi_{\alpha}^{(N_{max})}; \chi_{\beta}^{(0)}, \chi_{\beta}^{(1)}, \dots, \chi_{\beta}^{(N_{max})})$ où N_{max} est le nombre d'état confinés obtenus à $k_{\parallel} = 0$, dont l'énergie E_i est deux fois dégénérées (une composante α et une composante β). Cette matrice est donc de la forme générale :

$$\begin{pmatrix} E_i \delta_{ij} - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} C_{ij} & | & -\hbar v_{\parallel} k_{-} A_{ij} \\ - & | & - \\ \hbar v_{\parallel} k_{+} A_{ij} & | & E_i \delta_{ij} - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} C_{ij} \end{pmatrix}$$

Elle est diagonalisée numériquement et les résultats pour des puits de différentes épaisseurs sont donnés sur la Fig. 3-8. L'isotropie dans le plan xy permet de ne résoudre le problème qu'en k_x , en posant $k_y = 0$.

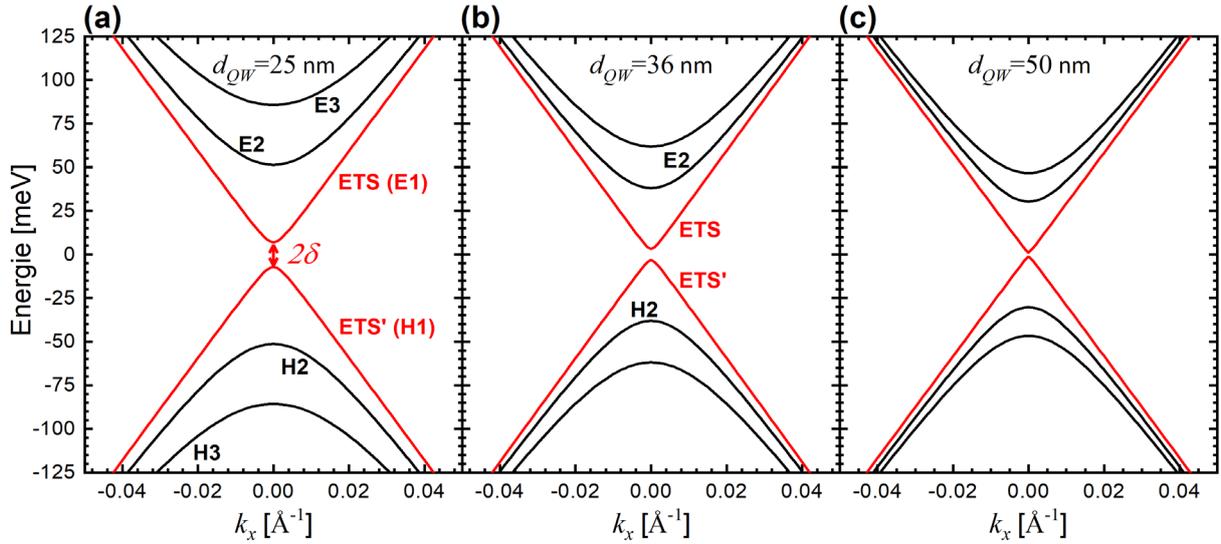


Figure 3-8. Dispersion en k_x des six états confinés fondamentaux d'un puits d'épaisseur 25 nm (a), 36 nm (b), et 50 nm (c). Les ETS sont en rouge. Les paramètres utilisés sont $2\Delta_{QW} = -40$ meV, $2\Delta_B = +300$ meV et $v_z = 4.50 \times 10^5$ m/s.

On voit que les ETS, en rouge, ont une dispersion d'autant plus linéaire que le gap d'hybridation est petit. Pour les grandes épaisseurs et a fortiori pour le massif, l'ETS a la dispersion d'un cône de Dirac. En revanche, notre modèle n'est pas très adapté pour la description des grandes épaisseurs. En effet, il ne découple jamais les deux interfaces du puits et donc trouve toujours une hybridation qui mène à un gap non nul, aussi petit soit-il. On a alors toujours deux ETS (quatre avec la dégénérescence de spin) quel que soit la largeur du puits. En réalité, pour une épaisseur assez grande, les deux interfaces deviennent totalement découplées et il faut alors changer les conditions aux limites pour décrire correctement le problème. Si l'on considère que chaque état évanescents doit s'éteindre dans le puits assez loin de son interface, alors les fonctions enveloppes sont changées et le gap d'hybridation n'a plus lieu d'être. Cette résolution traitée dans l'annexe A a quelques conséquences sur la dégénérescence de l'ETS, ainsi que sur leur propriété de spin.

iv. Niveaux de Landau des états liés des puits quantiques

Le calcul des niveaux de Landau suit exactement le même principe que celui pour la dispersion. L'hamiltonien de perturbation pour $n > 0$ contient cette fois-ci les termes en champ magnétique :

$$\tilde{H}_B = \begin{pmatrix} -\hbar\tilde{\omega}(n-1) & 0 & 0 & v_{\parallel}\sqrt{2e\hbar Bn} \\ 0 & -\hbar\tilde{\omega}(n+1) & v_{\parallel}\sqrt{2e\hbar Bn} & 0 \\ 0 & v_{\parallel}\sqrt{2e\hbar Bn} & \hbar\tilde{\omega}(n-1) & 0 \\ v_{\parallel}\sqrt{2e\hbar Bn} & 0 & 0 & \hbar\tilde{\omega}(n+1) \end{pmatrix}$$

Il est exprimé dans la même base que dans le chapitre II (voir partie II.ii) : $(L_6^+\alpha|n-1\rangle; L_6^+\beta|n\rangle; L_6^-\alpha|n-1\rangle; L_6^-\beta|n\rangle)$. Les éléments de la matrice écrite dans la base des fonctions enveloppes χ_α et χ_β seront de la forme :

$$\langle \chi_\alpha^{(i)} | \tilde{H}_B | \chi_\alpha^{(j)} \rangle = -\hbar\tilde{\omega}(n-1) \left[\int_{-\infty}^{+\infty} (F_+^{(i)} F_+^{(j)} + F_-^{(i)} F_-^{(j)}) dz \right] = -\hbar\tilde{\omega}(n-1) C_{ij}$$

$$\langle \chi_\beta^{(i)} | \tilde{H}_B | \chi_\beta^{(j)} \rangle = -\hbar\tilde{\omega}(n+1) \left[\int_{-\infty}^{+\infty} (F_+^{(i)} F_+^{(j)} + F_-^{(i)} F_-^{(j)}) dz \right] = -\hbar\tilde{\omega}(n+1) C_{ij}$$

$$\langle \chi_\alpha^{(i)} | \tilde{H}_B | \chi_\beta^{(j)} \rangle = -v_{\parallel} \sqrt{2e\hbar B n} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} (F_+^{(i)} F_-^{(j)} + F_-^{(j)} F_+^{(i)}) dz \right] = \langle \chi_\beta^{(i)} | \tilde{H}_k | \chi_\alpha^{(j)} \rangle^* = -v_{\parallel} \sqrt{2e\hbar B n} A_{ij}$$

Le résultat de ce calcul est donné sur la Fig. 3-9 pour des puits de 25 et 36 nm d'épaisseur, jusqu'à 35 T. Les niveaux $n = 0$ sont polarisés de spin (voir chapitre II) et seule la composante β est à considérer.

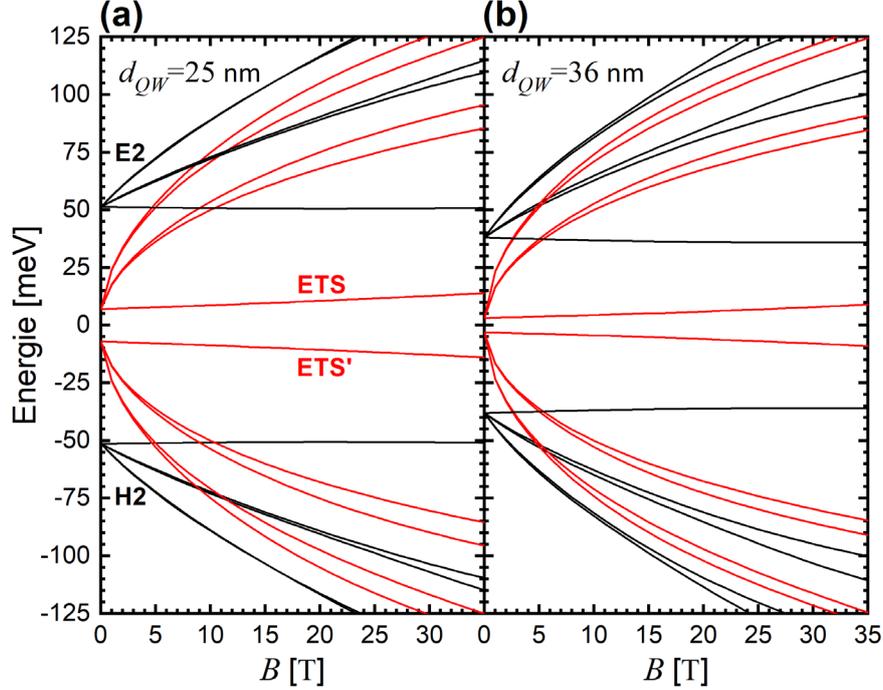


Figure 3-9. Niveaux de Landau des quatre états confinés fondamentaux d'un puits d'épaisseur 25 nm (a) et 36 nm (b). Les niveaux de Landau des ETS sont en rouge. Les paramètres utilisés sont identiques à ceux de la Fig. 3-8 avec en plus $\tilde{m} = 0.28m_0$.

On voit sur cette figure que les niveaux de Landau $n = 0$ sont, comme dans le massif, des marqueurs de la symétrie de l'état confiné auquel ils sont rattachés. Le niveau d'un état L_6^+ a une pente négative en champ, et inversement pour la symétrie L_6^- . Toutefois, ici contrairement au massif, le mélange dans la symétrie des états pondère la pente des niveaux $n = 0$. Pour illustrer cela, on peut écrire explicitement la matrice des termes de perturbation dans la base des quatre niveaux fondamentaux ($\chi_\alpha^{(ETS')} |n-1\rangle$; $\chi_\beta^{(ETS')} |n\rangle$; $\chi_\alpha^{(ETS)} |n-1\rangle$; $\chi_\beta^{(ETS)} |n\rangle$) :

$$H_{ETS}(B) = \begin{pmatrix} -\delta - \hbar\tilde{\omega}(n-1)C_{ETS'} & 0 & 0 & v_{\parallel}A\sqrt{2e\hbar B n} \\ 0 & -\delta - \hbar\tilde{\omega}(n+1)C_{ETS'} & v_{\parallel}A\sqrt{2e\hbar B n} & 0 \\ 0 & v_{\parallel}A\sqrt{2e\hbar B n} & +\delta - \hbar\tilde{\omega}(n-1)C_{ETS} & 0 \\ v_{\parallel}A\sqrt{2e\hbar B n} & 0 & 0 & +\delta - \hbar\tilde{\omega}(n+1)C_{ETS} \end{pmatrix}$$

Et, du fait des éléments de symétrie :

$$C_{ETS'} = -C_{ETS} \quad \text{et} \quad A = i$$

Cet hamiltonien effectif a exactement la même forme que l'hamiltonien décrivant les niveaux de Landau du massif (voir chapitre II, partie II.ii). On définit alors trois paramètres effectifs, par analogie au cas du massif :

- (i) Le gap d'hybridation 2δ ,
- (ii) La vitesse électronique v_{\parallel} ,
- (iii) La correction des bandes lointaines $1/\tilde{m}_{eff} = C_{ETS'}/\tilde{m}$ qui est pondérée par le mélange dans la symétrie des états.

Les niveaux de Landau pour les ETS sont donc de la forme (voir chapitre II, partie II.iii) :

$$E_{\chi_{\alpha}^{(ETS')}, \chi_{\beta}^{(ETS)}} = +\hbar\tilde{\omega}_{eff} \mp \sqrt{\delta^2 + 2e\hbar B v_{D,eff}^2 n + (\hbar\tilde{\omega}_{eff})^2 n^2}$$

$$E_{\chi_{\beta}^{(ETS')}, \chi_{\alpha}^{(ETS)}} = -\hbar\tilde{\omega}_{eff} \mp \sqrt{\delta^2 + 2e\hbar B v_{D,eff}^2 n + (\hbar\tilde{\omega}_{eff})^2 n^2}$$

en posant :

$$v_{D,eff}^2 = |A|^2 v_{\parallel}^2 + \frac{\delta}{\tilde{m}_{eff}} = v_{\parallel}^2 + \frac{\delta C_{ETS'}}{\tilde{m}} \quad ; \quad \tilde{\omega}_{eff} = \frac{eB}{\tilde{m}_{eff}}$$

Cet hamiltonien effectif, qui ne prend en compte que les ETS, est une bonne approximation pour le calcul des niveaux de Landau.¹² Toutefois, il nécessite quand même le calcul de δ avec les paramètres de l'hétérostructure et ne permet pas de décrire les niveaux de Landau des états excités. Pour sa simplicité, cet hamiltonien servira au chapitre IV mais il ne sera pas utilisé pour interpréter les résultats expérimentaux de ce chapitre.

Le mélange de symétrie est assez conséquent dans nos puits, comme nous le montre la Fig. 3-6, ce qui se traduit par une valeur de $C_{ETS'} = -C_{ETS}$ proche de 0. De plus, les transitions magnéto-optiques en configuration Faraday impliquent des niveaux de composantes de Kramers opposées, ce qui annule les termes devant la racine. Pour ces deux raisons, les effets des bandes lointaines sont négligés dans la suite. Cela revient simplement à ne pas prendre en compte le terme en B^2 , ce qui est tout à fait justifié jusqu'à 15 T.

v. Règles de sélection et forces d'oscillateur des transitions magnéto-optiques

Les règles de sélection sur l'indice de Landau n ainsi que le spin ne changent pas par rapport au cas massif. On peut se reporter au Tableau I du chapitre II (partie II.v.b). Le seul changement est que la fonction enveloppe en z n'est plus une onde plane. Pour l'élément de matrice interbande en configuration Faraday, on doit alors ajouter le facteur suivant, lors d'une transition d'un état confiné i vers un état j :

$$M_{QW}/P_{\parallel} = \int_{-\infty}^{+\infty} [F_{+}^{(i)} F_{-}^{(j)} + F_{+}^{(j)} F_{-}^{(i)}] dz \quad , \text{ pour une transition d'un état } \alpha \text{ vers un état } \beta$$

$$M_{QW}/P_{\parallel} = - \int_{-\infty}^{+\infty} [F_{+}^{(i)} F_{-}^{(j)} + F_{+}^{(j)} F_{-}^{(i)}] dz \quad , \text{ pour une transition d'un état } \beta \text{ vers un état } \alpha$$

Une transition optique en géométrie de Faraday a donc lieu entre les états liés H_q et E_{q+2p} pour $q > 0$ et $p \geq 0$. On peut également corriger les éléments de matrice déjà calculés pour un massif dans la configuration Voigt en rajoutant le facteur :

$$M_{QW}/P_z = \int_{-\infty}^{+\infty} [F_+^{(j)} F_-^{(i)} - F_+^{(i)} F_-^{(j)}] dz \quad , \text{ pour une transition entre deux états } \alpha$$

$$M_{QW}/P_z = - \int_{-\infty}^{+\infty} [F_+^{(j)} F_-^{(i)} - F_+^{(i)} F_-^{(j)}] dz \quad , \text{ pour une transition entre deux états } \beta$$

Par symétrie, on a $M_{QW}^2/P_{\parallel}^2 = 1$ pour toutes transitions entre H_q et E_q avec $q > 0$. C'est-à-dire que la transition entre les ETS est aussi probable que celle entre des états confinés massifs. Le confinement rend alors les ETS accessible par l'expérience de magnéto-optique. Sans l'effet du confinement quantique, la densité des états massifs dépasse largement celle des deux ETS et la force d'oscillateur des transitions ETS' - ETS est alors fortement occultée. La signature des ETS est alors masquée par celle du massif.

II. Résultats expérimentaux sur les hétérostructures à multi-puits quantiques topologiques

i. Croissance et caractérisations

Les hétérostructures sont fabriquées et caractérisées à l'Université de Linz avec les mêmes technologies que le massif (voir chapitre II, partie III.i). Elles sont épitaxiées sur le substrat BaF₂ orienté selon la direction [111].^{72,87,88} Les échantillons seront identifiés comme « MQW- d_{QW} ». La teneur en étain des puits est de 25 %, et la teneur en europium de la barrière varie d'un échantillon à l'autre entre 4 et 10 %. La teneur en europium étant moins critique, elle n'est contrôlée qu'à 2% près. Pour $x = 0.25 \pm 0.01$, le puits est topologique à 4.2 K mais est en plus quasi-isotrope car on a démontré dans le chapitre précédent que $K \sim 1$ pour $x > 0.20$ (voir partie III.ii.a). Le nombre de périodes (puits plus barrière) est déterminé de sorte que l'épaisseur totale de l'échantillon soit $\sim 2 \mu\text{m}$. Les paramètres structuraux des différents échantillons étudiés sont résumés dans le Tableau I.

Tableau I. Paramètres structuraux des multi-puits quantiques topologiques.

Echantillon	x	y	d_{QW} [nm]	d_B [nm]	N
MQW-7	0.25 ± 0.01	0.09 ± 0.02	7.0 ± 0.2	35.0 ± 0.2	46
MQW-12	0.25 ± 0.01	0.10 ± 0.02	12.0 ± 0.2	60.0 ± 0.2	27
MQW-24	0.25 ± 0.01	0.04 ± 0.02	24 ± 0.2	120.0 ± 0.2	16
MQW-36	0.25 ± 0.01	0.055 ± 0.02	36 ± 0.2	36.0 ± 0.2	26

Les Fig. 3-10(a-f) représentent les mesures de diffraction aux rayons X sur deux des multi-puits quantiques étudiés : MQW-24 et MQW-36. Les Fig. 3-10(a,b,d,e) montrent les trois pics (222) attribués aux trois types de matériaux dans ces hétérostructures : le substrat BaF₂, la barrière PbEuSe et le puits PbSnSe. Les spectres sont tracés en fonction de q_z ou q_x qui sont les vecteurs d'onde associés à la distance interréticulaire selon z et x . Les résultats autour du pic asymétrique (153) (Fig. 3-10(c,f)) montrent l'alignement selon q_x des pics du puits et de la barrière, et leur décalage avec le pic du substrat. La croissance est donc pseudomorphique, c'est à dire que les paramètres de maille des matériaux barrière et puits sont à l'équilibre. Cependant, l'hétérostructure est relaxée par rapport au substrat. PbEuSe présente un désaccord de paramètre de maille de $\sim -0.5\%$ à 300 K par rapport à PbSnSe et leurs coefficients d'expansion thermiques sont très similaires.⁸⁸ Ce désaccord est donc constant en température et induit une contrainte biaxiale dans le plan des couches. Au regard des potentiels de déformation, qui sont beaucoup plus faibles pour une orientation [111] que [001], cela corrige les énergies de gap de +5 meV et -10 meV pour le matériau puits et le matériau barrière respectivement.⁸⁹

La présence de pics satellites témoigne de l'existence du second réseau de diffraction qui émerge de la période formée du puits et de la barrière. On peut en déduire très précisément l'épaisseur de la période $L = d_{QW} + d_B$. Le grand nombre de pics satellites (jusqu'à 18 et 10 sur les Fig. 3-10(a) et 3-10(d) respectivement) et leur finesse démontrent l'excellente qualité de l'empilement des couches. En particulier, cela prouve la grande régularité de l'hétérostructure et la cohérence des interfaces. Cependant, le coefficient d'interdiffusion de Eu dans Pb_{1-x}Sn_xSe est de l'ordre de 10^{-18} cm²/s à la température de croissance.⁹⁰ Cette valeur est relativement faible mais pour des échantillons de 2 μm d'épaisseur, le temps de croissance peut dépasser les cinq heures. Ceci provoque donc une diffusion de ~ 2 nm des premiers atomes de Eu déposés. Pour des puits larges comme MQW-24 ou MQW-36, cet effet est négligeable mais dans l'échantillon MQW-7 par exemple, ce phénomène devra être pris en compte. La Fig. 3-10(g) montre l'analyse chimique de l'échantillon MQW-12 par microscopie

électronique en transmission. On voit que quelques atomes de Eu se retrouvent en effet dans le puits à la place des cations Pb^{2+} ou Sn^{2+} , mais que globalement les cations sont très bien distribués.

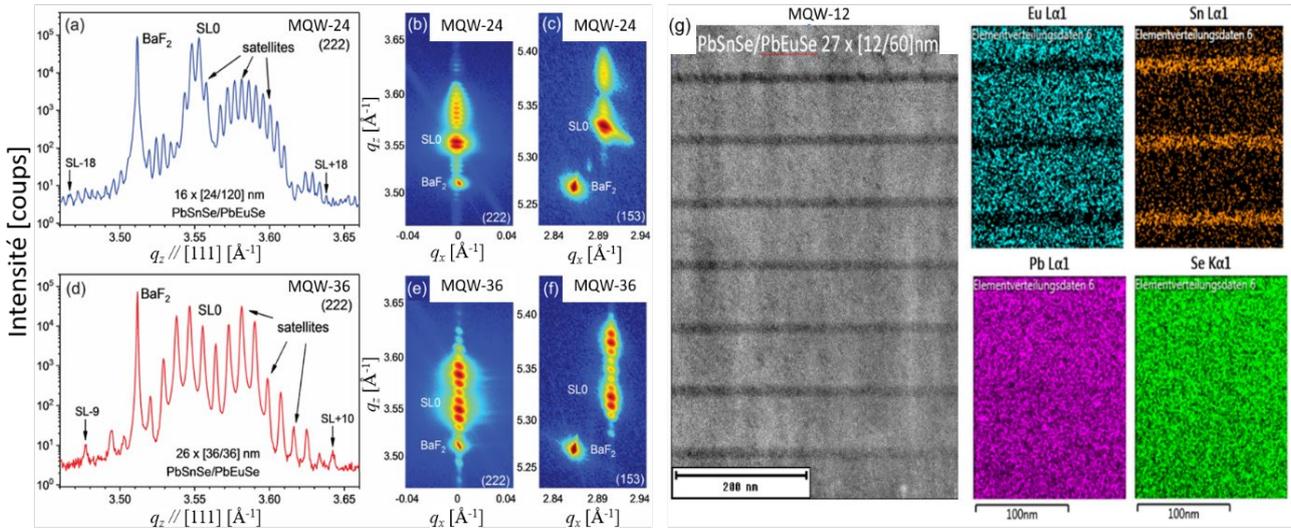


Figure 3-10. (a) Spectres de diffraction aux rayons X autour du pic (222) pour MQW-24 selon la direction z. Les pics principaux ainsi que les pics satellites y sont indiqués. (b,c) Cartes de l'espace réciproque autour des pic (222) et (153) respectivement. L'intensité est représentée par une échelle de couleur. (d,e,f) : même chose que (a,b,c) pour MQW-36. (g) Mesure au microscope électronique en transmission de la distribution chimique dans l'hétérostructure MQW-12. Les couleurs sont artificielles.

Les hétérostructures sont légèrement dopées au bismuth pour compenser l'effet des lacunes et garder un niveau de Fermi bas. La concentration des porteurs est alors de l'ordre de 10^{11} à 10^{12} cm^{-2} et leur mobilité > 10000 $\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ à basse température.

ii. Observation des états topologiques de surface en magnéto-optique

Les quatre multi-puits quantiques évoqués plus haut ont été mesurés en magnéto-optique entre 4.2 K et 200 K.⁹¹ Les résultats à 4.2 K de MQW-24 et MQW-36 sont présentés en Fig. 3-11 et Fig. 3-12 respectivement, dans lesquelles les spectres, l'accord théorie-expérience et les niveaux de Landau calculés pour l'ajustement forment les panels (a), (b) et (c).

On voit sur la Fig. 3-11(a) plusieurs séries d'absorptions avec des intensités différentes. Les spectres sont moins réguliers que dans le cas des massifs. Cela témoigne de la présence de plusieurs gaps dus au confinement quantique. Les énergies de ces différentes absorptions en fonction du champ sont reportées sur la Fig. 3-11(b) par des points. On ajuste alors par des lignes pleines trois types d'absorptions : une en rouge entre les états fondamentaux $\text{H1} - \text{E1}$ (ou $\text{ETS}' - \text{ETS}$), une en noir entre les premiers niveaux excités $\text{H2} - \text{E2}$, et une hybride en marron entre ETS' et E3 . En particulier, les absorptions marquées sur la Fig. 3-11(a) par des flèches rouges sont les plus intenses et sont attribuées aux transitions entre ETS. En effet, la variation de ces niveaux en fonction du champ magnétique ne peut être interprétée qu'avec deux niveaux de très petit gap. La séparation $\text{H2} - \text{E2}$ ou celle $\text{ETS}' - \text{E3}$ est trop grande pour rendre compte d'une telle non-parabolicité. **On a donc accès expérimentalement aux états topologiques de surface et ce sont mêmes ces états qui contribuent le plus à l'absorption.**

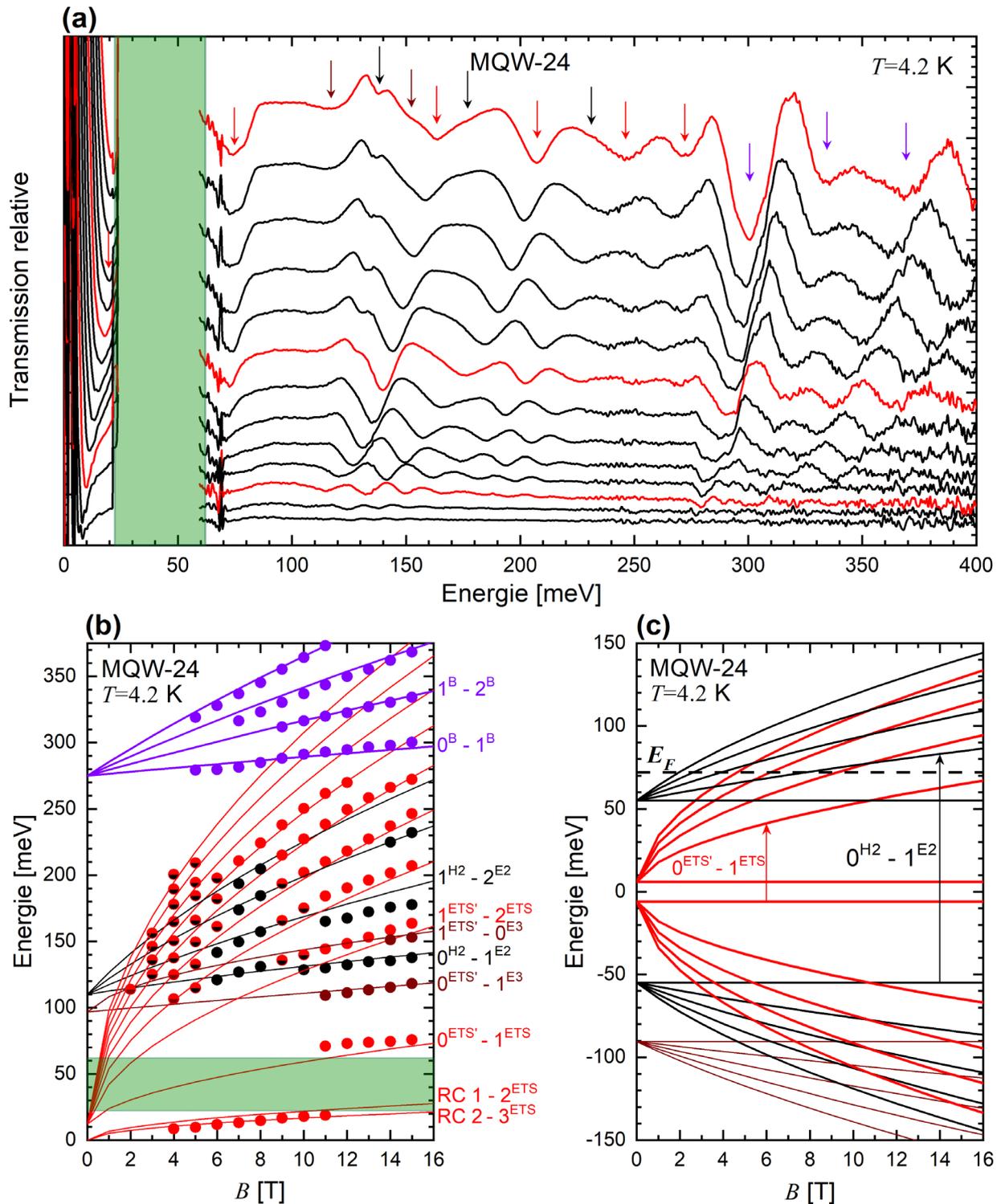


Figure 3-11. (a) Spectres magnéto-optiques infrarouges de MQW-24 à 4.2 K entre 3 et 15 T. Les multiples de 5 T sont en rouge. La zone verte représente le reststrahlen du substrat et les flèches de couleurs marquent les différentes raies d'absorption. (b) Accord théorie-expérience. Les points de couleur illustrent les raies d'absorption observées en (a). Le rouge (noir) est pour les transitions impliquant les ETS (les états H2 et E2) et le marron est pour la transition hybride ETS' – E3. Le violet tient pour les transitions impliquant les états massifs de la barrière. (c) Niveaux de Landau des premiers états confinés qui mènent aux transitions magnéto-optiques (lignes pleines en (b)). Le niveau de Fermi déduit de l'expérience y est représenté ainsi que quelques transitions observées.

L'ajustement des transitions impliquant les ETS conduit à un gap $2\delta = 11 \pm 2.5$ meV. Ceci n'est possible qu'en considérant un gap du matériau puits de $2\Delta_{QW} = -50 \pm 5$ meV, qui correspond bien à la teneur en étain visée qui est de 25 % (voir chapitre II, partie III.ii.a). L'énergie de gap de la barrière est fixée grâce à l'observation des transitions impliquant les états dans la barrière, représentées en violet sur les Fig. 3-11(a,b). Une corrélation avec un modèle massif comme dans le chapitre II donne $2\Delta_B = +275 \pm 5$ meV. Cette valeur correspond à une concentration en europium de ~ 4 % (voir partie I.i.a). Les vitesses électroniques sont ajustées à $v_{\parallel} = 4.60 \times 10^5$ m/s et $v_z = 4.40 \times 10^5$ m/s. Ces paramètres mènent aux niveaux de Landau de la Fig. 3-11(c) et aux énergies de transition tracées en fonction du champ sur la Fig. 3-11(b).

L'accord théorie-expérience est bon, comme le montre la Fig. 3-11(b). Il sera encore amélioré par la suite en considérant la forte interaction entre les états confinés successifs se croisant, notamment entre ETS et E2, et entre ETS' et H2. Cela rendra compte de la déviation observée à bas champ des points rouges par rapport à la théorie. Dans cet échantillon, le niveau de Fermi est assez élevé. On peut le voir en notant qu'à 11 T, on observe encore très bien la résonance cyclotron entre les niveaux 1 et 2 de l'ETS, ce qui est le témoin d'un niveau 1 encore rempli. D'autre part, la transition $0^{H2} - 1^{E2}$ s'éteint vers 9 T comme on le montre la Fig. 3-11(a). Un niveau de Fermi $E_F \sim 75$ meV en a été extrait. Une telle énergie de Fermi perturbe la transition $0^{ETS'} - 1^{ETS}$, d'où la déviation par rapport à la théorie. On verra par la suite, grâce à la même expérience à plus haut champ magnétique, que cette première transition est très bien rendue par les paramètres choisis. Pour se convaincre de notre interprétation, l'échantillon MQW-36 a été similairement étudié. Les résultats sont présentés sur la Fig. 3-12.

Dans cet échantillon, les mêmes types de transitions que pour MQW-24 sont observés et les absorptions impliquant les ETS sont toujours majoritaires. L'expérience donne $|2\delta| \leq 10$ meV, ce qui conduit à $2\Delta_{QW} = -45 \pm 7.5$ meV. La transition fondamentale entre ETS' et ETS est masquée par le reststrahlen à cause du très faible confinement, ce qui augmente l'incertitude sur 2δ . L'énergie de gap de la barrière est déterminée selon la valeur nominale $y = 0.056$: $2\Delta_B = +315$ meV.

D'autre part, de nombreuses absorptions à basse énergie sont observées dans MQW-36 (voir Fig. 3-12(a)). On observe notamment un dédoublement des raies d'absorptions correspondant aux transitions fondamentales des séries H2 – E2 et ETS' – E3. Ces absorptions sont très bien ajustées par les transitions calculées en pointillé, qui correspondraient à l'autre vallée. Cela nous amène à étudier en détail le problème multivallée dans les hétérostructures PbSnSe / PbEuSe.

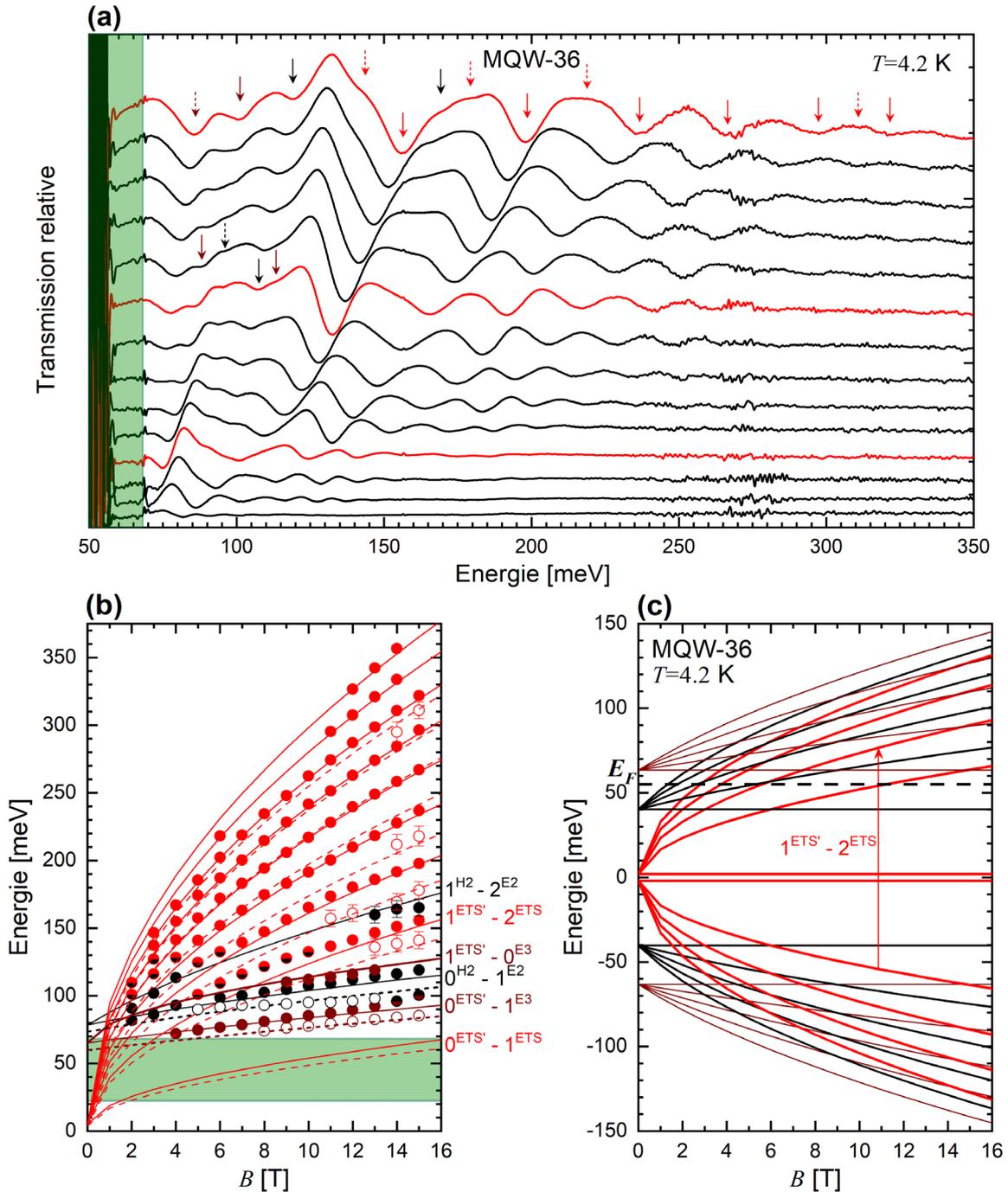


Figure 3-12. (a,b,c) Voir Fig. 3-11. Les lignes pointillées en (b) représentent les mêmes transitions que les lignes pleines mais pour l'autre type de vallée.

iii. Hétérostructure de systèmes multi-vallées

a) Effet sur le confinement des états à $k_{||} = 0$

Bien que la teneur en étain du matériau puits ait été choisie de sorte que ce dernier soit isotrope, le matériau barrière est lui anisotrope. En effet, il possède un facteur d'anisotropie $K \sim 1.5$, un peu plus grand que celui de PbSe (voir chapitre II, partie III.ii.a).⁹¹ Comme le montre la Fig. 3-13(a), la probabilité de trouver un électron d'un état confiné dans la barrière n'est pas négligeable, surtout pour les ETS avec leur propriété interfaciale.

L'anisotropie de la barrière a donc un réel impact sur les états liés. Les équations pour trouver l'énergie à $k_{\parallel} = 0$ des états confinés font intervenir la masse effective de l'hétérostructure : (voir partie I.ii.a)

$$\frac{1}{\mu(z)} = \frac{2v_z^2}{\Delta_{QW} - E + V_-(z)}$$

Cette dernière est donc dépendante de v_z qui n'est rigoureusement pas la même dans le puits ou dans la barrière. En effet, pour $\text{Pb}_{0.75}\text{Sn}_{0.25}\text{Se}$, $v_{z,l} = v_{z,o} = 4.30 \times 10^5$ m/s alors que dans la barrière on a $v_{z,l} \sim 4.75 \times 10^5$ m/s et $v_{z,o} \sim 6.50 \times 10^5$ m/s. On peut se représenter ces valeurs à l'aide du schéma des surfaces d'énergie constante dans le puits et dans la barrière dessiné en Fig. 3-13(b) pour la vallée longitudinale et en Fig. 3-13(c) pour les vallées obliques.

Il ne s'agit pas ici de construire un modèle quantitatif en prenant en compte l'anisotropie de la barrière car ce serait très complexe dans le cadre de la théorie des fonctions enveloppes, dont l'hypothèse fondamentale est un paramètre v_z constant. Nous allons appréhender ce problème en prenant deux éléments de matrice moyens pour chaque vallée : $v_{z,l}$ et $v_{z,o}$. Ainsi, si l'on calcule une moyenne des vitesses électroniques pondérée sur 10 % dans la barrière et 90 % dans le puits, on peut obtenir une estimation de l'effet d'anisotropie de la barrière. On s'attend bien sûr à retrouver des valeurs proches de celles d'un $\text{Pb}_{0.75}\text{Sn}_{0.25}\text{Se}$ massif déterminées dans le chapitre II (voir partie III.ii.a). Cette moyenne mène à $v_{z,l} = 4.35 \times 10^5$ m/s et $v_{z,o} = 4.50 \times 10^5$ m/s. L'effet de l'anisotropie dans la barrière est donc léger dans nos hétérostructures mais peut mener toutefois à de petites corrections sur les énergies de confinement (voir Fig. 3-7(a)). Ces vitesses restent néanmoins à déterminer expérimentalement et il n'est donné ici qu'un ordre de grandeur de l'effet.

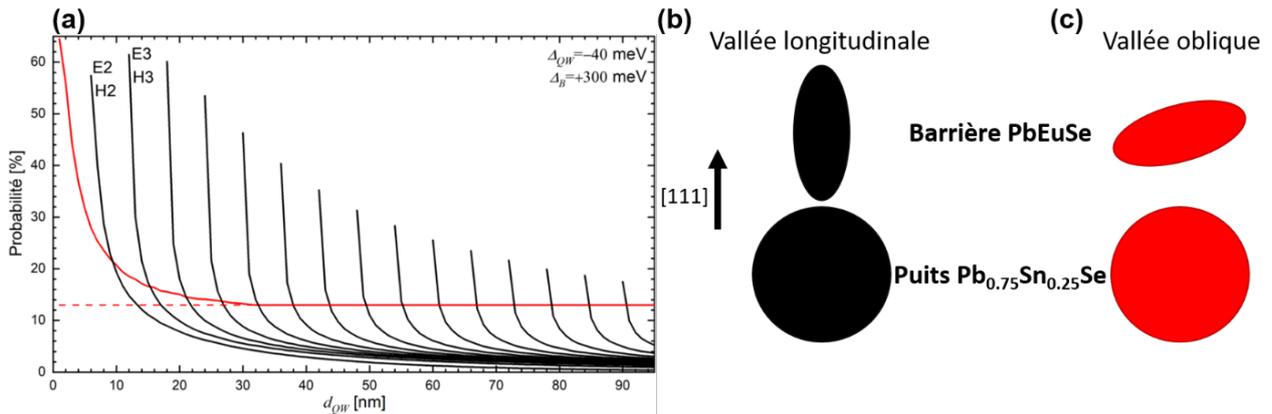


Figure 3-13. (a) Probabilité de trouver dans la barrière un électron des différents états confinés en fonction de l'épaisseur d'un puits avec $v_z = 4.50 \times 10^5$ m/s. En rouge est affichée celle des ETS. (b,c) Surfaces d'énergie constante de la vallée longitudinale et des vallées obliques respectivement, dans le puits et la barrière.

Pour l'échantillon MQW-36, on ajuste le premier type de vallée (en ligne pleine sur la Fig. 3-12(b)) avec $v_z = 4.50 \times 10^5$ m/s et la deuxième série en pointillés avec $v_z = 4.20 \times 10^5$ m/s. Pour MQW-24, les transitions émanant des deux types de vallées sont ajustées avec $v_z = 4.40 \times 10^5$ m/s (voir Fig. 3-11).

b) Effet de couplage entre niveaux de Landau

Le phénomène multivallée a également un autre effet non négligeable à l'origine de la déviation des points rouges à bas champ magnétique. Les minima de bande se tiennent aux points L et donc les surfaces d'énergie constante sont au bord de zone. Dans le massif, on retrouve la même forme d'hamiltonien après une rotation

de l'axe $z//[111]$ pour l'aligner avec un axe majeur de l'ellipsoïde oblique.⁶⁹ Dans les hétérostructures, l'apparition d'un potentiel de confinement selon $[111]$ ne rend plus équivalent l'hamiltonien des vallées obliques à celui de la vallée longitudinale. La forme de l'hamiltonien n'est plus invariante par une rotation des axes et nous devons reconsidérer le problème.

On considère désormais que l'axe z est aligné selon le plus petit axe d'une des vallées obliques, ce qui revient à tourner le repère autour de l'axe x ou y (peu importe grâce à l'isotropie de notre système dans le plan xy) d'un angle de 19.5° . Le champ magnétique est alors tilté par rapport à l'axe z d'un angle $\theta = 19.5^\circ$ et admet donc une composante selon y : $B_\perp = B \sin(\theta)$ en plus de sa composante sur z : $B_\parallel = B \cos(\theta)$. On note ici que $\cos(\theta) = 0.94$ et $\sin(\theta) = 0.33$. Le potentiel vecteur s'écrit dans la jauge de Landau : $(B_\perp z ; B_\parallel x ; 0)$ et donc $p_\pm = p_\pm(B_\parallel) + eB_\perp z$. Le terme $p_\pm(B_\parallel)$ est identique à celui de la partie I.iv et la résolution mène donc aux mêmes niveaux de Landau jusqu'alors calculés, avec B_\parallel au lieu de B . Cela revient à renormaliser la vitesse électronique v_\parallel comme $v_\parallel \cos(\theta)$. C'est ce qui a été effectué sur la Fig. 3-12(b) : la vallée longitudinale, en lignes pleines, est ajustée avec $v_{\parallel,l} = 4.50 \times 10^5$ m/s et l'autre vallée (les lignes pointillées) avec $v_{\parallel,o} = 4.20 \times 10^5$ m/s.

Le tilt du champ magnétique induit également l'apparition d'un autre terme sur l'antidiagonale, dépendant du champ magnétique et de z : $eB_\perp z$. On peut traiter ce terme en perturbation, en même temps que le terme $p_\pm(B_\parallel)$. La matrice complète de perturbation s'écrit alors, en posant $W = v_\parallel eB_\perp$ et $A = v_\parallel \sqrt{2e\hbar B_\parallel}$:

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & W\hat{z} + A\hat{a}^+ \\ 0 & 0 & W\hat{z} + A\hat{a}^+ & 0 \\ 0 & W\hat{z} + A\hat{a}^+ & 0 & 0 \\ W\hat{z} + A\hat{a}^+ & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

La difficulté ici est que l'on ne peut plus projeter directement sur un vecteur de base du type $(|n-1\rangle ; |n\rangle ; |n-1\rangle ; |n\rangle)$. La résolution par le traitement en perturbation ne peut plus être découplée selon l'indice n des niveaux de Landau. Si l'on considère une fonction enveloppe totale en champ magnétique ψ , elle s'écrirait :

$$\psi = \sum_{i,n} \left[\alpha_{n,i} |n\rangle \begin{pmatrix} F_+^{(i)} \\ 0 \\ F_-^{(i)} \\ 0 \end{pmatrix} + \beta_{n,i} |n\rangle \begin{pmatrix} 0 \\ F_+^{(i)} \\ 0 \\ -F_-^{(i)} \end{pmatrix} \right]$$

Et le traitement en perturbation donne les équations à résoudre sur les coefficients $\alpha_{n,i}$ et $\beta_{n,i}$:

$$\begin{cases} 0 = [E_i(k_\parallel = 0) - E_i(B)]\alpha_{n,i} - A\sqrt{n+1} \sum_j \beta_{n+1,j} A_{ij} - W \sum_j \beta_{n,j} W_{ij} \\ 0 = [E_i(k_\parallel = 0) - E_i(B)]\beta_{n,i} + A\sqrt{n} \sum_j \alpha_{n-1,j} A_{ij} + W \sum_j \alpha_{n,j} W_{ij} \end{cases}$$

On a ici posé :

$$\begin{cases} A_{ij} = \int_{-\infty}^{+\infty} [F_+^{(i)} F_-^{(j)} + F_+^{(j)} F_-^{(i)}] dz \\ W_{ij} = \int_{-\infty}^{+\infty} [F_+^{(i)} z F_-^{(j)} + F_+^{(j)} z F_-^{(i)}] dz \end{cases}$$

On remarque alors que les deux premiers termes couplent les coefficients α_n avec β_{n+1} . Ce couplage mène aux niveaux de Landau calculés jusqu'à présent. Le dernier terme, proportionnel à W , couple β_n avec α_n , qui lui-même est couplé à β_{n+1} . **En résumé, le potentiel W induit un anti-croisement entre deux niveaux d'indice $n-1$ et n .**

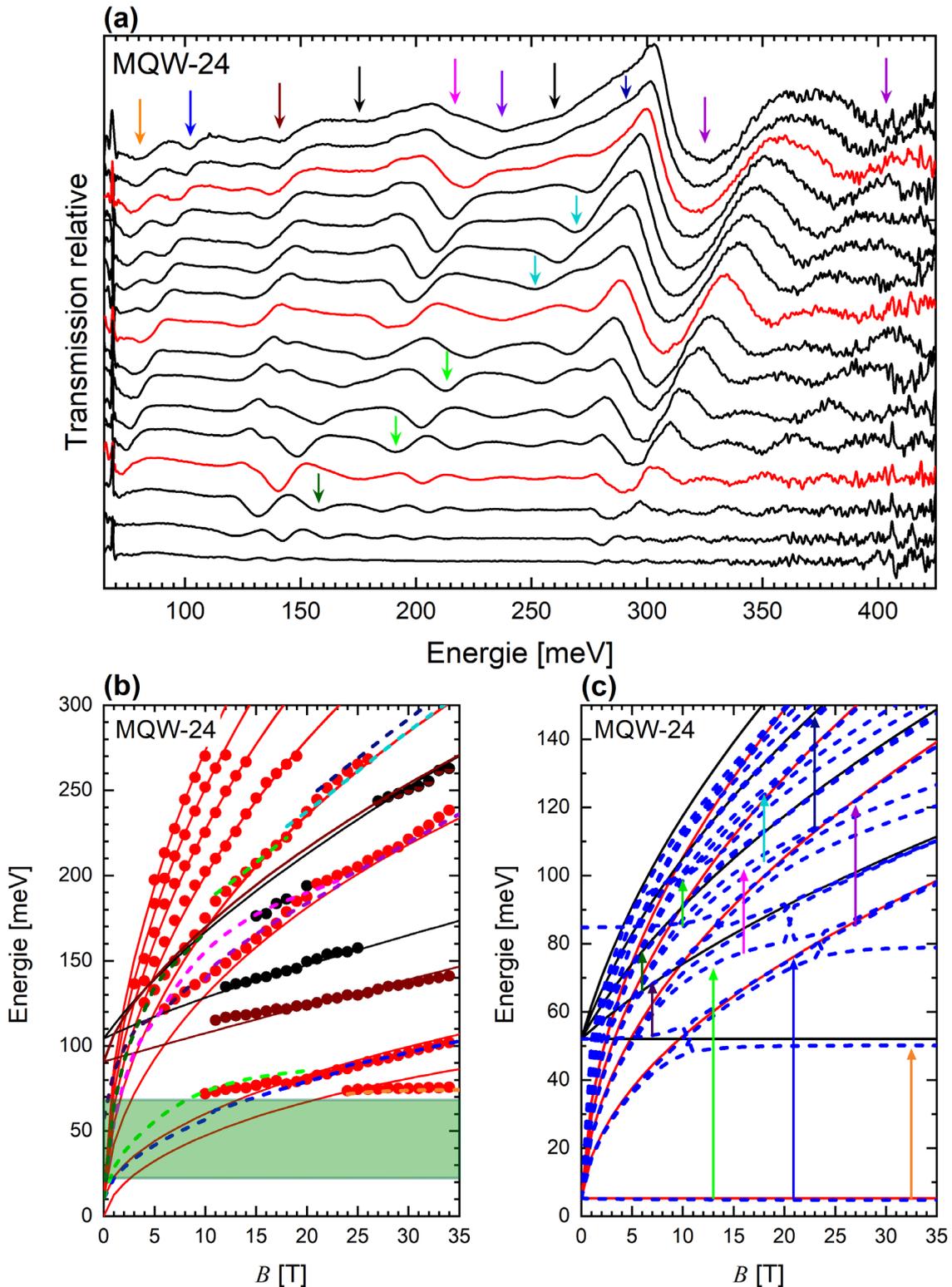


Figure 3-14. (a) Spectres normalisés de MQW-24 à 4.2 K de 4 T à 34 T par pas de 2 T. Les multiples de 10 T sont en rouge. (b) Comparaison de l'expérience (points) avec la théorie (lignes). Les lignes pleines correspondent à l'ancien ajustement et les lignes pointillées renvoient aux calculs des transitions en considérant un champ magnétique tilté. (c) Niveaux de Landau électroniques de MQW-24 à 4.2 K avec un champ tilté de 19.5° par rapport à l'axe z (pointillées) et avec le champ aligné selon z (lignes pleines). Les niveaux de trous sont symétriques. Les flèches de couleurs indiquent les niveaux impliqués dans les transitions observées. Les transitions sont des interbandes, à l'exception de la transition représentée par la flèche orange.

Les niveaux de Landau des états électroniques sont calculés sur la Fig. 3-14(c) pour MQW-24 à 4.2 K (les niveaux des états de trou sont symétriques). On peut y voir par exemple l'anti-croisement entre le niveau 0 de E2 et le niveau 1 de ETS. La multitude d'interactions entre niveaux de Landau rend l'illustration de l'ajustement théorie-expérience très compliqué. C'est pourquoi ces niveaux de Landau ne seront pas utilisés par la suite mais nous pouvons montrer ici un exemple avec MQW-24.

Les ajustements de la théorie sur l'expérience peuvent être considérablement améliorés par la prise en compte de ce phénomène. Ainsi, les Fig. 3-11(b) et 3-12(b) peuvent être rééditées avec les anti-croisements entre quelques premiers niveaux de Landau de ETS' et H2, et ETS et E2. Ceci est illustré sur la Fig. 3-14 dans MQW-24, pour lequel des expériences à plus haut champ magnétique ont été effectuées au LNCMI de Grenoble. Les spectres sont tracés sur la Fig. 3-14(a) avec quelques transitions marquées par des flèches de couleur. La Fig. 3-14(b) illustre l'accord théorie-expérience jusqu'à 34 T. Les lignes pleines représentent l'ajustement réalisé avec un champ magnétique aligné selon z ($\theta = 0^\circ$), avec les mêmes paramètres que pour la Fig. 3-11(b). Les premières transitions calculées avec les mêmes paramètres mais $\theta = 19.5^\circ$ sont représentées en lignes pointillées de différentes couleurs. L'expérience est alors parfaitement rendue par notre modèle et les zones d'anti-croisement observées sont bien comprises. Ce phénomène multivallée rend effectivement compte de l'oscillation observée des transitions 1-2 et 2-3 entre ETS' et ETS. Ces oscillations n'ont jamais été observées dans le massif (voir les Fig. 2-21 et 2-22) et cet effet est donc une spécificité du confinement quantique.

Les niveaux de Landau de ETS et E2 sont calculés sur la Fig. 3-14(c) en lignes pleines et lignes pointillées pour $\theta = 0^\circ$ et $\theta = 19.5^\circ$ respectivement. Les flèches de couleur indiquent les niveaux impliqués dans les transitions tracées en ligne pointillées sur la Fig. 3-14(b). La couleur des flèches fait référence aux couleurs utilisées sur les Fig. 3-14(a,b).

iv. Etude en température des états topologiques de surface

On a montré dans la partie ii l'accessibilité aux états topologiques de surface par la magnéto-optique. Nous avons obtenu des énergies de gap, à $T = 4.2$ K, aussi petites que 12 et 5 meV dans MQW-24 et MQW-36 respectivement. Ces résultats démontrent l'effet du confinement quantique sur les énergies des ETS : plus le confinement est important, plus l'hybridation des interfaces est effective et donc plus le gap d'hybridation est élevé. On peut aller plus loin et étudier l'effet de la température sur ces états.

Les spectres magnéto-optiques des deux échantillons ont donc été mesurés jusqu'à 200 K et les ajustements de la théorie sur ces résultats expérimentaux ont été réalisés. Cette analyse est illustrée pour quatre différentes températures sur les Fig. 3-15 et Fig. 3-16 pour MQW-24 et MQW-36 respectivement. Cela mène à la détermination du gap d'hybridation entre ETS' et ETS en fonction de la température. Cette variation est représentée sur la Fig. 3-17 avec également $2\Delta_{QW}(T)$ et $2\Delta_B(T)$. On remarque que ces deux derniers paramètres suivent exactement les lois empiriques déterminées au chapitre II pour la variation en température. Celles-ci sont tracées en lignes pointillées sur la Fig. 3-17. De plus, les vitesses électroniques sont trouvées constantes en température.

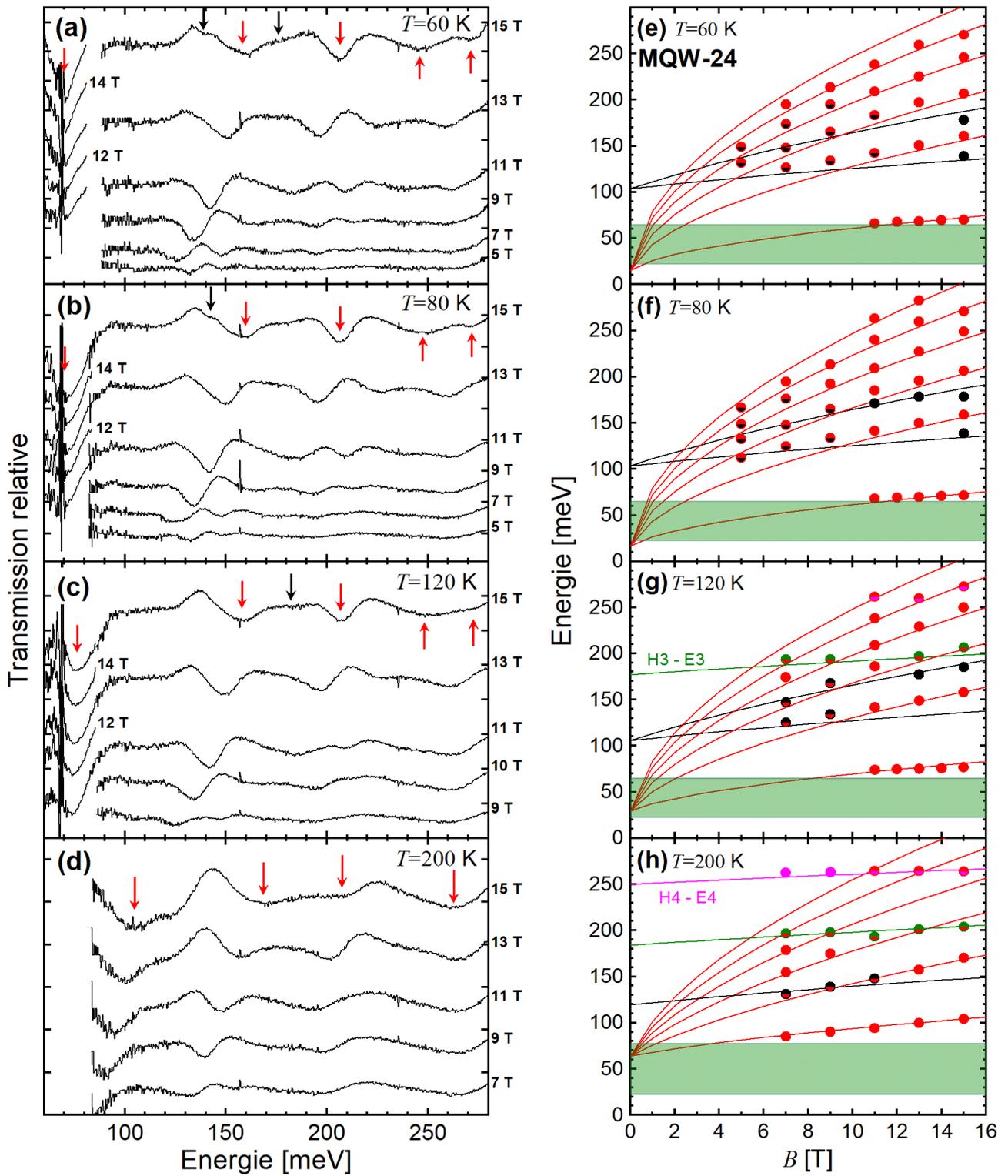


Figure 3-15. Spectres normalisés de MQW-24 à $T = 60$ K (a), 80 K (b), 120 K (c) et 200 K (d). Les absorptions majeures sont marquées par des flèches de couleur. (e,f,g,h) Ajustement théorie-expérience à $T = 60$ K, 80 K, 120 K et 200 K respectivement. Le rouge (noir) est associé aux transitions et absorptions entre ETS' et ETS (H2 et E2).

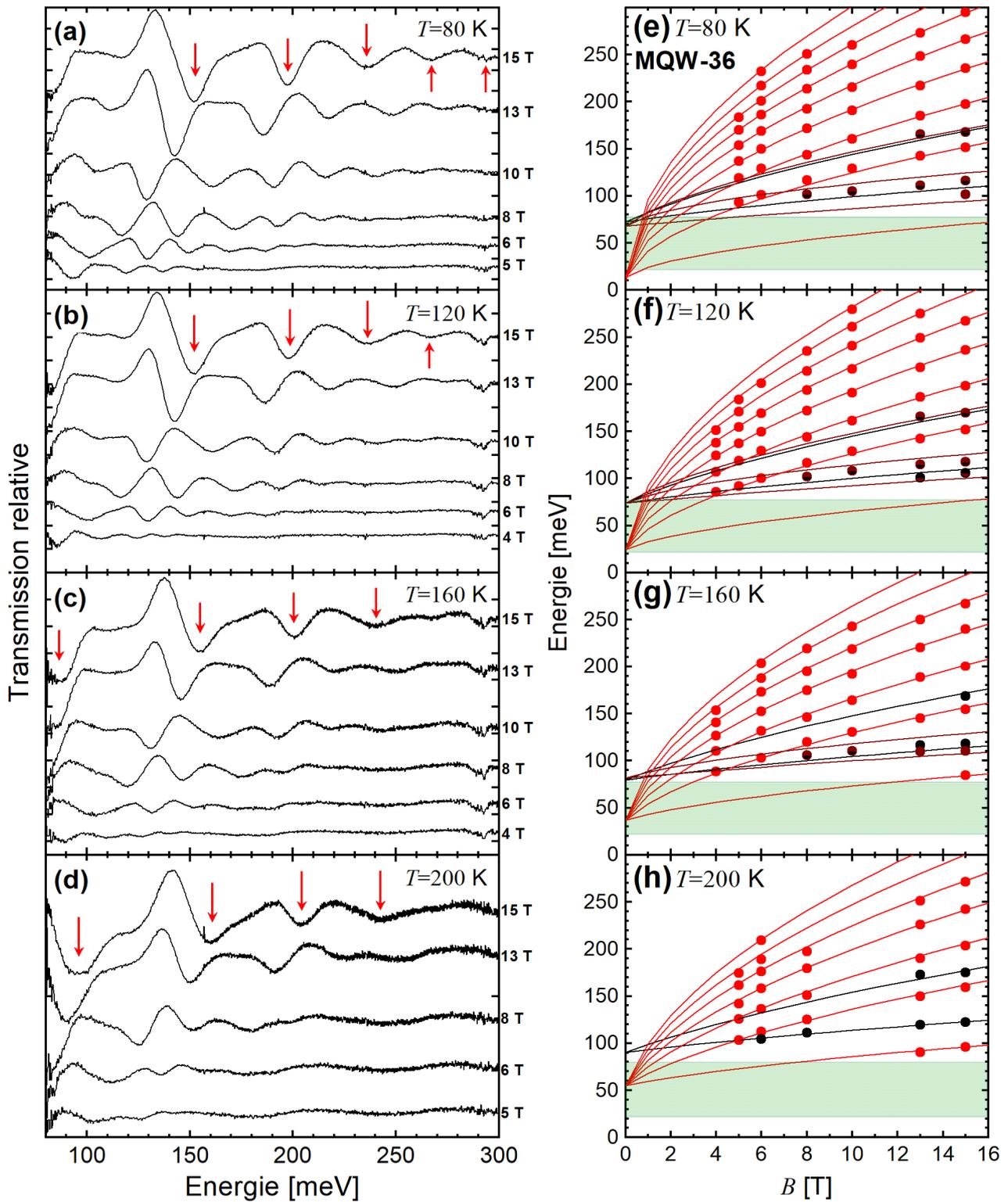


Figure 3-16. Spectres normalisés de MQW-36 à $T = 80$ K (a), 120 K (b), 160 K (c) et 200 K (d). Les absorptions majeures sont marquées par des flèches de couleur. (e,f,g,h) Ajustement théorie-expérience à $T = 80$ K, 120 K, 160 K et 200 K. Le rouge (noir) est associé aux transitions et absorptions entre ETS' et ETS (H2 et E2). Le marron est attribué aux transitions et absorptions entre ETS' et E3.

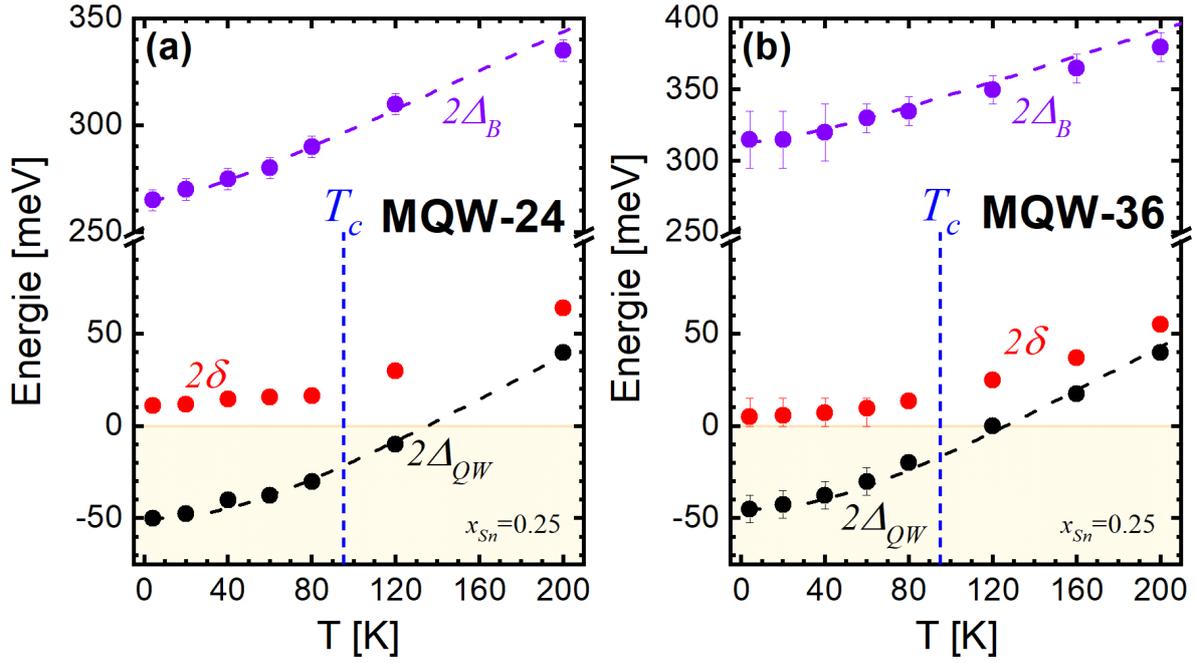


Figure 3-17. Variation en température du paramètre expérimentale 2δ (en rouge) ainsi que des paramètres utilisés pour l'ajustement théorique $2\Delta_{QW}$ (en noir) et $2\Delta_B$ (en violet) dans MQW-24 (a) et MQW-36 (b). Les lignes pointillées représentent les lois empiriques de variation en température de $2\Delta_{QW}$ et $2\Delta_B$.

La variation en température de 2δ dans MQW-24 (Fig. 3-17(a)) et MQW-36 (Fig. 3-17(b)) est semblable : le gap augmente avec T . A la température T_c , les ETS perdent leur propriété d'états évanescents. Ce point critique est atteint lorsque $|\Delta_{QW}(T)| = \delta(T)$, soit vers 100 K. Au-delà de cette température, ETS et ETS' deviennent des états massifs. Ainsi, nous avons démontré ici que le gap des états topologiques de surface peut être varié par le confinement quantique mais également continument par la température. Cette versatilité nous permet d'ajuster très facilement le gap 2δ entre 0 et 60 meV.

v. Puits quantiques étroits

Les résultats des expériences de magnéto-optique sur l'échantillon MQW-7 à 4.2 K et 140 K sont présentés sur la Fig. 3-18. Les spectres sont les Fig. 3-18(a,b) à 4.2 et 140 K et leur interprétation respective est en Fig. 3-18(c,d). Une seule série d'absorption (en rouge) est observée et est donc attribuée à la série de transitions entre les niveaux de Landau issus des deux états fondamentaux H1 et E1.

Ces transitions s'extrapolent à $2\delta = 122 \pm 2.5$ meV pour $T = 4.2$ K et $2\delta = 160 \pm 2.5$ meV pour $T = 140$ K, avec $v_{\parallel} = v_z = 4.50 \times 10^5$ m/s. Le bon accord théorie-expérience contraint alors à déduire $2\Delta_{QW} = +20$ meV et $2\Delta_{QW} = +70$ meV à 4.2 K et 140 K respectivement. Ces deux valeurs sont bien au-dessus du gap attendu pour $\text{Pb}_{0.75}\text{Sn}_{0.25}\text{Se}$ et peuvent s'expliquer par une diffusion des ions Eu^{2+} dans le puits, et, a fortiori, des ions Sn^{2+} dans la barrière. Cette interdiffusion relève le gap du matériau puits au point de le rendre trivial. Les états H1 et E1 ne sont donc pas évanescents, aucun état topologique de surface ne peut être observé dans cet échantillon. On remarque que le gap du matériau puits a suivi l'évolution en température décrite pour le cas d'un film épais dans le chapitre précédent. Le gap de la barrière a été fixé à 415 meV à 4.2 K et selon la loi empirique (voir partie I.i.a), $2\Delta_B = +465$ meV à 140 K.

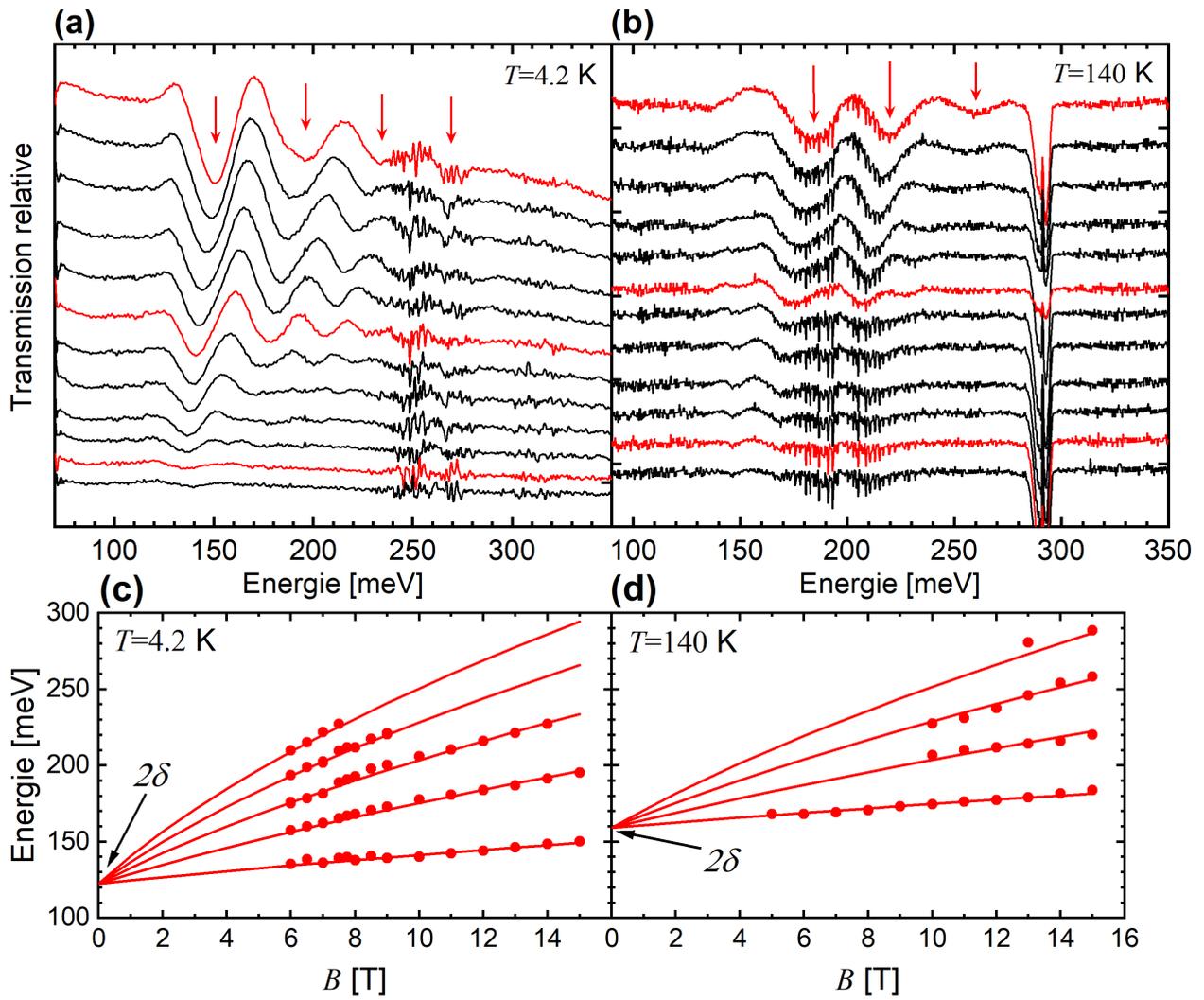


Figure 3-18. Spectres normalisés à 4.2 K **(a)** et 140 K **(b)** de MQW-7 entre 4 et 15 T. Les spectres obtenus pour des multiples de 5 T sont en rouge. Les flèches rouges marquent les principales absorptions. **(c,d)** Accord théorie-expérience à 4.2 K et 140 K respectivement. Les lignes pleines représentent les transitions calculées entre les niveaux de Landau de H1 et E1. Ces transitions s'extrapolent à 2δ pour un champ nul.

III. Couplage des puits par effet tunnel : superréseaux

i. Emergence des minibandes

Nous allons considérer maintenant les mêmes hétérostructure (voir Fig. 3-1) mais faites avec des barrières très fines, de l'ordre de quelques nanomètres d'épaisseur. L'extrême finesse des barrières induit un recouvrement des fonctions enveloppes des états liés de deux puits adjacents, qui bavent dans la barrière (voir Fig. 3-5). Un électron peut donc transiter par effet tunnel dans la barrière pour passer d'un puits à un autre, les états électroniques se délocalisent. Deux états liés identiques de deux puits adjacents ont leurs énergies dégénérées mais le couplage par effet tunnel provoque une levée de dégénérescence en un état liant et un état anti-liant. Le couplage de N puits quantiques induit alors l'émergence d'états délocalisés issus de chaque état lié du puits quantique. On parle alors de minibandes et un superréseau peut donc être considéré comme un matériau 3D dont la zone de Brillouin est tronquée selon la direction de croissance.⁹²⁻⁹⁴

Comme les états électroniques sont délocalisés, on peut voir un superréseau comme un cristal d'atomes dans les directions xy , et dans la direction de croissance z , un réseau cristallin formé par une alternance de puits et de barrière. La période de ce réseau est donc $L = d_{QW} + d_B$ et le théorème de Bloch nous dit que $\chi_{\alpha,\beta}(z + L) = e^{iq_z z} \chi_{\alpha,\beta}(z)$. On a défini ici le vecteur d'onde électronique q_z selon la direction z qui peut prendre toutes les valeurs dans l'intervalle $[-\pi/L; \pi/L]$. On appelle cet intervalle la mini-zone de Brillouin car elle fait office de zone de Brillouin réduite. Dans le plan xy , le réseau atomique a une maille de période $a \sim 6.1 \text{ \AA}$. La mini-zone de Brillouin est donc typiquement 50 fois plus petite que la zone de Brillouin usuelle dans la direction q_z .

Le problème à résoudre est identique à celui de la partie I avec notamment le même hamiltonien. Cependant, le couplage par effet tunnel impose de changer de condition aux limites. Contrairement aux puits quantiques, les fonctions enveloppes ne s'annulent pas à l'infini dans la barrière mais à la place, on utilise la condition de Bloch. Les conditions aux limites se résument donc à :^{17,93,94}

$$\left\{ \begin{array}{l} F_+^{QW}(d_{QW}) = F_+^B(d_{QW}) \\ \frac{1}{\mu_{QW}} \frac{\partial F_+^{QW}}{\partial z}(d_{QW}) = \frac{1}{\mu_B} \frac{\partial F_+^B}{\partial z}(d_{QW}) \\ e^{iq_z L} F_+^{QW}(0) = F_+^B(L) \\ \frac{1}{\mu_{QW}} \frac{\partial F_+^{QW}}{\partial z}(L) = \frac{1}{\mu_B} \frac{\partial F_+^B}{\partial z}(L) \end{array} \right.$$

On rappelle que $\mu(z) = [\Delta_{QW} - E + V_-(z)]/2v_z^2$ est la masse effective dans le puits ou la barrière. Les fonctions enveloppes sont du type $F_+^{QW}(z) = a_1 \cos(kz) + a_2 \sin(kz)$ ou $F_+^{QW}(z) = b_1 \cosh(\kappa z) + b_2 \sinh(\kappa z)$ dans le puits suivant la zone (voir Fig. 3-3) et $F_+^B(z) = r \cosh[\rho(z - d_{QW})] + s \sinh[\rho(z - d_{QW})]$ dans la barrière. Résoudre ce système permet de trouver les coefficients a_1, a_2, b_1 et b_2 qui déterminent les fonctions enveloppes F_+ à une constante de normalisation près. Les fonctions F_- se déduisent de la même manière que dans la partie I. L'annulation du déterminant de ce système mène à la dispersion des états liés en fonction de q_z :

$$\cos(q_z L) = \cos(kd_{QW}) \cosh(\rho d_B) - \frac{1}{2} \left(\xi^* - \frac{1}{\xi^*} \right) \sin(kd_{QW}) \sinh(\rho d_B)$$

$$\text{avec } \xi^* = \frac{k}{\rho} \frac{E - \Delta_B}{E - \Delta_{QW}}$$

Pour les états propagatifs dans le puits et pour les états évanescents :

$$\cos(q_z L) = \cosh(\kappa d_{QW}) \cosh(\rho d_B) - \frac{1}{2} \left(\tilde{\xi} + \frac{1}{\tilde{\xi}} \right) \sinh(\kappa d_{QW}) \sinh(\rho d_B)$$

$$\text{avec } \tilde{\xi} = -\frac{\kappa}{\rho} \frac{E - \Delta_B}{E - \Delta_{QW}}$$

Ces équations sont résolues numériquement et la dispersion des minibandes est montrée sur la Fig. 3-19(a) en utilisant les paramètres indiqués dans le Tableau II. Les deux minibandes issues de ETS et ETS' sont calculées pour deux valeurs de v_z différentes qui modélisent le système multivallée. Dans la suite, on notera Δ_{MB} la largeur de mini-bande ainsi que $2\delta(q_z)$ la séparation en énergie entre les états ETS' et ETS à q_z .

Tableau II. Paramètres de l'hétérostructure utilisés pour illustrer les calculs.

$2\Delta_{QW}$ [meV]	$2\Delta_B$ [meV]	d_{QW} [nm]	d_B [nm]	$v_{\parallel} = v_z$ [m/s]
-72.5	+150	9	3.5	4.50×10^5

Les Fig. 3-19(b,c,d) illustrent le comportement des minibandes en fonction des différents paramètres. Lorsque la barrière est rétrécie, l'intensité de l'effet tunnel croît exponentiellement et les minibandes sont donc plus larges, comme le montre la Fig. 3-19(b). Dans la limite où $d_B \rightarrow \infty$, on retrouve évidemment les états confinés d'un puits quantique unique, comparable à la Fig. 3-4. De même, lorsque le potentiel de confinement imposé par la barrière est réduit, l'effet tunnel devient plus important et donc les minibandes plus larges (voir Fig. 3-19(d)).

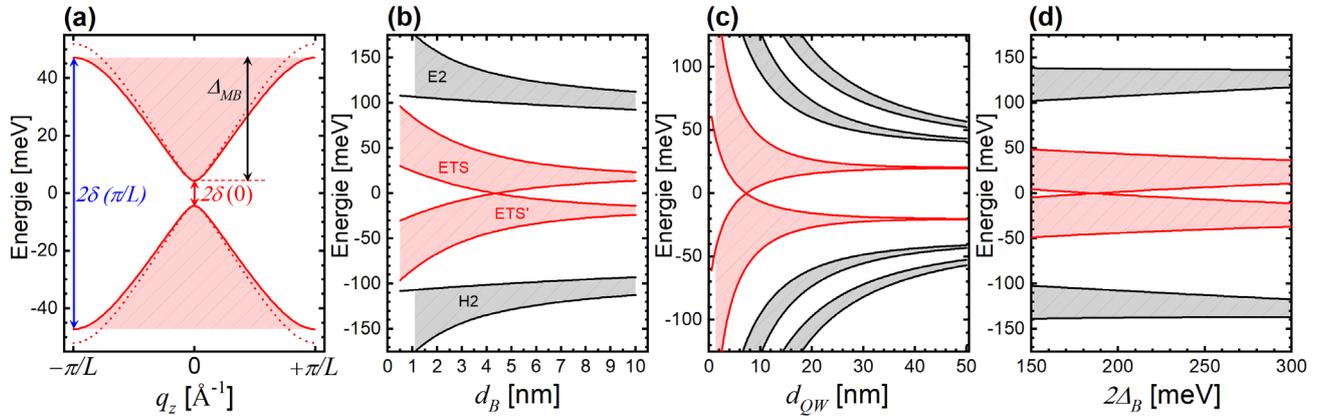


Figure 3-19. (a) Dispersion en q_z des minibandes issues de ETS et ETS' pour deux valeurs de v_z différentes : 4.50×10^5 m/s en lignes pleines et 4.70×10^5 m/s pour les lignes pointillées. (b,c,d) Dépendance des quatre minibandes fondamentales en fonction de d_B , d_{QW} et $2\Delta_B$ respectivement.

ii. Inversion des états topologiques de surface

On peut remarquer sur les Fig. 3-19(b,c,d) que les deux minibandes issues des deux ETS se croisent à $q_z = 0$.⁹⁵ La symétrie électron-trou impose que ce croisement se produise à $E = 0$. A cette énergie, $\kappa = |\Delta_{QW}|/\hbar v_z$ et $\rho = \Delta_B/\hbar v_z$ ce qui mène à $\tilde{\xi} = 1$. L'équation séculaire devient alors :

$$\cos(q_z L) = \cosh(\kappa d_{QW}) \cosh(\rho d_B) - \sinh(\kappa d_{QW}) \sinh(\rho d_B) = \cosh(\kappa d_{QW} - \rho d_B)$$

Et donc à $q_z = 0$, on a croisement des minibandes ETS' et ETS si $\kappa d_{QW} = \rho d_B$, c'est-à-dire :

$$\boxed{|\Delta_{QW}| d_{QW} = \Delta_B d_B}$$

En ce point, on a donc $\delta(0) = 0$ comme montré sur les Fig. 3-19(b,c,d). On peut alors calculer la symétrie des états confinés à q_z , en vue de démontrer que l'annulation du gap d'hybridation à $q_z = 0$ s'accompagne d'un changement de symétrie des états. Ainsi, la Fig. 3-20(a) représente les minibandes issues de ETS et ETS' comme dans Fig. 3-19(a) avec en plus la symétrie des états en échelle de couleur. La dépendance des minibandes en fonction de d_{QW} est tracée en Fig. 3-20(b) avec le calcul de la symétrie représenté par la même échelle de couleur. Les paramètres utilisés sont notés dans le Tableau II.

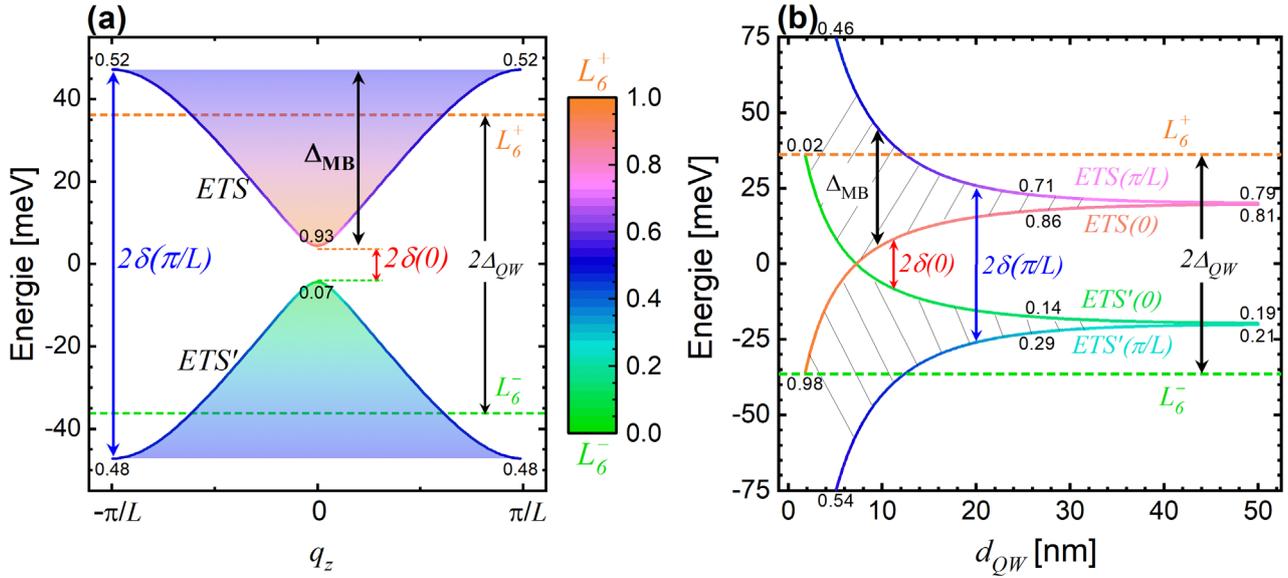


Figure 3-20. (a) Minibandes issues de ETS' et ETS avec la symétrie des états à q_z calculée et représentée par l'échelle de couleur à droite. (b) Energies à $q_z = 0$ et $q_z = \pm\pi/L$ de ETS et ETS' en fonction de d_{QW} . Les symétries sont calculées dans la même échelle de couleur qu'en (a). Les nombres affichés donnent les valeurs du carré de l'amplitude de la fonction enveloppe sur L_6^+ .

Pour $d_{QW} > \Delta_B d_B / |\Delta_{QW}| = 7.2$ nm ici, l'état topologique de surface de conduction (noté toujours ETS malgré l'inversion) est majoritairement L_6^+ et donc la parité des états est inversée. On peut alors parler de superréseau topologique.^{96,97} On pourrait de même calculer la symétrie des états en fonction de tous les paramètres de l'hétérostructure pour montrer l'inversion de parité. Toutefois, ce traitement serait lourd et il est maintenant proposé une approche simplifiée.

Dans la limite de barrières fines, ETS et ETS' vérifient à $q_z = 0$:

$$1 = \cosh(\kappa d_{QW}) - \frac{1}{2} \left(\xi + \frac{1}{\xi} \right) \sinh(\kappa d_{QW}) \rho d_B$$

Et en supposant $\kappa d_{QW} \ll 1$, hypothèse qui sera vérifiée expérimentalement, on a :

$$\frac{d_{QW}}{d_B} = \frac{\rho^2 \Delta_{QW} - E}{\kappa^2 E - \Delta_B} + \frac{\Delta_B - E}{E - \Delta_{QW}}$$

Ce qui donne :

$$\delta = \Delta_{QW} \sqrt{1 - \frac{2d_B \left(1 - \frac{\Delta_B}{\Delta_{QW}}\right)}{d_{QW} + 2d_B}}$$

qu'on peut également écrire comme :

$$\delta \simeq \frac{d_{QW}\Delta_{QW} + d_B\Delta_B}{L}$$

On retrouve le modèle du pseudo-alliage : le gap du superréseau est la moyenne de ceux des matériaux puits et barrières, pondérée par leur épaisseur. Par analogie aux modèles des liaisons fortes développés dans la littérature, on peut identifier les hybridations dans le puits τ_{QW} et la barrière τ_B aux expressions suivantes :⁹⁶

$$\tau_{QW} \equiv -\frac{1}{d_{QW}\Delta_{QW}} \quad \text{et} \quad \tau_B \equiv \frac{1}{d_B\Delta_B}$$

τ_{QW} et τ_B incarnent le recouvrement à travers le puits et la barrière des pics de la fonction d'onde émanant de chaque interface. La formule précédente se réécrit en :

$$\delta \simeq \frac{1}{L} \left(\frac{1}{\tau_B} - \frac{1}{\tau_{QW}} \right)$$

On s'aperçoit alors que le signe du gap d'hybridation (et donc la phase topologique du superréseau) dépend de l'hybridation des états à travers la barrière comparée à celle dans le puits.

iii. Dispersion et niveaux de Landau des minibandes

Pour calculer la dispersion et les niveaux de Landau, le même traitement théorique que pour les MQW a été utilisé. Seules les fonctions d'ondes et les énergies des états confinés changent.

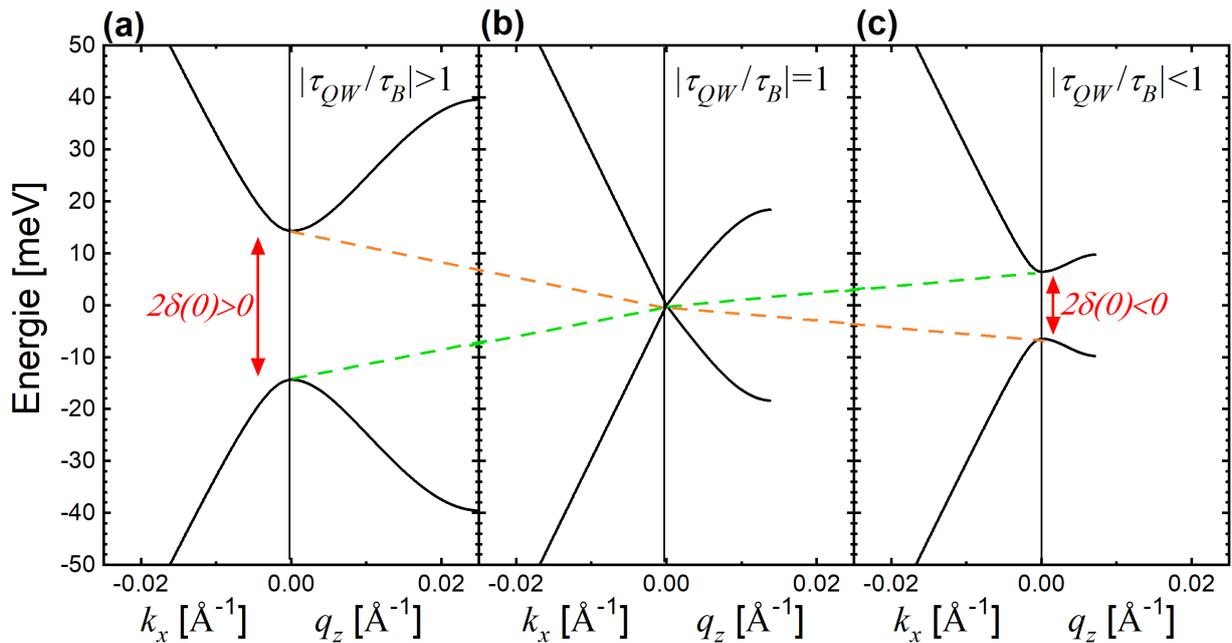


Figure 3-21. Dispersion en k_x et q_z de ETS et ETS' pour les trois ratios d'hybridations différents : $|\tau_{QW}/\tau_B| > 1$ (a) pour lequel $\delta > 0$, $|\tau_{QW}/\tau_B| = 1$ (b) où $\delta = 0$ et $|\tau_{QW}/\tau_B| < 1$ (c) qui marque la phase topologique avec $\delta < 0$.

Les dispersions en q_z et k_x dans les trois phases différentes sont calculées sur la Fig. 3-21. Au point critique, le matériau devient un semi-métal de Dirac 3D. Un tel état de la matière sera détaillé au chapitre IV.

Les niveaux de Landau sont montrés sur la Fig. 3-22 pour les trois états possibles, en incluant les bandes lointaines. La pente des niveaux $n = 0$ dans un superréseau topologique reflète comme dans le massif l'inversion de symétrie.

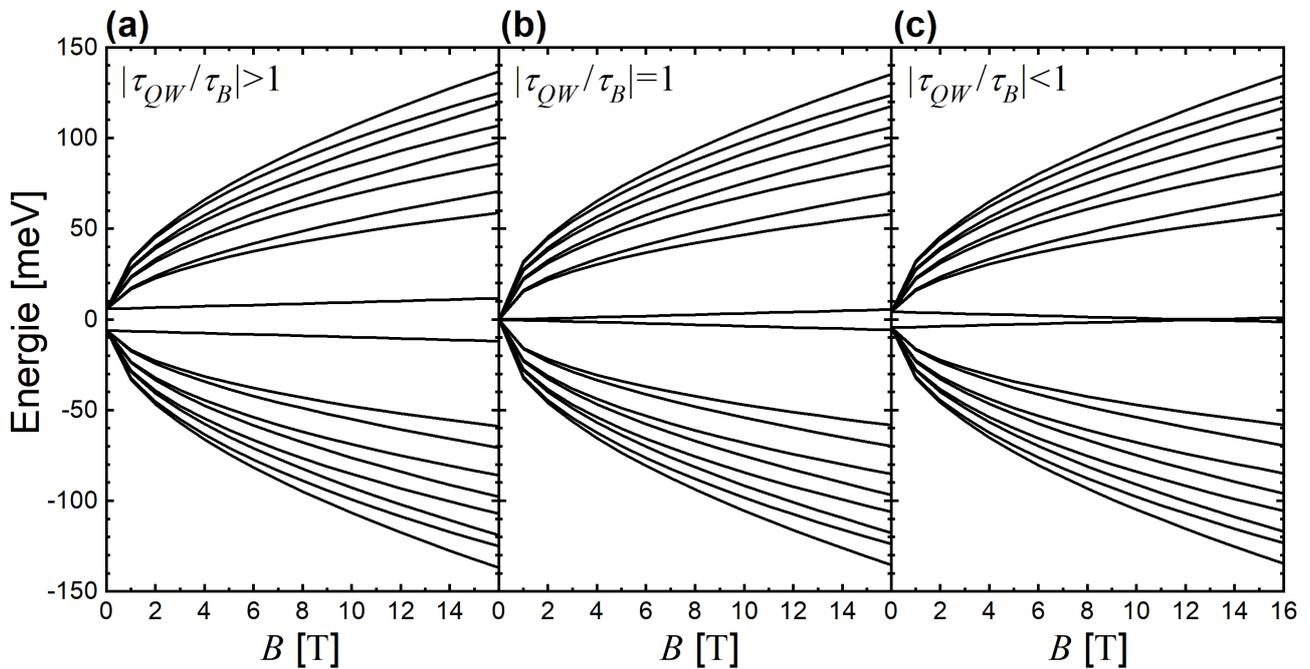


Figure 3-22. Niveaux de Landau des minibandes ETS' et ETS à $q_z = 0$ calculés avec $\tilde{m} = 0.28 m_0$, $d_{QW} = 9$ nm, $d_B = 3.5$ nm, $2\Delta_B = +150$ meV, $v_z = v_{\parallel} = 4.40 \times 10^5$ m/s, et $2\Delta_{QW} = -72.5$ meV **(a)**, $2\Delta_{QW} = -58$ meV **(b)**, $2\Delta_{QW} = -40$ meV **(c)**.

Les règles de sélection en magnéto-optique ainsi que le problème d'anisotropie traités pour les multi puits quantiques en parties I.v et II.iii restent valables pour les superréseaux.

IV. Résultats expérimentaux dans les superréseaux

i. Croissance et caractérisation des superréseaux

Trois superréseaux ont été fabriqués par épitaxie par jet moléculaire sur un substrat BaF₂ (111) pour incarner les trois phases prévues théoriquement. Ils ont été fabriqués par l'équipe de G. Springholz à l'Université de Linz et leur nombre de périodes mène à une épaisseur totale des superréseaux d'un peu plus de 500 nm. Les paramètres structuraux retenus sont notés sur le Tableau III. Ainsi, à 4.2 K, SL9-3.5 et SL27-1.5 sont attendus d'être des superréseaux topologiques alors que SL15-3.5 devrait être trivial, bien que le matériau puits soit topologique. Dû à l'interdiffusion de Sn dans les barrières minces, celles-ci sont constituées de l'alliage quaternaire PbSnEuSe. L'expérience nous donnera $2\Delta_B \sim +150$ meV à 4.2 K, d'où les valeurs de τ_{QW}/τ_B dans le Tableau III.

Tableau III. Paramètres structuraux des trois superréseaux étudiés expérimentalement.

Echantillon	d_{QW} [nm]	d_B [nm]	x	y	Nbre de périodes	$ \tau_{QW}/\tau_B (4.2 \text{ K})$
SL9-3.5	9	3.5	0.27	0.05	40	0.80
SL15-3.5	15	3.5	0.23	0.05	30	1.75
SL27-1.5	27	1.5	0.26	0.05	20	0.14

La caractérisation des propriétés structurales aux rayons X est présentée sur la Fig. 3-23. La finesse et le grand nombre des pics satellites prouvent la très bonne qualité cristalline des échantillons. Ils permettent également une détermination très précise des épaisseurs de puits et de barrière, notées dans le Tableau III. La Fig. 3-23(b) montre la diffraction aux rayons X dans les directions k_x et q_z . Le pic (153) du substrat est décalé en k_x par rapport au même pic du superréseau. Ceci démontre la relaxation du superréseau par rapport au substrat BaF₂ ainsi que sa croissance pseudomorphique, comme ce fût le cas pour les multi-puits quantiques (voir partie II).

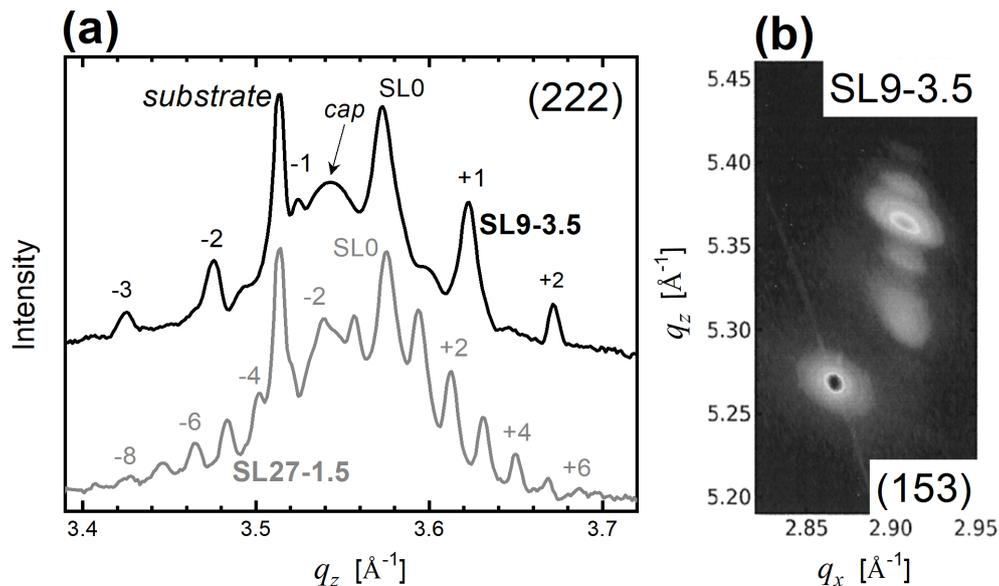


Figure 3-23. (a) Diffraction aux rayons X autour du pic (222) des échantillons SL9-3.5 en noir et SL27-1.5 en gris. Les pics dus au superréseau, au substrat et à la couche de PbEuSe de 50 nm sur le dessus sont pointés. Les pics satellites du superréseau sont notés par les chiffres. (b) Diffraction aux rayons X de SL9-3.5 autour du pic (153) dans les directions q_z et k_x .

ii. Mise en évidence des minibandes topologiques

a) Observation magnéto-optique des minibandes

Les spectres de SL9-3.5 et SL15-3.5 sont affichés sur les Fig. 3-24(a,b,c,d) à $T = 4.2$ K et $T = 160$ K. L'ajustement de la théorie sur l'expérience est représenté juste en dessous sur les Fig. 3-24(e,f,g,h). Dans ces deux échantillons, on observe trois séries d'absorptions. Les deux en rouge s'extrapolent à très basse énergie pour $B = 0$. Elles sont donc naturellement attribuées à la série de transitions entre les niveaux de Landau issus de ETS' et ETS à $q_z = 0$. Le dédoublement des raies marquées par des flèches rouges (voir par exemple vers 125 meV sur la Fig. 3-24(a)) illustrent le phénomène multivallée. Ainsi, les flèches et lignes en pointillé rouge sont assignées aux transitions issues des vallées obliques. Les absorptions et transitions provenant de la vallée longitudinale sont notifiées par des flèches et lignes pleines respectivement. Dans le modèle utilisé, la seule différence entre les lignes pleines et pointillées sur les Fig. 3-24(e,f,g,h) est la valeur de la vitesse électronique. Elle est ajustée à $v_{\parallel,l} \sim 4.45 \times 10^5$ m/s pour la vallée longitudinale et $v_{\parallel,o} \sim 4.10 \times 10^5$ m/s pour les vallées obliques. Plus globalement, les paramètres utilisés pour rendre compte de l'expérience à toutes températures et pour tous les échantillons sont listés sur le Tableau IV.

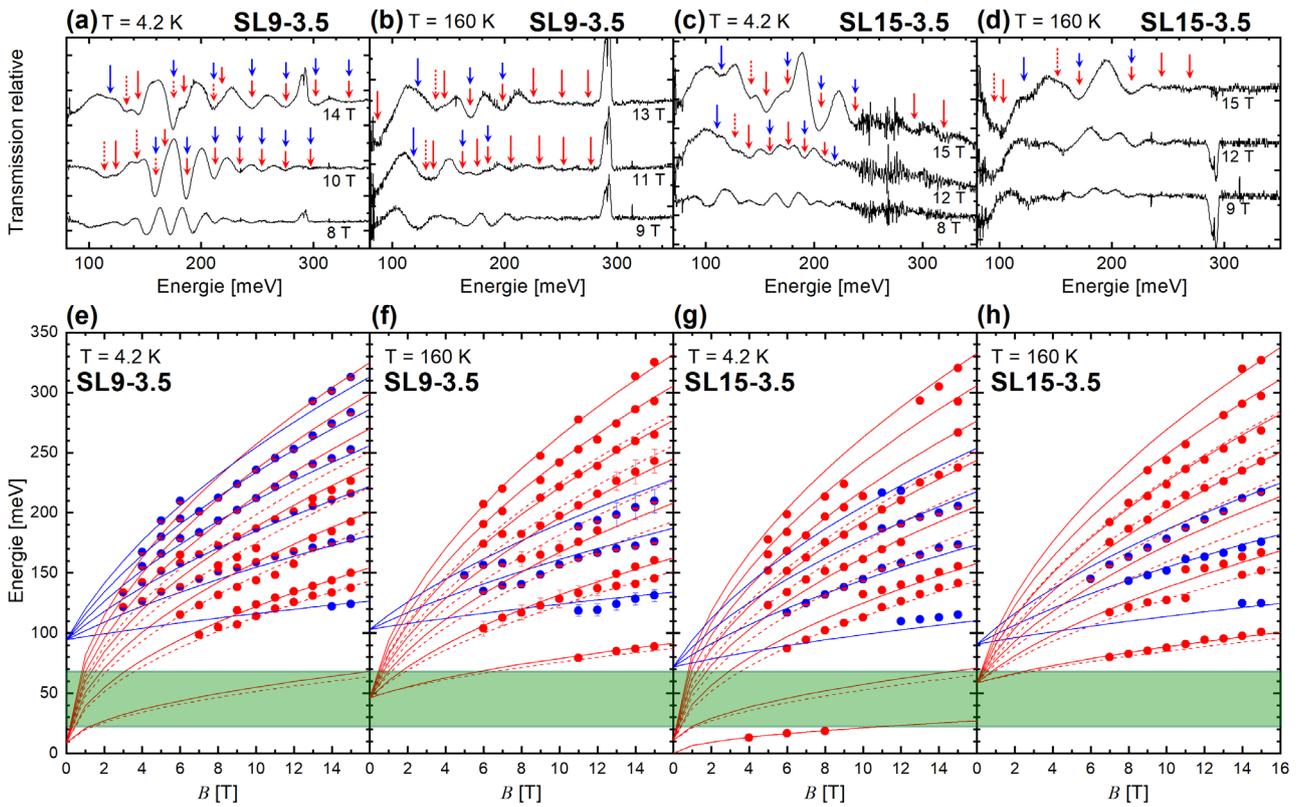


Figure 3-24. (a,b,c,d) Spectres de SL 9-3.5 et SL15-3.5 à 4.2 K et 160 K. Les absorptions sont notifiées par des flèches rouges ou bleues, en pointillé ou trait plein. (e,f,g,h) Correspondance théorie-expérience de SL 9-3.5 et SL15-3.5 à 4.2 K et 160 K. Les pointillés (traits pleins) représentent les vallées oblique (la vallée longitudinale). La couleur rouge (bleue) dénote les transitions intervenant à $q_z = 0$ ($q_z = \pm \pi/L$).

La troisième série est en bleu et s'extrapole vers 100 meV. Elle ne peut pas être attribuée à une transition entre états excités car ces derniers sont trop haut en énergie à cause du fort confinement dans ces deux échantillons. De plus, les transitions rouges sont tout à fait régulières et ne sont pas sujettes aux anti-croisements observés en la présence d'états excités. La série bleue ne peut qu'être assimilée aux transitions

entre les ETS et ETS' à $q_z = \pm \pi/L$. En effet, comme à $q_z = 0$, la minibande admet un extremum en ces points donc les transitions magnéto-optiques peuvent y être observées. Ces transitions mènent à une détermination très précise de la largeur des minibandes et donc à des valeurs précises de $2\Delta_B(T)$ et $v_z(T)$, comme résumé dans le Tableau IV. L'observation de transitions magnéto-optiques intervenant à $q_z = \pm \pi/L$ est très rare.⁹⁸ Dans les hétérostructures de matériaux III-V ou II-VI, les minibandes de trou lourd s'hybrident avec celles de trou léger à $q_z \neq 0$, ce qui rend difficile l'observation de ces absorptions. Notre système à deux bandes miroirs, dont la qualité cristalline est remarquable, est donc idéal pour observer les minibandes émanant du couplage par effet tunnel à travers les barrières.

Tableau IV. Paramètres électroniques utilisés pour rendre compte des résultats expérimentaux des trois échantillons à toute température. « N.D » tient pour « Non-Disponible ». L'incertitude sur $v_{\parallel,o,l}$ est de $\pm 0.05 \times 10^5$ m/s. Celle sur $v_{z,o,l}$ est de $\pm 0.10 \times 10^5$ m/s.

Echantillon	T [K]	$2\Delta_{QW}$ [meV]	$2\Delta_B$ [meV]	$v_{\parallel,l}$ [m/s]	$v_{z,l}$ [m/s]	$v_{\parallel,o}$ [m/s]	$v_{z,o}$ [m/s]
SL9-3.5	4,2	-72.5	150	4.40	4.40	4.10	4.70
	80	-55	165	4.40	4.40	4.10	4.70
	120	-40	190	4.40	4.40	4.10	4.70
	160	-12.5	225	4.45	4.45	4.10	4.70
	200	10	255	4.50	4.50	4.10	4.70
SL15-3.5	4,2	-20	150	4.50	4.50	4.10	4.70
	50	-10	155	4.50	4.50	4.10	4.70
	80	-2.5	165	4.50	4.50	4.10	4.70
	120	15	180	4.50	4.50	4.10	4.70
	160	32.5	200	4.50	4.50	4.10	4.70
	200	55	220	4.50	4.50	N.D	N.D
SL27-1.5	4,2	-60	140	4.45	4.45	4.45	4.45
	20	-57.5	145	4.45	4.45	4.45	4.45
	40	-50	150	4.45	4.45	4.45	4.45
	80	-32.5	155	4.40	4.40	4.40	4.40
	120	-15	175	4.35	4.35	4.35	4.35
	160	0	200	4.35	4.35	4.35	4.35
	200	10	230	4.35	4.35	4.35	4.35

b) Inversion de la symétrie des états topologiques de surface

On s'intéresse maintenant à l'échantillon SL27-1.5 dont le rapport $|\tau_{QW}/\tau_B|$ est attendu très petit devant 1 à 4.2 K. A cette température, les spectres de cet échantillon sont présentés sur la Fig. 3-25(a) et l'accord théorie-expérience sur la Fig. 3-25(b), effectué grâce aux niveaux de Landau calculés à $q_z = 0$ sur la Fig. 3-25(c). La série fondamentale, toujours en rouge, donne $2|\delta| \sim 50$ meV. La série bleue est à peine visible car malgré l'extrême finesse des barrières, les puits sont larges et donc la mini-zone de Brillouin $[-\pi/L; +\pi/L]$ est réduite. De plus, on retrouve dans cet échantillon un fort couplage entre les niveaux de Landau à $q_z = 0$ de ETS' et ETS et ceux de H2 et E2 (voir partie II.iii.b). Il faudrait donc prendre en compte le tilt des vallées obliques pour bien interpréter les transitions entre ETS' et ETS à $q_z = 0$. La transition fondamentale n'est pas impactée par cet effet.

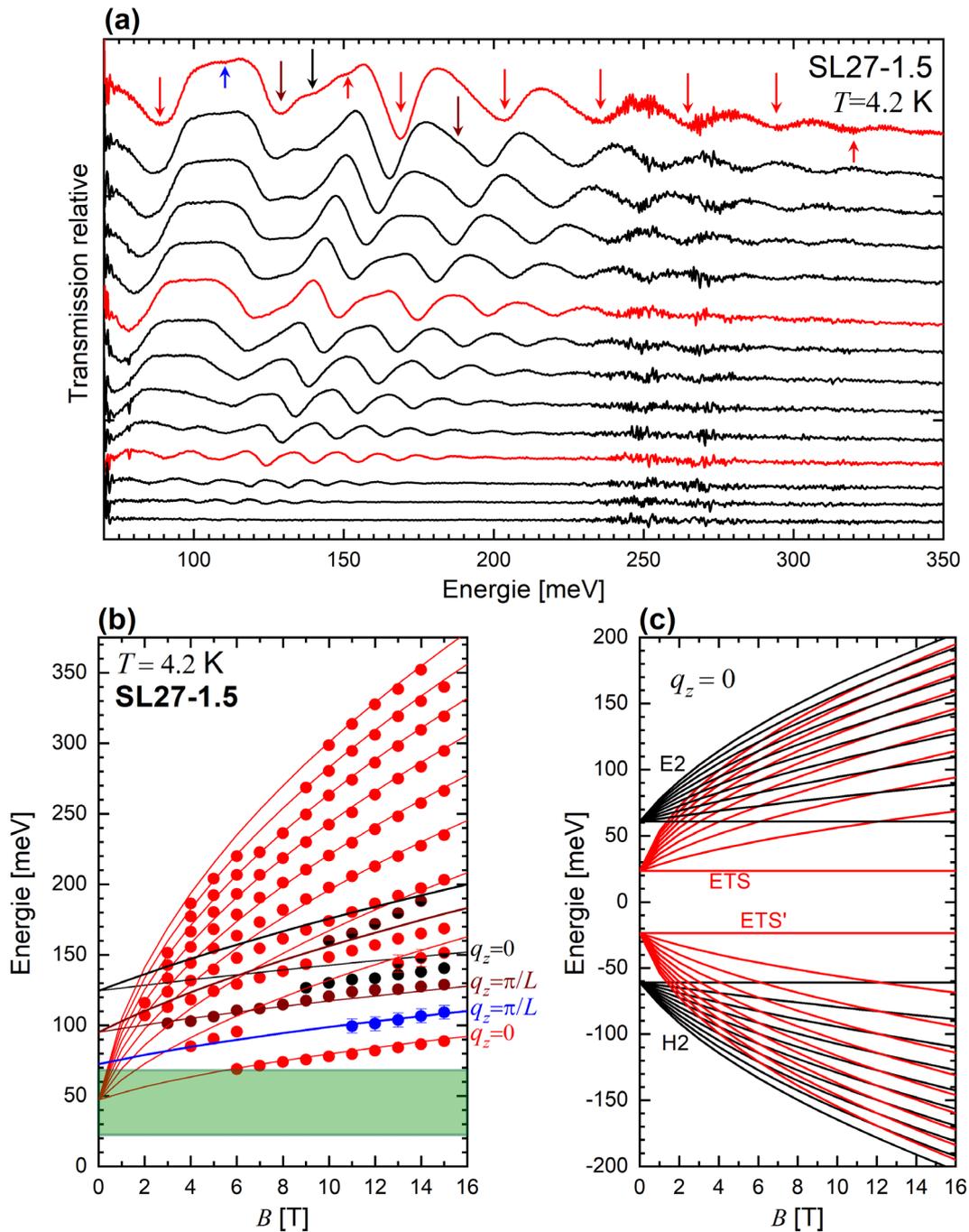


Figure 3-25. (a) Spectres normalisés de SL27-1.5 à 4.2 K, de 2 à 15 T pour chaque tesla. (b) Accord théorie expérience correspondant. Les transitions ayant lieu à $q_z = 0$ sont en rouge (entre ETS' et ETS) et en noir (pour H2 – E2). Celles intervenant à $q_z = \pm \pi/L$ sont en bleu et marron. La transition fondamentale est très bien ajustée. (c) Niveaux de Landau calculés à $q_z = 0$ avec les paramètres du Tableau IV.

L'énergie de la transition fondamentale entre les minibandes ETS' et ETS a été suivie en fonction de la température. Les spectres à $B = 15$ T sont affichés sur la Fig. 3-26(a) et les énergies sont reportées sur la Fig. 3-26(b). Dans un premier temps, l'énergie de la transition diminue lorsque T augmente, puis se retrouve dans le reststrahlen et enfin, pour $T > 200$ K, on voit son énergie augmenter avec la température. L'énergie de la transition fondamentale à $B = 15$ T est le témoin de l'énergie de gap $2\delta(0)$. Le gap se ferme donc au fur à mesure que la température augmente puis se rouvre à haute température. **Ceci démontre sans ambiguïté**

que le gap d'hybridation est négatif à basse température. Ce comportement en température est très bien rendu par la théorie $k.p$ (lignes pleines sur la Fig. 3-26(b)) qui modélise l'inversion des minibandes dans nos hétérostructures. Ainsi, pour $T < T_c \sim 135$ K, l'échantillon SL27-1.5 est un superréseau topologique (TSL). A plus haute température, SL27-1.5 devient un superréseau trivial (NSL).

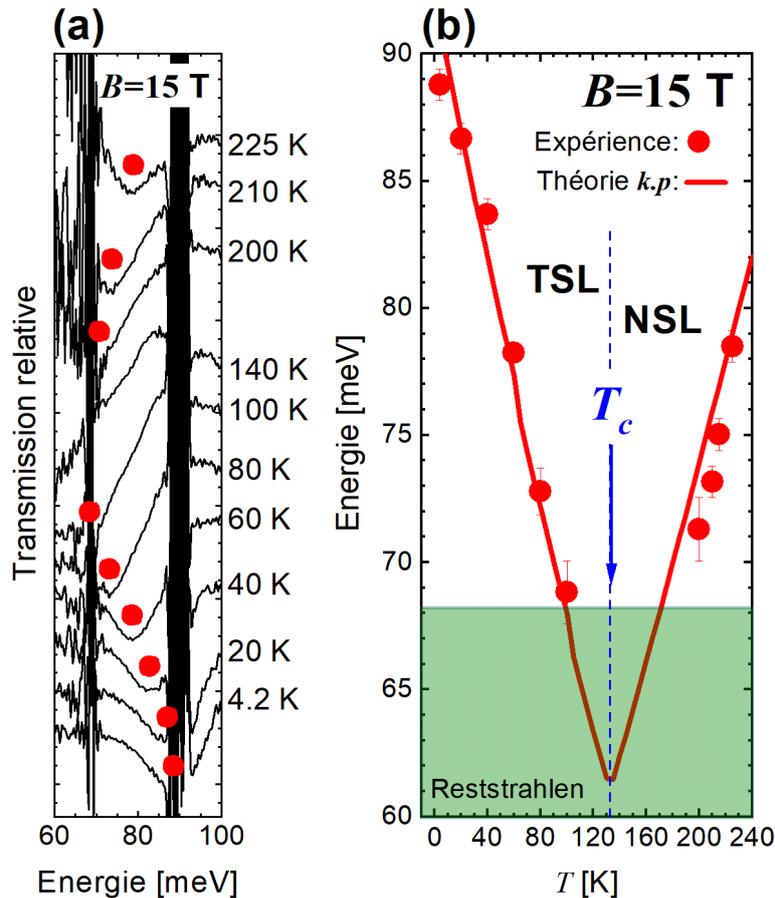


Figure 3-26. (a) Spectres à 15 T de SL27-1.5 pour différentes températures entre 4.2 K et 225 K, reportées sur la droite. Les points rouges suivent la transition fondamentale entre ETS' et ETS à $q_z = 0$. (b) Les énergies des raies d'absorptions de cette transition sont représentées par des points rouges en fonction de la température. La variation de cette transition en température est calculée en ligne pleine. Le point de transition de phase topologique est noté en bleu à la température critique T_c . Elle délimite la phase topologique (« TSL ») de la phase triviale (« NSL »).

La variation en température du gap d'hybridation est résumée sur la Fig. 3-27 pour les trois échantillons (en rouge). La confirmation de notre modèle théorique avec SL27-1.5 nous permet de catégoriser l'échantillon SL9-3.5 comme superréseau topologique à 4.2 K. On en déduit également l'inversion des minibandes à $q_z = \pm \pi/L$, représenté par des points bleus sur la Fig. 3-27 (voir Fig. 3-20). Il est difficile d'observer expérimentalement cette inversion car $2\delta(\pi/L)$ ne s'annule jamais. On peut toutefois remarquer que la largeur de la minibande est maximale au point d'inversion calculé à $q_z = \pm \pi/L$. La zone hachurée en bleu représente deux fois la largeur des minibandes ETS' et ETS observée expérimentalement.

Les paramètres utilisés pour rendre compte des résultats expérimentaux sont également reportés sur la Fig. 3-27 en noir pour le gap du matériau puits et en violet pour le gap du matériau barrière. Les lois empiriques pour la variation de $2\Delta_{QW}(T)$ et $2\Delta_B(T)$ sont tracées en lignes pleines.

Il est facile de vérifier la validité de la formule, établie en partie III.ii :

$$\delta \simeq \frac{d_{QW}\Delta_{QW} + d_B\Delta_B}{L} \simeq \frac{1}{L} \left(\frac{1}{\tau_B} - \frac{1}{\tau_{QW}} \right)$$

Cette expression est très pratique pour calculer le gap des superréseaux et anticiper leur caractère topologique ou trivial.

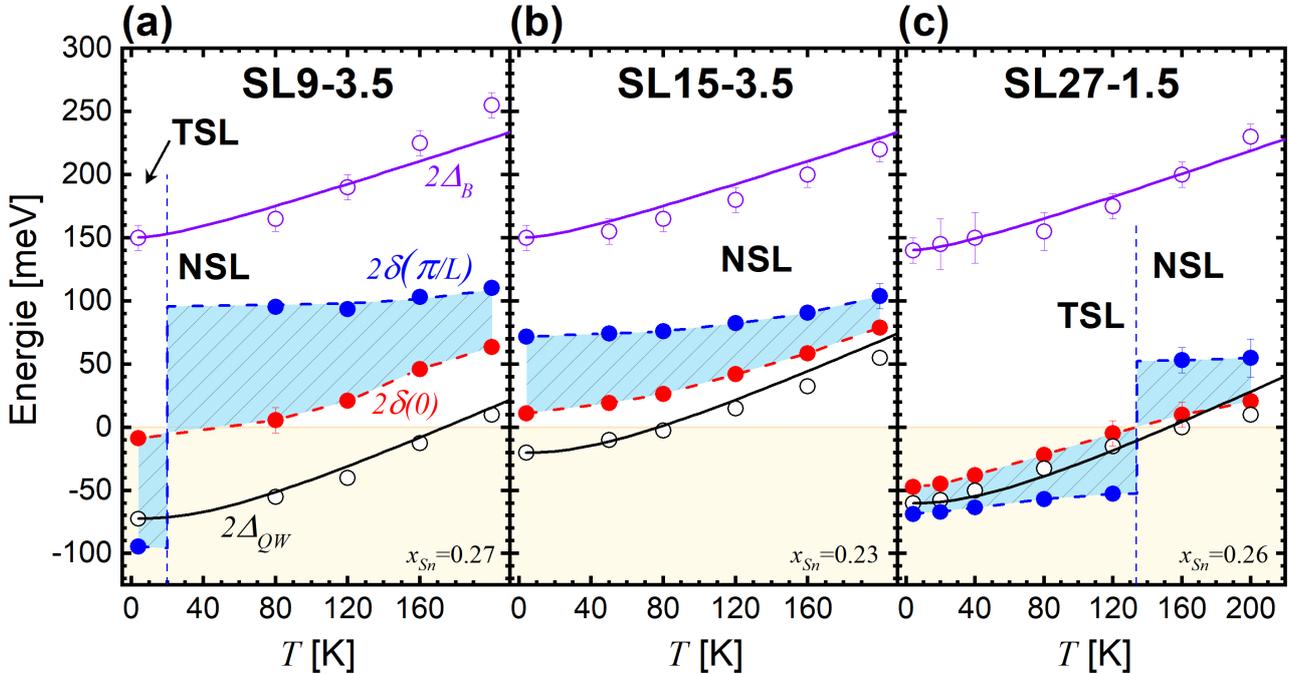


Figure 3-27. Variation de $2\delta(T)$ à $q_z = 0$ (points rouges) et $q_z = \pi/L$ (points bleus) pour SL9-3.5 (a), SL15-3.5 (b) et SL27-1.5 (c). La zone hachurée en bleu représente deux fois la largeur des minibandes ETS et ETS'. La variation des paramètres $2\Delta_{QW}(T)$ (cercles noirs) et $2\Delta_B(T)$ (cercles violets) est également représentée. Elle est déduite de l'interprétation des expériences magnéto-optiques. Les lignes pleines représentent les lois empiriques de $2\Delta_{QW}(T)$ en noir et $2\Delta_B(T)$ en violet.

En conclusion de ce chapitre, la magnéto-optique nous a permis de caractériser les hétérostructures formées par un empilement de matériaux topologiques et triviaux. Les états topologiques d'interface ont pu être précisément observés et caractérisés dans différentes conditions de confinement, température, et de couplage inter-puits. Dans le cas des superréseaux, les minibandes émergeants de l'effet tunnel entre les puits quantiques ont été démontrées grâce à l'observation de transitions magnéto-optiques à $q_z = \pm \pi/L$. L'inversion de symétrie des minibandes nous a permis de réaliser la première observation de minibandes topologiques. Ainsi, cette étude magnéto-optique a permis de définir le caractère topologique 2D des hétérostructures à base de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ en fonction de plusieurs paramètres, de la même manière que le chapitre II a démontré la nature topologique 3D de $Pb_{1-x}Sn_xSe$. Malgré l'impossibilité d'obtenir un puits quantique topologique, cette étude a démontré la faisabilité d'un superréseau topologique. Ce résultat est le point de départ du chapitre IV, qui s'intéresse principalement aux états de bord topologique 1D.

Chapitre 4 – Quelques effets pseudo-relativistes dans PbSnSe : effet Hall de spin et effet Hall quantique anormal

Les résultats expérimentaux obtenus dans le chapitre précédent nous renseignent sur les propriétés électroniques fondamentales des hétérostructures à base de PbSnSe. En particulier, la nature topologique des hétérostructures peut être mise en évidence expérimentalement grâce à la magnéto-optique. Dans la première partie de ce chapitre, nous allons utiliser ces résultats pour déduire l'existence ou non d'états de bord qui conduiraient à l'effet Hall quantique de spin (voir chapitre I). Dans une seconde partie, nous explorerons les effets induits par un dopage d'ions magnétiques dans PbSnSe, tels que l'émergence de fermions de Weyl ou encore de l'effet Hall quantique anormal. Ce chapitre vise à prédire les conditions d'observation des phases pseudo-relativistes très variées que PbSnSe peut présenter.

I. Effet Hall quantique de spin dans les hétérostructures à base de sels de plomb

i. Condition d'existence des états de bord

Les propriétés électroniques de l'hétérostructure peuvent être modélisées par un hamiltonien effectif, comme nous l'avons évoqué dans le chapitre précédent (voir partie I.iii) :

$$H_{ETS}(k) = \begin{pmatrix} -\delta - DCk_{\parallel}^2 & -\hbar v_{\parallel} A k_{-} & 0 & 0 \\ \hbar v_{\parallel} A k_{+} & \delta + DCk_{\parallel}^2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta - DCk_{\parallel}^2 & \hbar v_{\parallel} A k_{+} \\ 0 & 0 & -\hbar v_{\parallel} A k_{-} & \delta + DCk_{\parallel}^2 \end{pmatrix}$$

Il est exprimé dans la base suivante : $(\chi_{\alpha}^{(ETS')}; \chi_{\beta}^{(ETS)}; \chi_{\beta}^{(ETS')}; \chi_{\alpha}^{(ETS)})$. Les deux blocs sont indépendants et ne décrivent que les deux niveaux fondamentaux de l'hétérostructure, soit ETS' et ETS. On a posé, comme dans le chapitre II :

$$A = \int_{-\infty}^{+\infty} [F_{+}^{(ETS)} F_{-}^{(ETS')} + F_{+}^{(ETS')} F_{-}^{(ETS)}] dz$$

$$C = \int_{-\infty}^{+\infty} [F_{+}^{(ETS')} F_{+}^{(ETS')} + F_{-}^{(ETS')} F_{-}^{(ETS')}] dz$$

$$D = \frac{\hbar^2}{2\tilde{m}} > 0$$

Pour vérifier l'existence des états de bord, il faut fixer une limite au système dans le plan de l'hétérostructure et s'affranchir de la modélisation en onde plane. Considérons donc une quantification selon la direction y , qui nécessite la substitution $k_y = -i \frac{\partial}{\partial y}$. Le système se découple en deux blocs et il suffit de résoudre, à $k_x = 0$:

$$\begin{pmatrix} -\delta + DC \frac{\partial^2}{\partial y^2} - E & \hbar v_{\parallel} A \frac{\partial}{\partial y} \\ \hbar v_{\parallel} A \frac{\partial}{\partial y} & \delta - DC \frac{\partial^2}{\partial y^2} - E \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \chi_h(y) \\ \chi_e(y) \end{pmatrix} = 0$$

On peut d'ores et déjà fixer l'énergie des états de bord à $E = 0$, si ceux-ci existent. En effet, cette condition est imposée par la symétrie électron-trou de notre système. La résolution s'effectue en injectant une fonction d'essai du type $y \mapsto e^{\lambda y}$ avec $\lambda \in \mathbb{R}$.¹¹ Il en découle :

$$\lambda = \pm \sqrt{F \pm \sqrt{F^2 - \frac{\delta^2}{D^2 C^2}}} \quad \text{avec} \quad F = \frac{2DC\delta - \hbar^2 v_{\parallel}^2 A^2}{2D^2 C^2}$$

De plus, si l'on considère que la fonction d'essai s'annule pour $y = 0$ et $y \rightarrow +\infty$, on a la restriction supplémentaire :

$$\lambda_{\pm} = - \sqrt{F \pm \sqrt{F^2 - \frac{\delta^2}{D^2 C^2}}}$$

Ces conditions aux limites sont les conditions de Dirichlet. Elles modélisent l'interface entre le matériau et le vide à $y = 0$. Ces conditions permettent une résolution relativement simple, toutefois, elles négligent certains phénomènes d'interface comme l'effet Schottky, le travail de sortie ou les hauteurs de barrière de confinement. Avec la condition de Dirichlet, les vecteurs propres solutions du problème sont de la forme :

$$\begin{pmatrix} \chi_h \\ \chi_e \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} p \\ q \end{pmatrix} [e^{\lambda_+ y} - e^{\lambda_- y}]$$

où p et q sont deux constantes à déterminer. En injectant ce type de solution dans le problème, on aboutit aux relations suivantes sur p et q :

$$\frac{p}{q} = \frac{\hbar v_{\parallel} A \lambda_+}{DC \lambda_+^2 - \delta} = \frac{\hbar v_{\parallel} A \lambda_-}{DC \lambda_-^2 - \delta} \Rightarrow \delta = -DC \lambda_+ \lambda_-$$

Ces solutions existent à condition que λ_{\pm} soient bien réelles, c'est-à-dire si :

$$\lambda_+ \lambda_- > 0 \Leftrightarrow \frac{\delta}{C} < 0$$

Dans notre modèle, on appelle toujours ETS' l'état fondamental qui possède la plus basse énergie. Autrement dit, on a toujours $\delta > 0$ et la condition pour avoir des états de bord devient alors :

$$C < 0 \Leftrightarrow \int_{-\infty}^{+\infty} |F_+^{(ETS')}|^2 dz < \int_{-\infty}^{+\infty} |F_-^{(ETS')}|^2 dz \Leftrightarrow \boxed{c_+^2 < c_-^2}$$

On a posé comme dans le chapitre III :

$$\begin{cases} c_+^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} |F_+^{(ETS')}|^2 dz \\ c_-^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} |F_-^{(ETS')}|^2 dz \end{cases}$$

Ce sont les amplitudes au carré de la fonction enveloppe de ETS' sur les composantes L_6^+ et L_6^- . La condition de normalisation implique $c_+^2 + c_-^2 = 1$. Ainsi, on peut retenir le résultat suivant :

L'hétérostructure admet des états de bord si $c_+^2 < c_-^2$, c'est-à-dire si ETS' est majoritairement de symétrie L_6^- . ETS est alors majoritairement L_6^+ et la symétrie des états topologiques de surface est inversée.

On peut alors se renvoyer aux Fig. 3-6 et 3-20, qui quantifient le mélange de symétrie de chaque état confiné dans un puits quantique et dans un superréseau.

ii. Cas des puits quantiques découplés

Dans le chapitre III, il a été démontré qu'aucune inversion de symétrie n'avait lieu entre les ETS d'un puits quantique. Le gap d'hybridation est de quelques meV à basse température et augmente avec celle-ci. Cette dynamique en température nous permet de conclure que l'état majoritairement L_6^- possède la plus haute énergie. ***La condition d'obtention des états de bord n'est donc pas vérifiée et l'effet Hall quantique de spin n'est pas observable dans les puits que nous avons étudiés.***

Malgré cela, la Fig. 3-6 prédit une inversion de symétrie pour les états H2 et E2, puis H3 et E3, ... Cela ne suffit pas à faire apparaître des états de bord tant que les ETS ont une densité de probabilité non-négligeable au cœur du puits. En effet, pour des puits larges, on peut imaginer que les ETS sont totalement localisés aux interfaces. Ainsi, les états fondamentaux du cœur du puits sont les états H2 et E2 qui sont inversés. On trouve alors des états de bord selon les directions x et y . Cependant, ce raisonnement ne vaut que pour des puits infiniment larges et donc ces états de bord sont en réalité les états topologiques de surface que l'on trouve dans un matériau massif.

PbSnSe est ici victime de la simplicité de sa structure de bande. La présence d'une bande de trou lourd permet l'inversion de parité des états fondamentaux, comme c'est le cas dans un puits HgTe/CdTe par exemple (voir chapitre I).¹² Un des moyens pour néanmoins obtenir une inversion dans une hétérostructure à base de PbSnSe est de coupler les puits quantiques.

iii. Cas des superréseaux

Le chapitre III nous a permis de démontrer expérimentalement l'inversion des minibandes issues de ETS' et ETS. La dépendance en température de la transition fondamentale est non monotone, ce qui prouve qu'à basse température, l'état majoritairement L_6^+ est celui de plus haute énergie. Nous rappelons que, dans ce chapitre, le gap d'hybridation est pris positif, et que l'inversion est modélisée par le paramètre C . Dans un superréseau, il vaut pour un q_z donné :

$$C = \int_0^L \left[F_+^{(ETS')} F_+^{(ETS')} + F_-^{(ETS')} F_-^{(ETS')} \right] dz$$

L'hamiltonien effectif détaillé plus haut reste valable pour un q_z donné. Tant que la condition $C < 0$ est vérifiée (voir Fig. 3-20), un état de bord émerge à q_z . On peut expliciter la fonction enveloppe de cet état :

$$\begin{pmatrix} \chi_h \\ \chi_e \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} p \\ q \end{pmatrix} [e^{\lambda_+ y} - e^{\lambda_- y}] \text{ avec } \lambda_{\pm} = -\sqrt{F \pm \sqrt{F^2 - \frac{\delta^2}{D^2 C^2}}} \text{ et } F = \frac{2DC\delta + \hbar^2 v_{\parallel}^2}{2D^2 C^2} \text{ car } A = \pm i$$

En combinant la condition de normalisation et la relation entre p et q établie plus haut, on trouve les fonctions enveloppes χ_h et χ_e dont les amplitudes sont égales. χ_e est purement réelle alors que χ_h est imaginaire pur. Ces fonctions sont tracées sur la Fig. 4-1 pour les paramètres de SL27-1.5 déterminés à $T = 4.2$ K. La courbe rouge correspond à l'état de bord pour $q_z = 0$ et la fonction de l'état de bord à $q_z = \pm \pi/L$ est en bleu.

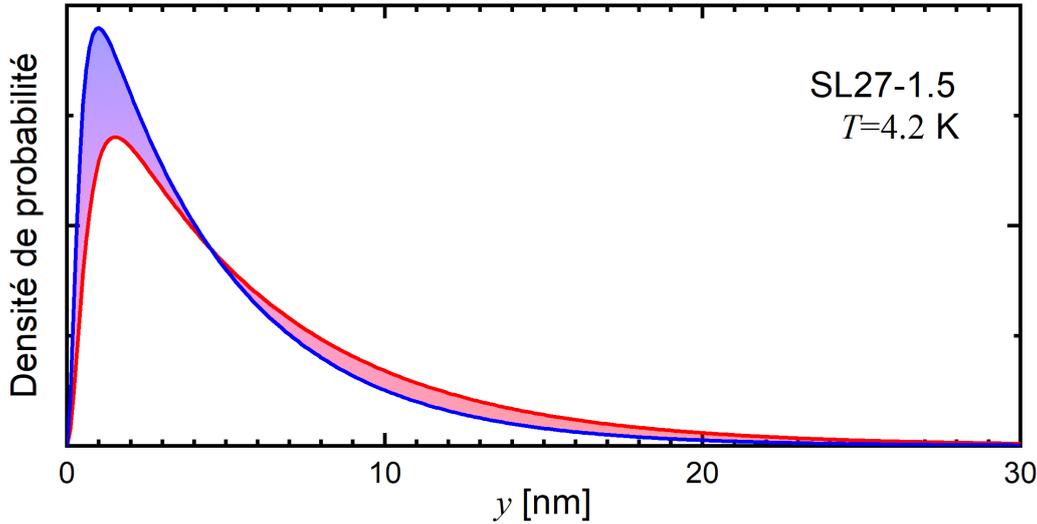


Figure 4-1. Fonctions enveloppes des états de bord pour $q_z = 0$ (rouge) et $q_z = \pm \pi/L$ (bleu) dans le superréseau SL27-1.5 à $T = 4.2$ K. La zone colorée correspond à tous les états de bord pour $q_z \in]0; \pi/L[$.

Les deux seuls paramètres qui dépendent de q_z sont δ et C . Le paramètre δ est donné par l'extrapolation des transitions magnéto-optiques. 2δ vaut 47 meV à $q_z = 0$ et 70 meV pour $q_z = \pm \pi/L$. Le paramètre C évolue continument de -0.95 à -0.58 lorsque q_z passe de 0 à π/L (voir Fig. 3-20(a)). Les états de bord pour $q_z \in]0; \pi/L[$ ont des fonctions enveloppes intermédiaires entre celles obtenues $q_z = 0$ et celles pour $q_z = \pm \pi/L$. Ceci est représenté par la zone colorée entre les courbes bleues et rouges de la Fig. 4-1. On remarque que malgré un mélange de symétrie plus important à $q_z = \pm \pi/L$, la fonction est d'avantage localisée au bord car δ est plus grand. Les longueurs caractéristiques sont de l'ordre de 10 nm.

On doit également considérer le bloc de l'hamiltonien $H_{ETS}(k)$ qui correspond à l'autre composante de spin. En effet, on rappelle que la composante α sur L_6^+ correspond principalement au spin \uparrow mais la même composante sur L_6^- correspond principalement au spin \downarrow (voir partie I.ii du chapitre II). Dans le cas d'une hétérostructure topologique, la base dans laquelle $H_{ETS}(k)$ s'exprime peut donc s'écrire ($\chi^{(ETS')} \downarrow$; $\chi^{(ETS)} \downarrow$; $\chi^{(ETS')} \uparrow$; $\chi^{(ETS)} \uparrow$). Les deux blocs aboutissent à la même description d'état de bord.

Chaque état de bord, avec la dégénérescence de spin, contribue pour $2e^2/h$ à la conductance du système. Pour trouver la conductance totale dans un superréseau ayant une dispersion quasi-3D, il suffit de sommer sur q_z la conductance de chaque état de bord.⁹⁶ La conductance totale est donc :

$$\frac{2e^2}{h} \int_{-\frac{\pi}{L}}^{+\frac{\pi}{L}} \frac{dq_z}{2\pi} = \frac{2e^2}{h} \frac{1}{L}$$

Cette conductance est celle d'un effet Hall de spin non quantifié, car elle dépend de l'épaisseur de la période du superréseau L . De tels canaux de bord seraient très intéressants à observer et à caractériser par l'expérience. Pour cela, il faudrait placer le niveau de Fermi dans le gap d'hybridation, ce qui n'est pas chose aisée dans un matériau quasi-3D. L'échantillon SL27-1.5 est constitué par exemple de 20 périodes. Il est

difficile de dépléter tout le superréseau de manière homogène. C'est pourquoi il est intéressant d'étudier des superréseaux à faible valeur de N .

iv. Un cas intermédiaire : le double puits quantique

Deux puits quantique séparés par une très fine barrière sont considérés ici. Les puits sont couplés par l'effet tunnel à travers la barrière. Les paramètres associés aux puits quantiques de gauche ou de droite sont affectés d'un indice « g » ou « d » respectivement. On considère tout d'abord le problème du confinement quantique dans la direction z . Le système est résolu en posant les conditions de continuité de la fonction enveloppe ainsi que du courant de probabilité à travers les quatre interfaces (voir partie I du chapitre III). Cette résolution fait intervenir les mêmes concepts que ceux utilisés pour un puits quantique simple. La Fig. 4-2 illustre le comportement des énergies à $k_{\parallel} = 0$ des états liés du double puits en fonction de l'épaisseur des puits avec $d_{QWg} = d_{QWd}$. Les autres paramètres utilisés sont donnés dans le Tableau I. La symétrie des différents états a été calculée et est représentée par une échelle de couleur.

Tableau I. Paramètres utilisés, lorsqu'ils ne sont pas variés, pour les calculs dans un double puits quantique.

d_{QWg} [nm]	d_{QWd} [nm]	$2\Delta_{QWg}$ [meV]	$2\Delta_{QWd}$ [meV]	d_B [nm]	$2\Delta_B$ [meV]	v_z [m/s]
25	25	-60	-60	1.5	+150	4.50×10^5

On obtient quatre états évanescents notés dans l'ordre croissant d'énergie ETS'2, ETS'1, ETS1 et ETS2. Les états ETS'1 et ETS1 tendent vers un état de gap nul pour des puits de grande épaisseur. De plus, l'ordre des symétries est trivial dans toute la gamme et ces états tendent vers un mélange de symétrie équitable lorsque $d_{QWg} = d_{QWd} \rightarrow +\infty$. Ils se comportent de façon très similaire aux états évanescents d'un puits simple. A l'opposé, les états ETS'2 et ETS2 se comportent comme les états d'un superréseau pour un q_z donné. En effet, au-delà d'une certaine épaisseur de puits, les symétries de ETS'2 et ETS2 sont inversées.

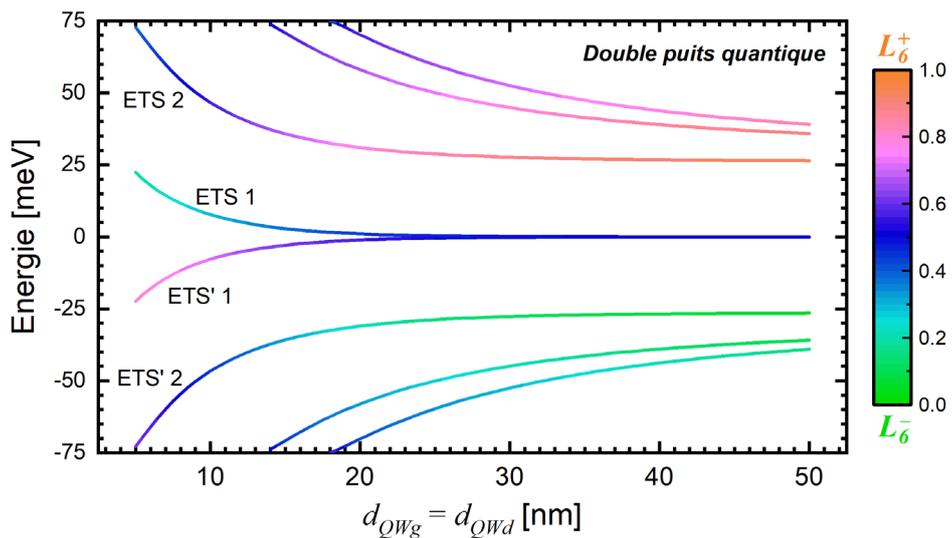


Figure 4-2. Variation des énergies à $k_{\parallel} = 0$ des états liés d'un double puits quantique en fonction des épaisseurs identiques des deux puits. Les quatre états évanescents obtenus sont notés ETS'2, ETS'1, ETS1 et ETS2. La symétrie des états est représentée par une échelle de couleur légendée à droite. Les paramètres utilisés pour ces calculs sont donnés dans le Tableau I.

Dans le but de mieux comprendre l'origine de ces états, la fonction $|F_+|^2$ des deux états de conduction ETS1 et ETS2 est tracée sur la Fig. 4-3. Les paramètres utilisés sont donnés par le Tableau I. La densité de probabilité de ETS1 est localisée sur les interfaces extérieures du double puits alors que celle de ETS2 est maximale sur les interfaces intérieures.

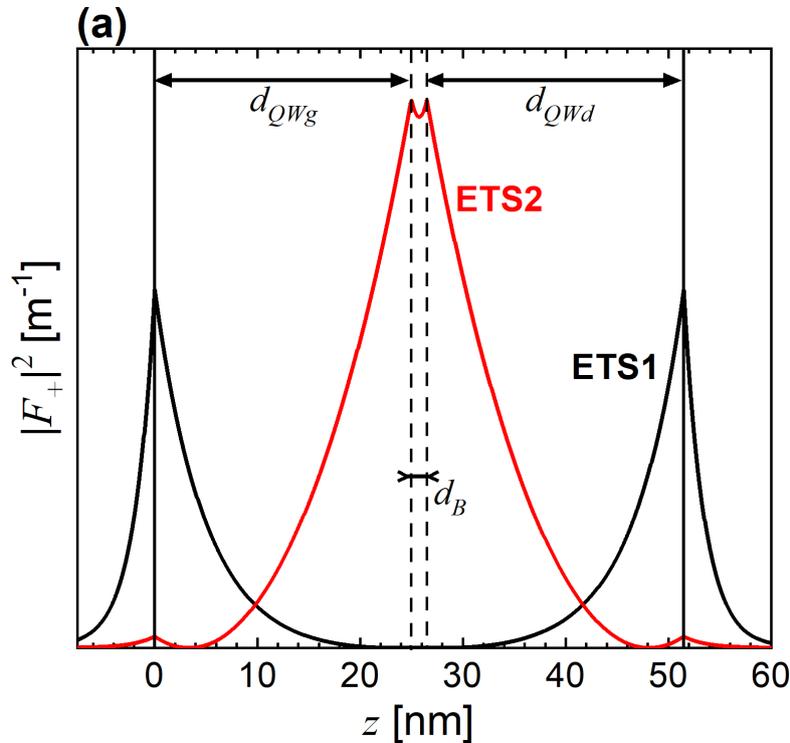


Figure 4-3. Carré de l'amplitude de la composante F_+ de ETS1 en noir et de ETS2 en rouge. Les paramètres utilisés sont ceux du Tableau I. Les interfaces extérieures (intérieures) sont marquées par des traits verticaux continus (pointillés).

Au regard de ces résultats, on peut déduire le comportement d'une hétérostructure de N périodes. Le couplage tunnel entre les puits induit l'émergence de deux minibandes. Elles sont issues des états ETS'2 et ETS2 et on retrouve donc les minibandes topologiques observées au chapitre III. Ces états sont délocalisés dans toute l'hétérostructure avec un pic de densité de probabilité à chaque interface, et ils sont de symétrie inversée. On a donc fabriqué un isolant topologique cristallin quasi-3D.⁹⁶ Cela implique qu'un état topologique de surface est attendu : ce sont ETS'1 et ETS1 qui sont localisés au bord de l'hétérostructure. Ces états émanent directement du caractère topologique de l'hétérostructure. Ils n'apparaissent pas au chapitre III car le théorème de Bloch modélise un nombre de périodes infini. Par ailleurs, aucune signature magnéto-optique de ces états n'a été observée dans le chapitre précédent. Ils ont été observés en ARPES sur des superréseaux $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{In}_x\text{Bi}_{2-x}\text{Se}_3$.⁹⁹

On peut montrer le lien entre notre modèle et celui de Su-Schrieffer-Heeger (SSH).^{99,100} Dans ce dernier, on considère une succession d'ETS, chacun d'entre eux étant localisé sur une interface. Ils forment donc une chaîne à une dimension d'états électroniques, couplés à leurs premiers voisins par τ_{QW} et τ_B selon que l'interaction est dans le puits ou dans la barrière. Si les intégrales de recouvrement vérifient $|\tau_{QW}/\tau_B| < 1$, alors la chaîne 1D est topologique et admet des états topologiques à ses extrémités, c'est-à-dire localisés sur la première et la dernière interface. Dans notre modèle, les états ETS'2 et ETS2 assurent le caractère non-trivial du superréseau et les états topologiques à ses extrémités sont ETS'1 et ETS1.

En résumé, l'effet Hall de spin est obtenu dans les hétérostructures à base de PbSnSe, à condition d'avoir un couplage entre les puits par effet tunnel. Il n'est pas quantifié et dépend de l'épaisseur de la période que l'on fabrique. On peut imaginer que les $N - 2$ périodes au centre du système admettent des états de bord, qui participeraient à l'effet Hall de spin. Les deux puits en début et fin du superréseau n'admettent pas d'état de bord à cause de la présence de ETS'1 et ETS1.

II. Effet d'un dopage de PbSnSe par des ions magnétiques

Un dopage de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ par des ions magnétiques peut considérablement augmenter la diversité des phases de la matière que l'on peut obtenir à partir de ce matériau. Une impureté magnétique lève la dégénérescence de Kramers. Le comportement des bandes $L_6^\pm\alpha$ n'est donc plus le même que celui de $L_6^\pm\beta$. Ce comportement est détaillé ici et aboutit à l'obtention de fermions de Weyl ou à l'effet Hall quantique anormal. Deux types d'impuretés magnétiques sont considérés : les ions Mn^{2+} et les ions Eu^{2+} . Ce sont des composants paramagnétiques, dont les spécificités sont décrites dans le paragraphe suivant.

i. Dopage magnétique de PbSnSe massif

a) Ions paramagnétiques dilués dans un solide

Les structures électroniques respectives des ions Mn^{2+} et Eu^{2+} sont $[\text{Ar}]4s^03d^5$ et $[\text{Xe}]6s^04f^7$, ce qui leur confère les moments orbitaux $J = 5/2$ et $J = 7/2$ respectivement. Le moment cinétique de ces deux ions est purement dû au spin des électrons des couches d et f respectivement. Le moment magnétique s'écrit $-m_j g \mu_B$, où g est le facteur de Landé, $\mu_B = e\hbar/2m_0$ le magnéton de Bohr et m_j le nombre quantique magnétique qui peut prendre les $(2J + 1)$ valeurs : $-J, -(J - 1), \dots, +J$. Lorsque l'ion est placé au sein d'un champ magnétique l'énergie d'interaction entre le moment de l'ion et le champ est $E_{m_j} = -\boldsymbol{\mu}_B \cdot \mathbf{B} = m_j g \mu_B B$. La probabilité de trouver l'ion dans l'état associé à la valeur m_j est donné par :

$$P_{m_j} = \frac{\exp\left(-\frac{E_{m_j}}{k_B T}\right)}{\sum_{m_j=-J}^J \exp\left(-\frac{E_{m_j}}{k_B T}\right)}$$

Cette statistique décrit la tendance du moment à s'aligner selon la direction du champ pour minimiser son énergie. La température, au contraire, tend à désordonner le système. Si l'on considère N ions magnétiques par unité de volume dans un champ magnétique, on définit l'aimantation M comme la résultante globale de l'alignement des moments de l'ensemble des ions. On a donc :

$$M = N \sum_{m_j=-J}^J E_{m_j} P_{m_j} = Ng\mu_B J \left(\frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{2J+1}{2J} x\right) - \frac{1}{2J} \coth\left(\frac{x}{2J}\right) \right) = Ng\mu_B J B_J(x)$$

où l'on a défini $B_J(x)$ la fonction de Brillouin associée au moment cinétique total J et $x = (g\mu_B J B)/(k_B T)$. Cette fonction est tracée pour $J = 5/2$ sur la Fig. 4-4(a) pour plusieurs températures. Elle décrit la variation de l'aimantation des ions paramagnétiques Mn^{2+} avec le champ magnétique et la température. Au-delà d'un certain champ, l'aimantation sature à $M_{max} = Ng\mu_B J$.

Pour illustrer l'effet d'un dopage magnétique, un échantillon de PbSe a été épitaxié sur un substrat BaF_2 orienté selon $[111]$. Un léger dopage au manganèse a été introduit.⁶¹ Les mesures de magnétométrie sont présentées sur la Fig. 4-4(b). Elles ont été effectuées à $T = 5$ K en utilisant le SQUID de l'Université Notre-Dame. Le principe est de mesurer le courant de phase dans deux boucles Josephson en parallèle dans un circuit supraconducteur ; ce courant est très sensible au flux magnétique traversant la boucle. On a alors accès à l'aimantation des ions Mn^{2+} dans un champ magnétique externe. Les courbes rouges et vertes sont deux ajustements de $M(B)$ pour $T = 5$ K en utilisant la formule précédemment établie : $M(B) = M_{max} B_J(x)$. Les

deux couples de paramètres utilisés sont ($M_{max} = 2.8 \times 10^{-5}$ emu ; $x = 1.B$) pour la courbe rouge et ($M_{max} = 3.1 \times 10^{-5}$ emu ; $x = 0.7B$) pour la courbe verte. Ces ajustements nous permettent de déterminer très précisément les valeurs de g et N du matériau. Ainsi, on obtient :

$$\begin{cases} 2 < g < 3 \\ N = (1.25 \pm 0.05) \times 10^{20} \text{ cm}^{-3} \end{cases}$$

Ce qui donne un rapport stœchiométrique entre Mn et Pb de $w = 0.75 \pm 0.05$ % dans le matériau étudié.

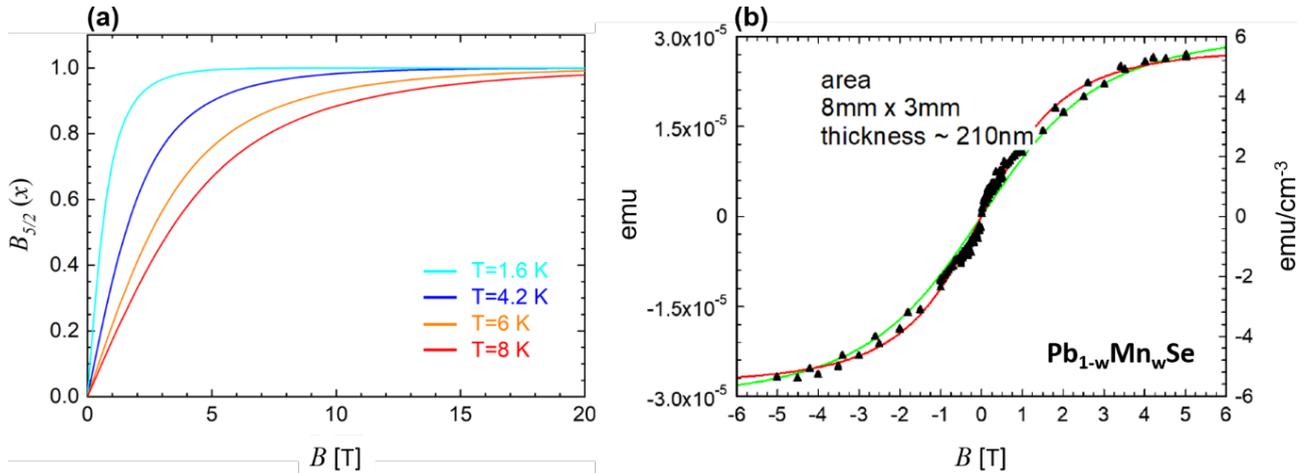


Figure 4-4. (a) Variation en champ magnétique de la fonction de Brillouin des ions Mn^{2+} pour quatre températures différentes. (b) Mesure de magnétométrie d'un échantillon de $Pb_{1-w}Mn_wSe$ à 5 K. Les dimensions de l'échantillon sont notées sur le panel. Les courbes rouges et vertes représentent deux ajustements possibles de $M(B)$.

b) Interaction d'échange dans la théorie $k.p$

Les porteurs libres sont décrits par l'hamiltonien de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ déjà évoqué au chapitre II. A celui-ci, il faut ajouter l'interaction d'échange qui décrit l'effet de couplage entre le moment de spin d'un ion Mn^{2+} ou Eu^{2+} et un électron du solide.^{61,101} Elle s'écrit :

$$H_{ech} = t\mathbf{S} \cdot \boldsymbol{\sigma}$$

t est l'intégrale d'échange, \mathbf{S} est l'opérateur de spin de l'ion magnétique et $\boldsymbol{\sigma}$ sont les matrices de Pauli (opérateur de spin du porteur). Comme nous l'avons vu précédemment, le spin de l'ion paramagnétique s'aligne en moyenne avec le champ externe. Sans perte de généralité, on peut prendre sa direction dans le plan xz . On pose θ l'angle entre la direction du champ et l'axe $z//[111]$. L'hamiltonien d'échange s'écrit alors :

$$H_{ech} = tJ(\sin \theta \sigma_x + \cos \theta \sigma_z)$$

On doit maintenant l'exprimer dans la base des fonctions de Bloch de l'hamiltonien $k.p$ décrivant les porteurs libres, à savoir $L_6^+\alpha$; $L_6^+\beta$; $L_6^-\alpha$; $L_6^-\beta$. Pour cela, on pose :^{61,83}

$$\begin{cases} I_1 = (1/V_0)\cos^2\theta^+\langle R|t|R\rangle \\ I_2 = (1/V_0)\sin^2\theta^+\langle S_+|t|S_+\rangle \\ U_1 = (1/V_0)\sin^2\theta^-\langle Z|t|Z\rangle \\ U_2 = (1/V_0)\cos^2\theta^-\langle X_+|t|X_+\rangle \end{cases}$$

où V_0 est le volume de la maille élémentaire et les intégrales de recouvrement parcourent ce volume. On appelle I_1 et I_2 (U_1 et U_2) les paramètres d'échanges de la bande de valence (conduction). La matrice de l'interaction d'échange s'écrit donc, avec $I = I_1 - I_2$ et $U = U_1 - U_2$:

$$H_{\text{éch}} = J \begin{pmatrix} I \cos \theta & -I_1 \sin \theta & 0 & 0 \\ -I_1 \sin \theta & -I \cos \theta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & U \cos \theta & U_1 \sin \theta \\ 0 & 0 & U_1 \sin \theta & -U \cos \theta \end{pmatrix}$$

Pour rendre compte de l'interaction entre tous les porteurs et tous les moments de spin localisés, nous devons encore réaliser quelques modifications. Nous avons vu dans la partie précédente que les ions sont paramagnétiques et donc que la moyenne thermodynamique de leur aimantation est décrite par la fonction de Brillouin. Celle-ci est ici légèrement modifiée pour prendre en compte la petite interaction antiferromagnétique entre les moments de spin localisés. Ce phénomène se traduit par un paramètre supplémentaire T_0 qui est très proche de 0 si les ions magnétiques sont assez dilués. La matrice d'échange est finalement la même que la précédente si l'on remplace J par :^{61,101,102}

$$S^* = \frac{1}{2} S_0 w B_J \left(\frac{g J \mu_B B}{k_B (T + T_0)} \right)$$

w est la composition en ions magnétiques de l'alliage. L'interaction d'échange dans un semi-conducteur magnétique dilué est alors entièrement décrite. Pour résoudre le problème dans son ensemble, il suffit d'ajouter la matrice $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ des porteurs à la matrice d'interaction d'échange. Dans l'expérience, le champ sera toujours aligné avec l'axe $z//[111]$ et donc $\theta = 0^\circ$. L'hamiltonien s'écrit :

$$\mathcal{H}_{\text{mag}} = \begin{pmatrix} -\Delta - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + IS^* & 0 & \hbar v_z k_z & \hbar v_{\parallel} k_- \\ 0 & -\Delta - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} - IS^* & \hbar v_{\parallel} k_+ & -\hbar v_z k_z \\ \hbar v_z k_z & \hbar v_{\parallel} k_- & \Delta + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + US^* & 0 \\ \hbar v_{\parallel} k_+ & -\hbar v_z k_z & 0 & \Delta + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} - US^* \end{pmatrix}$$

L'interaction d'échange perturbe le spin des porteurs libres et peut être vu comme une augmentation de l'énergie de Zeeman des porteurs. Il est alors très simple de calculer la dispersion ou les niveaux de Landau d'un tel système. Au regard du chapitre II, les niveaux de Landau à $k_z = 0$ s'écrivent :

$$\begin{cases} E_n^{L_6^{\bar{\beta}}, L_6^{\alpha}} = \left(\hbar \tilde{\omega} + \frac{S^*(I-U)}{2} \right) \pm \sqrt{\left(\Delta + \hbar \tilde{\omega} n - \frac{S^*(I+U)}{2} \right)^2 + 2e\hbar v_{\parallel}^2 B n} \\ E_n^{L_6^{\alpha}, L_6^{\bar{\beta}}} = -\left(\hbar \tilde{\omega} + \frac{S^*(I-U)}{2} \right) \pm \sqrt{\left(\Delta + \hbar \tilde{\omega} n + \frac{S^*(I+U)}{2} \right)^2 + 2e\hbar v_{\parallel}^2 B n} \end{cases}$$

Ils sont représentés sur la Fig. 4-5 en utilisant les paramètres donnés dans le Tableau II. Les niveaux de Landau correspondant au bloc sur les composantes $L_6^{\bar{\beta}}$ et L_6^{α} sont en rouge et ceux solutions du bloc L_6^{α} et $L_6^{\bar{\beta}}$ sont en bleu. Pour rappel, les transitions magnéto-optiques en configuration de Faraday ont lieu entre deux niveaux du même bloc (et donc de la même couleur). Les niveaux $n = 0$ sont :

$$\begin{cases} E_0^{L_6^{\bar{\beta}}} = \Delta + \hbar \tilde{\omega} - S^* U \\ E_0^{L_6^{\alpha}} = -\Delta - \hbar \tilde{\omega} - S^* I \end{cases}$$

On remarque que le dopage magnétique brise la symétrie électron-trou du système (voir Fig. 4-5). De ce fait, un échantillon de type p ne présentera pas les mêmes transitions magnéto-optiques qu'un échantillon de type n .

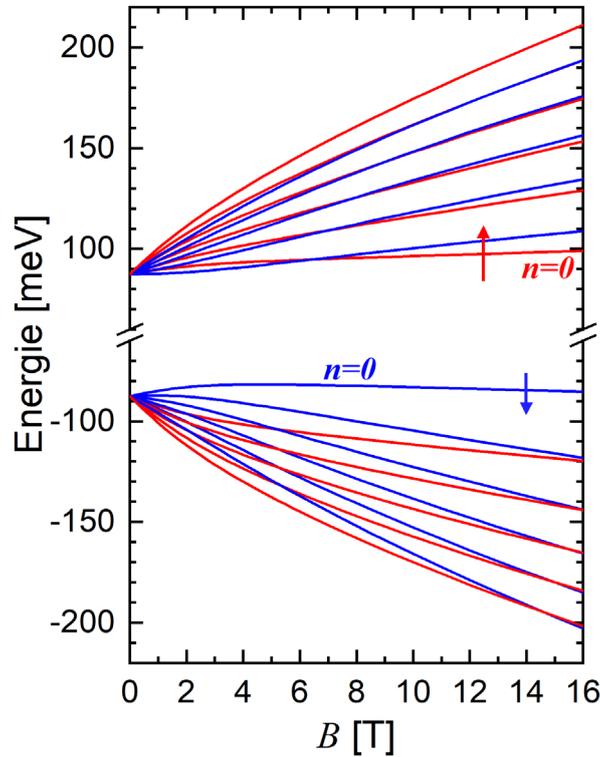


Figure 4-5. Niveaux de Landau de $\text{Pb}_{1-w}\text{Mn}_w\text{Se}$ pour les paramètres du Tableau II. Les deux spins sont représentés par les couleurs bleues et rouges.

c) Pris en compte de la non-sphéricité des bandes

\mathcal{H}_{mag} est construit en plaçant l'axe z selon la direction $[111]$. Cette direction est également l'axe majeur de la vallée longitudinale donc cet hamiltonien décrit parfaitement les porteurs de cette vallée. Le grand axe de l'ellipsoïde de la vallée oblique n'est pas aligné avec z et on doit donc tourner le repère pour les aligner. On a vu au chapitre II que l'hamiltonien des porteurs libres ne change pas de forme après une telle transformation.⁶⁹ Il suffit de prendre des valeurs différentes pour les paramètres v_z , v_{\parallel} , et \tilde{m} . Avant d'y additionner l'hamiltonien décrivant l'interaction d'échange, il faut opérer la même transformation à $H_{éch}$ que celle qui a été effectuée pour l'hamiltonien des porteurs libres. On a donc pour les vallées obliques, après rotation et changement d'échelle :⁶¹

$$H_{éch} = S^* \begin{pmatrix} I \cos \theta \cos \gamma - I_1 \sin \theta \sin \gamma & -I \cos \theta \sin \gamma - I_1 \sin \theta \cos \gamma & 0 & 0 \\ -I \cos \theta \sin \gamma - I_1 \sin \theta \cos \gamma & -I \cos \theta \cos \gamma + I_1 \sin \theta \sin \gamma & 0 & 0 \\ 0 & 0 & U \cos \theta \cos \gamma + U_1 \sin \theta \sin \gamma & -U \cos \theta \sin \gamma + U_1 \sin \theta \cos \gamma \\ 0 & 0 & -U \cos \theta \sin \gamma + U_1 \sin \theta \cos \gamma & -U \cos \theta \cos \gamma - U_1 \sin \theta \sin \gamma \end{pmatrix}$$

où l'on a posé $\sin \gamma = v_z \sin \theta_{obl} / \sqrt{v_{\parallel}^2 \cos^2 \theta_{obl} + v_z^2 \sin^2 \theta_{obl}}$. Pour les échantillons orientés (111) , $\theta_{obl} = 70.5^\circ$ et donc, en rappelant $K = v_{\parallel} / v_z$ le facteur d'anisotropie :

$$\sin \gamma = \sqrt{\frac{1}{1 + (K^2/8)}}$$

Dans les conditions de nos expériences, on a $\theta = 0^\circ$ et donc :

$$H_{\text{écl}} = S^* \begin{pmatrix} I \cos \gamma & -I \sin \gamma & 0 & 0 \\ -I \sin \gamma & -I \cos \gamma & 0 & 0 \\ 0 & 0 & U \cos \gamma & -U \sin \gamma \\ 0 & 0 & -U \sin \gamma & -U \cos \gamma \end{pmatrix}$$

La présence de termes en dehors de la diagonale complique la résolution du problème et notamment le calcul des niveaux de Landau. En effet, ces termes empêchent la projection de l'hamiltonien sur un vecteur de base du type $(|n-1\rangle; |n\rangle; |n-1\rangle; |n\rangle)$ et on doit appliquer la méthode détaillée dans la partie II.iii.b du chapitre III. Si on écrit la fonction d'onde comme :

$$|\phi\rangle = \sum_{n=0}^{+\infty} \sum_{p=1}^4 \alpha_{n,p} e^{ik_z z} |n\rangle$$

alors on obtient un système de quatre équations couplées :

$$\begin{cases} [-\Delta - \zeta n + IS^* \cos \gamma - E] \alpha_{n,1} - IS^* \sin \gamma \alpha_{n,2} + \eta \sqrt{n+1} \alpha_{n+1,4} = 0 \\ [-\Delta - \zeta(n+1) - IS^* \cos \gamma - E] \alpha_{n,2} - IS^* \sin \gamma \alpha_{n,1} + \eta \sqrt{n} \alpha_{n-1,3} = 0 \\ [\Delta + \zeta n + US^* \cos \gamma - E] \alpha_{n,3} - US^* \sin \gamma \alpha_{n,4} + \eta \sqrt{n+1} \alpha_{n+1,2} = 0 \\ [\Delta + \zeta(n+1) - US^* \cos \gamma - E] \alpha_{n,4} - US^* \sin \gamma \alpha_{n,3} + \eta \sqrt{n} \alpha_{n-1,1} = 0 \end{cases}$$

où l'on a posé $\eta = v_{\parallel} \sqrt{2e\hbar B}$ et $\zeta = \hbar e B / \tilde{m}$. La résolution de ce problème pour $0 < n < N$ avec N assez grand pour assurer la convergence mène aux niveaux de Landau de la vallée oblique avec une aimantation parallèle à l'axe z , comme montré sur la Fig. 4-6.

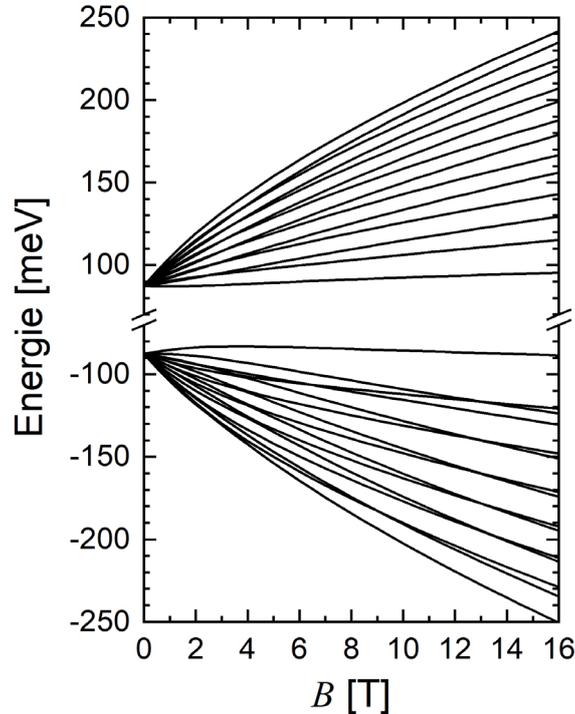


Figure 4-6. Niveaux de Landau de la vallée oblique de $\text{Pb}_{1-w}\text{Mn}_w\text{Se}$ pour les paramètres du Tableau II.

Le but de cette partie étant de montrer les possibilités d'obtenir différents effets pseudo-relativistes (fermions de Weyl, effet Hall quantique anormal, ...) grâce à un dopage magnétique, il a été choisi de ne considérer que

la vallée longitudinale pour laquelle le problème est beaucoup plus simple. Nous pouvons en première approximation considérer qu'une aimantation selon z pour les vallées obliques est équivalente à une aimantation dans le plan xy pour la vallée longitudinale. Ainsi, le problème sur les vallées obliques est équivalent au problème de la vallée longitudinale avec une aimantation tiltée de 90° .

d) Détermination magnéto-optique des paramètres d'échange

Un film mince (~ 200 nm d'épaisseur) de $\text{Pb}_{1-w}\text{Mn}_w\text{Se}$, épitaxié par MBE sur BaF_2 à l'Université Notre-Dame, a été mesuré en magnéto-optique. Les mesures de magnétométrie sur cet échantillon ont été présentées sur la Fig. 4-4(b). On en a déduit $w = 0.0075$. Les spectres magnéto-optiques à 4.2 K sont montrés sur la Fig. 4-7(a) et la comparaison théorie-expérience sur la Fig. 4-7(b). Les minima repérés par des flèches sur la Fig. 4-7(a) sont reportés par des points sur la Fig. 4-7(b). Les lignes représentent les transitions entre niveaux de Landau calculées à partir du modèle détaillé plus haut dans le paragraphe II.i.b.

Tableau II. Paramètres utilisés pour le calcul des niveaux de Landau menant au meilleur accord théorie-expérience.

2Δ [meV]	v_{\parallel} [m/s]	\tilde{m}/m_0	w [%]	I [meV]	U [meV]	S_0	T_0 [K]
+175	5.00×10^5	0.28	0.75	-900	-500	2.6	0

Les paramètres menant au meilleur accord sont répertoriés dans le Tableau II. Les paramètres v_{\parallel} et \tilde{m} correspondent à ceux déterminés pour PbSe (voir chapitre II). En revanche, le gap de $\text{Pb}_{1-w}\text{Mn}_w\text{Se}$ est trouvé plus grand que celui de PbSe. L'expérience nous donne $2\Delta = +175$ meV. Ceci est dû à l'effet orbital des ions Mn^{2+} . De la même manière qu'un alliage $\text{Pb}_{1-y}\text{Eu}_y\text{Se}$ possède un gap plus grand que PbSe (voir partie I.i.a du chapitre III), un ajout de manganèse ouvre le gap de PbSe de quelques dizaines de meV par pourcent de Mn.⁶¹

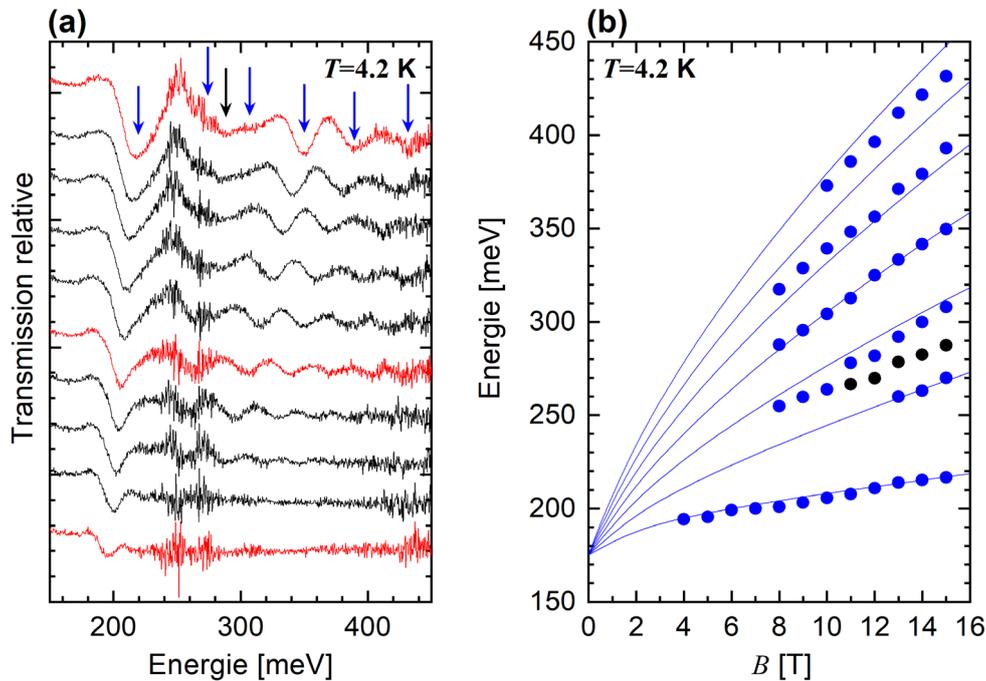


Figure 4-7. (a) Spectres magnéto-optiques de $\text{Pb}_{0.9925}\text{Mn}_{0.0075}\text{Se}$ à $T = 4.2$ K, de 5 à 15 T par pas de 1 T. Les multiples de 5 T sont en rouge. Les flèches indiquent les minima d'absorption à 15 T. (b) Accord théorie-expérience correspondant. Les lignes sont les transitions entre niveaux de Landau calculées avec les paramètres du Tableau II. Les points correspondent aux minima d'absorption repérés sur le panel (a).

L'ajustement de la transition fondamentale montre que l'échantillon est de type p en accord avec les mesures d'effet Hall. Une seule vallée est considérée dans le calcul. On peut déceler la présence du deuxième type de vallée en observant le second minima d'absorption (vers 300 meV à 15 T) : il est détriplé. Ainsi, les flèches et les points noirs sur la Fig. 4-7(b) correspondent à l'autre type de vallée. On peut attribuer la piètre résolution des deux types de vallées à la faible épaisseur de l'échantillon (~ 200 nm), et donc au faible signal d'absorption mesuré.

Les paramètres 2Δ , $v_{||}$ et \tilde{m} sont déterminés avec la même précision que dans le chapitre II, soit respectivement ± 2.5 meV, $\pm 0.05 \times 10^5$ m/s et $\pm 0.08 m_0$. Les paramètres w et S_0 sont déduits des mesures de magnétisation (voir Fig. 4-4(b)) avec $S_0 = 2.6 \pm 0.5$. Des valeurs très similaires de S_0 sont trouvées dans la littérature.^{61,103,104} Les autres paramètres (I , U et T_0) sont déterminés avec une importante marge d'erreur. Pour avoir une idée plus précise de leur valeur, des expériences en fonction de la température ont été effectuées.

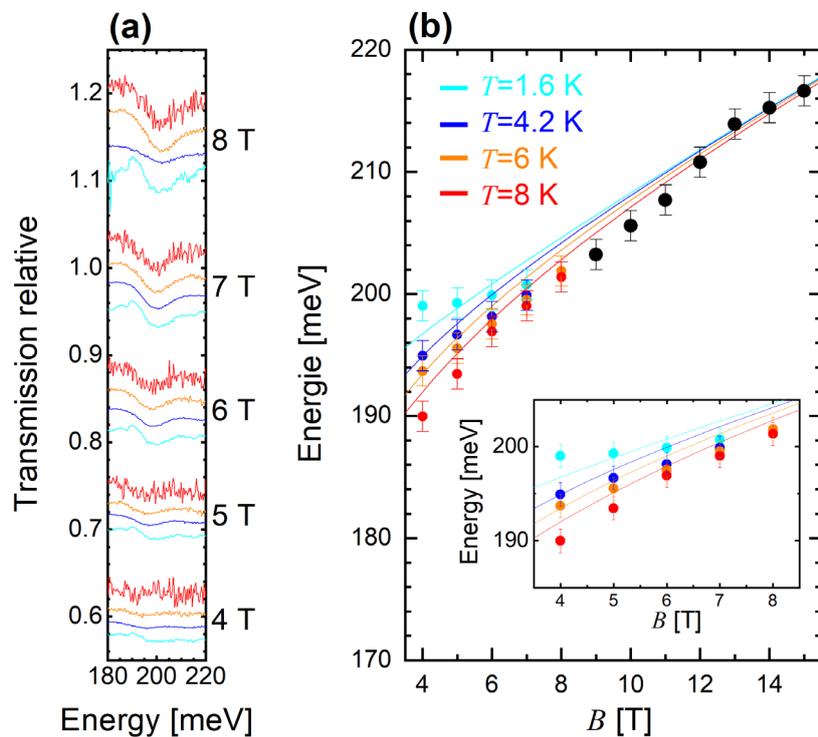


Figure 4-8. (a) Spectres magnéto-optiques à $4 < B < 8$ T pour quatre températures différentes : $T = 1.6$ K (en bleu clair), $T = 4.2$ K (en bleu), $T = 6$ K (en orange), $T = 8$ K (en rouge). Un zoom sur le minimum d'absorption correspondant à la transition fondamentale a été réalisé. (b) Ajustement du calcul de la transition fondamentale avec le modèle (lignes) comparé aux résultats expérimentaux (points) provenant de (a). Les points de couleur correspondent aux différentes températures mesurées et les points noirs sont communs à toutes les températures. Le graphe inséré est un zoom à bas champ magnétique.

Les spectres obtenus entre 4 et 8 T pour les quatre températures : $T = 1.6$ K, $T = 4.2$ K, $T = 6$ K et $T = 8$ K sont affichés sur la Fig. 4-8(a). Ils sont centrés sur l'absorption correspondant à la transition fondamentale. L'accord entre ces résultats expérimentaux et le modèle détaillé plus haut est donné sur la Fig. 4-8(b). Pour $B > 8$ T, l'énergie d'absorption est la même pour les quatre températures. A bas champ magnétique, on observe un décalage conséquent de l'énergie de la transition 0-1 en fonction de la température. Plus la température est faible et plus l'énergie est élevée. Cet effet est d'autant plus amplifié que le champ est faible.

Ce phénomène est la démonstration directe de l'interaction d'échange. En effet, pour $B > 8$ T, la fonction de Brillouin est quasi-identique pour les quatre températures mesurées (voir Fig. 4-4(a)). En revanche, plus le champ est faible, plus la différence d'aimantation entre les températures est importante. Le système est d'autant plus ordonné que l'énergie d'activation thermique est faible, c'est-à-dire que l'aimantation sature à plus faible champ pour les basses températures. L'effet observé est directement dû à la variation de la fonction de Brillouin en fonction de la température. En augmentant celle-ci, on observe la disparition progressive de l'interaction d'échange. Cela permet de déterminer le paramètre $T_0 = 0$. Cette valeur nulle n'est pas surprenante car la teneur en manganèse du matériau est très faible. Pour cette concentration diluée, l'interaction entre les moments de spin localisés est quasi-nulle.

Enfin, ces expériences ont permis de déterminer les intégrales d'échange de la bande de valence I et de la bande de conduction U . Les valeurs sont données dans le Tableau II à ± 100 meV près. Ces valeurs déterminées sont quatre à dix fois plus grandes que celles trouvées dans la littérature.^{61,104,105} Une description plus complète de nos résultats pourrait être obtenue en tenant compte du tilt de la vallée oblique (voir partie II.i.c). En tiltant le champ par rapport à l'axe z , on pourrait en plus avoir accès aux valeurs de I_1 et U_1 . Dans la suite de ce chapitre, nous aurons besoin de ces deux paramètres et nous prendrons par extrapolation $I_1 = I$ et $U_1 = U$. Nos résultats sont encore préliminaires mais nous pouvons néanmoins nous en servir pour détailler théoriquement les effets obtenus grâce à un dopage magnétique.

Il est important de noter que les paramètres d'échange déterminés pour un dopage d'ions Eu^{2+} dans un massif de PbSnSe sont bien moindres que ceux de Mn^{2+} . I et U sont environ vingt fois plus petit dans le cas d'un dopage à l'euporium.^{61,83} L'interaction d'échange est donc de l'ordre de quelques meV à basse température et à saturation. Il est donc tout à fait justifié de ne pas avoir pris en compte cet effet dans le chapitre III, d'autant plus que l'euporium se trouve dans les barrières des hétérostructures.

e) Obtention de semi-métaux 3D dans Mn-PbSnSe

Les propriétés électroniques de Mn-PbSnSe sont décrites par un hamiltonien de type Dirac :

$$\begin{pmatrix} -\Delta - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + IS^* \cos \theta & -I_1 S^* \sin \theta & \hbar v_z k_z & \hbar v_{\parallel} k_- \\ -I_1 S^* \sin \theta & -\Delta - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} - IS^* \cos \theta & \hbar v_{\parallel} k_+ & -\hbar v_z k_z \\ \hbar v_z k_z & \hbar v_{\parallel} k_- & \Delta + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} + US^* \cos \theta & U_1 S^* \sin \theta \\ \hbar v_{\parallel} k_+ & -\hbar v_z k_z & U_1 S^* \sin \theta & \Delta + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2\tilde{m}} - US^* \cos \theta \end{pmatrix}$$

Les paramètres utilisés pour le résoudre dans trois cas différents sont donnés dans le Tableau III. Si celui-ci est résolu pour $\Delta = 0$ et sans dopage magnétique, on obtient un semi-métal de Dirac (SMD) qui possède la structure de bande d'un graphène 3D montrée sur la Fig. 4-9(a). De nombreuses propriétés électroniques et optiques du graphène devraient être retrouvées.^{66,67} De plus, le SMD pourrait permettre avec l'application simultanée d'un champ magnétique et électrique de mettre en évidence l'anomalie chirale.

Un dopage magnétique permet de perturber l'équation de Dirac, en brisant la symétrie par renversement du temps.⁴¹ De ce fait, alors que le nœud de Dirac dans un SMD est quatre fois dégénéré, une aimantation selon z ($\theta = 0^\circ$) permet d'obtenir deux nœuds de Dirac distincts et doublement dégénérés. Les croisements de bandes sont séparés deux à deux dans l'espace des \mathbf{k} . On obtient alors deux nœuds de Weyl qui définissent un semi-métal de Weyl (SMW), comme le montre la Fig. 4-9(b). Des fermions de Weyl présentent une symétrie particule/antiparticule comme pour les fermions de Dirac, mais leur chiralité est bien définie. La présence de

ce type de fermions induit l'apparition de nombreuses propriétés intéressantes comme l'émergence d'un arc de Fermi, de l'anomalie chirale, de l'effet Hall anormal, ou encore de l'axion (voir chapitre I).⁴¹ Pour obtenir un SMW, il faut prendre un alliage $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$, avec une aimantation selon z , qui vérifie $2|\Delta| < |IS^*| + |US^*|$. Le signe de I et de U n'importe pas, il ne change que la chiralité des nœuds de Weyl. Pour déterminer une valeur de S^* , on considère un matériau $\text{Mn-Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ avec $w \sim 1\%$ à $B = 1\text{ T}$ et $T = 1.6\text{ K}$. A si faible champ, il n'y a pas de quantification de Landau et l'aimantation des ions paramagnétiques est assez importante (voir Fig. 4-4(a)). Les paramètres I et U sont pris de la littérature et les paramètres S_0 et T_0 sont ceux déterminés par l'expérience (voir Tableau II). On obtient alors la valeur de S^* donnée dans le Tableau III.

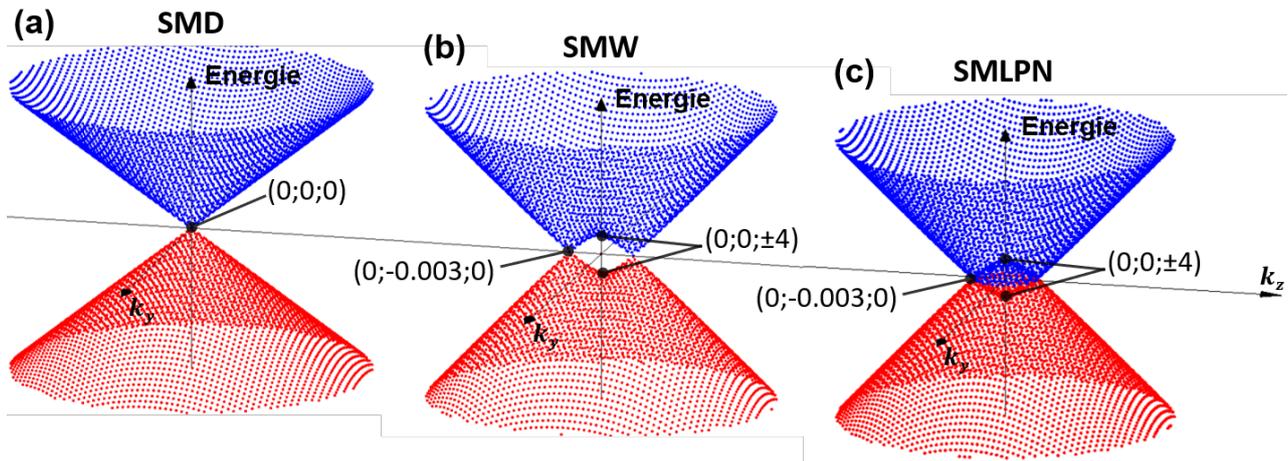


Figure 4-9. Dispersion des bandes d'intérêts de $\text{Pb}_{1-w-x}\text{Sn}_x\text{Mn}_w\text{Se}$ massif dans les conditions d'un semi-métal de Dirac (a), de Weyl (b) et à ligne de points nodaux (c). Les paramètres utilisés dans chacun des cas sont listés dans le Tableau III. Les coordonnées de quelques points importants sont précisées en nm^{-1} pour les vecteurs d'ondes et en meV pour les énergies.

On peut également considérer un dopage magnétique dont l'aimantation est orientée dans le plan xy ($\theta = 90^\circ$). On obtient alors la dispersion présentée sur la Fig. 4-9(c). Le croisement de bandes est doublement dégénéré et se tient sur toute une ligne circulaire. Cette phase de la matière est appelée semi-métal à lignes de points nodaux (SMLPN).^{41,97} Elle n'est obtenue que si $I_1 U_1 > 0$. C'est le cas pour un dopage au manganèse par exemple, mais pas pour un dopage à l'euprène. Dans cette phase, un état de bord non-dispersif (plat) est prédit théoriquement. Une densité d'état divergente est donc attendue, ce qui en fait sa particularité.⁹⁷

Tableau III. Paramètres utilisés pour le calcul des trois différentes dispersions montrées sur la Fig. 4-9. « N.A. » veut dire « Non-Applicable ».

Paramètres	SMD	SMW	SMLPN
2Δ [meV]	0	0	0
$v_z = v_{ }$ [m/s]	4.50×10^5	4.50×10^5	4.50×10^5
\tilde{m}/m_0	0.28	0.28	0.28
θ [°]	N.A.	0	90
S^*	0	0.01	0.01

En résumé, une grande diversité de phases de la matière est accessible avec un matériau $\text{Mn-Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$. Cette diversité peut encore être élargie en considérant un confinement quantique.

ii. Hétérostructures à base de Mn-PbSnSe

Dans cette partie, nous allons étudier l'effet d'un dopage d'ions paramagnétiques dans des puits quantiques puis des superréseaux $Mn_w-Pb_{1-x-w}Sn_xSe/Pb_{1-y}Eu_ySe$. L'effet d'interaction d'échange avec les porteurs les ions Eu^{2+} dans la barrière peut être négligé. Le matériau barrière peut aussi être remplacé par un alliage non-magnétique comme $Pb_{1-y}Sr_ySe$ qui donne également des hétérostructures de bonne qualité. Les hétérostructures $Pb_{1-x-w}Sn_xSe/Pb_{1-y}Sr_ySe$ ont un alignement de bandes très proches de celui de $Pb_{1-x-w}Sn_xSe/Pb_{1-y}Eu_ySe$ et la modélisation est donc similaire.

a) Effet Hall quantique anormal dans un puits quantique

Nous considérons un puits quantique simple de $Mn-Pb_{1-x}Sn_xSe$. Un faible champ magnétique externe ($B < 1$ T) permet d'aligner les moments de spin de Mn^{2+} selon l'axe $z//[111]$ sans que la quantification de Landau intervienne. L'introduction des paramètres d'échange dans l'hamiltonien des porteurs libres ne changent pas de la partie précédente. Le problème sera résolu pour la vallée longitudinale dont l'hamiltonien \mathcal{H}_{mag} doit être modifié en substituant k_z par $-i\partial/\partial z$. On peut résoudre ce problème exactement comme il a été fait dans le chapitre III. Cependant, il est préférable de traiter les termes d'échanges en perturbation. En effet, ils sont petits (de l'ordre de quelques meV) et n'apparaissent que pour $B \neq 0$. Cette résolution offre une approche beaucoup plus intuitive.

On considère donc de l'hamiltonien décrit au début de ce chapitre (voir partie I.i). Il est exprimé dans la base des fonctions enveloppes des quatre états confinés fondamentaux. En rajoutant l'interaction d'échange, les deux blocs deviennent :

$$\begin{pmatrix} -\delta - DCk_{\parallel}^2 + S^*(Ic_{+}^2 + Uc_{-}^2) & -\hbar v_{\parallel}Ak_{-} \\ \hbar v_{\parallel}Ak_{+} & \delta + DCk_{\parallel}^2 - S^*(Ic_{-}^2 + Uc_{+}^2) \end{pmatrix} \text{ sur les composantes } ETS'\alpha \text{ et } ETS\beta.$$

$$\begin{pmatrix} -\delta - DCk_{\parallel}^2 - S^*(Ic_{+}^2 + Uc_{-}^2) & \hbar v_{\parallel}Ak_{+} \\ -\hbar v_{\parallel}Ak_{-} & \delta + DCk_{\parallel}^2 + S^*(Ic_{-}^2 + Uc_{+}^2) \end{pmatrix} \text{ sur les composantes } ETS'\beta \text{ et } ETS\alpha.$$

Pour rappel, $c_{\pm}^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} |F_{\pm}^{ETS'}|^2 dz > 0$. Ainsi, les termes d'interaction d'échange sont des termes diagonaux, ils augmentent l'énergie des états de composante β et diminue celle des états de composante α , car I et U sont négatifs. A $k_{\parallel} = 0$, l'énergie des quatre états fondamentaux est donnée sur la Fig. 4-10 en fonction du champ $0 < B < 1$ T, qui influe sur le paramètre S^* . Le calcul a été effectué pour un puits quantique Mn-PbSnSe avec $w \sim 1\%$, $d_{QW} = 36$ nm et $2\Delta_{QW} = -50$ meV. Cela donne $\delta = 2.1$ meV, $c_{+}^2 = 0.6$ et $c_{-}^2 = 0.4$.

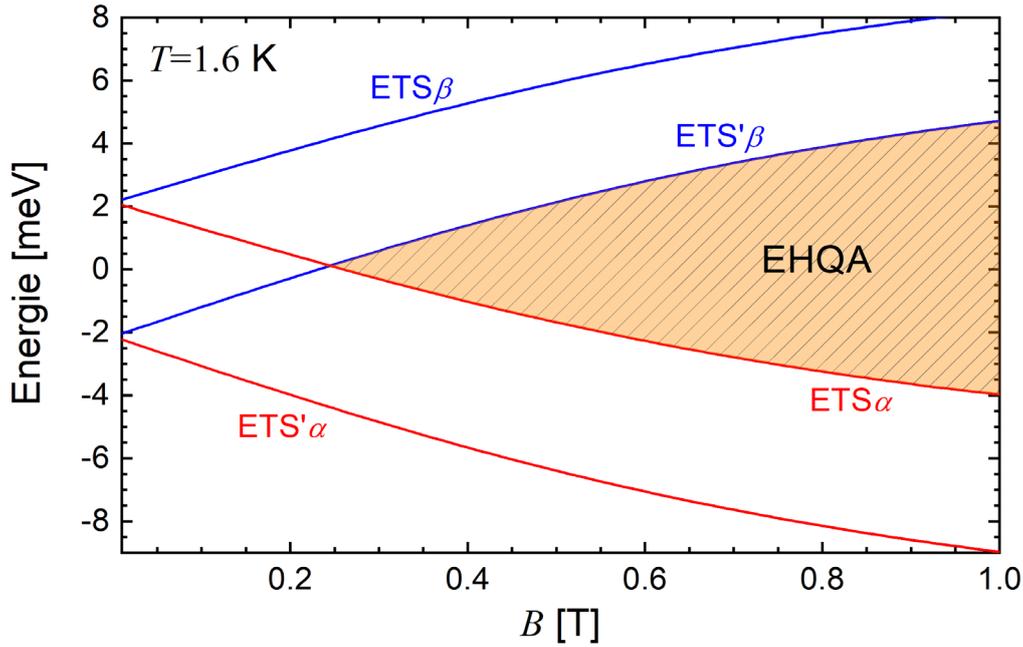


Figure 4-10. Evolution des énergies des quatre états fondamentaux d'un puits quantique $Mn_{0.01}\text{-PbSnSe/PbSrSe}$ avec $d_{QW} = 36$ nm et $2\Delta_{QW} = -50$ meV. En rouge (bleu) sont les états de la composante α (β). La zone permettant d'obtenir l'effet Hall quantique anormal (EHQA) est hachurée en orange.

On observe un croisement entre les états $ETS'\beta$ et $ETS\alpha$ à 0.25 T. Au-delà de ce champ magnétique, $ETS'\beta$ est au-dessus de $ETS\alpha$; c'est la zone hachurée en orange sur la Fig. 4-10. Les deux autres états, correspondant au deuxième bloc, s'éloignent l'un de l'autre et donc sont toujours dans l'ordre trivial. De ce fait, une seule composante de spin est inversée. Ceci implique l'apparition d'un état de bord avec un quantum de conductance e^2/h (voir partie I.i) : c'est l'effet Hall quantique anormal. Il donne une quantification parfaite d'un courant polarisé de spin. De plus, à l'interface avec un supraconducteur, cet état de bord polarisé est prévu d'interagir avec des fermions de Majorana, des quasi-particules très prometteuses pour le développement de l'information quantique (voir la partie I.v du chapitre I).

Pour savoir si les états s'inversent ou non, on se réfère à la partie I.i. Comme $C = c_+^2 - c_-^2 = 0.2 > 0$ dans ce puits quantique, il suffit de déterminer le signe du gap effectif à $k_{\parallel} = 0$. Les énergies des états liés étant $\pm\delta \pm S^*(Ic_{\pm}^2 + Uc_{\pm}^2)$, il y a inversion si :

$$\boxed{2\delta < S^*|I + U|}$$

Ce résultat nous indique que δ doit être le plus petit possible pour avoir un effet Hall quantique anormal dans des conditions confortables. C'est-à-dire que le puits doit être suffisamment large et le gap du matériau puits doit être le plus grand possible en valeur absolue. Plus la valeur de δ est proche de 0, plus l'effet Hall quantique anormal apparaît à bas champ magnétique. Notons également que les paramètres c_{\pm}^2 n'apparaissent pas dans la condition d'observation de cet effet.

b) Cas des superréseaux

L'interaction d'échange peut être traitée de la même manière qu'elle a été prise en compte dans les puits quantiques. L'hamiltonien effectif exprimé dans la base des quatre états fondamentaux sera exactement identique. Toutefois, il n'est valable que pour un q_z donné. Dans cet hamiltonien à $k_{\parallel} = 0$, les paramètres

dépendants de q_z sont δ et c_{\pm}^2 . L'autre différence avec les puits quantiques est que les états peuvent être inversés même si le dopage magnétique est nul. Pour rendre compte de cette éventuelle inversion de symétrie, à $k_{\parallel} = 0$, il suffit de poser $\delta < 0$.

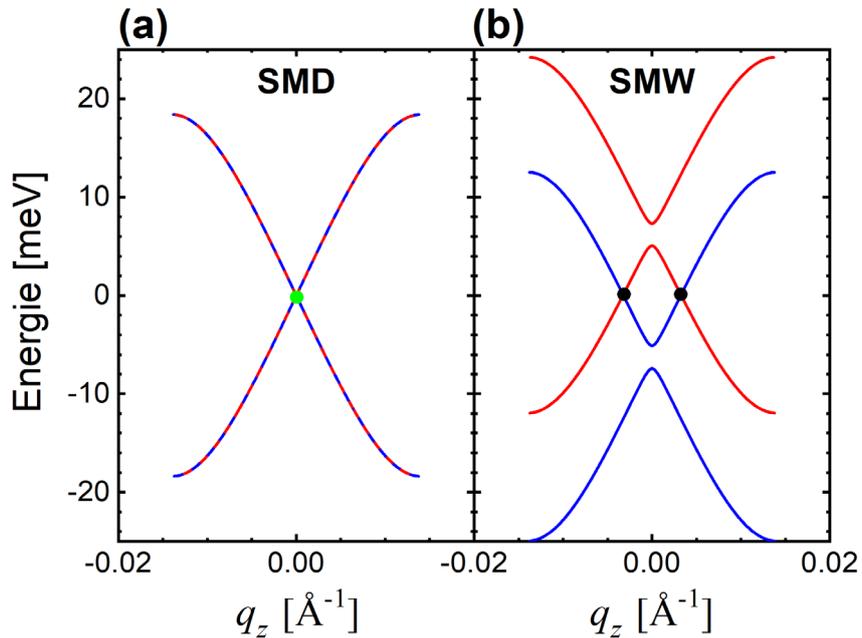


Figure 4-11. Dispersion des minibandes issues de ETS et ETS' d'un superréseau topologique dans les phases SMD **(a)** et WSM **(b)**. Dans les deux cas, $\delta = 0$ et les courbes rouges et bleues correspondent aux deux composantes α et β respectivement. Les nœuds de Dirac et de Weyl sont repérés par des points verts et noirs respectivement.

En l'absence d'ions magnétiques, si à $q_z = 0$ on a $\delta = 0$, alors le superréseau est un SMD 3D compte tenu de la dispersion en q_z . La dispersion des minibandes est tracée sur la Fig. 4-11(a). Le nœud de Dirac est le point de croisement des quatre minibandes issues des composantes α et β des états ETS' et ETS. Pour lever partiellement cette dégénérescence, un dopage magnétique avec une aimantation selon l'axe z est introduit. Celui-ci augmente (diminue) l'énergie des minibandes des composantes β (α), car les paramètres I et U sont négatifs. Deux minibandes de composantes opposées se chevauchent, comme le montre la Fig. 4-11(b), car elles n'interagissent pas à $k_{\parallel} = 0$. Elles se croisent à $q_z = \pm q_0$, ce qui forme deux nœuds de Weyl. Dans cette situation, le superréseau est un SMW. Pour ce calcul, S^* a été pris égal à 0.01, ce qui correspond à $\sim 1\%$ de manganèse dilué dans PbSnSe à 1.6 K et 1 T.

Dans la phase SMW, ETS' β est au-dessus de ETS α entre les deux nœuds de Weyl. L'ordre de la symétrie des états est donc inversé et des états de bord sont attendus pour chaque q_z vérifiant $|q_z| \leq q_0$. Chacun de ces états contribue à un quantum de conductance e^2/h car seulement une des deux composantes de spin est inversée. On retrouve un ensemble d'effets Hall quantiques anormaux portés par des états de bords polarisés de spin. Au-delà des nœuds de Weyl, l'ordre des symétries est trivial et donc aucun état de bord n'est attendu. De la même manière que pour l'effet Hall quantique de spin dans les superréseaux (voir partie I.iii), on somme la conductance de chaque état de bord à q_z pour trouver la conductance totale du système :⁹⁶

$$\frac{e^2}{h} \int_{-q_0}^{+q_0} \frac{dq_z}{2\pi} = \frac{e^2}{h} \frac{q_0}{\pi}$$

La conductance n'est pas quantifiée car elle dépend de la position des nœuds de Weyl dans l'espace des \mathbf{k} (q_0). On parle alors d'effet Hall anormal.

Enfin, si l'aimantation des ions paramagnétiques est dans le plan des couches, une phase SMLPN quasi-3D est prédite. Il est important de préciser que dans tout ce chapitre seule la vallée longitudinale a été considérée. Or, lorsque l'aimantation est parallèle à l'axe [111], elle est plutôt dans le plan xy pour les vallées obliques inclinées à 70.5° . Si la phase SMW est prédite pour la vallée longitudinale, les vallées obliques sont dans une phase SMLPN, et vice versa. Il en est de même pour l'effet Hall quantique anormal évoqué dans les puits quantiques. Les conductances introduites plus haut dans cette partie sont des conductances pour une vallée. L'effet multivallée est très intéressant si l'on veut faire de l'électronique de vallée, avec une seule vallée dans un état topologique.

En résumé, ce chapitre a permis d'énumérer les conditions de réalisation de nombreux effets pseudo-relativistes dans PbSnSe. Ces prédictions théoriques s'appuient sur les résultats expérimentaux des chapitres II et III et les paramètres proviennent des expériences qui y sont réalisées. Ainsi, les modélisations de ce chapitre sont applicables et réalistes. Les puits quantiques simples ne sont pas de bons systèmes pour mettre en évidence l'effet Hall quantique de spin. Cependant, un dopage par des ions magnétiques permet d'y obtenir l'effet Hall quantique anormal. Les superréseaux, avec ou sans dopage magnétique, sont de bonnes plateformes pour envisager les deux effets qui ne sont, en revanche, pas quantifiés. La conductance peut être changée en variant l'épaisseur de la période du superréseau ou l'aimantation des moments localisés. Le dopage magnétique dans PbSnSe permettrait également d'obtenir un semi-métal de Weyl ou un semi-métal à ligne de points nodaux. Ces phases de la matière peuvent être envisagées dans un massif 3D ou un superréseau quasi-3D. La versatilité de PbSnSe, matériau d'excellente qualité cristalline, devrait permettre l'observation de nombreux effets pseudo-relativistes.

Conclusion

Dans cette thèse, nous avons d'abord rappelé les principales motivations de l'étude de la matière topologique, ainsi que quelques grandes problématiques actuelles qui y sont liées. Les isolants topologiques constituent un domaine important de la physique fondamentale (émergence de quasi-particules exotiques comme les fermions de Majorana, les fermions de Weyl ou encore l'axion) ainsi que pour leurs applications potentielles (électronique de spin, électronique non-dissipative, calcul quantique, ...). Pour mettre en évidence de tels effets, il faut trouver un matériau pouvant présenter des phases topologiques avec un gap suffisamment grand pour que les effets soient observables à une température raisonnable ($T \geq 1.6$ K). De plus, il faut également que le matériau présente de bonnes qualités électroniques et ne soit pas trop dopé. Ce travail de thèse a montré que les alliages ternaires $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ et leurs hétérostructures sont de bons candidats pour remplir ces conditions.

La première partie de l'étude porte sur la caractérisation des propriétés électroniques des films épais de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ en confrontant les données expérimentales de la magnéto-optique à un modèle $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$. Ceci a permis de déterminer précisément la nature topologique de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ en fonction de nombreux paramètres tels que la composition chimique (teneur en étain), la température, la contrainte, ou encore le champ magnétique. Nous avons démontré que les propriétés électroniques des films restaient excellentes jusqu'à des températures de 200 K. L'ingénierie de croissance (composition chimique et nature du substrat) a été utilisée pour obtenir un matériau 3D à grand gap topologique de l'ordre de -140 meV. Nous avons finalement précisé la nature des transitions de phase topologique observées.

La deuxième partie de l'étude concerne principalement les états topologiques d'interface dans les hétérostructures à base de PbSnSe . Par la technique de magnéto-optique et le développement d'un modèle des fonctions enveloppes, les états topologiques d'interface ont été clairement observés et caractérisés. Une ingénierie d'hybridation de ces états a été utilisée tant dans des structures à puits quantiques indépendants que dans des superréseaux. Nous avons montré que les puits quantiques découplés ne possèdent pas d'inversion de symétrie des niveaux confinés contrairement aux superréseaux. Dans ces derniers, des minibandes topologiques ont été mises clairement en évidence.

Dans une dernière partie, nous avons utilisé nos résultats pour préciser les conditions d'observation d'un certain nombre d'effets pseudo-relativistes. Les conditions pour obtenir des états de bord 1D dans les superréseaux ont été déterminées. De plus, l'effet d'un dopage magnétique dans les alliages $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ et leurs hétérostructures a été analysé. De nombreuses phases exotiques de la matière sont ainsi prévues comme les fermions de Weyl dans le matériau 3D ou l'émergence de l'effet Hall quantique anormal dans les hétérostructures.

Cette étude a permis de déterminer l'ensemble des paramètres électroniques des alliages $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ et de leurs hétérostructures caractérisant les différentes transitions de phase topologique de ces matériaux. Elle ouvre la voie pour l'observation expérimentale de nouveaux effets pseudo-relativistes dans ce système très polyvalent.

Références

1. Klitzing, K. V, Dorda, G. & Pepper, M. New method for high-accuracy determination of the fine-structure constant based on quantized hall resistance. *Phys. Rev. Lett.* **45**, 494–497 (1980).
2. ANDERSON, P. W. The Resonating Valence Bond State in La₂CuO₄ and Superconductivity. *Science (80-)*. **235**, 1196 LP – 1198 (1987).
3. Hasan, M. Z. & Kane, C. L. Colloquium: Topological insulators. *Rev. Mod. Phys.* **82**, 3045–3067 (2010).
4. Hasan, M. Z. & Moore, J. E. Three-Dimensional Topological Insulators. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **2**, 55–78 (2011).
5. Haldane, F. D. M. Model for a quantum hall effect without landau levels: Condensed-matter realization of the ‘parity anomaly’. *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2015–2018 (1988).
6. Thouless, D. J. Long-Range Order in One-Dimensional Ising Systems. *Phys. Rev.* **187**, 732–733 (1969).
7. Bansil, A., Lin, H. & Das, T. Colloquium: Topological band theory. *Rev. Mod. Phys.* **88**, 21004 (2016).
8. Fu, L. Topological Crystalline Insulators. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 106802 (2011).
9. Jackiw, R. & Rebbi, C. Solitons with fermion number 1/2. *Phys. Rev. D* **13**, 3398–3409 (1976).
10. Dirac, P. A. M. The Quantum Theory of the Electron. *Proc. R. Soc. London. Ser. A, Contain. Pap. a Math. Phys. Character* **117**, 610–624 (1928).
11. Shen, S.-Q. *Topological Insulators. Topological Insulators* (2012). doi:10.1201/b19297.
12. Bernevig, B. A., Hughes, T. L. & Zhang, S. Quantum spin Hall effect and topological phase transition in HgTe quantum wells. *Science (80-)*. **314**, 1757 (2006).
13. König, M. *et al.* Quantum Spin Hall Insulator State in HgTe Quantum Wells. *Science (80-)*. **318**, 766 LP – 770 (2007).
14. Guldner, Y., Rigaux, C., Grynberg, M. & Mycielski, A. Interband Gamma₆→Gamma₈ Magnetoabsorption in HgTe. *Phys. Rev. B* **8**, 3875–3883 (1973).
15. Guldner, Y., Rigaux, C., Mycielski, A. & Couder, Y. Magneto-optical Investigation of Hg_{1-x}Cd_xTe Mixed Crystals. I. Semimetallic Configuration. *Phys. status solidi* **81**, 615–627 (1977).
16. Kane, E. O. Band structure of indium antimonide. *J. Phys. Chem. Solids* **1**, 249–261 (1957).
17. Bastard, G. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. (1988).
18. Liu, C., Hughes, T. L., Qi, X.-L., Wang, K. & Zhang, S.-C. Quantum Spin Hall Effect in Inverted Type-II Semiconductors. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 236601 (2008).
19. Knez, I., Du, R.-R. & Sullivan, G. Evidence for Helical Edge Modes in Inverted InAs/GaSb Quantum Wells. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 136603 (2011).
20. Guldner, Y. *et al.* Cyclotron Resonance and Far-Infrared Magneto-Absorption Experiments on Semimetallic InAs-GaSb Superlattices. *Phys. Rev. Lett.* **45**, 1719–1722 (1980).
21. Yu, R. *et al.* Quantized Anomalous Hall Effect in Magnetic Topological Insulators. *Science (80-)*. **329**, 61 LP – 64 (2010).
22. Chang, C.-Z. *et al.* Experimental Observation of the Quantum Anomalous Hall Effect in a Magnetic

- Topological Insulator. *Science (80-.)*. **340**, 167 LP – 170 (2013).
23. Yasuda, K. *et al.* Quantized chiral edge conduction on domain walls of a magnetic topological insulator. *Science (80-.)*. **358**, 1311 LP – 1314 (2017).
 24. Zhang, H. *et al.* Topological insulators in Bi₂Se₃, Bi₂Te₃ and Sb₂Te₃ with a single Dirac cone on the surface. *Nat. Phys.* **5**, 438–442 (2009).
 25. Zhang, Y. *et al.* Crossover of the three-dimensional topological insulator Bi₂Se₃ to the two-dimensional limit. *Nat. Phys.* **6**, 584–588 (2010).
 26. Watanabe, R. *et al.* Quantum anomalous Hall effect driven by magnetic proximity coupling in all-telluride based heterostructure. *Appl. Phys. Lett.* **115**, 102403 (2019).
 27. Deng, Y. *et al.* Quantum anomalous Hall effect in intrinsic magnetic topological insulator MnBi₂Te₄. *Science (80-.)*. **367**, 895 LP – 900 (2020).
 28. Alicea, J. New directions in the pursuit of Majorana fermions in solid state systems. *Reports Prog. Phys.* **75**, 76501 (2012).
 29. Beenakker, C. W. J. Search for Majorana Fermions in Superconductors. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **4**, 113–136 (2013).
 30. Leijnse, M. & Flensberg, K. Introduction to topological superconductivity and Majorana fermions. *Semicond. Sci. Technol.* **27**, 124003 (2012).
 31. Fu, L. & Kane, C. L. Probing Neutral Majorana Fermion Edge Modes with Charge Transport. *Phys. Rev. Lett.* **102**, 216403 (2009).
 32. Wang, J., Zhou, Q., Lian, B. & Zhang, S.-C. Chiral topological superconductor and half-integer conductance plateau from quantum anomalous Hall plateau transition. *Phys. Rev. B* **92**, 64520 (2015).
 33. Weinberg, S. A New Light Boson? *Phys. Rev. Lett.* **40**, 223–226 (1978).
 34. Cheng, H.-Y. The strong CP problem revisited. *Phys. Rep.* **158**, 1–89 (1988).
 35. Wilczek, F. Time’s (Almost) Reversible Arrow. *Quanta Magazine* (2016).
 36. Duffy, L. D. & Bibber, K. van. Axions as dark matter particles. *New J. Phys.* **11**, 105008 (2009).
 37. Essin, A. M., Moore, J. E. & Vanderbilt, D. Magnetoelectric Polarizability and Axion Electrodynamics in Crystalline Insulators. *Phys. Rev. Lett.* **102**, 146805 (2009).
 38. Wu, L. *et al.* Quantized Faraday and Kerr rotation and axion electrodynamics of a 3D topological insulator. *Science (80-.)*. **354**, 1124 LP – 1127 (2016).
 39. Dziom, V. *et al.* Observation of the universal magnetoelectric effect in a 3D topological insulator. *Nat. Commun.* **8**, 15197 (2017).
 40. Weyl, H. Gravitation and the electron. *Proc. Natl. Acad. Sci.* **15**, 323 LP – 334 (1929).
 41. Armitage, N. P., Mele, E. J. & Vishwanath, A. Weyl and Dirac semimetals in three-dimensional solids. *Rev. Mod. Phys.* **90**, 15001 (2018).
 42. Borisenko, S. *et al.* Experimental Realization of a Three-Dimensional Dirac Semimetal. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 27603 (2014).
 43. Wang, Z., Weng, H., Wu, Q., Dai, X. & Fang, Z. Three-dimensional Dirac semimetal and quantum transport in Cd₃As₂. *Phys. Rev. B* **88**, 125427 (2013).

44. Bodnar, J. Band structure of Cd₃As₂ from Shubnikov de Haas and de Haas van Alphen effects. *Proc. 3rd Int. Conf. Phys. Narrow gap Semicond.* Ed. by PWN, Polish Sci. Publ. Warszawa 311–316 (1977).
45. D'yakonov, M. I. & Khaetskii, A. V. Surface states in gapless semiconductors. *JETP Lett.* vol. 33 110–112 (1981).
46. Krishtopenko, S. S., Antezza, M. & Teppe, F. Hybridization of topological surface states with a flat band. *J. Phys. Condens. Matter* **32**, 165501 (2020).
47. Moll, P. J. W. *et al.* Transport evidence for Fermi-arc-mediated chirality transfer in the Dirac semimetal Cd₃As₂. *Nature* **535**, 266–270 (2016).
48. Lin, B.-C. *et al.* Electric Control of Fermi Arc Spin Transport in Individual Topological Semimetal Nanowires. *Phys. Rev. Lett.* **124**, 116802 (2020).
49. Roth, L. M., Lax, B. & Zwerdling, S. Theory of Optical Magneto-Absorption Effects in Semiconductors. *Phys. Rev.* **114**, 90–104 (1959).
50. Mitchell, D. L. & Wallis, R. F. Theoretical Energy-Band Parameters for the Lead Salts. *Phys. Rev.* **151**, 581–595 (1966).
51. Dimmock, J. O. & Wright, G. B. Band Edge Structure of PbS, PbSe, and PbTe. *Phys. Rev.* **135**, A821–A830 (1964).
52. Strauss, A. J. Inversion of conduction and valence bands in Pb_{1-x}Sn_xSe alloys. *Phys. Rev.* **157**, 608–611 (1967).
53. Eibelhuber, M., Schwarzl, T., Pichler, S., Heiss, W. & Springholz, G. Near room temperature continuous-wave laser operation from type-I interband transitions at wavelengths beyond 4 μm. *Appl. Phys. Lett.* **97**, 61103 (2010).
54. Vergara, G. *et al.* Polycrystalline lead selenide: the resurgence of an old infrared detector. *Opto-Electronics Rev.* **15**, 110–117 (2007).
55. Beyer, H. *et al.* PbTe based superlattice structures with high thermoelectric efficiency. *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1216–1218 (2002).
56. Zogg, H. *et al.* Epitaxial Lead Chalcogenides on Si for Mid-IR Detectors and Emitters Including Cavities. *J. Electron. Mater.* **37**, 1497–1503 (2008).
57. Dornhaus, R., Nimtz, G. & Schlicht, B. *Narrow Gap Semiconductors.* (1983).
58. Ravich, Y. I., Efimova, B. A. & Smirnov, I. A. Semiconducting Lead Chalcogenides. *Semiconducting Lead Chalcogenides* (1970) doi:10.1007/978-1-4684-8607-0.
59. Khokhlov, D. *Lead Chalcogenides.* (2003).
60. Bernick, R. L. & Kleinman, L. Energy bands, effective masses and g-factors of the lead salts and SnTe. *Solid State Commun.* **8**, 569–575 (1970).
61. Bauer, G., Pascher, H. & Zawadzki, W. Magneto-optical properties of semimagnetic lead chalcogenides. *Semicond. Sci. Technol.* **7**, 703–723 (1992).
62. Bauer, G. Magneto-optical properties of IV–VI compounds. *Narrow Gap Semicond. Phys. Appl. Proceeding Int. Summer Sch.* **133**, 427–446 (1980).
63. Dimmock, J. O. k.p theory for the conduction and valence bands of PbSnTe and PbSnSe alloys. in *Proceedings of the International Conference of the Physics of Semimetals and Narrow gap Semiconductor* 319–330 (1971).

64. Phuphachong, T. *et al.* Dirac Landau Level Spectroscopy in $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ and $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ across the Topological Phase Transition: A Review. *Crystals* **7**, 29 (2017).
65. Assaf, B. A. *et al.* Magneto-optical determination of a topological index. *npj Quantum Mater.* **2**, 26 (2017).
66. Geim, A. K. & Novoselov, K. S. The rise of graphene. in *Nanoscience and Technology* 11–19 (Co-Published with Macmillan Publishers Ltd, UK, 2009). doi:doi:10.1142/9789814287005_0002.
67. Castro Neto, A. H., Guinea, F., Peres, N. M. R., Novoselov, K. S. & Geim, A. K. The electronic properties of graphene. *Rev. Mod. Phys.* **81**, 109–162 (2009).
68. Goerbig, M. O. Electronic properties of graphene in a strong magnetic field. *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1193–1243 (2011).
69. Adler, M. S., Hewes, C. R. & Senturia, S. D. k.p Model for the Magnetic Energy Levels in PbTe and $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$. *Phys. Rev. B* **7**, 5186–5195 (1973).
70. Burkhard, H., Bauer, G. & Zawadzki, W. Band-population effects and intraband magneto-optical properties of a many-valley semiconductor: PbTe. *Phys. Rev. B* **19**, 5149–5159 (1979).
71. Springholz, G., Ueta, A. Y., Frank, N. & Bauer, G. Spiral growth and threading dislocations for molecular beam epitaxy of PbTe on BaF₂ (111) studied by scanning tunneling microscopy. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2822–2824 (1996).
72. Springholz, G. . *Molecular beam epitaxy*. vol. 11 (2018).
73. Krizman, G. *et al.* Dirac parameters and topological phase diagram of $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ from magnetospectroscopy. *Phys. Rev. B* **98**, 245202 (2018).
74. Assaf, B. A. *et al.* Negative Longitudinal Magnetoresistance from the Anomalous N=0 Landau Level in Topological Materials. *Phys. Rev. Lett.* **119**, 106602 (2017).
75. Teppe, F. *et al.* Temperature-driven massless Kane fermions in HgCdTe crystals. *Nat. Commun.* **7**, 12576 (2016).
76. Krizman, G. *et al.* Avoided level crossing at the magnetic field induced topological phase transition due to spin-orbital mixing. *Phys. Rev. B* **98**, 161202 (2018).
77. Calawa, A. R., Dimmock, J. O., Harman, T. C. & Melngailis, I. Magnetic Field Dependence of Laser Emission in $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ Diodes. *Phys. Rev. Lett.* **23**, 7–10 (1969).
78. Orlita, M. *et al.* Magneto-Optics of Massive Dirac Fermions in Bulk Bi_2Se_3 . *Phys. Rev. Lett.* **114**, 186401 (2015).
79. Wojek, B. M. *et al.* Band inversion and the topological phase transition in $(\text{Pb},\text{Sn})\text{Se}$. *Phys. Rev. B* **90**, 161202 (2014).
80. Wang, Z., Luo, J.-W. & Zunger, A. Alloy theory with atomic resolution for Rashba or topological systems. *Phys. Rev. Mater.* **3**, 44605 (2019).
81. Łusakowski, A., Bogusławski, P. & Story, T. Alloy broadening of the transition to the nontrivial topological phase of $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$. *Phys. Rev. B* **98**, 125203 (2018).
82. Simma, M., Bauer, G. & Springholz, G. Temperature dependent band offsets in PbSe/PbEuSe quantum well heterostructures. *Appl. Phys. Lett.* **101**, (2012).
83. Geist, F. *et al.* Magneto-optical investigations of Eu-based diluted magnetic lead chalcogenides. *Phys. Rev. B* **56**, 13042–13053 (1997).

84. Lambrecht, A. *et al.* Molecular beam epitaxy of Pb_{1-x}Sr_xSe for the use in IR devices. *J. Cryst. Growth* **108**, 301–308 (1991).
85. Zhou, B., Lu, H.-Z., Chu, R.-L., Shen, S.-Q. & Niu, Q. Finite Size Effects on Helical Edge States in a Quantum Spin-Hall System. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 246807 (2008).
86. Brum, J.-A. Etude theorique des propriétés électroniques des hétérostructures de semiconducteurs. (1987).
87. Bauer, G., Kriechbaum, M., Shi, Z. & Tacke, M. IV–VI Quantum wells for infrared lasers. *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* **04**, 283–312 (1995).
88. Katzir, A. *et al.* Tunable lead salt lasers. (1989).
89. Zasavitskii, I. I., de Andrada e Silva, E. A., Abramof, E. & McCann, P. J. Optical deformation potentials for PbSe and PbTe. *Phys. Rev. B* **70**, 115302 (2004).
90. Springholz, G. *et al.* Interdiffusion in Pb_{1-x}Eu_xSe/PbSe multi-quantum-well structures. *J. Cryst. Growth* **113**, 593–598 (1991).
91. Krizman, G. *et al.* Tunable Dirac interface states in topological superlattices. *Phys. Rev. B* **98**, 75303 (2018).
92. Esaki, L. & Tsu, R. Superlattice and Negative Differential Conductivity in Semiconductors. *IBM J. Res. Dev.* **14**, 61–65 (1970).
93. Bastard, G. Superlattice band structure in the envelope-function approximation. *Phys. Rev. B* **24**, 5693–5697 (1981).
94. Bastard, G. Theoretical investigations of superlattice band structure in the envelope-function approximation. *Phys. Rev. B* **25**, 7584–7597 (1982).
95. Carosella, F., Wacker, A., Ferreira, R. & Bastard, G. One-dimensional massless Dirac bands in semiconductor superlattices. *Phys. Rev. B* **89**, 235301 (2014).
96. Burkov, A. A. & Balents, L. Weyl Semimetal in a Topological Insulator Multilayer. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 127205 (2011).
97. Burkov, A. A., Hook, M. D. & Balents, L. Topological nodal semimetals. *Phys. Rev. B* **84**, 235126 (2011).
98. Nakayama, M., Yamashita, T. & Hasegawa, T. Photoluminescence dynamics of excitons at the mini-Brillouin-zone edge in a GaAs/AlAs superlattice. *J. Cryst. Growth* **378**, 61–64 (2013).
99. Belopolski, I. *et al.* A novel artificial condensed matter lattice and a new platform for one-dimensional topological phases. *Sci. Adv.* **3**, e1501692–e1501692 (2017).
100. Su, W. P., Schrieffer, J. R. & Heeger, A. J. Soliton excitations in polyacetylene. *Phys. Rev. B* **22**, 2099–2111 (1980).
101. Bastard, G., Rigaux, C., Guldner, Y., Mycielski, J. & Mycielski, A. Effect of exchange on interband magneto-absorption in zero gap Hg_{1-x}Mn_xTe mixed crystals. *J. Phys. Fr.* **39**, 87–98 (1978).
102. Gaj, J. A., Planel, R. & Fishman, G. Relation of magneto-optical properties of free excitons to spin alignment of Mn²⁺ ions in Cd_{1-x}Mn_xTe. *Solid State Commun.* **29**, 435–438 (1979).
103. Górska, M. & Anderson, J. R. Magnetic susceptibility and exchange in IV-VI compound diluted magnetic semiconductors. *Phys. Rev. B* **38**, 9120–9126 (1988).
104. Kowalczyk, L. Determination of the exchange interaction parameters from interband magnetoemission in Pb_{1-x}Mn_xSe. *Semicond. Sci. Technol.* **6**, 115–117 (1991).

105. Geist, F., Pascher, H., Kriechbaum, M., Frank, N. & Bauer, G. Magneto-optical properties of diluted magnetic PbSe/Pb_{1-x}MnxSe superlattices. *Phys. Rev. B* **54**, 4820–4834 (1996).
106. Volkov, B. & Pankratov, O. Two-dimensional massless electrons in an inverted contact. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters* vol. 42 178 (1985).
107. Lu, X. & Goerbig, M. O. Magneto-optical signatures of Volkov-Pankratov states in topological insulators. *EPL (Europhysics Lett.)* **126**, 67004 (2019).
108. Schumann, T., Goyal, M., Kim, H. & Stemmer, S. Molecular beam epitaxy of Cd₃As₂ on a III-V substrate. *APL Mater.* **4**, (2016).
109. Goyal, M. *et al.* Carrier mobilities of (001) cadmium arsenide films. *APL Mater.* **8**, 51106 (2020).
110. Desrat, W. *et al.* Band splitting in Cd₃As₂ measured by magnetotransport. *Phys. Rev. B* **97**, 245203 (2018).
111. Ting, D. Z. *et al.* InAs/InAsSb Type-II Superlattice Mid-Wavelength Infrared Focal Plane Array With Significantly Higher Operating Temperature Than InSb. *IEEE Photonics J.* **10**, 1–6 (2018).
112. Lackner, D. *et al.* InAs/InAsSb strain balanced superlattices for optical detectors: Material properties and energy band simulations. *J. Appl. Phys.* **111**, 34507 (2012).
113. Perez, J. P., Durlin, Q., Cervera, C. & Christol, P. New Ga-Free InAs/InAsSb superlattice infrared photodetector. *PHOTOPTICS 2018 - Proc. 6th Int. Conf. Photonics, Opt. Laser Technol.* **2017-January**, 232–237 (2017).
114. Manyk, T. *et al.* Electronic band structure of InAs/InAsSb type-II superlattice for HOT LWIR detectors. *Results Phys.* **11**, 1119–1123 (2018).

Annexe A – Etats de Volkov-Pankratov dans les alliages ternaires $Pb_{1-x}Sn_xSe$

Nous avons pu accéder expérimentalement aux états de surface topologiques comme nous l'avons montré au chapitre III. Pour cela, nous avons réduit le rapport volume sur surface en utilisant des puits quantiques ou des superréseaux. Dans cette annexe, une autre approche est proposée pour rendre accessible à l'expérience les états topologiques de surface. Ils apparaîtront sous forme d'état de Weyl. Ce travail s'inspire directement de celui de Volkov et Pankratov.¹⁰⁶

Dans cette approche, il s'agit d'élargir l'interface de sorte à obtenir une taille comparable à celle du volume. Une interface graduelle est conçue entre deux alliages $Pb_{1-x}Sn_xSe$, un trivial et un topologique. Cette structure est schématisée sur la Fig. A-1(a) pour des couches de $Pb_{1-x}Sn_xSe$ de 100 nm chacune et une interface graduelle de $2l = 100$ nm d'épaisseur. Le matériau topologique est situé en-dessous. Il est constitué de $Pb_{0.82}Sn_{0.18}Se$ et donc possède un gap de $2\Delta = -50$ meV à 4.2 K sur un substrat KCl (voir chapitre II). Le matériau trivial est $Pb_{0.97}Sn_{0.03}Se$ et admet un gap de $2\Delta = +50$ meV. Ces deux couches sont séparées par une interface graduelle d'épaisseur $2l$. Une telle interface pourrait être obtenue en variant continument la teneur en étain de 18 à 3 % lors de la croissance en épitaxie par jets moléculaires.

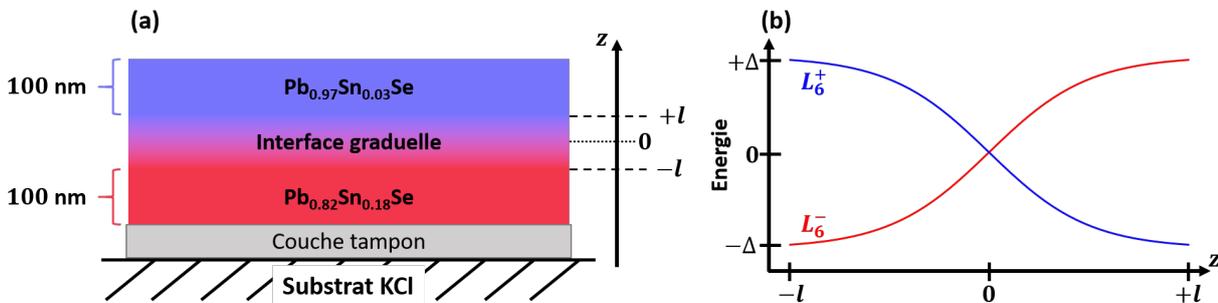


Figure A-1. (a) Schéma du système étudié, constitué de deux matériaux PbSnSe (100 nm) de topologies différentes, séparés par une interface graduelle d'épaisseur $2l = 100$ nm. La structure est déposée sur un substrat KCl. (b) Profil du potentiel associé à la structure considérée. Les extrema des bandes L_6^+ (bleu) et L_6^- (rouge) sont tracés en fonction de z , l'axe de croissance.

Une forme de potentiel électronique est tracée sur la Fig. A-1(b). Les extrema de bandes sont représentés en fonction de l'axe de croissance, entre $-l$ et $+l$. Beaucoup de profils de potentiel peuvent être imaginés et modélisés par une fonction $\Delta(z)$ représentant la moitié de l'énergie de gap à z donné. Quelques-unes ont été étudiées comme par exemple :

$$\text{Le profil linéaire : } \Delta(z) = \Delta \frac{z}{l}$$

$$\text{Le profil tangente hyperbolique : } \Delta(z) = \Delta \tanh\left(\frac{2z}{l}\right)$$

$$\text{Le profil exponentiel : } \Delta(z) = \Delta \left[1 - 2 \exp\left(-\frac{2(z+l)}{l}\right) \right]$$

Pour trouver les états confinés à cette interface, nous devons résoudre les hamiltoniens suivants :

$$\mathcal{H}_\alpha = \begin{pmatrix} -\Delta(z) & -i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} \\ -i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} & \Delta(z) \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \mathcal{H}_\beta = \begin{pmatrix} -\Delta(z) & i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} \\ i\hbar v_z \frac{\partial}{\partial z} & \Delta(z) \end{pmatrix}$$

On sait résoudre ce problème si l'on a affaire à des interfaces abruptes (voir chapitre III). Il suffit alors d'appliquer les conditions de continuité des fonctions enveloppes et du courant de probabilité à l'interface. Pour se ramener à un tel problème, on découpe le potentiel $\Delta(z)$ en une fonction constante par morceaux. Si l'on considère N morceaux, alors il y a $N + 1$ conditions de continuités à vérifier. Les trois potentiels deviennent donc, avec $0 \leq p \leq N$ et $\Delta > 0$:

$$\text{Le profil linéaire : } \Delta(z) = \Delta \left(\frac{2p}{N} - 1 \right)$$

$$\text{Le profil tangente hyperbolique : } \Delta(z) = \Delta \tanh \left[2 \left(\frac{2p}{N} - 1 \right) \right]$$

$$\text{Le profil exponentiel : } \Delta(z) = \Delta \left[1 - 2 \exp \left(-\frac{4p}{N} \right) \right]$$

Pour N assez grand, c'est-à-dire pour des morceaux de potentiel assez petits, la convergence du calcul est assurée. Ces trois profils de potentiel par morceaux sont montrés sur la Fig. A-2, pour les paramètres donnés dans le Tableau I. Le profil exponentiel est asymétrique en z . Les deux autres potentiels sont assez similaires.

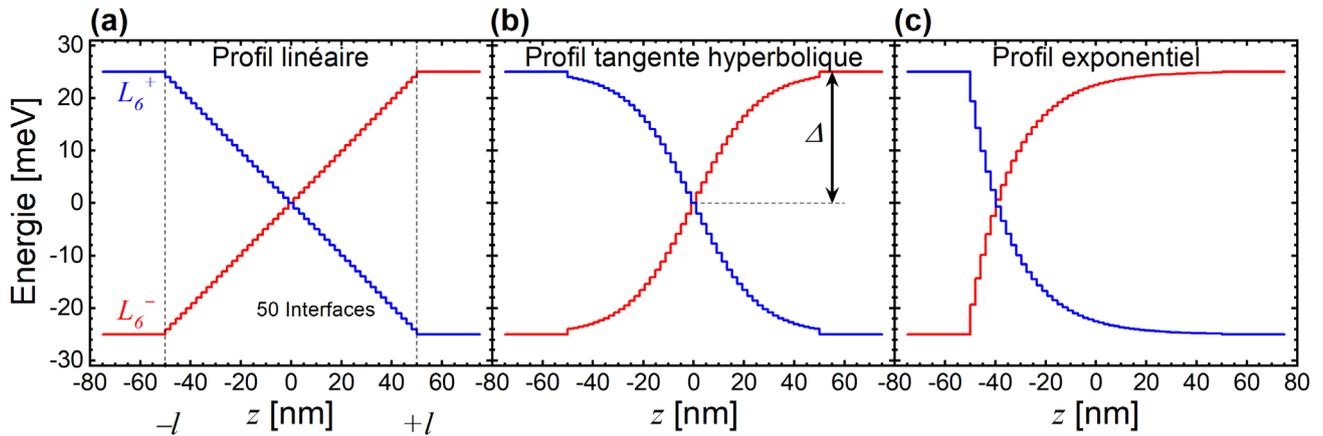


Figure A-2. Variation de l'énergie des bas de bandes en fonction de z selon une fonction linéaire (a), tangente hyperbolique (b) et exponentielle (c). L'extrema de la bande L_6^+ (L_6^-) est tracé en bleu (rouge).

On considère des fonctions enveloppes par morceaux ψ_p comme somme d'une onde venant de la droite et d'une onde venant de la gauche. Elles sont solutions du problème sur les composantes α :

$$\psi_p(z) = A_p \begin{pmatrix} f \\ g \end{pmatrix} e^{ik_p z} + B_p \begin{pmatrix} F \\ G \end{pmatrix} e^{-ik_p z} \quad \text{avec} \quad k_p = \begin{cases} \frac{1}{\hbar v_z} \sqrt{E^2 - \Delta_p^2}, & |E| > |\Delta_p| \\ \frac{i}{\hbar v_z} \sqrt{\Delta_p^2 - E^2}, & |E| < |\Delta_p| \end{cases}$$

Les constantes A_p et B_p sont à déterminer avec les conditions aux limites. Si l'on injecte ces solutions dans l'hamiltonien \mathcal{H}_α , on trouve les relations suivantes :

$$\frac{f}{g} = -\frac{F}{G} = \frac{\hbar v_z k_p}{E + \Delta_p}$$

Les fonctions enveloppes s'écrivent finalement :

$$\psi_p = A_p \begin{pmatrix} \frac{\hbar v_z k_p}{E + \Delta_p} \\ 1 \end{pmatrix} e^{ik_p z} + B_p \begin{pmatrix} -\frac{\hbar v_z k_p}{E + \Delta_p} \\ 1 \end{pmatrix} e^{-ik_p z}$$

Les conditions aux limites sont appliquées numériquement à cette fonction pour chaque interface. Les fonctions enveloppes doivent s'annuler dans les matériaux massifs de part et d'autre de l'interface graduelle. Ce calcul numérique aboutit aux énergies des états confinés de l'interface à $k_{\parallel} = 0$ et leur fonction enveloppe associée. Ces résultats sont montrés sur la Fig. A-3 en utilisant les paramètres du Tableau I et un profil linéaire.

Tableau I. Paramètres utilisés pour les calculs de cette annexe.

$2l$ [nm]	Δ [meV]	v_z [m/s]	N
100	25	4.50×10^5	50

L'énergie des états confinés à $k_{\parallel} = 0$ a été calculé en variant l'épaisseur de l'interface (voir Fig. A-3(a)). Quel que soit cette dernière, un état à $E = 0$ est trouvé : c'est l'état topologique de surface (ETS). Ici, l'interface bien que graduelle est unique et donc aucune hybridation n'est possible comme c'était le cas dans le chapitre III. Un gap d'hybridation n'a pas lieu d'être, c'est pourquoi cet état se trouve au milieu du gap des deux matériaux massifs. Il est plus surprenant de trouver des états liés supplémentaires à plus haute et plus basse énergie. Ces états émergent à mesure que l'interface graduelle est élargie. Ce sont les états prédits par Volkov et Pankratov (EVP). Ils ont une énergie de gap non nulle donc sont considérés comme des états massifs. Il a été montré que le nombre de ces états est à peu près égal à la partie entière de $2l/\lambda$, où $\lambda = \Delta/\hbar v_z$ est la longueur caractéristique des états topologiques de surface (voir partie I.ii.b du chapitre III).¹⁰⁷ En plus de tous ces états liés à l'interface, le système admet pour $|z| > l$ les états massifs formant les bandes L_6^{\pm} .

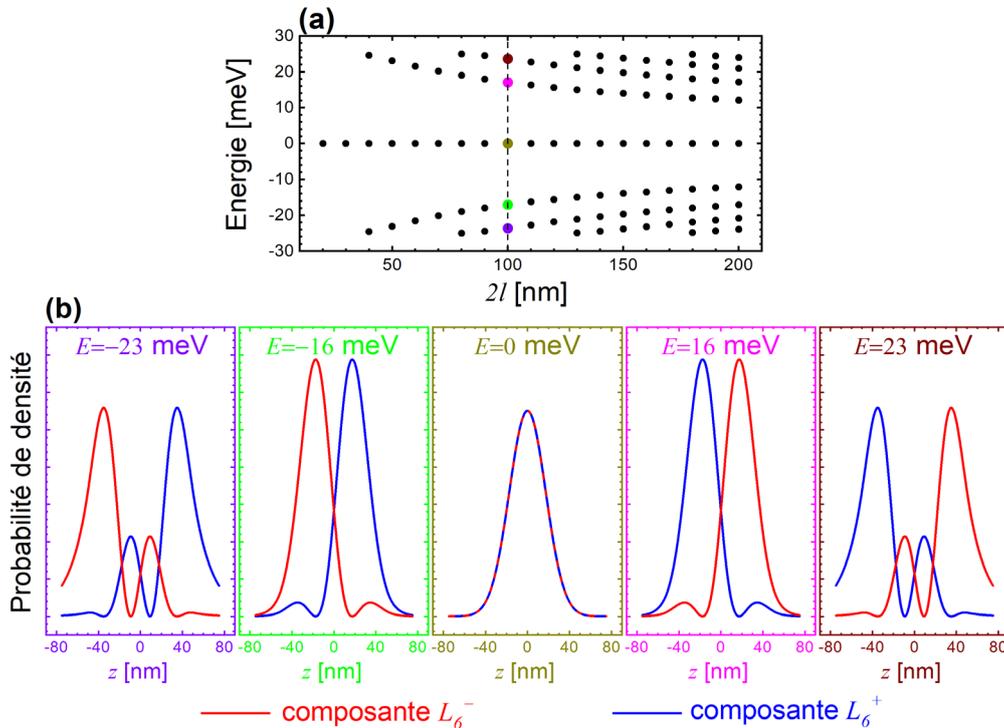


Figure A-3. (a) Evolution des énergies à $k_{\parallel} = 0$ en fonction de l'épaisseur de l'interface graduelle linéaire. La ligne pointillée indique le cas étudié en détail : celui pour lequel $2l = 100$ nm. (b) Composantes L_6^+ (bleu) et L_6^- (rouge) des fonctions enveloppes des 4 EVP et de l'ETS obtenus à $2l = 100$ nm.

Les deux composantes des fonctions enveloppes de chaque état sont représentées sur la Fig. A-3(b) pour $2l = 100$ nm. Les EVP ont leur composante L_6^+ et L_6^- séparées dans l'espace réel et plus leur énergie est proche de $\pm\Delta$, plus leur densité de probabilité est importante dans les matériaux massifs ($|z| > l$). De plus, les deux composantes ont la même amplitude. On peut remarquer que la densité de probabilité de l'ETS est délocalisée sur toute l'épaisseur de l'interface.

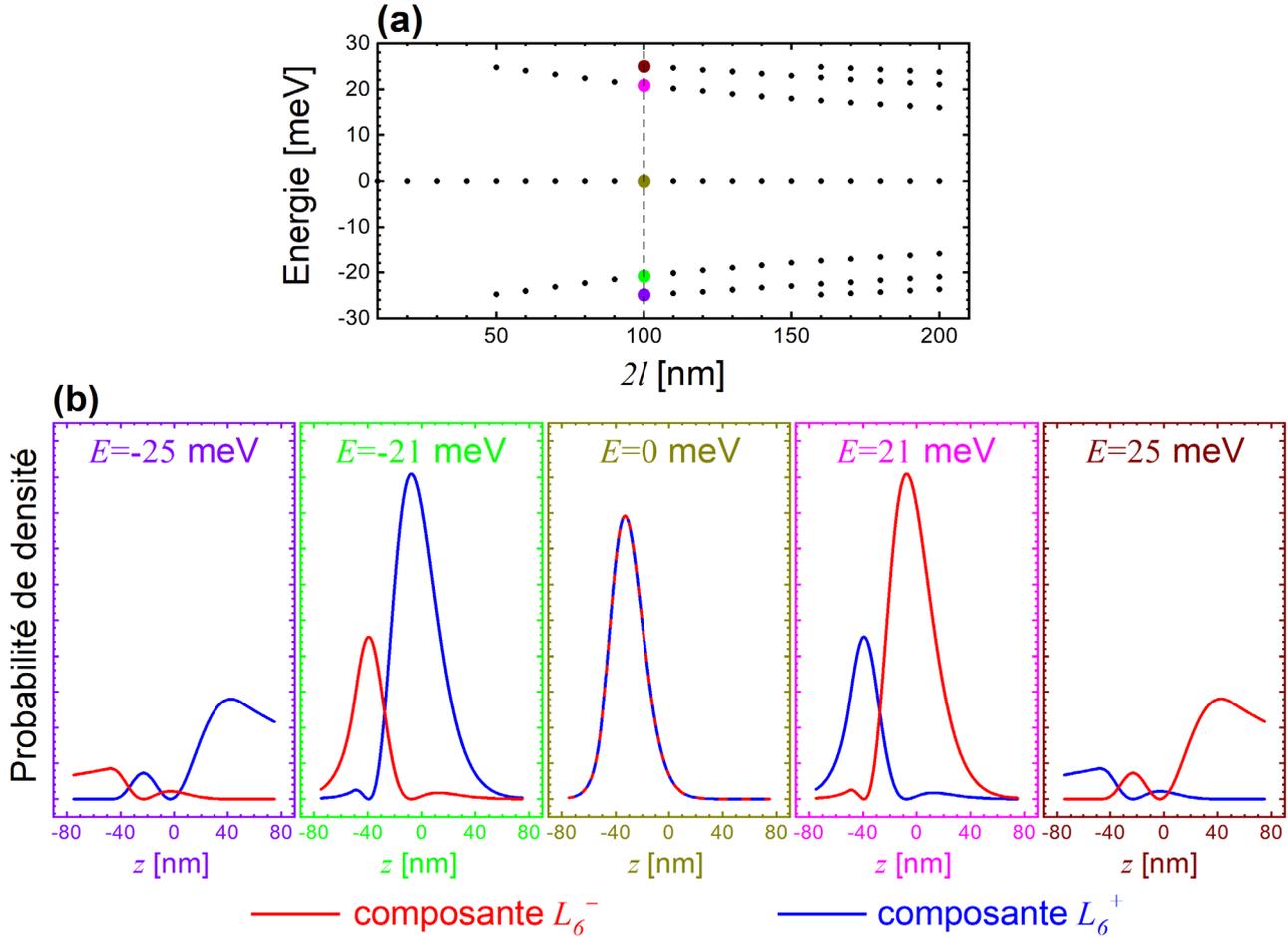


Figure A-4. (a) Evolution des énergies à $k_{\parallel} = 0$ en fonction de l'épaisseur de l'interface graduelle au profil exponentiel. La ligne pointillé indique le cas étudié en détail : celui pour lequel $2l = 100$ nm. (b) Composantes L_6^+ (bleu) et L_6^- (rouge) des fonctions enveloppes des 4 EVP et de l'ETS obtenus à $2l = 100$ nm.

Les résultats obtenus pour un profil de tangente hyperbolique sont très similaires à ceux de la Fig. A-3, qui viennent d'un potentiel linéaire. Le même type de résultats est montré sur la Fig. A-4 pour un profil de potentiel asymétrique en z : le profil exponentiel. Les énergies des EVP sont plus éloignées du milieu du gap $E = 0$. Les fonctions d'onde sont asymétriques en z contrairement à celles obtenues en prenant les deux autres profils. On remarque sur la Fig. A-3 que le mélange de symétrie L_6^{\pm} est équilibré, ce qui n'est pas le cas pour le profil exponentiel (voir Fig. A-4). La densité de probabilité de l'ETS est toujours piquée au point de croisement des potentiels L_6^{\pm} , qui n'est plus à $z = 0$. Le mélange de symétrie de l'ETS est, lui, toujours de 50/50.

La résolution du problème sur la composante β est identique, ce qui veut dire que tous les EVP et l'ETS sont dégénérés de spin à $k_{\parallel} = 0$. Pour $k_{\parallel} \neq 0$, l'ETS est le seul état qui devient simplement dégénéré. En effet, on peut résoudre le problème pour $k_{\parallel} \neq 0$ comme il a été fait pour les puits quantiques et les superréseaux. La dispersion en k_x et les fonctions enveloppes à $k_x \neq 0$ pour les quatre EVP et les deux ETS sont montrés sur la

Fig. A-5 pour $2l = 100$ nm et un profil tangente hyperbolique. La dispersion des ETS est linéaire ; c'est un cône de Dirac dont les deux branches d'énergie $\pm \hbar v_{\parallel} k_x$ sont simplement dégénérées (voir Fig. A-5(b)). L'ETS d'une interface graduelle forme donc un cône de Weyl.¹⁰⁶ Ce résultat diffère de ceux obtenus dans les puits quantiques, dans lesquels l'hybridation entre les deux interfaces imposait des ETS doublement dégénérés même à $k_x \neq 0$.

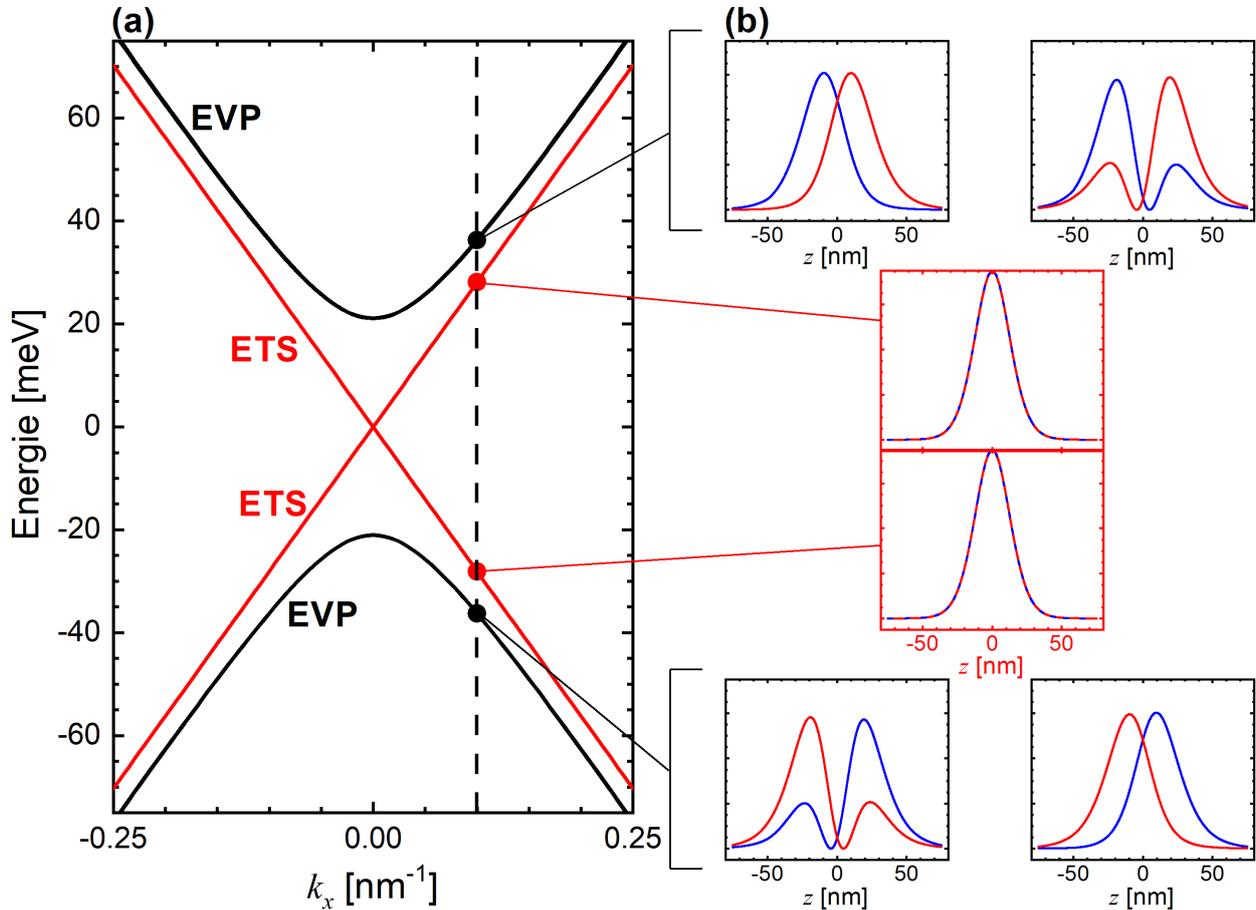


Figure A-5. (a) Dispersion selon k_x ($k_y = 0$) des EVP (en noir) et des ETS (en rouge) calculée pour $2l = 100$ nm et un potentiel à la forme de tangente hyperbolique. (b) Composantes L_0^+ (en bleu) et L_0^- (en rouge) des fonctions enveloppes des EVP et ETS calculées à $k_x = 0.1 \text{ nm}^{-1}$. Les ETS sont simplement dégénérés.

En résumé, ce système pourrait être une très bonne alternative pour accéder expérimentalement aux ETS. En effet, cet état est délocalisé sur toute l'épaisseur de l'interface graduelle. L'absorption étant dépendante de l'épaisseur traversée par le rayon incident, la signature magnéto-optique des ETS est attendue comme étant non-négligeable.¹⁰⁷ De plus, ce système offre une différence majeure avec les puits quantiques et les superréseaux : l'ETS est simplement dégénéré et sa dispersion est un cône de Weyl. Ceci peut aboutir à des propriétés différentes, notamment concernant le spin de l'électron.

Annexe B – Détermination de la structure de bande d'un semi-métal de Dirac 3D : Cd₃As₂

L'étude de la structure de bande du matériau Cd₃As₂ a été effectuée durant cette thèse grâce à la magnéto-optique. Ce sujet est en collaboration avec l'Université de Santa-Barbara en Californie. L'équipe sous la direction de S. Stemmer est experte de la croissance MBE de films de Cd₃As₂. Les films sont minces (typiquement 200 nm d'épaisseur) et de bonne qualité. La mobilité à basse température atteint 40000 cm²/V.s et la densité de porteur est de l'ordre de 10¹⁷ cm⁻³.^{108,109}

L'allure de la structure de bande de ce semi-métal de Dirac 3D a été introduite au chapitre I. Grâce à sa maille tétragonale, le bas de la bande Γ_8^l passe en dessous du sommet de la bande Γ_8^h , formant ainsi deux cônes de Dirac à $k_z = \pm k_0$ et $k_{||} = 0$. C'est l'effet correspondant à une élongation du paramètre de maille selon z (perpendiculairement au plan des couches). Cette déformation cristalline lève la dégénérescence des orbitales de type p : l'énergie de Z est décalée de $-\delta$ par rapport aux orbitales X et Y . De plus, l'élément de matrice de Kane est différent selon les orbitales p : $P = \langle S|p_x|X \rangle = \langle S|p_y|Y \rangle \neq \langle S|p_z|Z \rangle = P_z$. Les surfaces d'énergie constante sont donc des ellipsoïdes et le système est anisotrope. Le résultat est que la bande Γ_8^l est décalée par rapport à Γ_8^h d'une énergie $-2\delta/3$ à $k_{||} = 0$.⁴⁴ De la valeur de δ dépend fortement la localisation des nœuds de Dirac $\pm k_0$ qui donnent les nœuds de Weyl sous un champ magnétique.¹¹⁰ Il est donc essentiel de le déterminer très précisément, ce qui a été fait dans l'article qui suit. En suivant l'évolution de l'énergie des résonances cyclotrons en fonction de l'angle azimutal, une valeur très précise de δ a été déduite sans ambiguïté.

Cette étude a été réalisée sur des films de Cd₃As₂ orientés selon [112] et relaxés sur un substrat GaSb. Or, comme δ provient d'une élongation de la maille selon z , ce qui est équivalent à une contrainte compressive biaxiale dans le plan, on peut penser que ce paramètre dépend fortement de l'état de contrainte du matériau. Des résultats préliminaires mais très prometteurs ont été établis sur des films de Cd₃As₂ orientés [001] sur un substrat Al_{1-x}In_xSb en accord de paramètre de maille ou induisant une légère contrainte. La levée de dégénérescence des bandes $\Gamma_8^{l,h}$ semble plus importante, menant à des cônes de Dirac plus espacés et donc plus discernables par l'expérience. L'ingénierie de croissance et la caractérisation par la magnéto-optique permet de trouver les conditions optimales pour exprimer les phases exotiques de la matière.

Determination of the crystal field splitting energy in Cd₃As₂ using magnetoopticsG. Krizman,¹ T. Schumann,² S. Tchoumakov,³ B. A. Assaf,^{1,4} S. Stemmer,² L. A. de Vaulchier,¹ and Y. Guldner¹¹*Laboratoire de Physique de l'École normale supérieure, ENS, Université PSL, CNRS, Sorbonne Université, 24 Rue Lhomond 75005 Paris, France*²*Materials Department, University of California, Santa Barbara, California 93106, USA*³*Département de Physique, Université de Montréal, Québec, H3C 3J7, Canada*⁴*Department of Physics, University of Notre Dame, Notre Dame, Indiana 46556, USA* (Received 11 June 2019; revised manuscript received 18 September 2019; published 18 October 2019)

Symmetry considerations are of extreme importance to the topological properties of crystals. A crystal field splitting δ yields Dirac nodes near the Brillouin zone center in Cd₃As₂, but its value has yet to be determined with precision. We study the band structure of Cd₃As₂ using magneto-optical infrared spectroscopy measurements on epilayers with low carrier density grown by molecular beam epitaxy. By combining angular dependent cyclotron resonance with Landau level spectroscopy measurements in the Faraday geometry, we determine that δ is positive and equal to 15 ± 5 meV in Cd₃As₂. Our results lead to a more accurate knowledge of the details of the band structure of this Dirac semimetal such as the position its Dirac nodes in momentum space and their splitting into Weyl nodes under a magnetic field.

DOI: [10.1103/PhysRevB.100.155205](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.155205)**I. INTRODUCTION**

It is well established that Cd₃As₂ is a three-dimensional semimetal [1–12]. Experimental measurements on this material have unambiguously revealed the presence of electrons with ultralow effective mass ($<0.03m_0$) [3,13] and record high mobility ($\sim 10^5$ cm²/Vs) in single crystals [1]. A magnetic field was argued to yield Weyl fermions in Cd₃As₂ [14,15]. As a result, a large number of transport studies have been performed on Cd₃As₂ at high magnetic fields to probe the shape of the Fermi surface, the Fermi arcs, and other possible signatures of Weyl fermions [16–23]. Cd₃As₂ is generally *n*-doped due to native defects [7,24]. Achieving charge neutrality in the bulk system has proven difficult. The details of the band dispersion in the vicinity of Dirac nodes thus remained poorly understood. Such details of the band dispersion are essential to understand and control the chiral behavior of any possible Weyl fermions arising in Cd₃As₂.

Several theoretical models consistently consider the band dispersion of Cd₃As₂ to be dominated by the *s-p* interaction of energy bands in the vicinity of the Γ point, as in the case of III-V semiconductors [6,25–28]. However, contrary to the III-V family, which is cubic, Cd₃As₂ has a tetragonal crystal structure. This tetragonal lattice distortion introduces a crystal field splitting that raises the heavy hole band above the conduction band at the Γ point yielding two stable band crossings at $\pm k_0$ along the k_z direction [12,26,28]. This description is qualitatively identical in many of the theoretical works that have been so far published on Cd₃As₂. Quantitatively, the exact value of the band parameters, most notably the *s-p* gap E_g , the crystal field splitting δ , the $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ matrix element along the tetragonal axis and its anisotropy differ in different theoretical studies and experimental measurements are required to constrain them.

Previous magneto-optical measurements have attempted to independently measure these four parameters and have succeeded in providing a reliable upper bound for δ given E_g and the matrix element [6,29]. It is challenging to accurately determine the four parameters independently since the Fermi energy in Cd₃As₂ is generally on the order of E_g and likely larger than δ [29]. Also, while previous angular resolved photoemission and scanning tunneling microscopy experiments have measured the Dirac velocity of Cd₃As₂ [3,8], the surface sensitive character of these methods, and their lack of precision close to the 10 meV range, makes it difficult to employ them to study the three-dimensional (3D) dispersion of Cd₃As₂.

In this work, we build on the improved quality obtained from growing epilayers of (112)-oriented Cd₃As₂ by molecular beam epitaxy (MBE) on GaSb/GaAs (111) substrates to study the 3D band structure of Cd₃As₂ near the Γ point [30]. Using a combination of magneto-optical infrared spectroscopy with $\mathbf{B} \perp (112)$ and angular dependent cyclotron resonance measurements, we are able to accurately extract E_g , δ , the matrix element in the (001) plane P_{\perp} and the anisotropy of the matrix element η^2 (defined later on). The determination of the four parameters is of major importance to further study the impact of magnetic field on the band dispersion of Cd₃As₂ and its role in promoting or suppressing Weyl fermions.

II. RESULTS**A. Magneto-optical spectroscopy with perpendicular magnetic field**

Magneto-optical infrared spectroscopy measurements are performed up to 15 T and for energies up to 500 meV using the setup described in our previous work [31]. Spectra are taken at 4.2 K and in the Faraday geometry. In this configuration,

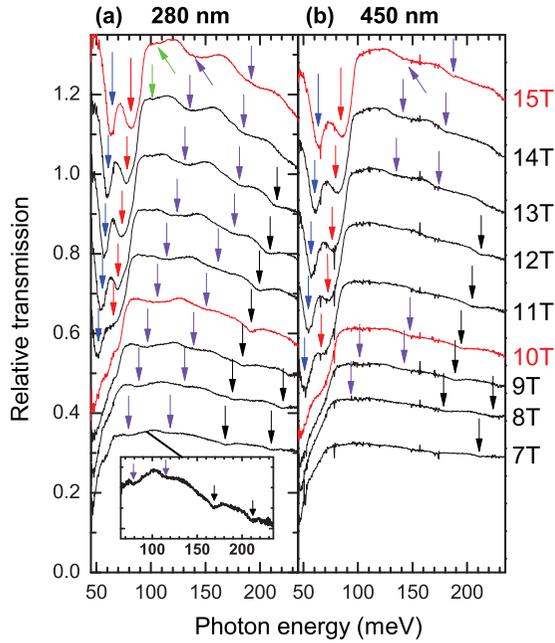


FIG. 1. Magneto-optical spectra in the midinfrared for magnetic fields between 7 and 15 T measured in a 280 nm (a) and a 450 nm (b) Cd_3As_2 epilayer. Transmission minima are marked by colored arrows: blue and red denote two cyclotron resonance transitions, purple and black denote two series of interband transitions, and green stands for the combined resonance. The inset in (a) is a vertical zoom ($\times 3$) of the 7 T spectrum.

conventional dipole selection rules yield transitions between Landau levels of identical spin and indices different by 1. We first focus on measurements taken with the magnetic field along the [221] direction, which corresponds to the normal of the (112) plane in a tetragonal structure. Results for two epilayers (280- and 450-nm thick) are shown in Figs. 1(a)

and 1(b), respectively. Several transmission minima that shift to higher energy with increasing field are observed. They correspond to optical transitions between Landau levels. Spectra consist of two dominant absorptions marked by the blue and red arrows and several transmission minima of smaller amplitude.

Figures 2(a) and 2(b) show the transition fan charts obtained by pin-pointing the energy position of the minima seen in Figs. 1(a) and 2(b) (dots). The blue and red transitions behave like cyclotron resonance lines of nonparabolic materials and exhibit a nonlinear variation with magnetic field. In addition, the purple and black series likely extrapolate to two different energies at the zero magnetic field evidencing the presence of at least three energy bands contributing optical transitions near the band edges. To further analyze the Landau levels of Cd_3As_2 , a precise description of its band structure near the Γ point is required.

B. $k \cdot p$ model for Landau levels

Cd_3As_2 is a tetragonal material with a rotational invariance along [001], parallel to the z axis in the following. The Cd_3As_2 band structure has been obtained by DFT calculations [9,12,32] or by using a modified 8-band Kane model [6,25,26]. To compute the Landau levels, a low energy $k \cdot p$ model is required. As detailed in Appendix A, the Kane Hamiltonian for cubic symmetry can be used to describe the Landau levels of tetragonal Cd_3As_2 by adding a parameter δ that represents the crystal field splitting of the p bands [25,26]. In the Kane model, an s -like band is typically separated from a degenerate p -like band by an energy gap E_g . In Cd_3As_2 , $E_g < 0$, meaning that the s -level is a valence band. Without the crystal field splitting, the band structure resembles that of semimetallic HgTe [33], with two p bands touching at the Γ point. The p levels are spin-orbit split with an energy Δ_{SO} fixed to 400 meV in this work. One of those is a light $p^{\pm 1/2}$ level that constitutes the conduction band and the second is a

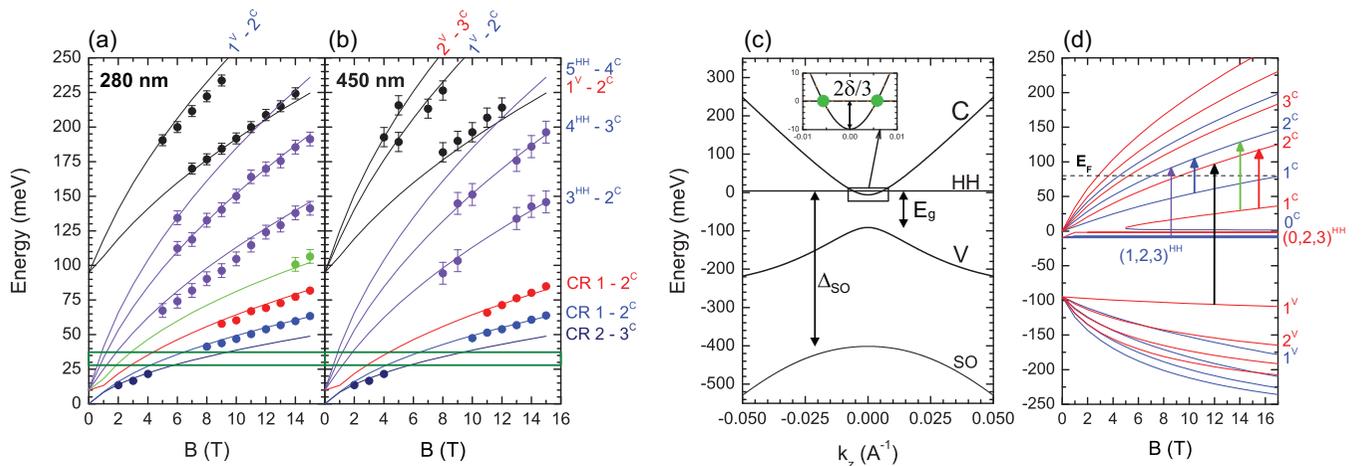


FIG. 2. Magneto-optical fan chart for (a) a 280 nm and (b) a 450-nm Cd_3As_2 epilayer at 4.2 K. Error bars correspond to the full width at half maximum of the absorptions. (c) Energy dispersion (E vs k_z) computed using the parameters obtained from the experimental fit. A zoom-in is shown in the insert with the two Dirac points in green. (d) Landau level energy at $q_B = 0$ versus magnetic field along [221]. Red and blue curves represent the different Zeeman components. Blue and red arrows denote CR $1^{\text{C}} - 2^{\text{C}}$ for opposite spin quantum number. The lowest observed interband transitions for V-C and HH-C are shown as black and violet arrows, respectively. The combined resonance is shown as a green arrow.

heavy (quasi-flat) $p^{\pm 3/2}$ level that yields a valence band. The value and sign of δ shift the $p^{\pm 3/2}$ valence band with respect to the $p^{\pm 1/2}$ conduction band. If $\delta > 0$, the conduction and valence band cross at two k points yielding two Dirac cones. In this model, in addition to E_g and δ , the band dispersion is mainly governed by the Kane matrix elements P_{\parallel} in the [001] direction and P_{\perp} in the (001) plane. They are related by the anisotropy factor $\eta^2 = P_{\perp}/P_{\parallel}$.

The band structure (E vs k_z) resulting from this model is shown in Fig. 2(c). Qualitatively, this model agrees with previous DFT and $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ treatments at low energy in the vicinity of the Γ point. In particular, the origin of the two Dirac nodes in Cd_3As_2 in this model is similar to that discussed by Wang *et al.* and Cano *et al.* in their theoretical work where a four-band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ Hamiltonian with far bands is used [12,28]. The main limitation of our description is the neglected role of the far bands that yield the finite curvature of the heavy-hole band. We thus follow the convention of Ref. [6] and set

$$\gamma(E) = \frac{\text{sign}(f_{1\theta_z}(E))eB(2n+1)}{\hbar} \sqrt{f_{1\theta_z}(E)[\cos(\alpha)^2 f_{1\theta_z}(E) + \sin(\alpha)^2 f_{2\theta_z}(E)]} + \frac{f_{1\theta_z}(E)f_{2\theta_z}(E)}{\cos(\alpha)^2 f_{1\theta_z}(E) + \sin(\alpha)^2 f_{2\theta_z}(E)} q_B^2 \pm \frac{P_{\perp}eB\Delta_{SO}}{3\hbar} \sqrt{P_{\perp}^2 \cos(\theta_z)^2 (E + \delta)^2 + E^2 P_{\parallel}^2 \sin(\theta_z)^2}, \quad (1)$$

where we have introduced the following notations:

$$\alpha = \arctan[\eta^2 \tan\theta_z],$$

$$P = \sqrt{|P_{\perp}^2 \cos(\alpha) \cos(\theta_z) + P_{\parallel} P_{\perp} \sin(\alpha) \sin(\theta_z)|},$$

$$\gamma(E) = E(E - E_g)[E(E + \Delta_{SO}) + \delta(E + 2\Delta_{SO}/3)],$$

$$f_{1\theta_z}(E) = P^2[E(E + 2\Delta_{SO}/3) + \delta(E + \Delta_{SO}/3)],$$

$$f_{2\theta_z}(E) = P^2 E(E + 2\Delta_{SO}/3).$$

Here, n is the Landau level index, and q_B is the wave vector along the magnetic field. Eq. (1) shows a Zeeman-like band splitting (the term in front of \pm). By numerically solving Eq. (1) for each n value, we obtain the Landau level energies. Figure 2(d) shows the computed Landau levels at $q_B = 0$ for $\mathbf{B} // [221]$. Two types of transitions are of interest to this work: the interband transitions in violet and black, and the intraband transitions (or cyclotron resonances (CR)) in red and blue. The combined resonance (CombR) shown in green is discussed later. The calculated transition energies are shown by solid lines in Figs. 2(a) and 2(b). Good agreement is found for $|E_g| = 95 \pm 5$ meV, $P_{\perp} = 7.96 \pm 0.25$ eV.Å, $|\delta| = 15 \pm 15$ meV and $\eta^2 = 1.20 \pm 0.05$. A Fermi energy of 70 meV for the 280-nm sample and 80 meV for the 450-nm sample can also be deduced by looking at the field where the 2^c level in Fig. 2(d) crosses the Fermi energy and activate the red CR, shown in Figs. 2(a) and 2(b). Indeed the cyclotron resonance can only be observed when the final level is unoccupied, i.e., above 9 T in the 280-nm sample and above 11 T in the 450-nm sample. In Fig. 2(d), notice that the 0^c and 1^c levels start only at 5 T. This is an artefact of our model with a flat heavy-hole band that yields an open Fermi surface close

to the band crossing. This prevents quantization for certain directions of magnetic field and can be avoided by accounting for a finite heavy-hole mass (Appendix B). We do not observe any transitions involving those levels near 5 T, therefore, this issue does not influence our analysis.

Our determination of E_g and P_{\perp} are complementary to the recent work on Cd_3As_2 . The precision in the determination of both parameters is a result of improved sample quality. To get a comparative view between our parameters and those determined from magnetotransport measurements, we extract the Kane velocity from the Kane matrix element:

$$v_{\perp} = \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{P_{\perp}}{\hbar} = 9.9 \times 10^5 \frac{\text{m}}{\text{s}}.$$

The high velocity of the conduction band carriers in Cd_3As_2 and the small value of $|E_g|$ are necessary requirements to obtain a low carrier cyclotron mass. The latter is needed to accurately fit the two dominant CR transitions we observed [see Figs. 2(a) and 2(b)]. Our determination of v_{\perp} agrees with previous magneto-optical, [6] angle resolved photoemission and scanning tunneling microscopy measurements [3]. The anisotropy factor also agrees with previous Shubnikov-de Haas measurements [13]. The value of δ determined from the fit to the fan-chart lacks precision. Any value between -30 and 30 meV would agree with our data. If $\delta < 0$, the bands do not intersect and the Dirac nodes predicted for Cd_3As_2 cannot exist [12].

C. Angular dependent cyclotron resonance

To improve our determination of δ , we carried out additional measurements of the angular dependence of the

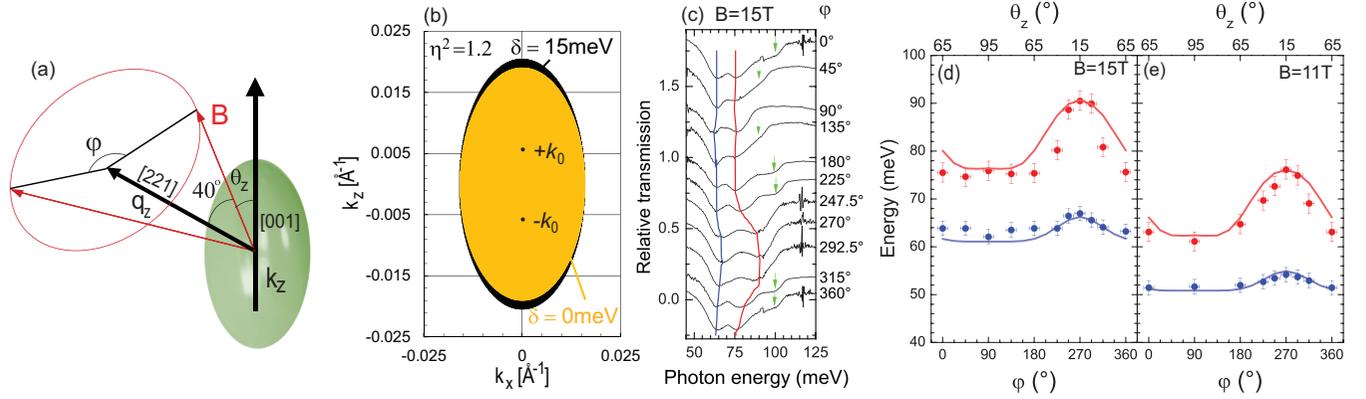


FIG. 3. (a) Ellipsoidal Fermi surface illustrating the measurement geometry used for the angular dependence. (b) Projected Fermi surface computed for $\delta = 0$ meV (yellow) and $\delta = 15$ meV (black) for $\eta^2 = 1.20$ and $E_F = 70$ meV. (c) Magneto-optical spectra taken at different φ at $B = 15$ T and $\theta = 40^\circ$. The blue and red guide-for-the-eyes show the variation of the cyclotron energy [$1-2^c$ (blue) and CR $1-2^c$ (red)] versus φ , which is also represented by the dots in (d) for $B = 15$ T and in (e) for $B = 11$ T. The red and blue solid lines in (d) and (e) are the calculated azimuthal variation of the CR energies.

cyclotron resonance lines. As represented in Fig. 3(a), tilting \mathbf{B} by an angle $\theta = 40^\circ$ with respect to the normal of the sample surface, we can vary θ_z (the angle between $[001]$ and \mathbf{B}) by rotating the sample about its surface normal by an azimuthal angle φ . We can thus check the anisotropy of the CR masses. In this geometry, θ_z is related to φ by the following expression:

$$\cos(\theta_z) = \cos(\theta_0) \cos(\theta) - \sin(\varphi) \sin(\theta_0) \sin(\theta). \quad (2)$$

θ_0 is the angle between $[221]$ and $[001]$. It can be shown (Appendix C) that δ impacts the shape of the Fermi surface and increases its anisotropy along the k_z momentum direction. For $\delta \geq 0$, the position of the Dirac points along the Z- Γ -Z direction $\pm k_0$ is well approximated by [20]

$$k_0 = \sqrt{|E_g| \delta / P_{\parallel}^2}.$$

Therefore, if δ is increased, k_0 increases and the two Dirac fermion valleys move further apart. δ also impacts the shape of the Fermi surface and increases its anisotropy along the k_z momentum direction. Figure 3(b) shows the anisotropy of the Fermi surface computed for $\delta = 0$ and $\delta = 15$ meV for a fixed $\eta^2 = 1.20$. In addition to the matrix element anisotropy factor η^2 , δ yields an additional source of anisotropy. This is a consequence of δ altering the cyclotron mass along the tetragonal direction. We can measure this effect by probing the anisotropy of the cyclotron resonance observed in our experiment. The fact that we are able to resolve two different cyclotron resonance transitions occurring at different energies allows us to disentangle the effect of δ and η^2 on the anisotropy using angular dependent CR measurements.

Figure 3(c) shows magneto-optical spectra taken at 15 T at different φ angles for fixed $\theta = 40^\circ$. The blue and red solid lines mark the transmission minima associated with CR $1-2^c$ (blue) and CR $1-2^c$ (red). Their energy variation as a function of φ is shown by the dots in Figs. 3(d) and 3(e). A peak is observed at $\varphi = 270^\circ$ for both transitions corresponding to an angle $\theta_z = 15^\circ$ following Eq. (2). A minimal cyclotron mass is thus obtained for \mathbf{B} aligned closest to $[001]$. To quantify this

angular variation, we solve the secular equation [Eq. (1)] for different angles θ_z . The resulting Landau levels are then used to compute the CR energies that are compared to the data. The computed angular dependent CR energies are compared to the data in Figs. 3(d) and 3(e) at $B = 15$ and 11 T respectively. Using the two cyclotron resonances observed in the experiment, η^2 and δ are determined independently. The calculated maximum of the peak observed in Figs. 3(d) and 3(e) is found to depend significantly on δ and the solid lines in Figs. 3(d) and 3(e) show the best fit obtained with $\eta^2 = 1.20 \pm 0.02$ and $\delta = 15 \pm 5$ meV. To illustrate the strong δ dependence of the CR $1-2^c$ (red) for various δ magnitude and sign at $B = 11$ T.

Lastly, an additional absorption line marked by green arrows is observed in Fig. 3(c). It vanishes for specific φ values. This absorption is attributed to the combined resonance ComBR [the intraband transition 1^c (red)- 2^c (blue)],

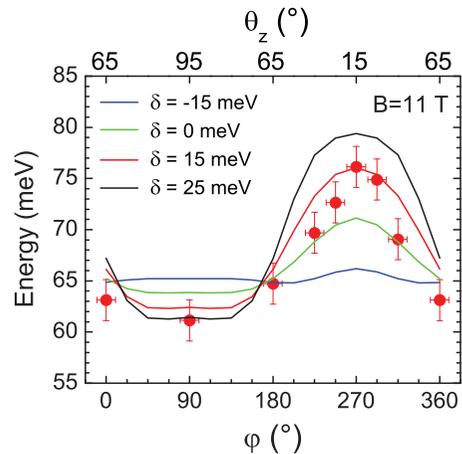


FIG. 4. Calculated angular dependence of the CR $1-2^c$ (red) at $B = 11$ T for different magnitude and sign for δ (solid lines). The best agreement with experimental data (in red dots) is obtained for $\delta = +15$ meV.

TABLE I. Band parameters for Cd₃As₂ obtained in this work using a Kane model. Δ_{SO} is fixed at 400 meV.

E_g [meV]	P_{\perp} [eV.Å]	η^2	δ [meV]	Δ_{SO} [meV]
-95 ± 5	7.96 ± 0.25	$1.20 \pm .02$	15 ± 5	400

also shown in green in Fig. 2(d). CombR is allowed due to the existence of an interspin coupling term appearing in the off-diagonal of the Hamiltonian. These terms are proportional to $\sin[2 \arctan(\eta^2 \tan \theta_z)]$, as shown in Appendix D. The interspin coupling is hence suppressed for $\theta_z = 0^\circ$ and $\theta_z = 90^\circ$, corresponding to $\varphi = 90^\circ$ and $\varphi = 270^\circ$ from Eq. (2). For this reason, CombR cannot be observed in data shown in Fig. 3(c) around these two angles.

III. DISCUSSION

Our measurements determine precise low energy band parameters for Cd₃As₂. We demonstrate that $\delta > 0$, implying the presence of two band crossings near the Γ point. Our value of δ agrees with the upper bound determined by previous magneto-optical measurements, [6,29] and with the value found in recent density functional theory calculation [32]. With δ small, and with E_g also small, we expect the two band crossing points to be separated by $2k_0 = 0.012 \text{ \AA}^{-1}$ at $B = 0$. The heavy-hole mass is not known, but its impact of the Weyl nodes is minimal, given the very light conduction electrons (see Appendix B). However, we believe that additional studies are required to elucidate the impact of the magnetic field on promoting or suppressing possible Weyl nodes. It is also important to mention that strain may have a significant influence on the value of δ . However, from previous studies on the MBE growth of Cd₃As₂ on GaSb [34,35], we can conclude that the thick epilayers studied in this work are relaxed to the bulk crystal structure.

In conclusion, we have used magneto-optical spectroscopy to study the band structure parameters of Cd₃As₂, and have

succeeded in establishing that $\delta = 15 \pm 5$ meV. The band parameters extracted from this study are shown in Table I. The behavior of the band structure of this material under a magnetic field has been a subject of considerable debate. Recent works have argued that at high magnetic field, carriers in Cd₃As₂ are perfectly described by the Kane model, and only for $E_F \sim \delta$ one can observe Dirac or Weyl fermions [6,29]. Our measurements corroborate this result but also establish the necessary presence of a nonzero crystal field splitting in Cd₃As₂ whose presence yields Weyl fermions under a magnetic field. Additional measurements will be required to investigate the exact magnetic field range required for Weyl fermions to arise and the exact magnetic field at which they might annihilate. Those measurements will be of great interest to understand the behavior of the quantum Hall effect recently observed in Cd₃As₂ quantum wells [35–39].

ACKNOWLEDGMENTS

Work at ENS is partially supported by ANR-LabEx grant ENS-ICFP ANR-10-LABX-0010/ANR-10-IDEX-0001-02PSL. Work at UCSB is supported through the Vannevar Bush Faculty Fellowship program by the US Department of Defense (Grant No. N00014-16-1-2814). T.S. and S.S. thank L. Galletti and D. Kealhofer for discussions. B.A.A. and G.K. acknowledge discussions with B. Bradlyn and J. Cano about the Kane model.

APPENDIX A: DESCRIPTION OF THE TETRAGONAL Cd₃As₂ BAND STRUCTURE BY A MODIFIED EIGHT-BAND KANE MODEL

The Cd₃As₂ band structure near the Γ point can be described by a $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ model, which extends the Kane model for cubic symmetry with an additional tetragonal crystal field splitting δ along the [001] direction [25,26]. The rotational symmetry along this axis prevents the band hybridization in this direction and allows the existence of Dirac nodes if two bands cross. The band structure in the vicinity of $\mathbf{k} = 0$ is described by the following Hamiltonian [6]:

$$H(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} E_g & P_{\perp}k_{-} & -P_{\perp}k_{+} & 0 & 0 & 0 & 0 & P_{\parallel}k_z \\ P_{\perp}k_{+} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -P_{\perp}k_{-} & 0 & -2\delta/3 & \sqrt{2}\Delta_{SO}/3 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{2}\Delta_{SO}/3 & -(\delta + \Delta_{SO}/3) & P_{\parallel}k_z & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P_{\parallel}k_z & E_g & P_{\perp}k_{+} & P_{\perp}k_{-} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & P_{\perp}k_{-} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & P_{\perp}k_{+} & 0 & -2\delta/3 & \sqrt{2}\Delta_{SO}/3 \\ P_{\parallel}k_z & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2}\Delta_{SO}/3 & -(\delta + \Delta_{SO}/3) \end{pmatrix}$$

in the basis $i|S \downarrow\rangle$, $|(X - iY) \downarrow\rangle/\sqrt{2}$, $-|(X + iY) \downarrow\rangle/\sqrt{2}$, $|Z \uparrow\rangle$, $i|S \uparrow\rangle$, $|(X + iY) \uparrow\rangle/\sqrt{2}$, $|(X - iY) \uparrow\rangle/\sqrt{2}$, $|Z \downarrow\rangle$ with the spin and k_z along the [001] direction. The five model parameters are E_g , P_{\parallel} , P_{\perp} , Δ_{SO} , and δ .

In this model, the light electron and hole bands are separated by the energy $E_g < 0$. The crystal field splitting $\delta > 0$

shifts the conduction band down in energy with respect to the heavy hole band yielding two stable crossing points along k_z . The heavy hole band is flat. This approximation holds for low-order Landau levels and energies close to the Γ point. The anisotropy of the constant energy surface can be simply evaluated by the factor $\eta^2 = P_{\perp}/P_{\parallel}$.

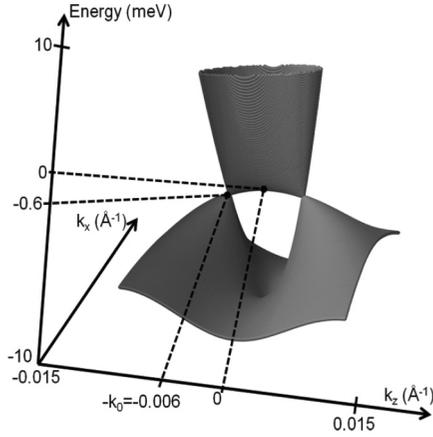


FIG. 5. Band dispersion of Cd_3As_2 in the vicinity of the Dirac cones with a heavy hole effective mass fixed at $0.1m_0$.

The resulting calculated band structure is quite similar to those obtained from DFT calculations when comparable band parameters are used [12].

APPENDIX B: REMOTE BAND EFFECT AND THE HEAVY HOLE EFFECTIVE MASS IN Cd_3As_2

In the $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ model developed above, the heavy hole band is flat. It acquires a negative curvature by taking into account the far-band effect following the method developed by Luttinger and Kohn [40]. Similarly to Pidgeon and Brown [41] for narrow-gap semiconductors (InSb, HgTe, ...), we modify the Hamiltonian $H(k)$ by introducing the parameters $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$ that represent the far-band interactions treated to k^2 order. We use the axial approximation: $\gamma_2 = \gamma_3 = \gamma$. The heavy hole band is then parabolic, and its effective mass is given by

$$\tilde{m}_{HH} = \frac{m_0}{\gamma_1 - 2\gamma}.$$

As an example, the resulting dispersion with $\tilde{m}_{HH} = 0.1m_0$ ($\gamma_1 = 2$ and $\gamma = -4$) is displayed in Fig. 5. All in all, the impact of the heavy hole effective mass on the position of the Dirac nodes and their energy scale is negligible when δ is small.

APPENDIX C: δ DEPENDENCE OF THE FERMI SURFACE ANISOTROPY

By solving the Hamiltonian $H(k)$, the constant energy ellipsoidal surfaces in the momentum space take the following form: [20,29]

$$1 = \frac{k_x^2 + k_y^2}{a^2} + \frac{k_z^2}{b^2},$$

where $a^2 = \frac{\gamma(E)P^2}{P_{\perp}^2 f_{10z}(E)}$ and $b^2 = \frac{\gamma(E)P^2}{P_{\parallel}^2 f_{20z}(E)}$ are the square of the two main axes of the ellipsoid. Therefore, the anisotropy

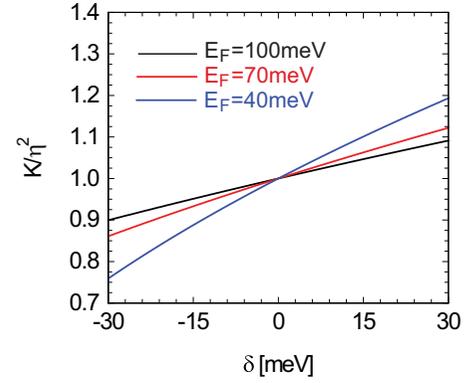


FIG. 6. Theoretical variation of K/η^2 with δ for three different Fermi energies. Curves are calculated using Eq. (3).

factor can be written as

$$K = \frac{b}{a} = \eta^2 \sqrt{1 + \frac{\delta(E + \Delta_{SO}/3)}{E(E + 2\Delta_{SO}/3)}}. \quad (3)$$

It is then clear that the anisotropy of the Fermi surface depends on both η^2 and δ . Figure 6 shows the variation of K/η^2 with δ for different Fermi energies. For $E_F = 70$ meV, the δ dependence of the Fermi surface anisotropy is still significant. Its contribution to the band dispersion of the Landau levels is also enhanced by spin-orbit corrections [last term in Eq. (1)]. This makes the determination of δ possible via the angular dependent measurements.

APPENDIX D: INTERSPIN COUPLING TERMS AND OBSERVATION OF THE COMBINED RESONANCE

It is possible to rotate the entire Hamiltonian $H(k)$ into a new coordinate system, in which the z axis coincides with the direction of the magnetic field [29]. This can be done by changing the momentum coordinates through the following transformation:

$$\begin{pmatrix} q_x \\ q_y \\ q_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{P_{\perp}}{P} \cos(\alpha) & 0 & -\frac{P_{\parallel}}{P} \sin(\alpha) \\ 0 & \frac{P_{\perp}}{P} & 0 \\ \frac{P_{\perp}}{P} \sin(\alpha) & 0 & \frac{P_{\parallel}}{P} \cos(\alpha) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \\ k_z \end{pmatrix},$$

which implies for the new commutation relations

$$\begin{aligned} [q_x, q_y] &= -\frac{ieB}{h} \\ [q_x, q_z] &= 0 \\ [q_y, q_z] &= 0. \end{aligned}$$

The corresponding Hamiltonian for $q_z//B$ writes

$$\begin{pmatrix} E_g & Pq_- & -Pq_+ & 0 & 0 & 0 & 0 & Pq_z \\ Pq_+ & -\frac{\delta\sin(\alpha)^2}{2} & \frac{\delta\sin(\alpha)^2}{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\delta\sin(2\alpha)}{2\sqrt{2}} \\ -Pq_- & \frac{\delta\sin(\alpha)^2}{2} & -\frac{\delta\sin(\alpha)^2}{2} - 2\delta/3 & \sqrt{2}\Delta_{SO}/3 & 0 & 0 & 0 & -\frac{\delta\sin(2\alpha)}{2\sqrt{2}} \\ 0 & 0 & \sqrt{2}\Delta_{SO}/3 & -(\delta\cos(\alpha)^2 + \Delta_{SO}/3) & Pq_z & \frac{\delta\sin(2\alpha)}{2\sqrt{2}} & \frac{\delta\sin(2\alpha)}{2\sqrt{2}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & Pq_z & E_g & Pq_+ & Pq_- & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{\delta\sin(2\alpha)}{2\sqrt{2}} & Pq_- & -\frac{\delta\sin(\alpha)^2}{2} & -\frac{\delta\sin(\alpha)^2}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{\delta\sin(2\alpha)}{2\sqrt{2}} & Pq_+ & -\frac{\delta\sin(\alpha)^2}{2} & -\frac{\delta\sin(\alpha)^2}{2} - 2\delta/3 & \sqrt{2}\Delta_{SO}/3 \\ Pq_z & \frac{\delta\sin(2\alpha)}{2\sqrt{2}} & -\frac{\delta\sin(2\alpha)}{2\sqrt{2}} & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2}\Delta_{SO}/3 & -(\delta\cos(\alpha)^2 + \Delta_{SO}/3) \end{pmatrix}.$$

Off-diagonal terms proportional to $\sin(2\alpha) = \sin[2\arctan(\eta^2\tan\theta_z)]$ appear as a result of the axis rotation. These terms yield a spin-orbital mixing of the Landau levels that activates the combined resonance referred to as CombR.

The intensity of the CombR is proportional to $|\sin(2\alpha)|^2$ and as a consequence, the CombR is expected to vanish near $\varphi = 90^\circ$ and $\varphi = 270^\circ$ in good agreement with the experimental data shown in Fig. 3(c).

- [1] T. Liang, Q. Gibson, M. N. Ali, M. Liu, R. J. Cava, and N. P. Ong, *Nat Mater* **14**, 280 (2015).
- [2] X. Yuan, P. Cheng, L. Zhang, C. Zhang, J. Wang, Y. Liu, Q. Sun, P. Zhou, D. W. Zhang, Z. Hu, X. Wan, H. Yan, Z. Li, and F. Xiu, *Nano Lett.* **17**, 2211 (2017).
- [3] S. Jeon, B. B. Zhou, A. Gyenis, B. E. Feldman, I. Kimchi, A. C. Potter, Q. D. Gibson, R. J. Cava, A. Vishwanath, and A. Yazdani, *Nat Mater* **13**, 851 (2014).
- [4] S. Roth, H. Lee, A. Sterzi, M. Zacchigna, A. Politano, R. Sankar, F. C. Chou, G. Di Santo, L. Petaccia, O. V Yazyev, and A. Crepaldi, *Phys. Rev. B* **97**, 165439 (2018).
- [5] T. Liang, J. Lin, Q. Gibson, T. Gao, M. Hirschberger, M. Liu, R. J. Cava, and N. P. Ong, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 136601 (2017).
- [6] A. Akrap, M. Hakl, S. Tchoumakov, I. Crassee, J. Kuba, M. O. Goerbig, C. C. Homes, O. Caha, J. Novák, F. Teppe, W. Desrat, S. Koohpayeh, L. Wu, N. P. Armitage, A. Nateprov, E. Arushanov, Q. D. Gibson, R. J. Cava, D. van der Marel, B. A. Piot, C. Faugeras, G. Martinez, M. Potemski, and M. Orlita, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 136401 (2016).
- [7] I. Crassee, R. Sankar, W.-L. Lee, A. Akrap, and M. Orlita, *Phys. Rev. Mater.* **2**, 120302 (2018).
- [8] M. Neupane, S. Xu, R. Sankar, N. Alidoust, G. Bian, C. Liu, I. Belopolski, T.-R. Chang, H.-T. Jeng, H. Lin, A. Bansil, F. Chou, and M. Z. Hasan, *Nat. Commun.* **5**, 3786 (2014).
- [9] M. N. Ali, Q. Gibson, S. Jeon, B. B. Zhou, A. Yazdani, and R. J. Cava, *Inorg. Chem.* **53**, 4062 (2014).
- [10] S. Borisenko, Q. Gibson, D. Evtushinsky, V. Zabolotnyy, B. Büchner, and R. J. Cava, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 027603 (2014).
- [11] Z. K. Liu, J. Jiang, B. Zhou, Z. J. Wang, Y. Zhang, H. M. Weng, D. Prabhakaran, S. Mo, H. Peng, P. Dudin, T. Kim, M. Hoesch, Z. Fang, X. Dai, Z. X. Shen, D. L. Feng, Z. Hussain, and Y. L. Chen, *Nat. Mater.* **13**, 677 (2014).
- [12] Z. Wang, H. Weng, Q. Wu, X. Dai, and Z. Fang, *Phys. Rev. B* **88**, 125427 (2013).
- [13] I. Rosenman, *J. Phys. Chem. Solids* **30**, 1385 (1969).
- [14] A. C. Potter, I. Kimchi, and A. Vishwanath, *Nat. Commun.* **5**, 5161 (2014).
- [15] A. A. Burkov and L. Balents, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 127205 (2011).
- [16] H. Li, H. He, H.-Z. Lu, H. Zhang, H. Liu, R. Ma, Z. Fan, S.-Q. Shen, and J. Wang, *Nat. Commun.* **7**, 10301 (2015).
- [17] M. Wu, G. Zheng, W. Chu, Y. Liu, W. Gao, H. Zhang, J. Lu, Y. Han, J. Zhou, W. Ning, and M. Tian, *Phys. Rev. B* **98**, 161110(R) (2018).
- [18] A. Pariari, P. Dutta, and P. Mandal, *Phys. Rev. B* **91**, 155139 (2015).
- [19] P. J. W. Moll, N. L. Nair, T. Helm, A. C. Potter, I. Kimchi, A. Vishwanath, and J. G. Analytis, *Nature (London)* **535**, 266 (2016).
- [20] W. Desrat, S. S. Krishtopenko, B. A. Piot, M. Orlita, C. Consejo, S. Ruffenach, W. Knap, A. Nateprov, E. Arushanov, and F. Teppe, *Phys. Rev. B* **97**, 245203 (2018).
- [21] Z. J. Xiang, D. Zhao, Z. Jin, C. Shang, L. K. Ma, G. J. Ye, B. Lei, T. Wu, Z. C. Xia, and X. H. Chen, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 226401 (2015).
- [22] Y. Liu, C. Zhang, X. Yuan, T. Lei, C. Wang, D. Di Sante, A. Narayan, L. He, S. Picozzi, S. Sanvito, R. Che, and F. Xiu, *NPG Asia Mater.* **7**, e221 (2015).
- [23] Y. Zhao, H. Liu, C. Zhang, H. Wang, J. Wang, Z. Lin, Y. Xing, H. Lu, J. Liu, Y. Wang, S. M. Brombosz, Z. Xiao, S. Jia, X. C. Xie, and J. Wang, *Phys. Rev. X* **5**, 031037 (2015).
- [24] E. K. Arushanov, *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.* **25**, 131 (1992).
- [25] H. Kildal, *Phys. Rev. B* **10**, 5082 (1974).
- [26] J. Bodnar, in *Proceedings of the International Conference on Narrow Gap Semiconductors*, edited by J. Rauluszkiwicz (Warsaw, Poland, 1977), p. 311.
- [27] P. R. Wallace, *Phys. Status Solidi* **92**, 49 (1979).
- [28] J. Cano, B. Bradlyn, Z. Wang, M. Hirschberger, N. P. Ong, and B. A. Bernevig, *Phys. Rev. B* **95**, 161306(R) (2017).
- [29] M. Hakl, S. Tchoumakov, I. Crassee, A. Akrap, B. A. Piot, C. Faugeras, G. Martinez, A. Nateprov, E. Arushanov, F. Teppe, R. Sankar, W. I. Lee, J. Debray, O. Caha, J. Novák, M. O.

- Goerbig, M. Potemski, and M. Orlita, *Phys. Rev. B* **97**, 115206 (2018).
- [30] T. Schumann, M. Goyal, H. Kim, and S. Stemmer, *APL Mater.* **4**, 126110 (2016).
- [31] G. Krizman, B. A. Assaf, T. Phuphachong, G. Bauer, G. Springholz, L. A. de Vaultier, and Y. Guldner, *Phys. Rev. B* **98**, 245202 (2018).
- [32] A. Mosca Conte, O. Pulci, and F. Bechstedt, *Sci. Rep.* **7**, 45500 (2017).
- [33] Y. Guldner, C. Rigaux, A. Mycielski, and Y. Couder, *Phys. Status Solidi* **81**, 615 (1977).
- [34] M. Goyal, H. Kim, T. Schumann, L. Galletti, A. A. Burkov, and S. Stemmer, *Phys. Rev. Mater.* **3**, 64204 (2019).
- [35] T. Schumann, M. Goyal, D. A. Kealhofer, and S. Stemmer, *Phys. Rev. B* **95**, 241113(R) (2017).
- [36] T. Schumann, L. Galletti, D. A. Kealhofer, H. Kim, M. Goyal, and S. Stemmer, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 016801 (2018).
- [37] L. Galletti, T. Schumann, O. F. Shoron, M. Goyal, D. A. Kealhofer, H. Kim, and S. Stemmer, *Phys. Rev. B* **97**, 115132 (2018).
- [38] C. Zhang, Y. Zhang, X. Yuan, S. Lu, J. Zhang, A. Narayan, Y. Liu, H. Zhang, Z. Ni, R. Liu, E. S. Choi, A. Suslov, S. Sanvito, L. Pi, H.-Z. Lu, A. C. Potter, and F. Xiu, *Nature (London)* **565**, 331 (2019).
- [39] B.-C. Lin, S. Wang, S. Wiedmann, J.-M. Lu, W.-Z. Zheng, D. Yu, and Z.-M. Liao, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 036602 (2019).
- [40] J. M. Luttinger and W. Kohn, *Phys. Rev.* **97**, 869 (1955).
- [41] C. R. Pidgeon and R. N. Brown, *Phys. Rev.* **146**, 575 (1966).

Annexe C – Caractérisation d'un superréseau de type II en vue de la fabrication d'une caméra infrarouge fonctionnant à haute température

La fabrication d'une caméra infrarouge fonctionnant à haute température dans la gamme MWIR (3-5 μm) est le troisième sujet étudié dans ce travail de thèse. Les meilleures caméras infrarouges dans cette gamme spectrale sont à ce jour à base de MCT et de InSb fonctionnant aux alentours de 110 K. Récemment, des structures à barrières dites « xBn » avec l'alliage $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ comme matériau absorbant ont été étudiées. Elles ont montré de très bonnes performances à plus haute température mais ne permettent pas d'atteindre une longueur d'onde de coupure de 5 μm . Les superréseaux $\text{InAs}/\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ de type II sont de très bons candidats pour étendre la gamme de détection jusqu'à 5 μm tout en augmentant la température de fonctionnement jusqu'à 150 K.^{111,112}

Les superréseaux $\text{InAs}/\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ sont épitaxiés sur un substrat GaSb en assurant une croissance pseudomorphique. Les couches d'InAs (d'épaisseur d_{InAs}) sont étirées alors que les couches d' $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ (d'épaisseur d_{InAsSb}) sont comprimées. La condition d'équilibre des contraintes se traduit par la condition :¹¹³

$$d_{\text{InAsSb}} = 0.09 \frac{L}{x}$$

où $L = d_{\text{InAsSb}} + d_{\text{InAs}}$ est la période du superréseau. Le gap peut être ajusté en variant la composition x de l'alliage et/ou l'épaisseur de la période L . Dans l'article qui suit, il est démontré grâce à la magnéto-optique et à la théorie des fonctions enveloppes qu'un tel superréseau peut couvrir la totalité de la gamme MWIR. La période du superréseau est $L = 5.2$ nm, ce qui assure un bon recouvrement des fonctions enveloppes des deux états fondamentaux et donc une grande absorption du matériau. Ces résultats s'accompagnent de la détermination précise des paramètres de l'hétérostructure (offsets de bande, gaps, effet de la contrainte, masse effectives, ...). La connaissance exacte de ces paramètres permet d'optimiser la photo détection MWIR, et de prédire les propriétés électroniques d'un superréseau de période plus grande. Celui-ci permettrait d'étendre d'avantage la fenêtre de détection jusqu'à la gamme LWIR tout en conservant une absorption correcte du matériau.¹¹⁴ Ce travail a été réalisé en collaboration avec l'équipe de P. Christol à l'IES de l'Université de Montpellier.

InAs/InAsSb type 2 superlattices band parameters determination via magnetoabsorption and k.p modeling

Krizman G.^a, Carosella F.^a, Philippe A.^a, Ferreira R.^a, Rodriguez J.B.^b, Perez J.-P.^b, Christol P.^b, de Vaultier L.-A.^a, and Guldner Y.^a

^aLaboratoire de Physique de l'École normale supérieure, ENS, Université PSL, CNRS, Sorbonne Université, Université de Paris, Paris, France
^bIES, Univ.Montpellier, CNRS, Montpellier, France

ABSTRACT

Infrared cameras are used in a wide variety of applications, from military to civilian. Cryogenically cooled IR cameras based on photon-detector arrays are many times more sensitive and faster than uncooled microbolometer thermal imagers. Ga-free InAs/InAsSb type 2 superlattice (T2SL) based devices have been recently fabricated and they showed a first realization of MWIR (Mid-Wave InfraRed) broadband detection up to $5\mu\text{m}$. However the band parameters (band offsets, effect of strain, effective mass) of this material system have not been determined accurately, thus limiting the understanding and the prediction of the electronic properties of the devices. In this work we determined the relevant parameters via magnetoabsorption measurements performed on dedicated T2SL samples. Interband magneto-optical transitions lead to an accurate mapping of the Landau levels. The Landau level energies have been calculated using an 8 bands **k.p** model and the comparison with the experimental data provided a clear description of the T2SL band structure at low temperatures.

Keywords: Infra Red photo-detectors, InAs/InAsSb, magneto-absorption, Landau levels, k.p model, band parameters, superlattice

1. INTRODUCTION

Today infrared (IR) cameras are used in a wide variety of applications, from military to civilian, such as night vision, search and rescue in harsh environment, cancer diagnosis, gas analysis, and industrial process monitoring. IR sensors are either cooled or uncooled but cryogenically cooled IR cameras based on photon-detector arrays are many times more sensitive and faster than uncooled microbolometer thermal imagers. The maximum operating temperature of a solid state IR detector is usually determined by its dark current, which increases exponentially with temperature. Recently InAsSb XBn photodetector structures were proposed with a specific barrier design.¹ In this kind of structure, the dark-current is diffusion-limited whatever the temperature. With a cut-off wavelength around $4.2\mu\text{m}$ at 150K, InAsSb XBn photodetector covers only the blue part of the MWIR band (see Fig. 1(a)). Figure 1(b) shows photon emittance deduced from Planck's law for different blackbody temperatures: we can see that at 300K the power emitted by the black body in the MWIR range is considerably increased if the red band also contributes. Therefore, taking into account the full MWIR transparency window would significantly improve the IR signal to noise ratio and finally the IR imaging performances.² Consequently, there is a need to extend the operational wavelength of the XBn InAsSb detector in order to reach MWIR broadband detection.

One solution is the use of a superlattice (SL) structure, which allows to easily adjust the bandgap by tailoring the layer thicknesses and the period composition. To extend the cut-off wavelength up to $5\mu\text{m}$, a type 2 InAs/GaSb superlattice (T2SL) on GaSb substrate has been proposed.⁴ However such T2SL devices suffer from a low minority carrier lifetime (around 100ns in the MWIR) due to the presence of Ga-related native defects.⁵ Typically, InAs/GaSb T2SL detectors exhibit temperature operation lower than 110K for a $5\mu\text{m}$ cut-off.⁶ An alternative to this technology is the Ga-free InAs/InAsSb T2SL that shows an impressive minority carrier lifetime value as high as $9\mu\text{s}$ at 80K in the MWIR.^{7,8} Moreover the feasibility of Ga-free InAs/InAsSb

Send correspondence to Francesca Carosella.
E-mail: francesca.carosella@phys.ens.fr

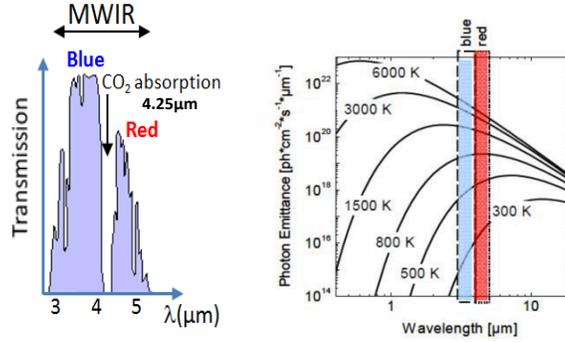


Figure 1. (a) MWIR blue and red band; (b) Photon emittance deduced from Plank's law. Adapted from Ref.³

SL structure on GaSb substrate for the MWIR domain has been demonstrated⁹ and the first High Operating Temperature MWIR FPAs based on this technology has been fabricated.^{10,11} Nevertheless the band parameters (band offsets, effect of strain, effective mass) of this material system were until now not determined accurately, thus limiting the understanding and the prediction of the electronic properties of the devices. In this work we determine the relevant parameters via magnetoabsorption measurements, performed on dedicated T2SL samples, and **k.p** modeling. Interband magneto-optical transitions have been measured to give an accurate mapping of the Landau levels (LL). The Landau level energies have been calculated in an 8 bands **k.p** model and the comparison with the experimental data provides a clear description of the T2SL band structure. The paper is organized as follows: Section 2 is devoted to the sample growth description, while Section 3 presents the experimental setup, the theoretical model and the results. The conclusions are shown in Section 4.

2. MBE GROWTH OF THE INAS/INASSB SUPERLATTICE

Ga-free InAs/InAs_{1-x}Sb_x T2SL can be strain-balanced on GaSb by choosing appropriate combinations of layer thicknesses and InAs_{1-x}Sb_x alloy compositions. As we can see from Fig. 2(a), InAs is under tensile strain when grown on thick GaSb substrate, while InAs_{1-x}Sb_x (for antimony concentration $x_{Sb} > 0.09$) is under compressive strain. It has been shown⁹ that strain balancing can be achieved by setting the average lattice parameter of one period of the SL equal to the lattice parameter of GaSb. Consequently, the InAsSb and InAs layer thicknesses are precisely determined as a function of the Sb composition and SL period. Ga-free InAs/InAsSb strain-balanced T2SLs lattice-matched to GaSb have been grown on n-type GaSb:Te (100) substrates by solid source MBE. The samples consist of a 200nm-thick GaSb buffer layer followed by a 2 μm thick superlattice region composed of alternating InAs/InAsSb layers and finally capped by a 100nm thick GaSb layer (see Fig. 2(b)). In order to reach the Red-MWIR spectral band at 150K and to optimize the absorption coefficient, the strain-balanced InAs/InAs_{1-x}Sb_x SL structures must have a Sb content $x_{Sb} \approx 0.35$ and a SL period of 5-6nm. Figure 2(c) shows the X-ray diffraction spectrum of one of the fabricated samples with $x_{Sb} = 0.36$ and the layers thickness respectively $t_{InAs} = 3.90\text{nm}$ and $t_{InAsSb} = 1.30\text{nm}$. The growth temperature was $T_G = 545^\circ\text{C}$. The sharpness and the periodicity of the picks of the diffraction spectrum proves clearly that our SL samples are grown perfectly lattice matched to the GaSb substrate.

3. METHODS AND RESULTS

3.1 Magneto-optical spectroscopy

Magneto-optical infrared spectroscopy measurements are performed up to 15T and for energies up to 600meV using the setup described in our previous work.¹² Spectra are taken at 4.2K in the Faraday geometry. In this configuration, conventional dipole selection rules yield transitions between Landau levels of identical spin and indices differing by 1. We focus on measurements taken with the magnetic field along the SL growth direction [001]. Results for the structure shown in Fig. 2(b) and grown at $T_G = 545^\circ\text{C}$ are shown Fig. 3(a). Several

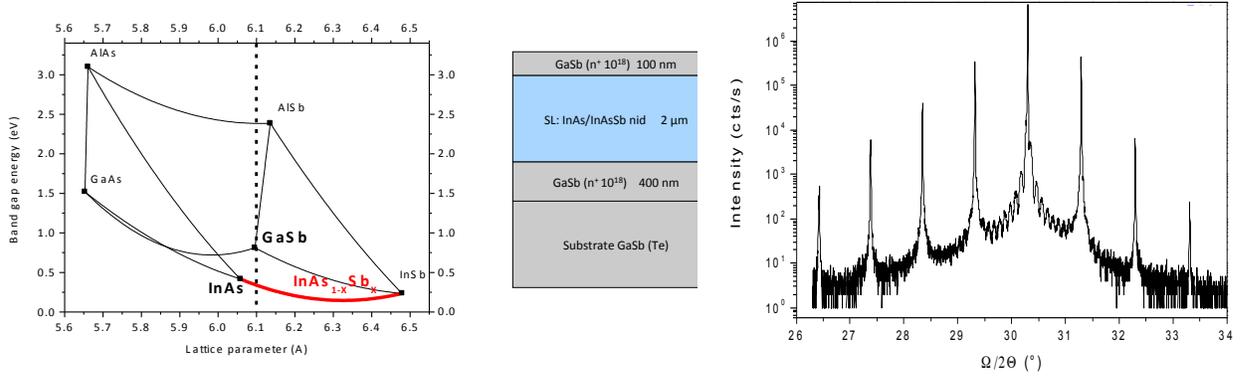


Figure 2. a) Band gap energy versus lattice parameter of several III-V compounds. InAs_{1-x}Sb_x parameters are shown as a function of x_{Sb} composition (red solid line); b) InAs/InAsSb T2SL sample schematic cross section; c) High resolution X-ray diffraction spectrum for the reflection of InAs_{0.64}Sb_{0.36} T2SL sample (period = 5.20nm), growth temperature T= 545°C, lattice-matched to the GaSb substrate.

transmission minima that shift to higher energy with increasing field are observed. They correspond to optical transitions between Landau levels. Spectra consist of several transmission minima marked by the arrows. Dots on Fig. 3(c) show the magneto-optical transition fan charts obtained by pin-pointing the energy position of the minima seen in Fig. 3(a) for each value of the magnetic field. The dot colors are related to the arrow colors in the magnetoabsorption spectrum and they refer to transitions between a couple of Landau levels, whose energy separation changes with increasing magnetic field. To further analyze the magneto-optical spectrum and to get a precise and quantitative description of the InAs/InAsSb SL band structure, a precise calculation of the Landau levels near the Γ point is required.

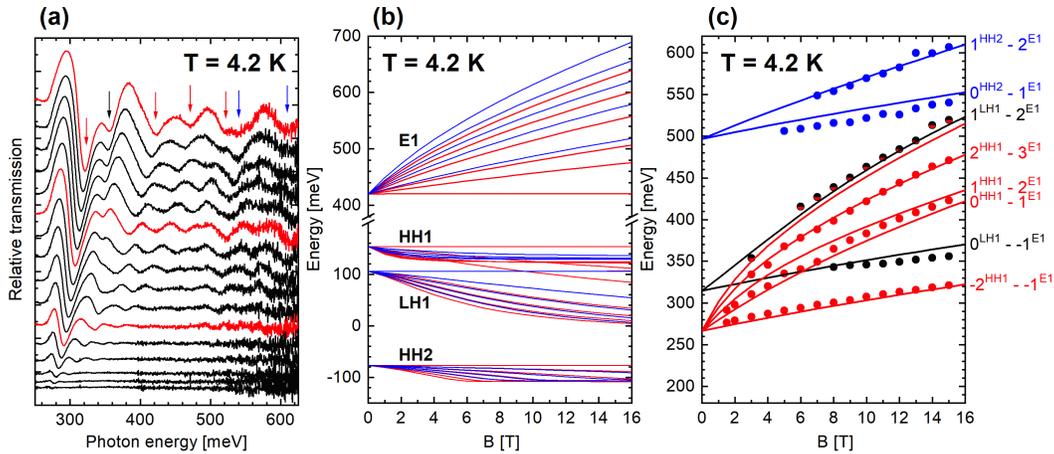


Figure 3. a) magneto-optical spectrum in the mid-infrared for magnetic fields between 1.5 and 15T along the SL growth direction [001]; transmission minima are marked by arrows; b) Landau level calculation plotted versus magnetic field B at $k_z = 0$; c) Magneto-optical transmission fan chart, colors of lines and dots are related to arrow colors in (a).

3.2 k.p model of Landau levels

The Landau levels are computed in a 8 band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ formalism. The retained bands are the conduction band and three valence bands (heavy holes, light holes and spin-orbit), all doubly degenerate because of spin. For conventional III-V semiconductors, the conduction band Γ_6 is s-like, typically separated from the p-like valence bands by an energy gap E_g . Two p bands, heavy holes Γ_8^h and light holes Γ_8^l are touching at the Γ point in unstrained materials. The third valence band, spin orbit Γ_7 , is split from Γ_8^h and Γ_8^l with an energy Δ_{SO} .

The Hamiltonian for the InAs/InAsSb SL strain-balanced on GaSb is given in Table 1 and it is expressed in the basis employed in Ref.¹³ where $\langle iS \uparrow \downarrow |$ refers to conduction band, $\langle \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2} |$ to light holes, $\langle \frac{3}{2}, \pm \frac{3}{2} |$ to heavy holes and $\langle \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2} |$ to spin-orbit, and the symbols $\uparrow \downarrow$ and \pm stand for spin up/down. We assume the z axis parallel to the growth direction with $p_z = -i\hbar \frac{\partial}{\partial z}$ and $k_{\pm} = (k_x \pm ik_y)/\sqrt{2}$. P is the Kane matrix element and its value is well established for most semiconductor from optical measurements.¹³ E_g is the InAs energy gap, whose temperature dependent value is known from literature. Δ_{SO} is the energy spin-orbit split off in InAs and it is assumed to be temperature independent. The other parameters are the band edge profiles $V_c(z)$, $V_h(z)$ and $V_{SO}(z)$ piece-wise varying along the growth axis. $\delta(z) = \Gamma_8^l - \Gamma_8^h$ is the energy splitting between heavy holes and light holes bands in presence of strain as it is well known from.¹⁴ We fix the band edges profiles to zero in the InAs layers and we will refer to the the band offsets with InAsSb as V_c , V_h and V_{SO} . In the following we will notice $\delta(z) = \delta_{InAs}$ if $z \in$ InAs layer or $\delta(z) = \delta_{InAsSb}$ if $z \in$ InAsSb layer. All these bands parameters have to be determined by comparison with the magnetospectroscopy fan chart. Note that the light hole band edge profile is related to the previous parameters by $V_l(z) = V_h(z) + \delta(z)$.

In the absence of strain $\delta(z) = 0$ in both layers. However our system is a SL strain-balanced on GaSb, meaning that InAs layers are under tensile strain and InAsSb (with $x_{Sb} = 0.36$) layers are under compressive strain see fig. 2(a). It is known that the Γ_8^l edge raises (decreases) in presence of tensile (compressive) strain and decreases in presence of compressive strain.¹⁴ Thus in InAs the Γ_8^l edge raises by an energy δ_{InAs} compared to the case without strain and in InAsSb it decreases by an energy δ_{InAsSb} . Moreover, these variations are not equivalent and we expect $|\delta_{InAsSb}| > \delta_{InAs}$ because the lattice mismatch is more important for InAsSb (see Fig.2(a)).

Table 1. 8x8 SL Hamiltonian in presence of strain and at zero magnetic field. The energy origin is taken at the top of InAs (Γ_8^h) band. The first line refers to the basis elements¹³ employed to express the Hamiltonian.

	$ iS \uparrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$ iS \downarrow\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$
$\langle iS \uparrow $	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + E_g + V_c(z)$	$P\hbar k_+$	$-\sqrt{\frac{2}{3}}Pp_z$	$\frac{1}{\sqrt{3}}Pp_z$	0	0	$-\frac{1}{\sqrt{3}}P\hbar k_-$	$-\sqrt{\frac{2}{3}}P\hbar k_-$
$\langle \frac{3}{2}, \frac{3}{2} $	$P\hbar k_-$	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V_h(z)$	0	0	0	0	0	0
$\langle \frac{3}{2}, \frac{1}{2} $	$-\sqrt{\frac{2}{3}}Pp_z$	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V_h(z) + \delta(z)$	0	$\frac{P}{\sqrt{3}}\hbar k_-$	0	0	0
$\langle \frac{1}{2}, \frac{1}{2} $	$\frac{1}{\sqrt{3}}Pp_z$	0	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} - \Delta_{SO} + V_{SO}(z)$	$\sqrt{\frac{2}{3}}P\hbar k_-$	0	0	0
$\langle iS \downarrow $	0	0	$\frac{P}{\sqrt{3}}\hbar k_+$	$\sqrt{\frac{2}{3}}P\hbar k_+$	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + E_g + V_c(z)$	$P\hbar k_-$	$-\sqrt{\frac{2}{3}}Pp_z$	$\frac{1}{\sqrt{3}}Pp_z$
$\langle \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} $	0	0	0	0	$P\hbar k_+$	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V_h(z)$	0	0
$\langle \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} $	$-\frac{1}{\sqrt{3}}P\hbar k_+$	0	0	0	$-\sqrt{\frac{2}{3}}Pp_z$	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V_h(z) + \delta(z)$	0
$\langle \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} $	$-\sqrt{\frac{2}{3}}P\hbar k_+$	0	0	0	$\frac{1}{\sqrt{3}}Pp_z$	0	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} - \Delta_{SO} + V_{SO}(z)$

In the $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ model developed above, the heavy hole band is flat. In order to get the right negative curvature we take into account the far-band effect following the method developed by Pidgeon and Brown¹⁵ for narrow-gap semiconductors. Here we take a usual heavy hole mass for InAs ($m_{HH} = 0.38m_0$) and we safely apply it to

InAsSb also.

The analytical treatment of the eigenvalue problem for $k_{\pm} = 0$ leads to a transcendental equation whose solution gives the SL minibands dispersions $E_m(k_z)$, $HH_m(k_z)$ and $LH_m(k_z)$ (respectively for electrons in the conduction band, heavy holes and light holes) where m is the miniband index and k_z is the wavevector along the growth axis.

In order to include the magnetic field we follow the method developed by Luttinger¹⁶ and Pidgeon and Brown.¹⁵ In presence of a magnetic field the momentum operator \vec{p} must be replaced by $\vec{p} + e\vec{A}$, where \vec{A} is the vector potential, thus, in the Kane $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ Hamiltonian \vec{k} must be replaced by $\vec{k}' = \vec{k} + e\vec{A}/\hbar$. In our system the magnetic field is oriented along the SL growth direction (z axis). Therefore, by choosing the Landau gauge, the vector potential must satisfy the property $A_z = 0$. We can define raising and lowering operators $a = (k'_x - ik'_y)/(\sqrt{2}s)$ and $a^+ = (k'_x + ik'_y)/(\sqrt{2}s)$, where $1/s = \sqrt{\hbar/eB}$ is the magnetic length, and verifying the property $[a, a^+] = 1$. Thus the k_+ and k_- in the hamiltonian matrix of Table.1 may be expressed in terms of raising and lowering operators. Following Luttinger¹⁶ it can be shown that the eigenfunctions for the Hamiltonian in the presence of a magnetic field are products of the Bloch functions times harmonic oscillator functions $|n\rangle$. The action of k_+ and k_- on $|n\rangle$ is expressed by $k_+|n\rangle = \sqrt{2(n+1)s^2}|n+1\rangle$ and $k_-|n\rangle = \sqrt{2ns^2}|n-1\rangle$. The Hamiltonian matrix in presence of a magnetic field is given in Table 2 and is expressed in the basis shown in the top line of the same Table.

Table 2. 8×8 SL Hamiltonian in presence of magnetic field with $G = P\sqrt{\hbar eB}$. The energy origin is taken at the top of InAs (Γ_8^k) band. The first line refers to the basis elements employed to express the Hamiltonian.

$ iS \uparrow\rangle n\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle n-1\rangle$	$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle n\rangle$	$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle n\rangle$	$ iS \downarrow\rangle n+1\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle n+2\rangle$	$ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle n+1\rangle$	$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle n+1\rangle$
$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + E_g + V_c(z)$	$G\sqrt{2n}$	$-\sqrt{\frac{2}{3}}Pp_z$	$\frac{1}{\sqrt{3}}Pp_z$	0	0	$-\sqrt{\frac{2(n+1)}{3}}G$	$-2\sqrt{\frac{n+1}{3}}G$
$G\sqrt{2n}$	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V_h(z)$	0	0	0	0	0	0
$-\sqrt{\frac{2}{3}}Pp_z$	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V_h(z) + \delta(z)$	0	$\sqrt{\frac{2(n+1)}{3}}G$	0	0	0
$\frac{1}{\sqrt{3}}Pp_z$	0	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} - \Delta_{SO} + V_{SO}(z)$	$2\sqrt{\frac{n+1}{3}}G$	0	0	0
0	0	$\sqrt{\frac{2(n+1)}{3}}G$	$2\sqrt{\frac{n+1}{3}}G$	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + E_g + V_c(z)$	$G\sqrt{2(n+2)}$	$-\sqrt{\frac{2}{3}}Pp_z$	$\frac{1}{\sqrt{3}}Pp_z$
0	0	0	0	$G\sqrt{2(n+2)}$	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V_h(z)$	0	0
$-\sqrt{\frac{2(n+1)}{3}}G$	0	0	0	$-\sqrt{\frac{2}{3}}Pp_z$	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + V_h(z) + \delta(z)$	0
$-2\sqrt{\frac{n+1}{3}}G$	0	0	0	$\frac{1}{\sqrt{3}}Pp_z$	0	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} - \Delta_{SO} + V_{SO}(z)$

The eigenvalue problem is at first solved analytically for $B = 0$ in the Hamiltonian of Table 2 (which is equivalent to take $k_{\pm} = 0$ in the Hamiltonian of Table 1) leading to a transcendental equation for the energy states at zero magnetic field. The corresponding eigenfunctions at $B = 0$ are used as a basis for the diagonalization of the B -dependent Hamiltonian. Then the eigenvalue problem for $B \neq 0$ is numerically solved for different values of the magnetic field B and several Landau levels. In Fig. 3(b) we show the results of the calculation of the Landau levels at $T = 4.2K$ as a function of magnetic field B at $k_z = 0$. The Landau level energies at $k_z = 0$ are sufficient to describe the magneto-optical transitions since the joint density of states in these SL systems diverges at $k_z = 0$. We represent in Fig. 3(b) the LL associated to E_1 , HH_1 , HH_2 and LH_1 SL minibands. HH_2 is an

excited heavy hole band which lies in the continuum. In the figures the red and blue lines refer to the two spin components of the Landau levels.

Applying the Landau levels selection rules for the Faraday geometry ($\Delta n = \pm 1$) as well as the spin conservation, we can calculate all the allowed inter SL miniband energy transitions which occurs at $k_z = 0$.

All relevant band parameters can be extracted from a comparison between the experimental and the theoretical magneto-optical transition fan-chart. In Fig. 3(c) dots are the transmission minima of the magneto-optical spectrum and solid lines are the calculated energy transitions between Landau levels. We obtain an excellent agreement adjusting relevant band parameters. There are five fitting parameters: $V_c, V_h, \delta_{InAs}, \delta_{InAsSb}$ and V_{SO} . Their values at 4.2K are given in Table 3 as well as the value of the other parameters known from literature (E_g, Δ_{SO} , the Kane energy $E_p = 2m_0P^2$ and m_{HH}).^{17–19} Fig. 4 shows schematically the InAs/InAsSb bands offsets in the presence of strain plotted with the band parameters extracted at 4.2K. E_1, LH_1 and HH_1 minibands are as well plotted.

Table 3. Band parameters for a InAs/InAs_{0.64}Sb_{0.36} SL with $t_{InAs} = 3.9\text{nm}$ and $t_{InAsSb} = 1.3\text{nm}$. $T = 4.2\text{K}$. Parameters marked with (*) are adapted from literature,^{17,18} the others are obtained by fit of our experimental data.

V_c	40 meV
V_h	300 meV
δ_{InAs}	40 meV
δ_{InAsSb}	-60 meV
V_{SO}	200 meV
$E_g(\text{InAs})^{(*)}$	410 meV
$\Delta_{SO}(\text{InAs})^{(*)}$	390 meV
$E_P^{(*)}$	22.6 eV
$m_{HH}^{(*)}$	$0.38m_0$

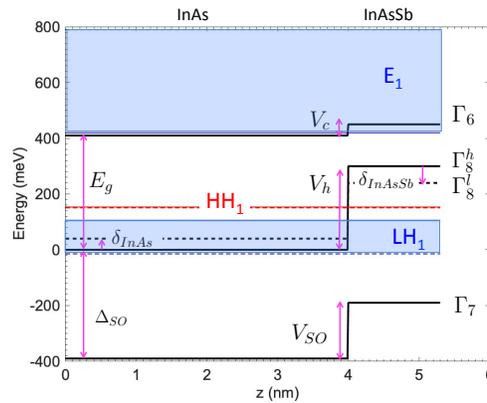


Figure 4. Position dependence of the conduction band and valence band edges in one period of InAs/InAsSb SL bands offsets at 4.2K.

4. CONCLUSION

We have used magneto-optical spectroscopy and $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ modeling to study the band structure parameters of InAs/InAsSb SL strain-balanced on GaSb substrate. The good fit of the experimental data allows to extract the relevant band

parameters shown in Table 3. These values will be of great interest to get a deep understanding of the electronic and optical properties of these systems that have recently been employed in the successful fabrication of HOT MWIR photodetectors.^{10,11} The knowledge of the band parameters will allow improving the InAs/InAsSb T2SL devices (operating temperature, cut-off wavelength, absorption coefficient) for instance by optimizing the choice of the SL period and Sb composition.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank Gérald Bastard for valuable discussion and critical reading of the article. Work at LPENS and IES is supported by Agence Nationale de la Recherche within the project HOTMWIR [Contract number N° ANR-18-CE24-0019-02].

REFERENCES

- [1] Klipstein, P., Klin, O., Grossman, S., Snapi, N., Lukomsky, I., Aronov, D., Yassen, M., Glozman, A., Fishman, T., Berkowicz, E., Magen, O., Shtrichman, I., and Weiss, E., “XBn barrier photodetectors based on InAsSb with high operating temperatures,” *Optical Engineering* **50**(6), 1 – 11 (2011).
- [2] Reibel, Y., Taalat, R., Brunner, A., Rubaldo, L., Augey, T., Kerlain, A., Péré-Laperne, N., Manissadjian, A., Gravrand, O., Castelein, P., and Destéfánis, G., “Infrared SWAP detectors: pushing the limits,” in [*Infrared Technology and Applications XLII*], Andresen, B. F., Fulop, G. F., Hanson, C. M., and Norton, P. R., eds., **9451**, 256 – 269, International Society for Optics and Photonics, SPIE (2015).
- [3] Durlin, Q., Perez, J. P., Rossignol, R., Rodriguez, J. B., Cerutti, L., Delacourt, B., Rothman, J., Cervera, C., and Christol, P., “InAs/InAsSb superlattice structure tailored for detection of the full midwave infrared spectral domain,” in [*Quantum Sensing and Nano Electronics and Photonics XIV*], Razeghi, M., ed., **10111**, 149 – 158, International Society for Optics and Photonics, SPIE (2017).
- [4] Taalat, R., Rodriguez, J.-B., Delmas, M., and Christol, P., “Influence of the period thickness and composition on the electro-optical properties of type-II InAs/GaSb midwave infrared superlattice photodetectors,” *Journal of Physics D: Applied Physics* **47**, 015101 (dec 2013).
- [5] Svensson, S., Donetsky, D., Wang, D., Hier, H., Crowne, F., and Belenky, G., “Growth of type ii strained layer superlattice, bulk inas and gasb materials for minority lifetime characterization,” *Journal of Crystal Growth* **334**(1), 103 – 107 (2011).
- [6] Chen, G., Haddadi, A., Hoang, A.-M., Chevallier, R., and Razeghi, M., “Demonstration of type-ii superlattice mwir minority carrier unipolar imager for high operation temperature application,” *Opt. Lett.* **40**, 45–47 (Jan 2015).
- [7] Olson, B. V., Shaner, E. A., Kim, J. K., Klem, J. F., Hawkins, S. D., Murray, L. M., Prineas, J. P., Flatté, M. E., and Boggess, T. F., “Time-resolved optical measurements of minority carrier recombination in a mid-wave infrared inassb alloy and inas/inassb superlattice,” *Applied Physics Letters* **101**(9), 092109 (2012).
- [8] Plis, E., “Dark current reduction in inas/inassb superlattice mid-wave infrared detectors through restoration etch,” *Electronics Letters* **51**, 2009–2010(1) (November 2015).
- [9] Perez, J.-P., Durlin, Q., Cervera, C., and Christol, P., “New ga-free inas/inassb superlattice infrared photodetector,” in [*Proceedings of the 6th International Conference on Photonics, Optics and Laser Technology - Volume 1: PHOTOPTICS*], 232–237, INSTICC, SciTePress (2018).
- [10] Ting, D. Z., Soibel, A., Khoshakhlagh, A., Rafol, S. B., Keo, S. A., Höglund, L., Fisher, A. M., Luong, E. M., and Gunapala, S. D., “Mid-wavelength high operating temperature barrier infrared detector and focal plane array,” *Applied Physics Letters* **113**(2), 021101 (2018).
- [11] Ting, D. Z., Rafol, S. B., Keo, S. A., Nguyen, J., Khoshakhlagh, A., Soibel, A., Höglund, L., Fisher, A. M., Luong, E. M., Mumolo, J. M., Liu, J. K., and Gunapala, S. D., “Inas/inassb type-ii superlattice mid-wavelength infrared focal plane array with significantly higher operating temperature than insb,” *IEEE Photonics Journal* **10**, 1–6 (Dec 2018).
- [12] Krizman, G., Assaf, B. A., Phuphachong, T., Bauer, G., Springholz, G., Bastard, G., Ferreira, R., de Vaultier, L. A., and Guldner, Y., “Tunable dirac interface states in topological superlattices,” *Phys. Rev. B* **98**, 075303 (Aug 2018).

- [13] Bastard, G., Brum, J., and Ferreira, R., “Electronic states in semiconductor heterostructures,” in [*Semiconductor Heterostructures and Nanostructures*], Ehrenreich, H. and Turnbull, D., eds., *Solid State Physics* **44**, 229 – 415, Academic Press (1991).
- [14] Marzin, J. Y., “Strained superlattices,” in [*Heterojunctions and Semiconductor Superlattices*], Allan, G., Lannoo, M., Bastard, G., Voos, M., and Boccarda, N., eds., 161–176, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (1986).
- [15] Pidgeon, C. R. and Brown, R. N., “Interband magneto-absorption and faraday rotation in insb,” *Phys. Rev.* **146**, 575–583 (Jun 1966).
- [16] Luttinger, J. M., “Quantum theory of cyclotron resonance in semiconductors: General theory,” *Phys. Rev.* **102**, 1030–1041 (May 1956).
- [17] Kroemer, H., “The 6.1 a family (inas, gasb, alsb) and its heterostructures: a selective review,” *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **20**(3), 196 – 203 (2004). Proceedings of the 11th International Conference on Narrow Gap Semiconductors.
- [18] Vurgaftman, I., Meyer, J. R., and Ram-Mohan, L. R., “Band parameters for iii–v compound semiconductors and their alloys,” *Journal of Applied Physics* **89**(11), 5815–5875 (2001).
- [19] Wei, S.-H. and Zunger, A., “Inassb/inas: A type-i or a type-ii band alignment,” *Phys. Rev. B* **52**, 12039–12044 (Oct 1995).

RÉSUMÉ

Cette thèse étudie les phases topologiques des alliages de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ et de leurs hétérostructures. La caractérisation des propriétés électroniques et topologiques de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ est réalisée en magnéto-optique en fonction de plusieurs paramètres internes et externes comme la composition chimique, la contrainte, la température ou le champ magnétique. Les états topologiques d'interface sont caractérisés dans les hétérostructures, et contrôlés via une ingénierie d'hybridation. L'effet d'un dopage avec des ions magnétiques est également étudié. La polyvalence du système à base de $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ est mise en évidence. Elle ouvre la voie à l'observation dans de bonnes conditions (grand gap topologique et bonne qualité cristalline) de nombreuses phases pseudo-relativistes de la matière comme l'effet Hall quantique de spin, l'effet Hall quantique anormal ou les fermions de Weyl, ...

MOTS CLÉS

Physique du solide ; Isolants topologiques ; Magnéto-optique ; Théorie $k.p$; Fermions de Dirac et de Weyl

ABSTRACT

This thesis deals with topological phases in $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ alloys and their heterostructures. The topological and electronic properties of $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ are characterized by using magneto-spectroscopy and numerous external and internal knobs like chemical composition, temperature, strain or magnetic field. The heterostructures are investigated to experimentally reach the topological interface states. A hybridization engineering of these topological interface states is demonstrated in both quantum wells and superlattices. The effect of a magnetic doping is also investigated. The great versatility of the $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Se}$ -based system paves the way for the observation of numerous pseudo-relativistic phases such as quantum spin Hall effect, quantum anomalous Hall effect or Weyl fermions, ...

KEYWORDS

Condensed matter physics ; Topological insulators ; Magneto-optics ; $k.p$ theory ; Dirac and Weyl fermions