

## Puits quantiques de (Cd,Mn)Te et contrôle de la densité d'un gaz de trous 2D: spectroscopie et propriétées magnétiques

Hervé Boukari

#### ► To cite this version:

Hervé Boukari. Puits quantiques de (Cd,Mn)Te et contrôle de la densité d'un gaz de trous 2D: spectroscopie et propriétées magnétiques. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2003. Français. NNT: . tel-00005381

## HAL Id: tel-00005381 https://theses.hal.science/tel-00005381

Submitted on 18 Mar 2004  $\,$ 

**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

pour obtenir le grade de

### Docteur de l'université Joseph Fourier – Grenoble 1 Spécialité : physique

présentée et soutenue publiquement par

Hervé BOUKARI

le 4 Décembre 2003

## Puits quantiques de (Cd,Mn)Te et contrôle de la densité d'un gaz de trous 2D : spectroscopie et propriétés magnétiques

Composition du jury

<i>Président</i> :	Benoît DEVEAUD
Rapporteurs :	Bernard JUSSERAND Denis SCALBERT
Examinateurs :	David FERRAND Jan GAJ

Directeur de thèse : Joël CIBERT

Mis en page avec la classe thloria.

## Merci à tous

Je souhaiterais, tout d'abord, exprimer ma reconnaissance à *Benoit DEVEAU*, qui a accepté de présider le jury de cette thèse, ainsi qu'à *Bernard Jusserand* et *Denis Scalbert*, qui ont accepté d'être rapporteurs de ce travail. Je remercie aussi *Jan Gaj* qui a bien voulu participer à ce jury de thèse.

Le travail, présenté dans ce manuscrit, a été réalisé au Laboratoire de Spectrométrie physique, dans le cadre de l'équipe mixte "nanophysique et semi-conducteurs". Je tiens à remercier *Le Si DANG* et les responsables successifs du groupe NPSC au CEA/Grenoble - *Engin MOLVA*, *Ronald COX* et *Jean-Michel GERARD* - pour m'avoir offert la possibilité de réaliser un travail de recherche dans l'équipe.

Je voudrais remercier tout particulièrement André WASIELA, qui m'a initié à la spectroscopie optique durant mon stage de DEA, et qui malheureusement nous a quitté au début de ma première année de thèse. Il n'aura pas été pour moi qu'un professeur, patient, calme et passionné, mais un homme d'une grande gentillesse - Merci André.

Je tiens à remercier Joël CIBERT, non seulement pour avoir proposé et dirigé cette thèse passionnante, mais surtout pour son enseignement de la rigueur scientifique, le partage de son expérience dans un domaine de recherche très vaste et son soutien dans les périodes plus délicates - le tout dans la bonne humeur. Un grand Merci aussi à David FERRAND, qui n'a jamais compté son temps lorsqu'il s'agissait de me donner un coup de main (et non des moindres) pour les mesures spectroscopiques, leurs interprétations et la physique "qui va avec" - Merci David, c'eut été certainement beaucoup plus dur sans ton aide et ta sympathie.

Merci à *Mikaël BERTOLINI*, lui aussi en thèse au laboratoire durant la même période, pour avoir été assez patient et conciliant pour la croissance des échantillons, sous l'oeil exercé, critique, mais néanmoins sympathique de *Serge TATARENKO*.

Comment ne pas remercier *Yann GENUIST*, qui a su trouver un peu de temps pour m'enseigner la lithographie UV, l'usage du bâti d'évaporation, et les astuces pour réaliser les contacts et soudures des diodes - sans ton aide je serais peut-être encore entrain d'essayer de connecter mes échantillons!

J'ai pris beaucoup de plaisir à collaborer avec *Piotr KOSSACKI* et *Jan GAJ* de l'université de Varsovie; ainsi qu'avec *Tomash DIETL*, *Maciek SAWICKI* et *Jurek WROBEL* de l'Académie Polonaise des sciences de Varsovie - Merci à vous.

Le plaisir que j'ai pris à travailler dans l'équipe durant 3,5 ans est certainement lié à la bonne ambiance générale qui y règne. Je tiens donc aussi à exprimer mes remerciements aux membres permanents de l'équipe : Fabrice DONATINI (aujourd'hui c'est rando, parapente ou canyoning?), Régis ANDRE (merci pour tes bons conseils et le partage de ton expérience des voyages), Robert ROMESTAIN, Jean-Pilippe POIZAT, Kuntheak KENG, Henri MARIETTE, Joël BLEUSE, Ronald COX, Eric DELAMADELAINE, Yoann CURE, Marlène TERRIER-FALCO, Eva MONROY et Bruno DAUDIN.

Merci aussi aux nombreux thésards qui se sont succédés. Ceux qui ont quitté le laboratoire durant ma thèse, Christophe BOURGOGNON (au moins on aura essayé de réaliser une structure hybride métal/semi-conducteur!), Laurent MARSAL (collègue de bureau pour un temps, amoureux de la montagne pour toujours), Lucien BESOMBES (de retour dans l'équipe), Mickaël BRUN, Aurélien DRE-ZET, Patrick FERRAND, Vincent HUARD, Markus MULLER, David MARTROU, Julia SIMON, Julien BARJON, Christoph ADELMANN.

Les contemporains et ceux qui triment encore en spectro, Michael NASSE (tu les vois les molécules uniques?), Nicolas CHEVALIER (prêt pour une toute petite source de lumière?), Maxime RICHARD (t'y est presque Mox, courage), Christophe COUTEAU (Ding! ton repas est chaud), Philippe RENAUD-GOUD (un p'tit café?), Stéphane MARCET (France ou Japon?), Wiktor Maslana (Take care on the ski slopes...), Jacek Kasprzak (quel appart!), et ceux basés au CEA, Franck TINJO (il est interdit de sortir après 20h00!) Yvan-Christophe ROBIN (n'oublie pas, tout est dans le mental...), Sophie CARAYON, Fabrice ENJALBERT, Sébastien MOEHL, Andrey TITOV, Laurent MAINGAULT, Sébastien FOUNTA, Noëlle GOGNEAU.

Je n'oublie pas les post-docs qui ont passé un peu de temps au labo, Andrea BALOCCHI, Romain GIRAUD, Frédéric FROSSARD et DAVID HALLEY, qui y travaille encore.

Enfin je voudrais remercier ceux qui, en-dehors du laboratoire, ont contribué à mon bien-être durant mon passage à Grenoble : *Benoît BATAILLOU* (une ch'tite mousse?), Olivier *BICHET* (Mr., good luck in Cambridge), *Mickaël DERIVAZ* (Tu vas le trouver ton poste rêvé au soleil, courage), le groupe des FDS : *Damien, Erwan, François, Cécile, Vincent, Fred, Estelle, Lionel*, et *Sandrine* pour avoir en plus débusqué un nombre astronomique de fautes d'orthographe-grammaire dans mon manuscrit et pour son soutien au quotidien - Merci Sands.

## Table des matières

	Chapit	re 1 Introduction générale	1
Ι	Matér	iaux et montage expérimental	5
	Chapit	re 2 Matériaux et méthodes de caractérisation	7
	2.1	Semi-conducteurs de la famille des tellurures	7
		2.1.1 Structure cristalline - paramètre de maille	7
		2.1.2 Structure de bande	8
	2.2	Hétérostructures	10
		2.2.1 Croissance par épitaxie par jets moléculaires	10
		2.2.2 Puits quantique	11
	2.3	(Cd,Mn)Te : un semi-conducteur magnétique dilué	14
		2.3.1 Spins localisés	14
		2.3.2 Effet Zeeman géant	15
	2.4	Règles de sélection sous champ magnétique en configuration Faraday	17
		2.4.1 Puits quantique magnétique : (Cd,Mn)Te/(Cd,Zn,Mg)Te	17
		2.4.2 Puits non magnétique : CdTe/CdZnMgTe	18
	2.5	Caractéristiques courant-tension	18
	2.6	Spectroscopie optique	19
	Chapit	re 3 transitions optiques dans un puits quantique	<b>21</b>
	3.1	Exciton	21
	3.2	Exciton chargé - singulet	22
		3.2.1 description	22
		3.2.2 Identification	22
	3.3	Exciton chargé - triplet	23
	3.4	Transition bande à bande et détermination de la densité de trous	25
		3.4.1 Absorption	25
		3.4.2 Emission : PL	25
		3.4.3 Séparation de Moss-Burstein : une mesure de la densité de porteurs	26
		3.4.4 Quelques complications	26

#### II Propriétés magnéto-optiques de puits quantiques de (Cd,Mn)Te en présence d'un gaz bidimensionnel de trous 31

Chapit	re 4 Identification d'un gaz de porteurs dans un puits quantique dopé par la	
surface		33
4.1	Echantillon modèle : M1269	33
4.2	Absorption magnéto-optique	34
	4.2.1 Réflectivité écrantée : exciton-trion	34

#### Table des matières

	4.4.4	
4.3	Mise e	en evidence du type de porteurs
	4.3.1	Puits quantique de CdTe situé à 100 nm de la surface
	4.3.2	Puits quantique de CdTe situé à 25 nm de la surface
	4.3.3	Puits quantique "moins profond"
	434	Etats de surface
4.4	Conch	
hapit	tre 5 C	ontrole de la densite de trous
5.1	Contro	ble optique : structure pip
	5.1.1	Echantillon modèle : M1305
	5.1.2	Transmission et photoluminescence sans photoneutralisation
	5.1.3	Contrôle de la densité de trous : photoneutralisation
5.2	Contro	ôle électrique : structure pin
	5.2.1	Composition et principe de fonctionnement
	5.2.2	Réalisation de grilles 2D et de contacts métalliques
	5.2.3	Réalisation de grilles digitales
	5.2.4	Caractéristique courant-tension
	5.2.5	Contrôle de la densité de trous
	5.2.6	Estimation numérique de la densité de trous
	aonaly	sion
5.3 <b>hapit</b> 6.1	tre 6 P Echan 6.1.1	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman tillon dopé par la surface : M1269
5.3 5.1 6.1	tre 6 P Echan	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman tillon dopé par la surface : M1269
5.3 E <b>hapit</b> 6.1	tre 6 P Echan 6.1.1	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman tillon dopé par la surface : M1269
5.3 <b>hapi</b> t 6.1	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman tillon dopé par la surface : M1269
5.3 2 <b>hapit</b> 6.1	<pre>tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3</pre>	<b>ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman</b> tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Photoluminescence         Position des raies
5.3 2 <b>hapit</b> 6.1 6.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305
5.3 F <b>hapi</b> ( 6.1 6.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation
5.3 2 <b>hapi</b> ( 6.1 6.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2	Image: state in the second state in
5.3 2 <b>hapi</b> ( 6.1 6.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3	Image: Sign state in the second sta
5.3 2 <b>hapi</b> 6.1 6.2 6.3	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct	Image: Sign of the second s
5.3 6.1 6.2 6.3	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1	<b>Propriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman</b> tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoluminescence
5.3 Ehapit 6.1 6.2 6.3 6.4	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conch	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoluminescence         Photoneutralisation 1 mW Ar         ure pin : M1329         Photoluminescence
5.3 <b>hapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>hapit</b>	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conclu	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 0.1 mW Ar         Photoluminescence         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoluminescence         Ure pin : M1329         Photoluminescence         Usion         Hentification et évolution des états sous champ magnétique
5.3 <b>hapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>hapit</b> 7.1	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conch tre 7 Ic A faib	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 0.1 mW Ar         Photoluminescence         ure pin : M1329         Photoluminescence         usion         Hentification et évolution des états sous champ magnétique         le densité de trous
5.3 <b>Chapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>Chapit</b> 7.1 7.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conch tre 7 Ic A faib	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 0.1 mW Ar         Photoluminescence         ure pin : M1329         Photoluminescence         usion         Attraction et évolution des états sous champ magnétique         le densité de trous         s forte densité de trous
5.3 <b>Chapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>Chapit</b> 7.1 7.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conch tre 7 Ic A faib A plus 7.2.1	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 0.1 mW Ar         Photoluminescence         ure pin : M1329         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoluminescence         usion         State de trous
5.3 <b>Chapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>Chapit</b> 7.1 7.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conch tre 7 Ic A faib A plus 7.2.1 7.2.2	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 0.1 mW Ar         Photoluminescence         ure pin : M1329         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoluminescence         usion         Sans photoneutralisation 1 mW Ar         Photoluminescence         sion         Photoluminescence         Bentification et évolution des états sous champ magnétique         le densité de trous         s forte densité de trous         Référence d'énergie         Pour de faibles séparations Zeeman : le X <sup>+</sup>
5.3 <b>Chapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>Chapit</b> 7.1 7.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conclu- tre 7 Ic A faib A plus 7.2.1 7.2.2 7.2.3	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 0.1 mW Ar         Photoneutralisation 1 mW Ar         Photoluminescence         ure pin : M1329         Photoluminescence         usion         A plue forter séparations Zeeman : le $X_S^+$
5.3 <b>Chapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>Chapit</b> 7.1 7.2 7.2	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conclu- tre 7 Ic A faib A plus 7.2.1 7.2.2 7.2.3	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 0.1 mW Ar         Photoluminescence         ure pin : M1329         Photoneutralisation 1 mW Ar         ure pin : M1329         Photoluminescence         usion         A plus fortes séparations Zeeman : le $X_S^+$
5.3 <b>Chapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>Chapit</b> 7.1 7.2 7.3	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conclu- tre 7 Ic A faib A plus 7.2.1 7.2.2 7.2.3 Energg 7.2.1	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman         tillon dopé par la surface : M1269         Transmission         Transmission         Photoluminescence         Position des raies         ure pip :M1305         Sans photoneutralisation         Photoneutralisation 0.1 mW Ar         Photoluminescence         ure pin : M1329         Photoneutralisation 1 mW Ar         ure pin : M1329         Solon         State         Identification et évolution des états sous champ magnétique         le densité de trous         s forte densité de trous         Référence d'énergie         Pour de faibles séparations Zeeman : le $X_S^+$ A plus fortes séparations Zeeman : émergence de $D_{inf}$ et $D_{sup}$ ies caractéristiques
5.3 <b>Chapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>Chapit</b> 7.1 7.2 7.3	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conch tre 7 Ic A faib A plus 7.2.1 7.2.2 7.2.3 Energ 7.3.1	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman tillon dopé par la surface : M1269
5.3 <b>hapit</b> 6.1 6.2 6.3 6.4 <b>hapit</b> 7.1 7.2 7.3 <b>-</b>	tre 6 P Echan 6.1.1 6.1.2 6.1.3 Struct 6.2.1 6.2.2 6.2.3 Struct 6.3.1 Conch tre 7 Ic A faib A plus 7.2.1 7.2.2 7.2.3 Energ 7.3.1 7.3.2	ropriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeemantillon dopé par la surface : M1269TransmissionPhotoluminescencePosition des raiesPosition des raiesSans photoneutralisationSans photoneutralisationPhotoneutralisation 0.1 mW ArPhotoneutralisation 1 mW ArPhotoneutralisation 1 mW ArPhotoneutralisation 1 mW ArPhotoneutralisation 2Photoneutralisation 2Photoneutralisation 3Photoneutralisation 4Photoneutralisation 4Photoneutralisation 5Photoneutralisation 4Photoneutralisation 5Photoneutralisation 6Photoneutralisation 1Photoneutralisation 1Photone

#### III Contrôle de l'aimantation d'un puits quantique de (Cd,Mn)Te par une grille électrostatique. 93

Chapitre 8 Transition Ferromagnétique			
8.1 Interaction RKKY (Ruderman, Kittel, Kasuya, Yosida)		. 95	
8.1.1 Interaction d'échange : 3D		. 95	
8.1.2 Intégrale d'échange : 2D		. 96	

0.0	8.1.3 Aimantation dans l'approximation de champs d'échanges uniformes	98
8.2	Mise en évidence de la transition ferromagnétique par spectroscopie optique	99
	8.2.1 Susceptibilité de la phase paramagnétique	99
0.0	8.2.2 Dedoublement spontane de la raie de PL lors de la mise en ordre magnetique	100
8.3	Domaines magnetiques	101
8.4	Determination du champ interne	103
8.5	Conclusion	104
Chapit	re 9 Contrôle électrique de l'aimantation	105
9.1	Echantillon	105
9.2	Aimantation spontanée	107
9.3	Domaines magnétiques	108
	9.3.1 Tension de grille nulle	108
	9.3.2 Tension de grille : -1 V	110
9.4	Population-aimantation : discussion	111
	9.4.1 Aimantation	111
	9.4.2 Population	112
	9.4.3 Comparaison	114
9.5	Vers une mesure directe de l'aimantation d'un puits quantique?	114
	9.5.1 Montage expérimental SQUID et stratégie mise en oeuvre	114
9.6	Conclusion	118
Chapit	re 10 Conclusion générale	119
Chapit		110
Annex	e A Structure des échantillons utilisés : classification par numéro.	121
Bibliograp	hie	127

Table des matières

# Chapitre 1 Introduction générale

Il faut remonter à 1948 pour trouver les fondements de l'électronique. C'est à cette date que Ralph Brown, directeur au Bell Laboratory, annonça la découverte du transistor par Bardeen, Brattain et Schottky. Cette découverte représente encore à ce jour la révolution de l'électronique : le transistor permet de manipuler les porteurs de charges dans un semi-conducteur et donc de créer des portes logiques indispensables au traitement d'une information. L'utilisation de semi-conducteurs a alors permis l'intégration de plusieurs composants sur une même plaquette - et la réduction des dimensions - ouvrant la voie à la micro-électronique. Le stockage massif des données est, quant à lui, assuré par des matériaux magnétiques élaborés à partir de métaux.

La thèse se situe dans un cadre d'étude de matériaux présentant les propriétés physiques recherchées pour de futures applications en électronique de spin, qui pourrait être la seconde révolution de l'électronique. Il s'agit d'utiliser conjointement le spin et la charge des électrons (ou des trous dans les semi-conducteurs). La première démonstration de l'utilisation du spin et de la charge électrique a été rapportée en 1988 dans une structure multi-couches fer/chrome [1]. L'effet utilisé est maintenant bien connu sous le nom de magnéto-résistance géante (ou GMR pour Giant Magneto-Resistance) : la résistance électrique varie fortement lorsque la structure est soumise à un champ magnétique. Cet effet est la base du fonctionnement des têtes de lecture-écriture des disques durs d'ordinateur utilisés actuellement. L'inconvénient majeur des composants à base de métaux est, en plus de leur non compatibilité avec la technologie actuelle reposant sur les semi-conducteurs, le très faible temps de cohérence de spin. Il n'est pas envisageable de transporter et de manipuler des spins dans des métaux.



FIG. 1.1 – Transistor à effet de champ ou spin-FET (Field Effect Transistor) imaginé par Datta et Das en 1990 [2]. Le courant est polarisé en spins lors de l'injection par une des électrodes ferromagnétiques(FER). La tension de grille ( $V_G$ ) induit une precession des spins des électrons qui sont collectés ou non par l'autre électrode ferromagnétique suivant leur état de spin.

De ce point de vue les semi-conducteurs sont bien plus adaptés : Kikkawa et al. ont montré en 1999 qu'il

#### Chapitre 1. Introduction générale

est possible de conserver la polarisation en spin d'un courant sur des distances de l'ordre de 100  $\mu$ m [3]. Un composant type (figure 1.1), utilisant un courant polarisé en spin piloté par une grille électrostatique a été proposé par Datta et Das en 1990 [2]. Les électrons sont injectés par une électrode ferromagnétique, qui doit jouer le rôle de polariseur de spin : un type de spin est favorisé dans le métal ferromagnétique. Le courant polarisé de spin se propage alors dans un canal conducteur avant d'être collecté par une deuxième électrode ferromagnétique, qui sélectionne les porteurs ayant le spin correspondant aux spins majoritaires du métal ferromagnétique utilisé. L'état de spin peut être manipulé entre les deux électrodes par l'application d'une tension grâce à l'effet Rashba qui induit une precession de spin. Si le transport semble tout à fait réalisable, encore faut-il pouvoir injecter un courant polarisé de spin dans un semiconducteur. Ceci est à l'heure actuelle encore très difficile.

L'électronique de spin a, du point de vue des semi-conducteurs, été relancée par les semi-conducteurs magnétiques dilués, connus depuis les années 70. Ce sont des semi-conducteurs dans lesquels des atomes magnétiques sont dilués en substitution : le fort couplage entre les éléments magnétiques (par exemple des ions Mn) et les porteurs de la matrice semi-conductrice (InAs, GaAs, ZnTe, CdTe et bien d'autres) permet de fortement polariser un courant de porteurs sous champ magnétique - comme démontré par Ohno *et al.*[4] et Fiederling *et al.* [5] en 1999. Ohno *et al.* ont largement contribués au développement des semi-conducteurs magnétiques, notamment en vue de possibles applications, puisqu'ils ont été les premiers à démontrer qu'il est possible de rendre ce type de matériaux ferromagnétique [6] et de contrôler l'aimantation dans une structure FET [7].



FIG. 1.2 – Structure à effet de champ utilisée par Ohno *et al.* [7] pour piloter l'aimantation de la couche magnétique d'(In,Mn)As. A tension nulle la couche d'(In,Mn)As est ferromagnétique : l'aimantation est augmentée en tension négative et diminuée en tension positive. Ceci est permis par le fait que le couplage ferromagnétique entre les spins de Mn est véhiculé par un gaz de trous dont la densité peut être pilotée par l'application de la tension  $V_G$ .

L'étude réalisée durant ma thèse s'est développée autour de deux thématiques dont le point commun a été l'analyse par spectroscopie magnéto-optique de puits quantiques de (Cd,Mn)Te en présence d'un gaz bidimensionnel de trous dont on peut ajuster la densité (par une grille électrostatique ou optiquement) et la polarisation (par l'effet Zeeman géant).

Le premier aspect a été d'adapter les méthodes couramment utilisées en micro-électronique (pour le silicium et le GaAs) à la réalisation d'un composant de l'électronique de spin à base de semi-conducteurs de la famille des tellurures où on contrôle électriquement une aimantation : c'est une diode pin avec un puits quantique de (Cd,Mn)Te qui a été choisie.

Le second point a été d'étudier les propriétés optiques d'un puits quantique de (Cd,Mn)Te, comportant un gaz 2D de trous de densité variable et pour une composition en Mn inférieure à 1%. L'effet Zeeman géant dans la bande de valence permet une configuration originale, à la fois de l'état fondamental (gaz polarisé) et de l'état photo-excité, qu'on a exploité en étudiant l'évolution des transitions optiques.

#### Plan du mémoire

La première partie permet de se familiariser avec les matériaux et les structures étudiés. Les méthodes de caractérisation sont présentées à la fin du chapitre 2 avec une présentation plus détaillée, au chapitre 3, des transitions optiques connues dans un puits quantique en fonction de la densité de porteurs.

La seconde partie présente les propriétés de spectroscopie magnéto-optique observées à partir d'échantillons présentant tous un puits quantique de (Cd,Mn)Te dopé de type p. Le dopage est soit intentionnel un dopage azote par modulation permet de générer un gaz de trous dans une structure de type pip ou pin - soit une conséquence de la formation d'états de surface accepteurs quand l'échantillon est exposé à l'oxygène. La démonstration de cette méthode de dopage est bien entendu passée par une identification du type de porteurs (électron ou trou) présents dans le puits en fonction de la distance relative entre surface et puits ; ceci fait l'objet du chapitre 4. Le chapitre 5 est consacré à une démonstration du contrôle de la densité de trous optiquement et électriquement. Les mêmes échantillons sont repris chapitre 6 afin de présenter les spectres de spectroscopie magnéto-optique obtenus en fonction du champ magnétique. Une attention particulière a été portée à l'étude par photoluminescence. L'identification et une analyse des transitions observées sont présentées au chapitre 7.

La troisième partie est consacrée à l'étude et au contrôle de la transition ferromagnétique dans un puits quantique de (Cd,Mn)Te. Le chapitre 7 présente les interactions de type RKKY responsables du couplage entre les spins de Mn : le couplage est véhiculé par un gaz bidimensionnel de trous. Finalement le chapitre 8 présente une démonstration du contrôle électrique des propriétés magnétiques d'un puits quantique de (Cd,Mn)Te introduit dans une diode pin ; une méthode de mesure directe (par SQUID) de l'aimantation est proposée en fin de chapitre. Cette dernière méthode a fait l'objet d'une collaboration avec M. Sawicki et T. Dietl de l'Institut de Physique à l'Académie des Sciences de Pologne, et P. Kossacki et J. Gaj de l'université de Varsovie : j'ai passé 2 mois à Varsovie pour mettre en place et tester la méthode. Chapitre 1. Introduction générale

Première partie

Matériaux et montage expérimental

Le travail effectué durant ma thèse repose sur l'étude de puits quantiques d'un semi-conducteur magnétique dilué : le CdMnTe. L'étude est menée par spectroscopie magnéto-optique à basse température (4.2K - 1.5K). Le premier chapitre présente tout d'abord les matériaux utilisés, en soulignant les règles de sélection des transitions optiques à utiliser dans un puits quantique de CdTe et de (Cd,Mn)Te. Suit alors la description des conditions expérimentales dans lesquelles ont été effectuées les mesures. Le second chapitre est une introduction aux transitions optiques attendues dans un puits quantique de CdTe et de (Cd,Mn)Te. Suit et de (Cd,Mn)Te en fonction de la densité du gaz 2D de porteurs dans le puits. On distingue trois régimes. Sans porteurs libres, c'est l'exciton qui est observé par spectroscopie. Pour une faible densité de porteurs, il y a formation d'excitons chargés qui peuvent être dans un état singulet ou triplet de spin. Pour de plus fortes densités de porteurs, les transitions sont interprétées en termes de transitions bande à bande - une détermination de la densité de trous est présentée dans ce régime.

## Chapitre 2

# Matériaux et méthodes de caractérisation

Les échantillons étudiés, par spectroscopie magnéto-optique, durant mon travail de thèse présentent pour la grande majorité un puits quantique de semi-conducteur magnétique dilué, le (Cd,Mn)Te, dont la composition maximum en Mn est de 5%. Ainsi, le premier paragraphe de ce chapitre décrit les propriétés principales des semi-conducteurs de la famille des tellurures. La réalisation des puits quantiques et les états d'énergie, qui découlent du décalage de bande interdite entre les semi-conducteurs barrière et puits quantique, du confinement et des contraintes sont introduits dans le second paragraphe. Suit alors une présentation du semi-conducteur magnétique (Cd,Mn)Te. Enfin, les deux derniers paragraphes présentent les méthodes expérimentales utilisées : mesures de caractéristiques courant-tension pour les diodes pin, et spectroscopie magnéto-optique.

#### 2.1 Semi-conducteurs de la famille des tellurures

Les échantillons dont nous allons parler dans la suite, sont des semi-conducteurs II-VI de la famille des tellurures. Ils sont formés d'éléments II de la classification périodique de Mendeleïev, le cadmium, le zinc, le magnésium, le manganèse, et d'un élément VI le tellure. Les électrons de valence sont au nombre de 2, sur une orbitale s, pour les éléments II, et de 6 (2 sur une orbitale s et 4 sur une orbitale p) pour les éléments VI. Les liaisons interatomiques sont de type sp<sup>3</sup> : chaque anion se trouve dans un environnement tétraédrique de cations et réciproquement.

#### 2.1.1 Structure cristalline - paramètre de maille

Le CdTe et le ZnTe, ainsi que leurs alliages  $Cd_{1-x}Zn_xTe$  pour toutes les compositions en Zn, cristallisent dans la structure blende de zinc (figure 2.1). Celle-ci est constituée de deux sous-réseaux cubiques à faces centrées, décalés l'un par rapport à l'autre d'un quart de la grande diagonale [111] du cube. L'un des sous-réseau est occupé par les éléments II (Zn,Mg), l'autre par les éléments VI (Te). Les alliages  $Cd_{1-x}Mg_xTe$  et  $Cd_{1-x}Mn_xTe$  cristallisent naturellement dans cette structure jusqu'à des compositions xrespectivement de 0.3 et 0.75. La structure blende de zinc est conservée jusqu'à x=1, pour les deux types d'alliage, en épitaxie par jets moléculaires sur substrat de (Cd,Zn)Te. Les paramètres de maille dans la structure blende de zinc des matériaux utilisés sont :

$a_{\rm CdTe}$	=	6.4810	Ă	[8]
$a_{\rm ZnTe}$	=	6.1037	Å	[8]
$a_{\rm MgTe}$	=	6.42	Å	[9]
$a_{\rm MnTe}$	=	6.337	Å	[10]

Lors de la formation d'un alliage  $Cd_{(1-x-y)}A_xB_yTe$  (avec A et B deux éléments II : Zn, Mg, Mn), un des sous-réseau cubique faces centrées est occupé par des atomes de Te alors que les cations (Cd, Zn,

Chapitre 2. Matériaux et méthodes de caractérisation



FIG. 2.1 – Maille blende de zinc du CdTe de paramètre a=6.48 Å : deux réseaux cubiques faces centrées, décalés du quart de la grande diagonale [111] du cube.

Mg, Mn) se distribuent aléatoirement sur l'autre sous-réseau. Le paramètre de maille de l'alliage peut se calculer suivant la loi de Vegard :

$$a(\mathrm{Cd}_{(1-x-y)}\mathrm{A}_x\mathrm{B}_y\mathrm{Te}) = (1-x-y)a_{\mathrm{CdTe}} + xa_{\mathrm{ATe}} + ya_{\mathrm{BTe}}$$

#### 2.1.2 Structure de bande

Les matériaux utilisés sont tous des semi-conducteurs à bande interdite directe : leur structure de bande présente un maximum de la bande de valence et un minimum de la bande de conduction en centre de zone de Brillouin, en  $\vec{k}=0$ . Une description des calculs de bande est présentée, dans l'approximation  $\vec{k} \cdot \vec{p}$ , par G.Fishman [11]. La figure 2.2 illustre la structure des bandes au voisinage de la zone de Brillouin.



FIG. 2.2 – Structure de bande en centre de zone de Brillouin.

#### 2.1. Semi-conducteurs de la famille des tellurures

La bande de conduction, de symétrie  $\Gamma_6$ , est deux fois dégénérée (spin  $s=\frac{1}{2}$ ) et séparée de la bande de valence (BV) par une bande d'énergie interdite, notée  $E_G$  par la suite. La bande de valence de symétrie  $\Gamma_8$  est séparée par le couplage spin-orbite,  $\Delta_{SO}$ , d'une bande de symétrie  $\Gamma_7$ . Le couplage entre les bandes  $\Gamma_7$  et  $\Gamma_8$  sera négligé dans la suite puisque le couplage spin-orbite est de 0.9 eV dans CdTe. La bande  $\Gamma_8$ , 4 fois dégénérée en  $\vec{k}=0$ , est composée de deux sous-bandes : une de trous lourds (hh) pouvant être décrite par un moment cinétique  $J=\frac{3}{2}$  et sa projection  $m_J=\pm\frac{3}{2}$  suivant une direction de l'espace, l'autre de trous légers (lh) correspondant à la projection  $m_J=\pm\frac{1}{2}$ .

#### Masse effective

Il est possible, en se limitant au voisinage du centre de la zone de Brillouin, de décrire les courbures des différentes bandes par un développement à l'ordre 2 en k. Ceci correspond à l'approximation parabolique, également appelée "de masse effective", qui se traduit, en notant m<sup>\*</sup> la masse effective, par une expression de la courbe de dispersion :

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}$$

La masse effective des électrons est isotrope et vaut, en notant  $m_0$  la masse d'un électron libre :

$$m_e^* = 0.1 m_0$$

La situation pour la bande de valence est plus délicate puisqu'elle est 4 fois dégénérée à k=0; la dégénérescence est levée pour  $k\neq 0$ , ce qui se décrit en introduisant deux masses effectives dites de trous lourds et de trous légers. Celles-ci se calculent à l'aide de trois paramètres "de Lüttinger", qui permettent de tenir compte de la symétrie cubique, et en choisissant l'axe de quantification suivant le vecteur d'onde k. Les masses effectives dans la direction de k s'écrivent, respectivement pour les trous lourds (hh) et les trous légers (lh) :

$$\mathbf{m}_{hh,\parallel}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 - 2\gamma_2}; \quad \mathbf{m}_{lh,\parallel}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 + 2\gamma_2}$$

avec pour CdTe [12]

 $\gamma_1 = 4.5; \quad \gamma_2 = 1.46$ 

Si l'axe de quantification est fixé dans une direction légèrement différente du vecteur d'onde k, la composante de la masse effective, perpendiculaire à k, peut être traitée sous forme de perturbation à l'intérieure des bandes de trous lourds et de trous légers. Les masses effectives, perpendiculaires à l'axe de propagation, pour les trous lourds et légers s'écrivent alors :

$$\mathbf{m}_{hh,\perp}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 + \gamma_2} \quad ; \quad \mathbf{m}_{lh,\perp}^* = \frac{m_0}{\gamma_1 - \gamma_2}$$

On notera que cette masse est légère pour les trous lourds (0.17  $m_0$  dans CdTe) et lourde pour les trous légers (0.33  $m_0$  dans CdTe). On devra tenir compte de cette levée de dégénérescence dans les puits quantiques.

#### bande d'énergie interdite

Les largeurs de bande interdite  $E_G$ , exprimées en meV à 2K, des différents semi-conducteurs utilisés sont :

$$\begin{array}{rcl} E_{\rm G}({\rm CdTe}) &=& 1606 & [8] \\ E_{\rm G}({\rm ZnTe}) &=& 2391 & [8] \\ E_{\rm G}({\rm MgTe}) &=& 3600 & [9] \\ E_{\rm G}({\rm MnTe}) &=& 3198 & [13] \end{array}$$

Les largeurs de bande interdite des alliages peuvent se calculer par les formules suivantes (exprimées en meV et à 2K) :

Chapitre 2. Matériaux et méthodes de caractérisation

$$\begin{array}{rcl} E_{\rm G}({\rm Cd}_{(1-x)}{\rm Zn}_{x}{\rm Te}) &=& 1606\!+\!525x\!+\!260x^{2} & [14] \\ E_{\rm G}({\rm Cd}_{(1-x)}{\rm Mg}_{x}{\rm Te}) &=& 1606\!+\!1700x\!+\!300x^{2} & [9] \\ E_{\rm G}({\rm Cd}_{(1-x)}{\rm Mn}_{x}{\rm Te}) &=& 1606\!+\!1592x & [13] \\ E_{\rm G}({\rm Cd}_{(1-x-y)}{\rm Zn}_{x}{\rm Mg}_{y}{\rm Te}) &=& 1606\!+\!525x\!+\!1750y \end{array}$$

La dernière expression a été déduite des expressions des bandes interdites de  $Cd_{(1-x)}Zn_xTe$  et  $Cd_{(1-x)}Mg_xTe$ en ne conservant que les termes linéaires en x et y. L'évolution suivant la composition en Mg est modifiée (1750 au lieu de 1700), pour tenir partiellement compte de l'écart à la linéarité pour une composition en Mg de 0 à 30%. Ceci conduit à un écart par rapport à une loi quadratique de 1 meV pour  $Cd_{0.92}Zn_{0.08}Te$ et de 10 meV pour  $Cd_{0.7}Mg_{0.3}Te$ . Finalement, une distribution continue de bandes d'énergies interdites et de paramètres de mailles peut être obtenue par la formation d'alliages. Un diagramme bande interditeparamètre de maille est représenté figure 2.3 pour un certain nombre de semi-conducteurs, qui cristallisent en structure blende de zinc ou diamant pour le Si et Ge.



FIG. 2.3 – Energie de bande interdite, à 2K, en fonction du paramètre de maille.

#### 2.2 Hétérostructures

#### 2.2.1 Croissance par épitaxie par jets moléculaires

Les échantillons étudiés pendant ma thèse ont été réalisés par M. Bertolini, par épitaxie par jets moléculaires, durant son travail de thèse. C'est une technique de croissance de films minces de semiconducteurs, métaux ou oxydes. Un substrat en (Cd,Zn)Te placé dans une chambre à ultravide (quelques  $10^{-11}$  torr avec 1 torr = 1 mmHg = 133 Pa), et maintenu à des températures de (220 à 280°C), est soumis à des flux d'atomes et de molécules provenant de cellules d'effusion, qui sont dirigées vers le substrat. La composition du film ainsi réalisé dépend de la température du substrat et des flux relatifs des espèces déposées. La vitesse de croissance typique d'un film est de 1 monocouche par seconde. L'épaisseur et la composition des couches peuvent être contrôlées à l'échelle atomique puisque des caches mécaniques permettent, de manière quasi-instantanée, d'interrompre le flux de chaque espèce et donc de passer d'un matériau à l'autre. Pour des conditions de croissance bien choisies, il y a continuité du réseau cristallin à travers toute la structure.

#### 2.2.2 Puits quantique

#### Décalage de bande interdite

Suivant que l'on désire confiner des trous ou des électrons, il est nécessaire, en plus de la différence de bande interdite, de prendre en compte le positionnement relatif des bandes de chaque matériau. La discontinuité chimique entre le matériau puits et le matériau barrière est caractérisée par le décalage de bande de valence (figure 2.4) :

$$\alpha_v = \frac{V_v}{E_G^B - E_G^A}$$

Les hétérostructures utilisées sont toutes de type I - les électrons et les trous sont confinés dans le même film, le puits quantique. Le décalage de bande de valence entre CdTe et  $Cd_{(1-x)}Mg_x$ Te vaut environ  $\frac{1}{3}$ alors que dans le cas dune interface  $CdTe/Cd_{(1-x)}Zn_x$ Te le décalage de bande de valence est quasi-nul [15].



FIG. 2.4 – Décalage de bande interdite.

#### Confinement et masses effectives dans le puits

La réalisation de puits quantiques passe par la juxtaposition de deux semi-conducteurs de bandes interdites différentes. Le but est de confiner les porteurs (les trous et/ou les électrons) dans le semi-conducteur de plus petite bande interdite, d'une épaisseur typique de quelques nanomètres. Ce confinement conduit à une quantification des niveaux d'énergie suivant l'axe perpendiculaire aux interfaces entre les deux semiconducteurs. Une estimation des niveaux d'énergie peut se faire en supposant que les interfaces entre les matériaux sont abruptes, et que la différence de bande interdite est infinie. La résolution de l'équation de Schrödinger dans le puits quantique d'une épaisseur L conduit alors à une alternance de fonctions d'ondes paires et impaires auxquelles sont associées les énergies, mesurées par rapport au fond du puits quantique :

$$E_N^{\infty} = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2mL^2} N^2$$

En considérant une hauteur de puits quantique finie  $V_0$ , la même masse effective dans le puits et dans la barrière, la détermination du niveau fondamental  $E_1$  passe par la résolution numérique de l'équation suivante :

$$\frac{V_0}{E_1^{\infty}} = \frac{E_1}{E_1^{\infty}} (1 + \tan^2(\frac{\pi}{2}\sqrt{\frac{E_1}{E_1^{\infty}}}))$$

On peut montrer que le confinement des premiers niveaux est décrit par les mêmes expressions que dans le cas de la bande de conduction, en utilisant la masse des trous lourds d'une part, des trous légers d'autre part. Pour un puits quantique déposé sur une couche orientée (001), l'axe de quantification est suivant la direction (001), c'est-à-dire perpendiculaire aux interface des couches déposées. Les expressions des masses effectives suivant la direction (001) restent les mêmes que celles présentées pour une couche épaisse au 2.1.2. Par contre, les porteurs sont libres de se déplacer dans le plan du puits quantique. Il est tentant d'utiliser les mêmes expressions de masses effectives perpendiculaires que celles données pour une couche épaisse au 2.1.2 pour décrire la courbe de dispersion des porteurs dans le plan du puits quantique. Ceci conduit à une masse effective pour les trous lourds, dans le plan du puits quantique :

$$m_{hh,\perp}^* = 0.17m_0$$

Le calcul en perturbation n'est cependant plus valable puisque cette fois on cherche une masse effective dans des directions qui s'écartent franchement de l'axe de quantification (001). Un calcul plus complet, pour un puits quantique de de 8 nm CdTe contraint, a été réalisé par G. Fishman en prenant en compte le couplage entre trous lourds et trous légers [16]. le calcul mène à une masse des trous lourds dans le plan du puits :

$$m_{hh,\perp}^* = 0.25m_0$$

C'est cette dernière valeur que nous utiliserons par la suite.

La figure 2.5 illustre le confinement des trous et des électrons dans le puits quantique de type I. La dégénérescence entre hh et lh est alors levée, du fait de leur différence de masse effective.



FIG. 2.5 – Profil de puits quantique de type I et discrétisation des niveaux d'énergie des électrons (e), des trous lourds (hh) et légers (lh).

#### Contraintes

Lors de l'épitaxie d'un matériau A sur une couche B, le substrat, la différence de paramètre de maille entre les deux matériaux donne naissance à une contrainte biaxiale, qui modifie la structure électronique. Lorsque le désaccord de maille est faible, le matériau déposé peut adapter son paramètre de maille dans le plan à celui du substrat : l'épitaxie est dite cohérente et la couche se déforme verticalement suivant les lois de l'élasticité. Si la différence de paramètre de maille est trop importante, l'énergie élastique emmagasinée peut relaxer de manière plastique par formation de dislocations ou par changement de morphologie, comme par exemple lors de la formation de boîtes quantiques. La croissance des échantillons étudiés ici a toute été faite de manière cohérente sur substrat de  $Cd_{0.88}Zn_{0.12}Te$ . Dans le cas de matériaux de symétrie cubique avec l'axe de croissance parallèle à une direction (001), il est possible de décomposer les contraintes en une composante hydrostatique et de cisaillement tétragonal. La première,  $\Delta V_{hydro}$ , déplace les bandes  $\Gamma_6$  et  $\Gamma_8$  alors que la seconde,  $\Delta V_{cis}$ , lève la dégénérescence entre entre trous lourds et légers (figure??). En notant  $a_s$  et  $a_0$  les paramètres de maille du substrat et du matériau déposé non contraint, la déformation dans le plan des couches s'écrit :

$$\varepsilon_{\parallel} = \frac{a_{\rm s} - a_0}{a_0}$$

En suivant les notations de la figure 2.6, on obtient :

$$\Delta V_{hydro} = \Delta V_{hydro,c} + \Delta V_{hydro,v} = 2(1 - \frac{c_{12}}{c_{11}})(a_c + a_v)\varepsilon_{\parallel}$$

 $\operatorname{et}$ 

$$\Delta V_{cis,hh} = b(1 - \frac{c_{12}}{c_{11}})\varepsilon_{\parallel} \quad ; \quad \Delta V_{cis,hh} = -\Delta V_{cis,hh}$$

avec  $c_{ij}$ , les éléments du tenseur élastique,  $a_c$  et  $a_v$ , les potentiels de déformation hydrostatique de la bande de valence et de conduction, et *b* le potentiel de déformation de cisaillement tétragonal - les valeurs numériques sont rapportées dans le tableau qui suit. On notera que les potentiels de déformation  $a_c$  et  $a_v$  se déduisent de  $a = a_c + a_v$  mesuré expérimentalement et du rapport théorique  $\frac{a_c}{a_v} = -2$ .

Matériaux	a[ m eV]	$b[\mathrm{eV}]$	$\frac{C_{12}}{C_{11}}$
CdTe	-3.85 moyenne de [17] et [18]	-1.15 moyenne de [17] et [18]	0.7 [19]
ZnTe	-5.48 [20]	-1.30 [20]	0.57 [21]



FIG. 2.6 – Effet des composantes hydrostatiques et de cisaillement des contraintes sur les extrema de bande de valence et de conduction dans le cas d'une couche en compression :  $\varepsilon_{\parallel} \leq 0$ .

Dans la situation qui nous concernera, à savoir des puits quantiques  $Cd_{(1-x)}Mn_xTe$  de 8 nm (avec x qui varie entre 0 et 0.05) sur substrat de  $Cd_{0.88}Zn_{0.12}Te$ , les contraintes induisent une séparation entre trous lourds et trous légers de 20 meV. De plus, le confinement génére une différence entre les deux premiers niveaux de trous lourds d'environ 20 meV. Comme les populations de porteurs maximales dans nos puits quantiques correspondent à des niveaux de Fermi de quelques meV, nous ne considérerons dans la suite plus que le premier niveau de trous lourds (HH1).

#### Etats des électrons et des trous

Le moment cinétique total des électrons se limite à un moment de spin  $s=\frac{1}{2}$  qui est isotrope. Par contre les trous lourds ont un spin  $\pm \frac{1}{2}$  suivant la direction (100). En notation de trous (c'est à dire qu'il faut inverser les signes des moments cinétiques pour retrouver une notation en termes d'électrons), on obtient les deux états de trous lourds  $|m_J = \frac{3}{2}\rangle$  (pour un électron de moment orbital  $l_z=-1$  et de spin  $s_z=-\frac{1}{2}$ ) et et  $|m_J = -\frac{3}{2}\rangle$  (pour un électron de moment orbital  $l_z=1$  et de spin  $s_z=\frac{1}{2}$ ). Chapitre 2. Matériaux et méthodes de caractérisation



FIG. 2.7 – (Cd,Mn)Te : une distribution aléatoire de spins localisés,  $S=\frac{5}{2}$ , sur les sites cationiques.

#### 2.3 (Cd,Mn)Te : un semi-conducteur magnétique dilué

#### 2.3.1 Spins localisés

Le (Cd,Mn)Te est formé par la répartition aléatoire d'ions Mn en substitution d'ions Cd. Les atomes de Mn, de configuration électronique  $[...3d^54s^2]$  portent un spin localisé  $S=\frac{5}{2}$ . Le facteur de Landé se calcule pour un atome libre (de moment cinétique total J avec un moment orbital L et un spin S) par l'équation de Landé :

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

Ainsi, pour les ions  $\operatorname{Mn}^{2+}(L=0; S=\frac{5}{2})$  on a  $g_{Mn}=2$ ; ce qui est vérifié expérimentalement. Le moment magnétique par atome de Mn s'écrit alors, en notant  $\mu_B=\frac{e\hbar}{2m_0}$  le magnéton de Bohr :

$$\overrightarrow{\mu} = -g_{Mn}\mu_B \overrightarrow{S}$$

Sachant que chaque site cationique, repéré par  $\overrightarrow{R_i}$ , est soit occupé (x<sub>i</sub>=1) ou non occupé (x<sub>i</sub>=0) par un

atome de Mn, l'aimantation de ce système de spins localisés s'écrit :

$$\vec{M}(\vec{r}) = -\sum_{i} x_{i} g_{Mn} \mu_{B} \langle \vec{S} \rangle \delta(\vec{r} - \vec{R}_{i})$$

On se place alors dans l'approximation du cristal virtuel - c'est à dire qu'on suppose, pour une composition x de Mn, que chaque site cationique est "occupé" par xMn et (1-x)Cd. La projection de l'aimantation isotrope  $\overrightarrow{M}(\overrightarrow{r})$  suivant une direction de l'espace (que l'on choisira suivant Oz dans la suite) s'écrit alors pour une composition x en Mn de spins  $\frac{5}{2}$ , et en notant  $N_0$  la densité de sites cationiques du cristal :

$$M = \frac{5}{2}g_{Mn}\mu_B N_0 x \mathbf{B}_{\frac{5}{2}}(\frac{\frac{5}{2}g_{Mn}\mu_B B}{k_B T})$$

avec la fonction de Brillouin  $\mathbf{B}_{\mathbf{J}}$  définie comme suit :

$$\mathbf{B}_{\mathtt{J}}(x) = \frac{2J+1}{2J} \coth(\frac{2J+1}{2J}x) - \frac{1}{2J} \coth(\frac{1}{2J}x)$$

Cette expression suppose que les spins de Mn sont isolés; or, les Mn en sites plus proches voisins sont couplés par interaction antiferromagnétique. Ainsi, aux températures de travail usuelles (1.5 K-4 K) et jusqu'à des champs de l'ordre de 12 T, les ions Mn en sites plus proches voisins ont un spin total nul : ils ne participent donc pas aux propriétés magnétiques du système. Ceci conduit à l'introduction

#### 2.3. (Cd,Mn)Te : un semi-conducteur magnétique dilué

de la composition effective,  $x_{eff}$ , pour la détermination de l'aimantation du système. Il existe aussi des interactions antiferromagnétiques de superéchange entre spins de Mn éloignés, qui sont prises en compte par l'introduction d'une température caractéristique antiferromagnétique  $T_{AF}$ . Finalement, l'aimantation M du système de spins localisés en présence d'un champ magnétique B, s'écrit à l'aide de la fonction de Brillouin introduite précédemment, mais modifiée par les paramètres  $x_{eff}$  et  $T_{AF}$  [22] :

$$M = \frac{5}{2}g_{Mn}\mu_B N_0 x_{eff} \mathbf{B}_{\frac{5}{2}} (\frac{\frac{5}{2}g\mu_B B}{k_B(T + T_{AF})})$$

La figure 2.8 illustre le comportement de la composition effective et de la température antiferromagnétique en fonction de la composition (alliage) en Mn.  $T_{AF}$  émane d'ajustements de données de spectroscopie optique, de couches épaisses de  $Cd_{(1-X)}Mn_xTe$  ([23]) et de puits quantiques de  $Cd_{(1-X)}Mn_xTe$ , de 8 nm d'épaisseur ([24]) par une fonction de Brillouin modifiée - c'est à dire en prenant en compte  $x_{eff}$  et  $T_{AF}$ .



FIG. 2.8 – Composition effective,  $x_{eff}$ , et température antiferromagnétique,  $T_{AF}$ , due au superéchange entre spins de Mn éloignés, en fonction de la composition atomique en Mn.

#### 2.3.2 Effet Zeeman géant

L'effet Zeeman géant est une conséquence du couplage, par interaction d'échange, entre les ions Mn et les bandes de conduction et de valence de la matrice semi-conductrice.

#### couplage d'échange

L'Hamiltonien d'échange, entre un électron de spin  $\vec{s}$  en  $\vec{r}$  et un spin de Mn  $\vec{S_i}$  sur un site cationique  $\vec{R_i}$ , peut s'écrire :

$$H^{1porteur,1Mn} = -\alpha \overrightarrow{s}. \overrightarrow{S_i} \delta(\overrightarrow{R_i} - \overrightarrow{r})$$

avec  $\alpha$  l'intégrale d'échange entre les états d du Mn et les électrons de la bande de conduction. Ainsi, l'influence de tous les spins de Mn sur celui d'un porteur s'écrit :

$$H^{1porteur,xN_0Mn} = -\alpha \overrightarrow{s} \cdot \sum_i x_i \overrightarrow{S_i} \delta(\overrightarrow{R_i} - \overrightarrow{r})$$

#### Chapitre 2. Matériaux et méthodes de caractérisation

En traitant cet Hamiltonien en champ moyen, c'est à dire en prenant la valeur moyenne des spins de Mn, on obtient :

$$H^{1porteur,xN_0Mn} = -\alpha \overrightarrow{s} \cdot \sum_i x_i \langle \overrightarrow{S_i} \rangle \delta(\overrightarrow{R_i} - \overrightarrow{r})$$

Si bien qu'en se plaçant dans l'approximation du cristal virtuel on obtient l'Hamiltonien d'échange  $H_{ech}$  entre un électron et les spins de Mn sous la forme :

$$H_{ech} = -\alpha N_0 x_{eff} \langle \vec{S} \rangle. \vec{s} = \alpha \vec{s}. \frac{\vec{M}}{g_{Mn} \mu_B}$$

On retrouve des expressions identiques pour les trous en remplaçant  $\alpha$  par  $\beta$ , l'intégrale d'échange entre les états d du Mn et les trous.

#### Sous champ magnétique

L'application d'un champ magnétique  $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$  conduit aux Hamiltoniens  $\mathcal{H}_{ech}^{BV}$  et  $\mathcal{H}_{ech}^{BC}$ , respectivement pour la bande de valence et bande de conduction :

$$H_{ech}^{BV} = g_h \mu_B \mu_0 \overrightarrow{s}. (\overrightarrow{H} + \frac{\beta}{g_h g_{Mn} \mu_B^2 \mu_0} \overrightarrow{M})$$
(2.1)

$$H_{ech}^{BC} = g_e \mu_B \mu_0 \overrightarrow{s}. (\overrightarrow{H} + \frac{\alpha}{g_e g_{Mn} \mu_B^2 \mu_0} \overrightarrow{M})$$
(2.2)

Le premier terme correspond à l'effet Zeeman alors que le second représente l'effet Zeeman géant. Les expressions 2.1 et 2.2 peuvent être réécrites en introduisant  $\overrightarrow{B_{ech,c}}$  et  $\overrightarrow{B_{ech,v}}$  les champs d'échange dus aux Mn et vus par les électrons et les trous) :

$$\overrightarrow{B_{ech,v}} = \frac{\beta}{g_h g_{Mn} \mu_B^2} \overrightarrow{M} \quad ; \quad \overrightarrow{B_{ech,c}} = \frac{\alpha}{g_e g_{Mn} \mu_B^2} \overrightarrow{M}$$

Ce champ magnétique d'échange conduit à une séparation des états de spin des trous (des électrons), notées respectivement  $\Delta_h$  ( $\Delta_e$ ), définies par les relations suivantes et représentées figure 2.9 :

$$\Delta_h = \frac{\alpha}{g_{Mn}\mu_B}M; \quad \Delta_e = \frac{\alpha}{g_{Mn}\mu_B}M$$



FIG. 2.9 – Séparation des états de spin de la bande de conduction et de la bande de valence sous l'effet Zeeman géant.

#### 2.4. Règles de sélection sous champ magnétique en configuration Faraday

#### Comparaison avec l'effet Zeeman direct

Une étude à fort champ magnétique nous a permis de déterminer les facteurs de Landé des électrons et des trous [25] pour un puits quantique de CdTe réalisé par épitaxie par jets moléculaire cohérente sur un substrat de Cd<sub>0.88</sub>Zn<sub>0.12</sub>Te. On obtient pour les électrons  $g_e$ =-1.4 (ce qui est très proche de  $g_e$ =-1.6 obtenu pour le CdTe massif [26, 27, 28]). Le facteur de Landé des trous vaut  $g_e$ =-0.9 (il s'agit du facteur relatif au spin, si bien que la séparation des sous-bandes de spin s'écrit  $g_h\mu_B$ B). Ainsi, la séparation Zeeman directe est de 0.08 meV/T pour les électrons et de 0.05 meV/T pour les trous lourds. En revanche, la séparation Zeeman géante, est de 2 à 3 ordres de grandeur plus importante que l'effet Zeeman direct, dès lors que l'on introduit de l'ordre de 1 % d'ions Mn. Par contre, dans le cas de Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te, on a  $\alpha N_0$ =-0.22 eV [22] et  $\alpha N_0$ =0.88 eV ; de sorte que pour une composition en Mn de 5%, et en considérant que tous les spins isolés (non situés en plus proches voisins) sont alignés suivant le champ magnétique, on obtient  $\Delta_h$ =64 meV et  $\Delta_e$ =16 meV. Pour une composition en Mn de 0.3%, toujours à saturation des spins, on a  $\Delta_h$ =6.4 meV et  $\Delta_e$ =1.6 meV; ce qui est très nettement plus grand que l'effet Zeeman direct. Finalement, on négligera l'effet Zeeman direct dans tous les puits quantiques avec du Mn puisque la composition minimale étudiée est de 0.3%.

#### 2.4 Règles de sélection sous champ magnétique en configuration Faraday

La levée de dégénérescence des états de spin par un champ magnétique s'accompagne de règles de sélection de polarisation de la lumière absorbée et émise par les puits quantiques. Ces règles découlent de la conservation du moment cinétique lors des transitions optiques : elles mettent en jeu des photons de moment cinétique  $\pm 1$ . Les règles de sélection sont différentes suivant que l'on s'intéresse à un puits quantique de CdTe, où seul l'effet Zeeman direct intervient, ou à un puits de (Cd,Mn)Te dont les énergies sont gouvernées par l'effet Zeeman géant.



#### 2.4.1 Puits quantique magnétique : (Cd,Mn)Te/(Cd,Zn,Mg)Te

FIG. 2.10 – a : règles de transitions dans un puits quantique de (Cd,Mn)Te en présence d'un champ magnétique externe. b : déplacement Zeeman géant, à 1.7 K, pour un puits quantique de  $Cd_{0.99}Mn_{0.01}$ Te.

#### Chapitre 2. Matériaux et méthodes de caractérisation

Un champ magnétique *B* perpendiculaire au plan des couches conduit à la levée de dégénérescence des états de spin présentée figure 2.10 dans le cas du (Cd,Mn)Te. En ne considérant que le premier niveau de trous lourds et le premier niveau d'électrons, seules deux transitions optiques sont permises. L'une, mettant en jeu un électron de spin  $\frac{1}{2}$  et un trou de moment cinétique  $-\frac{3}{2}$ , est notée  $\sigma$ -. L'autre, notée  $\sigma$ +, concerne un électron de spin  $-\frac{1}{2}$  et un trou de moment cinétique  $\frac{3}{2}$ . On appellera par la suite déplacement Zeeman, l'écart en énergie entre la raie dans une des polarisations sous champ magnétique et celle à 0 T. Ce que l'on nommera séparation Zeeman correspond à la différence en énergie entre les transitions dans les polarisations  $\sigma$ + et  $\sigma$ -. On notera que la transition en polarisation  $\sigma$ - se décale vers les hautes énergies alors que la transition  $\sigma$ + se déplace vers les basses énergies.

#### 2.4.2 Puits non magnétique : CdTe/CdZnMgTe

#### Effet Zeeman



FIG. 2.11 – Règles de transitions dans un puits quantique de CdTe.

Dans le cas du CdTe c'est l'effet Zeeman direct qui lève la dégénérescence de spin (figure 2.11). On observe à nouveau deux transitions entre le premier niveau de trous lourds et le premier niveau d'électrons. L'une, mettant en jeu un électron de spin  $\frac{1}{2}$  et un trou de moment cinétique  $\frac{3}{2}$ , est notée  $\sigma$ +. L'autre, notée  $\sigma$ -, concerne un électron de spin  $\frac{1}{2}$  et un trou de moment cinétique  $-\frac{3}{2}$ . On notera que pour le CdTe, la transition en polarisation  $\sigma$ + se décale vers les hautes énergies alors que celle en  $\sigma$ - se déplace vers les basses énergies mais très peu car l'effet Zeeman sur la bande de conduction et de valence se compensent fortement.

#### 2.5 Caractéristiques courant-tension

Les caractéristiques courant-tension sont mesurées selon le montage électrique présenté figure 2.12. Le balayage en tension Y1 est assuré par la source de tension (*Adret électronique*) alors que le courant est déduit de la tension Y2 qui traverse la résistance R (de 10, 100 k $\Omega$  ou 1M $\Omega$ ). Le courant est alors tracé en fonction de la tension Y1-Y2 appliquée à la diode. Les tensions sont enregistrées par un multimètre multi-canal (*Keithley 2000*).



FIG. 2.12 – Montage utilisé pour les mesures courant-tension.

#### 2.6 Spectroscopie optique

La figure 2.13 représente les différents montages utilisés pour la caractérisation magnéto-optique. Nous avons utilisé des techniques de spectroscopie magnéto-optique standard : la réflectivité, transmission, photoluminescence et excitation de photoluminescence. Les mesures de réflectivité et de transmission ont été réalisées avec une lampe à filament de tungstène. Différents lasers ont été employés, suivant l'énergie d'excitation souhaitée : un laser Argon (2410 meV), helium-néon (1962 meV) ou Saphir :Titane (accordable entre 1600 et 1750 meV). Une grande attention a été portée sur la puissance d'excitation afin de ne pas chauffer localement les échantillons [29] : les spectres présentés ont tous été réalisés avec une densité de puissance d'excitation inférieure à 10 mW.cm<sup>-2</sup>.

Les échantillons ne sont pas collés sur le porte-échantillon mais fixés par des bandelettes de papier afin d'éviter la formation de contraintes lors de la baisse de température. L'échantillon est immergé dans l'hélium liquide, qui peut être refroidi jusqu'à 1.5 K en pompant sur le bain d'helium. Le contrôle de la température est réalisé au moyen d'une résistance carbone calibrée qui est fixée sur le porte échantillon. La détection est assurée par un photomultiplicateur (*Hamamatsu R636*), noté PM, fixé en sortie d'un double monochromateur (*U1000 Jobin Yvon* équipé de deux réseaux de 1800 traits/mm), ou un détecteur CCD (Silicium) fixé en sortie d'un monochromateur simple (*HR460 Jobin Yvon* équipé de deux réseaux au choix : l'un de 600 traits/mm, l'autre de 1800 traits/mm). L'acquisition en sortie de PM se fait par une technique de détection synchrone, dont la référence est un modulateur mécanique placé sur le trajet d'excitation de l'échantillon (faisceau laser ou issu de la lampe). Le monochromateur précédant le détecteur CCD ne nous permet pas de détecter le signal de nos puits quantiques lorsque nous utilisons une excitation avec le laser Sa :Ti, car il n'est pas possible de s'affranchir d'un fond de diffusions Laser qui perturbe l'acquisition. Les études de PL-PLE sont systématiquement réalisées via le PM.

Toutes les études en polarisation circulaire,  $\sigma +$ ou  $\sigma -$ , sont effectuées à l'aide d'une lame quart d'onde notée  $\frac{\lambda}{4}$ . Cette lame permet de transformer une polarisation circulaire en polarisation linéaire. On utilise alors pour la détection de la polarisation (lors des mesures de transmission, réflectivité et PL) une lame  $\frac{\lambda}{4}$  suivie d'un polariseur linéaire. La lame  $\frac{\lambda}{4}$  est tournée manuellement de 90° pour sélectionner soit la polarisation  $\sigma +$ , soit  $\sigma -$ . Pour les spectres de PLE on place en sortie du laser un polariseur linéaire puis la même lame quart-d'onde afin de générer une onde polarisée circulairement (on tourne également la lame  $\frac{\lambda}{4}$  de 90° pour sélectionner les deux polarisations). Le champ magnétique est généré par une bobine supraconductrice immergée dans l'He liquide, pour les études jusqu'à des champs de 5 T, alors que les études à faibles champs magnétiques (B $\leq$  500G) ont été réalisées par l'intermédiaire de bobines de cuivre montées à l'extérieur du cryostat. L'aimantation rémanente des bobines supraconductrice est au plus de 50 G alors qu'elle est négligeable pour les bobines en cuivre. Les études en champ magnétiques ont toutes été menée en configuration de Faraday- c'est à dire que le champ magnétique est applique

#### Chapitre 2. Matériaux et méthodes de caractérisation

perpendiculairement au plan des couches de l'échantillon). L'orientation du champ a été repérée au préalable. Les deux polarisations circulaires ( $\sigma$ + et  $\sigma$ -) de la lumière sont alors repérées par rapport à ce champ; et non par rapport à la propagation des faisceaux lumineux.

Le pointé des différentes raies de transmission et de réflectivité a été réalisé "à l'oeil" à partir des spectres agrandis. Pour les raies de PL, le pointé est effectué de la même manière lorsque nous somme en présence d'une raie unique. Lorsque les spectres présentent plusieurs raies qui ne sont pas complètement séparées (comme c'est le cas lors de la séparation spontanée de la raie de PL lors de la transition ferromagnétique, ou encore lors de la déstabilisation du trion positif sous champ magnétiques - les spectres seront présentés dans ce manuscrit plus loin) le pointé est réalisé par ajustement de chaque raie par une gaussienne, en vérifiant visuellement que l'accord est correct.



FIG. 2.13 – Dispositif expérimental utilisé pour les mesures par spectroscopie optique.

## Chapitre 3

## transitions optiques dans un puits quantique

Ce chapitre décrit les transitions optiques connues et attendues dans nos puits quantiques en fonction de la densité d'un gaz bidimensionnel de trous ou d'électrons. Le premier paragraphe décrit les transitions excitoniques mettant en jeu des excitons neutres. Suit alors l'introduction des excitons chargés, tout d'abord dans l'état singulet puis dans l'état triplet. Le dernier paragraphe est consacré à la description des transitions dites "bande à bande" (attendues en présence d'une forte densité de porteurs) et à la méthode utilisée pour déterminer la densité de porteurs, qui repose sur la mesure du décalage de Moss-Burstein.

#### 3.1 Exciton

Les transitions optiques observées dans les semi-conducteurs non dopés apparaissent à des énergies inférieures à la largeur de bande d'énergie interdite. Cet écart peut être interprété par la formation d'excitons (notés X). Il s'agit d'une paire électron-trou liée par interaction coulombienne. Le calcul de cette énergie de liaison peut se faire de manière analytique, dans un système 2D ou 3D, suivant le modèle hydrogénoïde : les différents états liés émanant de l'interaction coulombienne s'écrivent, pour un système 2D :

$$E_N = -\frac{R_y \mu^*}{\varepsilon \varepsilon_0 m_0} \frac{1}{(N - \frac{1}{2})^2}$$
;  $N = 1, 2, 3, ...$ 

avec  $\varepsilon$  la constante diélectrique du matériau,  $\mu^*$  la masse réduite de la paire électron-trou, et  $R_y$  le Rydberg qui vaut 13.6 eV. On appelle alors énergie de liaison de l'exciton, que l'on note  $E_b(X)$ , l'énergie gagnée par la formation de l'exciton (par rapport à la paire electron-trou non couplée) dans l'état lié  $E_1$ . L'expression précédente de  $E_N$  s'applique à un système purement 2D, qui conduit à une énergie de liaison de l'exciton de 40 meV pour le CdTe. Or, nous verrons au chapitre 3 qu'expérimentalement  $E_b(X)$ est de l'ordre de 20 meV pour un puits quantique de CdTe/(Cd,Zn,Mg)Te de 8 nm. Il est possible de déterminer l'énergie de liaison de l'exciton observé en introduisant une dimension non entière lors de la résolution de l'équation de Schrödinger [30] : le puits quantique n'est donc pas un système purement 2D mais intermédiaire entre 2D et 3D.

Dans les puits auxquels nous allons nous intéresser, l'exciton que nous observons est formé à partir d'un trou lourd et ne peut exister que sous 4 configurations de spin représentées figure 3.1. Les deux représentées en gras sont optiquement actives alors que les deux en pointillés sont dites "noires" : on ne peut pas recombiner un trou  $\frac{3}{2}$  (resp.- $\frac{3}{2}$ ) avec un électron  $\frac{1}{2}$  (- $\frac{1}{2}$ ). On conservera dans la suite la même illustration pour le spin des porteurs, une grande flèche pour les trous (vers le haut pour les + $\frac{3}{2}$ ), et une petite pour les électrons. Chapitre 3. transitions optiques dans un puits quantique



FIG. 3.1 – Excitons noirs et optiquement actifs (brillants), en se limitant aux trous lourds

#### 3.2 Exciton chargé - singulet

#### 3.2.1 description

En présence d'une faible densité de porteurs ( $p \le 10^{10}$  cm<sup>-2</sup> dans un puits quantique), conséquence d'un dopage intentionnel ou de la présence d'impuretés résiduelles et de défauts, on observe la formation d'excitons chargés. Il s'agit d'états résultant de l'interaction coulombienne entre deux électrons et un trou, formant l'exciton chargé négativement X<sup>-</sup>, ou entre deux trous et un électron : l'exciton chargé positivement X<sup>+</sup>. On définit alors l'énergie de liaison de l'exciton chargé  $E_b(X^{\pm})$  par le gain d'énergie obtenu en liant un troisième porteur à l'exciton. Lampert a prédit dès 1958 [31] que ces énergies de liaison doivent être très faibles dans les systèmes  $3D: E_b(X^-) = 0.6$  meV dans CdTe et 0.25 meV dans GaAs. La première observation expérimentale du  $X^-$  a été réalisée par K. Kheng *et al.* [28] dans des échantillons à multi-puits de CdTe/CdZnTe dopés n (Indium) par modulation. Ils ont pu observer une énergie de liaison  $E_b(X^-) = 2.65$  meV. Un modèle théorique proposé par de B. Stébé *et al.* conduit à une énergie de liaison de 4 meV. Ce modèle montre que  $E_b(X^{\pm})$  augmente lorsque l'on baisse la dimension du système - ce qui explique que la première observation d'un trion ait eu lieu dans un puits quantique. Le modèle prévoit également une augmentation de  $E_b(X^{\pm})$  lorsqu'on diminue le rapport de masse  $\sigma = \frac{m_e^*}{m_{hh}^*}$ . Les trions positif et négatif ont été observés dans des hétérostructures à puits quantiques de semi-conducteurs III-V en 1995 et 1996 [32, 33, 34, 35]. A. Haury et al. ont observé le X<sup>+</sup> dans une structure à puits quantique de CdTe/CdZnMgTe dopé p (azote) par modulation en 1996 [36]. Ils ont obtenu une énergie de liaison de 2.6 meV.

Plus récemment, des études de spectroscopie optique en transmission ont montré que l'écart entre les raies d'exciton et de trion augmente linéairement avec la densité de la population de porteurs libres. Cette variation a été interprétée comme une variation de l'énergie de liaison de trion. Ce comportement a été rapporté dans des puits quantiques de CdTe par Huard *et al.* [37], pour le trion positif et par Kossacki *et al.* [38], pour le trion négatif. La variation relative de l'écart entre énergie du X et X<sup>+</sup>, suivant les travaux de Kossacki *et al.*, passe de 2.5 meV dans la limite d'une très faible densité de trous à 5.8 meV pour une densité de  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup>.

#### 3.2.2 Identification

La figure 3.2 illustre les règles de sélection de la formation d'excitons chargés par absorption de lumière polarisée circulairement. Il s'agit de l'état singulet : les deux particules identiques mises en jeu dans la formation du  $X^-$  (2 électrons) et  $X^+$  (2 trous) sont de spins opposés. L'état initial correspond soit à la



FIG. 3.2 – Règles de sélection de la formation, sous champ magnétique, des excitons chargés  $X^{\pm}$ : (a) dans du CdTe et dans du (Cd,Mn)Te (b). Cette figure concerne uniquement la formation d'excitons dans l'état singulet

présence d'un électron, soit à la présence d'un trou libre. L'effet Zeeman et l'effet Zeeman géant lèvent la dégénérescence de spin : le porteur libre acquiert préférentiellement le spin qui correspond à l'état de plus basse énergie. La formation de l'exciton chargé dans l'état singulet suppose la création d'un porteur de spin opposé à celui préexistant, ce qui favorise les transitions dans une des polarisations. Prenons l'exemple de la formation du X<sup>+</sup> dans CdTe. L'état initial, sous champ magnétique, correspond à un trou  $+\frac{3}{2}$ . L'intensité de la raie d'absorption du X<sup>+</sup> dans la polarisation  $\sigma + (\sigma -)$  est proportionnelle à la population de trous  $+\frac{3}{2}$  ( $-\frac{3}{2}$ ) [38].

L'identification du type de trion est directe dans le CdTe puisque les règles de sélection de formation liées au X<sup>+</sup> et au X<sup>-</sup> sont opposées. Le X<sup>+</sup> est favorisé en  $\sigma$ - alors que le X<sup>-</sup> l'est en  $\sigma$ +. Cette détermination est moins évidente dans le (Cd,Mn)Te puisque le X<sup>+</sup> et le X<sup>-</sup> se polarisent en  $\sigma$ -.

#### 3.3 Exciton chargé - triplet

Les excitons chargés peuvent aussi se présenter sous la forme triplet, à savoir que les spins des deux porteurs de même type (les électrons pour le  $X^-$  et les trous pour le  $X^+$ ) sont parallèles (figure 3.3). Le gain en énergie généré par la liaison du deuxième trou, dans la configuration triplet, est très faible : l'énergie de transition du triplet est donc très proche de celle de l'exciton. Sergev *et al.* [39] ont rapporté un calcul de l'énergie de liaison du  $X^+$  dans l'état triplet, en 2D, en fonction du rapport de masse effective de l'électron et du trou. La figure 3.4 illustre leurs résultats : la situation pour un puits quantique de Chapitre 3. transitions optiques dans un puits quantique



FIG. 3.3 – Exciton chargé  $X^+$  dans l'état triplet. Le deuxième trou est volontairement décalé des deux autres porteurs pour souligner le fait que l'écart en énergie entre le  $X^+$  triplet et l'exciton est très faible.

CdTe, à savoir un rapport de masse de 0.44, est en limite de leur calcul. La conclusion que l'on peut tirer de ceci est que le trion dans l'état triplet n'est pas stable dans CdTe, sans champ magnétique.



FIG. 3.4 – Energie de liaison du X<sup>+</sup> dans l'état triplet, en 2D, en fonction du rapport des masses effectives de l'électron et d'un trou [39]. La figure présente les résultats obtenus pour le calcul de l'énergie de liaison de l'état triplet suivant 2 méthodes : une adiabatique (notée adiab.), l'autre variationnelle (notée var.).

L'exciton chargé positivement dans l'état triplet a été observé à fort champ magnétique, sa stabilité par rapport à l'état singulet est discutée en termes de fonctions d'ondes orbitales [32].

# 3.4 Transition bande à bande et détermination de la densité de trous

#### 3.4.1 Absorption



FIG. 3.5 – Absorption en présence de porteurs pour un système idéal 2D (trait plein), en tenant compte d'inhomogénéités qui élargissent la densité d'états près du seuil (trait pointillé). Le seuil d'absorption  $E_{\rm S}$  vaut  $E_{\rm S} = E_{\rm G} + E_{\rm F}^v + E_{\rm F}^c$ .

Les spectres d'absorption reproduisent la densité d'état conjointe du système, pour les vecteurs d'onde supérieurs au vecteur d'onde de Fermi  $k_{\rm F}$ , puisque les états de k=0 à  $k_{\rm F}$  sont inoccupés (figure 3.5a). On s'attend donc dans un système 2D, en l'absence d'effet à N-corps, à un profil d'absorption en forme de marche (fonction Heaviside) dessiné en trait plein sur la figure 3.5b. L'écart par rapport à une fonction de Heaviside, dessinée en pointillés, rend compte d'éventuelles inhomogénéités qui se traduisent par un élargissement de la densité d'état au seuil d'absorption.

#### 3.4.2 Emission : PL

Les électrons photocréés à un vecteur d'onde supérieur à  $k_{\rm F}$  perdent leur énergie avant de se recombiner radiativement avec un trou en  $\vec{k} = 0$  (figure 3.6). Ainsi, les recombinaisons radiatives s'opèrent principalement au voisinage du centre de la première zone de Brillouin.



FIG. 3.6 – Relaxation de l'énergie cinétique des électrons photocréés à  $k > k_{\rm F}$ , avant recombinaison en centre de zone de Brillouin.

#### 3.4.3 Séparation de Moss-Burstein : une mesure de la densité de porteurs

Nous venons de voir que le seuil d'absorption met en jeu l'énergie de Fermi du gaz de trous alors que la PL s'effectue en centre de zone de Brillouin. L'écart énergétique entre ces deux types de transitions est appelé décalage de Moss-Burstein et permet de remonter à la densité de porteurs, à condition de connaître le rapport des masses effectives des trous et des électrons. Comme l'énergie de Fermi du gaz de trous s'écrit  $E_F = \frac{\hbar^2 k_f^2}{2m_h^2}$ , on peut montrer que la différence d'énergie entre l'absorption et l'émission correspond, avec  $m_e^* = 0.1 m_0$  et  $m_h^* = 0.25 m_0$ , à :

$$\Delta MB = \frac{\hbar^2 k_f^2}{2} (\frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}) = 3.5 E_{\rm F}$$

La densité d'état bidimensionnelle  $\rho_{2D} = \frac{m^*}{\pi \hbar^2}$  (cette expression inclut la dégénérescence de spin) vaut  $\rho_{2D} = 1.05 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{meV}^{-1}$  (pour  $\text{m}_h^* = 0.25 \text{m}_0$ ). De plus, la densité de porteurs s'écrit  $p = \rho_{2D} \text{E}_F$ . On obtient finalement la densité de trous en fonction du décalage de Moss-Burstein  $\Delta \text{MB}$  exprimé en meV suivant l'expression suivante :

$$p = 3.7 \times 10^{10} \Delta MB \tag{3.1}$$

On notera que la détermination de la densité de porteurs et surtout sa variation, par photo-création de porteurs dans les barrières du puits quantique ou par application d'une tension sur une structure FET (présenté dans le chapitre suivant), sont plus précises lorsque le gaz est complètement polarisé par un champ magnétique. Ainsi, en polarisation  $\sigma$ +, le niveau de Fermi mesuré correspond à 2 fois le niveau de Fermi du gaz non polarisé : l'incertitude relative de mesure est donc divisée par 2 (figure 3.7).



FIG. 3.7 – (a) : séparation de Moss-Burstein  $\Delta MB$  mesuré à 0 T. (b) : séparation de Moss-Burstein,  $\Delta MB_{polarise}$ , mesuré sous champ magnétique suffisant pour polariser le gaz de trous à 100 %.

#### 3.4.4 Quelques complications...

#### Décalage de Stokes

On notera que la différence entre absorption et émission intègre le décalage de Stokes. Ce dernier traduit l'élargissement de la densité d'état relatif aux fluctuations de potentiel dans la structure : l'absorption, qui reflète la densité d'état, se fait à plus haute énergie que l'émission qui favorise les états de basse énergie. Au même titre que l'élargissement inhomogène des raies de PL, le décalage de Stokes reflète la qualité d'un échantillon. La contribution Stokes doit être prise en compte lors de la détermination de la densité de porteurs. Elle peut être déterminé par comparaison entre l'énergie d'absorption et d'émission 3.4. Transition bande à bande et détermination de la densité de trous

en polarisation  $\sigma$ -, lorsque le gaz est polarisé à 100%. Les transitions dans cette polarisation se font entre sous-bandes désertées des trous : seul l'effet Stokes est présent (figure 3.8). Dans la suite, les valeurs du décalage de Moss-Burstein ont toutes été corrigées du décalage de Stokes, qui est de l'ordre de 0.5 meV pour les puits quantiques avec moins de 1% de Mn et non placés dans une structure FET. Ces derniers échantillons (M1329 et M1346) présentent un décalage de Stokes plus important, de l'ordre de 3-4 meV.



FIG. 3.8 – Décalage de Moss-Burstein et détermination du décalage de Stokes.

#### Singularité de bord de Fermi : absorption

Le profil d'absorption présenté au 3.4.1 ne tient pas compte d'effets dits à N particules, qui sont inévitables en présence d'un gaz de porteurs de forte densité. Ceux-ci conduisent notamment à une exaltation de l'absorption au voisinage du seuil d'absorption, comme le montrent les résultats obtenus par Brener *et al.* [40] sur un puits quantique d'InGaAs présentant un gaz d'électrons de forte densité (figure 3.9). Cette exaltation est appelée singularité de bord de Fermi et a été décrite, dans les métaux, par Mahan en 1967 [41] puis Nozière et Dominicis en 1969 [42]. Ils ont su décrire l'absorption de rayons X en loi de puissance observée expérimentalement.



FIG. 3.9 – Spectres d'absorption d'un puits quantique InGaAs dopé n pour différentes températures - mise en valeur de la singularité de bord de Fermi notée FES [40].
#### Chapitre 3. transitions optiques dans un puits quantique

#### Singularité de bord de Fermi - transition indirecte : PL

La singularité de bord de Fermi, présentée en absorption au paragraphe précédent, a aussi été mis en évidence en PL par Skolnick *et al.* [43] sur un puits quantique InGaAs avec une densité d'électrons  $n=9x10^{11}$  cm<sup>-2</sup> (figure 3.10). On peut observer sur la figure 3.10 une forte exaltation de la luminescence au niveau de Fermi. Le pic de plus haute énergie correspond à une transition du bas de la bande de conduction vers le niveau de Fermi de la bande de valence. Cette transition, qui entraîne une variation de  $\vec{k}$ , est indirecte : elle devrait, sans singularité de bord de Fermi, être interdite.



FIG. 3.10 – Spectres de PL, d'un puits quantique InGaAs avec une densité d'électrons  $n=9x10^{11}$  cm<sup>-2</sup>, en fonction de la température [43].

#### Excitation dans l'état final du processus d'émission

Si l'analyse des spectres de transmission en présence de porteurs est complexe, celle des spectres de PL est encore plus délicate. Lors d'une transition optique, nous avons accès à une différence énergétique entre deux états : l'état initial et l'état final de la transition. Dans le cas des mesures en absorption, l'état initial est bien déterminé (même si l'énergie absolue de cet état n'est pas connue) : c'est l'état de plus basse énergie - l'état fondamental du système à température nulle. Par contre, la luminescence s'effectue principalement au centre de la zone de Brillouin après relaxation des porteurs vers l'état excité de plus basse énergie (électron photoexcité dans la bande de conduction, exciton, exciton chargé...). De plus, l'état final de la recombinaison n'est pas nécessairement l'état fondamental du système.

L'exemple le plus simple correspond à celui d'une recombinaison en centre de zone en présence d'un gaz de trou (figure 3.11). Un électron du bas de bande de conduction va se recombiner avec un trou du haut de la bande de valence. L'état final correspond donc à un électron en haut de la bande de valence



FIG. 3.11 – Représentation des états initial et final mis en jeu lors d'une recombinaison radiative en présence d'un gaz de trous. Les porteurs de la paire électron-trou photocrée relaxent respectivement vers le bas de la bande de conduction (BC) et vers le niveau de Fermi des trous dans la bande de valence (BV) : l'état initial correspond donc à un électron en bas de BC et un trou supplémentaire au niveau de Fermi. Après recombinaison en centre de zone, l'état final correspond à un électron en bas de BV et le trou supplémentaire au niveau de Fermi : le retour vers l'état fondamental se fait par relaxation de l'électron vers le niveau de Fermi du gaz de trous.

en présence d'un gaz de trous. Pour atteindre l'état fondamental, cet électron doit relaxer vers le niveau de Fermi.

Les mécanismes de recombinaison sont très divers en présence d'un gaz de porteurs. Ils peuvent, par exemple, faire intervenir des excitations collectives telles que des skyrmions [44, 45] mis en évidence dans des puits quantiques de GaAs [46] ou des processus dit de "shake-up" sous champ magnétique [47, 48] mis en évidence dans des puits quantiques de InGaAs [49] et GaAs [50] qui se traduisent par l'excitation d'un porteur du gaz vers l'énergie de Fermi de ce dernier. L'énergie du photon recueilli après ce dernier processus correspond à l'énergie du niveau initial (mesuré par rapport au fondamental) diminuée de l'énergie absorbée par le porteur pour passer au niveau de Fermi.

#### Calibration de la densité de trous

Le décalage de Moss-Burstein s'applique en principe en l'absence de champ magnétique et pour des transitions de type bande à bande. Pour les densités de porteurs (trous) qui vont nous concerner, il se trouve que les spectres de PL présentent un caractère excitonique (trion) si bien qu'en toute rigueur aucun décalage de Moss-Burstein ne devrait être observé. On observe néanmoins un décalage entre PL et absorption (transmission ou PLE) que l'on assimile à un décalage de Moss-Burstein. Nous avons calibré la correspondance entre ce décalage encore appelé de Moss-Burstein et la population de trous par des mesures d'effet Hall et de remplissage des niveaux de Landau [25]. Il se trouve qu'avec les masses effectives utilisées  $(0.1m_0 \text{ pour l'électron et } 0.25m_0 \text{ pour les trous lourds})$  une erreur systématique d'un facteur 1.5 est introduite dans la détermination de la population par le décalage de Moss-Burstein : il faut donc multiplier par un facteur 1.5 la population déterminée par la relation 3.1, si bien que la population se déduit du décalage de Moss-Burstein, mesuré à 0 T, de la relation suivante :

$$p = 5.6 \times 10^{10} \Delta MB \tag{3.2}$$

La détermination de la population à partir du décalage de Moss-Burstein  $\Delta$  MB<sub>polarise</sub> mesuré pour un champ magnétique suffisant pour polariser le gaz de porteurs se fait suivant la relation :

$$p = 2.8 \times 10^{10} \Delta M B_{polarise} \tag{3.3}$$

Chapitre 3. transitions optiques dans un puits quantique

Deuxième partie

Propriétés magnéto-optiques de puits quantiques de (Cd,Mn)Te en présence d'un gaz bidimensionnel de trous L'étude des semi-conducteurs magnétiques dilués a commencé au laboratoire avec l'élaboration par épitaxie par jets moléculaires d'hétérostructures 2D - des puits quantique de CdTe et de  $Cd_{(1-x)}Mn_xTe$ . La croissance des échantillons dopés a été développée durant le travail de thèse d'Alexandre Arnoult, qui a permis d'optimiser le dopage par modulation de nos puits quantiques grâce à l'accepteur azote et au donneur Aluminium.

Les propriétés spectroscopiques de base d'un Puits quantique de CdTe ou de  $Cd_{(1-x)}Mn_x$ Te avec un gaz de trous ont été déterminées au travers de nombreuses études antérieures à mon arrivée en thèse, en particulier au laboratoire durant les thèses d'Axel Haury, de Piotr Kossacki et de David Ferrand.

L'organisation de cette partie est la suivante :

Le chapitre 4 met en évidence une nouvelle méthode de dopage de type p des puits quantiques de CdTe et de  $Cd_{(1-x)}Mn_x$ Te grâce à la formation, par oxydation naturelle, de niveaux accepteurs à la surface des échantillons. Nous montrerons que la densité de trous peut atteindre de cette façon une valeur aussi grande que celle obtenue par introduction de l'accepteur azote. Une attention particulière est portée à l'identification du type de porteurs que nous rencontrons dans les puits quantiques sous l'influence des états de surface.

Le chapitre 4 présente les mesures spectroscopiques enregistrées en faisant varier la densité de trous dans un échantillon. Le contrôle de cette densité est effectué soit optiquement, par photocréation de porteurs dans les barrières du puits quantique, soit électriquement, par application d'une tension électrique sur une structure FET. La démonstration du contrôle de la densité de trous repose ici sur la variation du décalage de Moss-Burstein  $\Delta MB$ .

Le chapitre 5 a pour but de présenter les spectres de spectroscopie magnéto-optique des deux types d'échantillons présentés jusqu'ici (les puits quantiques de CdMnTe dopés p par la surface et ceux dopés p par modulation) pour des champs magnétiques plus importants que ceux présentés aux chapitres précédents. Nous nous intéresserons en particulier à l'apparition d'une double raie au détriment du trion positif pour une séparation Zeeman de la bande de valence supérieure à 3 meV.

Le chapitre 6 est consacré à l'interprétation des mesures spectroscopiques décrites dans les chapitres précédents, mais aussi à un bilan de nombreux échantillons dont les spectres ne sont pas présentés. L'accent est alors mis sur l'évolution sous champ magnétique des états mis en jeu dans les transitions optiques observées.

## Chapitre 4

## Identification d'un gaz de porteurs dans un puits quantique dopé par la surface

Nous allons démontrer, dans ce chapitre, une nouvelle méthode de dopage de type p de puits quantiques de CdTe et de CdMnTe. Ceci a été une conséquence de l'étude menée par Christophe Bourgognon durant son travail de thèse. Le but était d'engendrer une polarisation des porteurs d'un puits quantique de (Cd,Mn)Te sous l'influence du champ de fuite magnétique généré par une couche ferromagnétique (alliage Fe/Pd, multicouches Cu/Ni ou Co/Pt). Il a été amené à réaliser des échantillons présentant un puits quantique de (Cd,Mn)Te/ (Cd,Zn,Mg)Te situé à 25 nm de la surface afin d'optimiser les chances d'être sous influence du champ de fuite magnétique. Il s'est avéré que tous les échantillons avec un puits proche de la surface sont dopés de type p sans incorporation d'impuretés dopantes.

Dans ce chapitre, on présente tout d'abord les spectres de réflectivité et de transmission à partir de l'échantillon M1269, qui traduisent la présence de porteurs libres dans le puits quantique. Suit alors l'identification du type de porteurs en s'appuyant sur une étude d'échantillons présentant un puits quantique de CdTe pour lesquels l'identification du type de porteurs est directe. Nous présenterons ensuite un possible mécanisme conduisant au dopage p des puits quantiques situés proche de la surface.

## 4.1 Echantillon modèle : M1269

L'échantillon M1269 (figure 4.1) contient un puits quantique de  $Cd_{0.993}Mn_{0.007}Te/Cd_{0.65}Zn_{0.08}Mg_{0.27}Te$  situé à 25 nm de la surface; les spectres de cet échantillon sont typiques d'un puits quantique proche de la surface (de 15 à 60 nm).



FIG. 4.1 – Structure de l'échantillon M1269.

## 4.2 Absorption magnéto-optique

#### 4.2.1 Réflectivité écrantée : exciton-trion

Les spectres de réflectivité, réalisée en éclairant l'échantillon côté puits quantique, sont présentés figure 4.2. L'excitation de la structure par une lumière blanche, crée des porteurs dans le puits quantique mais aussi dans les barrières; ceci peut conduire à une modification de la densité de porteurs dans le puits. En l'occurrence, nous verrons que la densité de porteurs est abaissée par l'utilisation de lumière blanche sur l'échantillon M1269.

Les spectres de réflectivité présentent tous un caractère excitonique bien connu lorsqu'il y a très peu de porteurs libres dans le puits quantique. En champ nul on observe deux raies d'intensité comparables et séparées de 2.8 meV. L'évolution sous champ magnétique traduit deux effets. Tout d'abord, on observe l'effet Zeeman géant qui se traduit par un déplacement global des raies sous champ magnétique. L'ajustement des positions des raies observées par une fonction de Brillouin modifiée permet de déterminer la composition en manganèse et la température d'ordre antiferromagnétique  $T_{AF}$ . Un ajustement est présenté figure 4.3 pour une composition effective en Mn  $x_{eff}=0.56\%$  et  $T_{AF}=0.6$  K.



FIG. 4.2 – Spectres de réflectivité sur l'échantillon M1269, éclairé côté puits quantique, en fonction du champ magnétique et analysés en polarisation circulaire  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ .

De plus, la raie à basse énergie disparaît en polarisation  $\sigma^+$  et est favorisée en polarisation  $\sigma^-$ . Ainsi, d'après les règles de sélection présentées au chapitre 2 et l'écart de 2.8 meV entre les deux raies, les deux pics sont attribués à l'exciton X et à un trion. A ce stade, il n'est pas possible de distinguer le trion positif du trion négatif mais nous montrerons qu'il s'agit du trion positif X<sup>+</sup>. Cette coexistence exciton-trion est bien connue pour de faibles densités de porteurs. Les intensités du X et X<sup>+</sup> en champ nul sont très proches, ce qui permet d'évaluer la densité de trous qui est ici de l'ordre de 4-5x10<sup>-10</sup> cm<sup>-2</sup>. Cette estimation est réalisée à partir des spectres de transmission (figure 4.4) enregistrés par Kossacki *et al.* [38] en fonction de la densité de trous sur un puits quantique de (Cd,Mn)Te/(Cd,Zn,Mg)Te dopé par modulation .



FIG. 4.3 – Ajustement des positions des raies de réflectivité par une fonction de Brillouin avec $x_{e\!f\!f}{=}0.56\%$  et  ${\rm T}_{AF}{=}0.6~{\rm K}$  .



FIG. 4.4 – Spectres de transmission enregistrés à partir d'un puits quantique de (Cd,Mn)Te/(Cd,Zn,Mg)Tepour différentes densités de trous, contrôlées optiquement par photo-création de porteurs dans les barrières [38]. Notons, que suite à la calibration effectuée et présentée au chapitre 2, les populations annoncées par Kossacki *et al.* sont à multiplier par 1.5 - ce qui correspond aux valeurs de droite.

#### 4.2.2 Transmission : bande à bande

Les spectres de transmission enregistrés à partir de l'échantillon M1269 (figure 4.5), ont été réalisés en éclairant la structure par la face arrière - côté substrat. L'énergie de bande interdite de ce dernier étant plus petite que celle des barrières, aucun porteur ne peut être photo-créés dans les barrières. La densité de porteurs dans le puits quantique n'est pas modifiée par la méthode de mesure.



FIG. 4.5 – Spectres de transmission de l'échantillon M1269, éclairé côté substrat, en fonction du champ magnétique, et analysés en polarisation circulaire  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ .

Nous observons une raie à 0 T, qui est moins marquée que celles vues en réflectivité. L'évolution sous champ magnétique correspond à la situation rapportée par Kossacki *et al.* [38] lorsque le puits est peuplé par une densité de trous de quelques  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup> (figure 4.4). En polarisation  $\sigma^-$  on observe l'exciton chargé alors que l'évolution en polarisation  $\sigma^+$  suggère une évolution vers une transition de type bande à bande. Rappelons que les transitions optiques en polarisation  $\sigma^+$  mettent en jeu la sous-bande de spin  $\frac{3}{2}$  peuplée par le gaz de trous. A faible champ magnétique, le maximum d'absorption ne suit pas la fonction de Brillouin attendue. La raie en  $\sigma^+$  se déplace tout d'abord vers les hautes énergies alors que la raie en polarisation  $\sigma^-$  se déplace entre 0 et 0.125 T vers les basses énergies. Ceci a aussi été présenté par Kossacki *et al.* [38] et associé à la polarisation du gaz de trous : la sous-bande de trous  $-\frac{3}{2}$  se vide au profit de la sous-bande de spin  $\frac{3}{2}$  jusqu'à polarisation complète. On retrouvera ces spectres au chapitre 6 avec la position des raies en fonction du champ magnétique figure 6.3.

Nous sommes donc cette fois en présence d'un gaz de densité plus élevée que lors des mesures en réflectivité. L'écart entre absorption et PL à 0 T est illustrée figure 4.6. En tenant compte d'un décalage de Stokes de 0.5 meV (ceci sera montré au chapitre 5), le décalage de Moss-Burstein est de  $\Delta MB = 5$  meV. Ceci correspond à une densité de trous de p=2.8x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup> (suivant la relation 3.2 du chapitre 3), qui est en accord avec les résultats présentés sur la figure 4.4 : seul le trion X<sup>+</sup> est visible et peu marqué. Ceci est confirmé par la mesure du décalage de Moss-Burstein mesuré à 0.25 T, qui vaut  $\Delta MB = 10$  meV - la population qui en découle est bien la même : le gaz de trous est polarisé et le décalage de Moss-Burstein a doublé.

4.3. Mise en évidence du type de porteurs



FIG. 4.6 – Ecart entre absorption et PL pour l'échantillon M1269 à 0 T.

## 4.3 Mise en évidence du type de porteurs

Il s'agit ici de démontrer que nous sommes bien en présence d'un gaz de trous et non d'électrons ou d'impuretés dans le puits. Ainsi, nous allons tout d'abord analyser les propriétés de deux puits quantiques de CdTe, l'un situé suffisamment loin de la surface (100 nm) pour ne pas en ressentir les effets et l'autre situé à 25 nm de la surface afin de tester l'effet de cette dernière.

## 4.3.1 Puits quantique de CdTe situé à 100 nm de la surface

Un échantillon présentant un puits quantique de  $CdTe/Cd_{0.65}Zn_{0.08}Mg_{0.27}Te$  situé à 100 nm de la surface a été réalisé afin de tester le dopage résiduel de nos structures. Il s'agit de l'échantillon M1282 présenté figure 4.7.



FIG. 4.7 – Structure de l'échantillon M1282.

#### Chapitre 4. Identification d'un gaz de porteurs dans un puits quantique dopé par la surface

Les spectres de transmission de l'échantillon M1282 sont présentés figure 4.8. Ils révèlent tout d'abord les niveaux 1s et 2s de l'exciton qui apparaissent dans les deux polarisations. Le niveau 2s est identifié par son évolution diamagnétique sous champ magnétique : un effet nettement plus marqué sur les niveaux excités et identique dans les deux polarisations - le suivi de la position des raies (figure 4.9) le confirme.

L'écart énergétique entre les niveaux 1s et 2s de l'exciton permet, d'après les travaux de Lefevbre et al. [Lef95], de déterminer la dimensionnalité du système et les énergies de liaison des différents niveaux excitoniques. La dimensionnalité est ici de 2.47, ce qui conduit à des énergies de liaison excitonique de 19.4 meV pour le niveau 1s et de 3.5 meV pour le niveau 2s de l'exciton.



FIG. 4.8 – Spectres de transmission sur l'échantillon M1282 (puits situé à 100 nm de la surface) en fonction du champ magnétique détectés en polarisation  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ .

On peut aussi distinguer une faible absorption, à plus basse énergie que le niveau 1s de l'exciton, et favorisée en polarisation  $\sigma^+$ : les spectres de PL et de transmission enregistrés à 0 T sont présentés figure 4.10. Compte tenu des règles de sélection (présentées dans le chapitre 3), il s'agit du trion négatif  $(X^-)$  ou de l'exciton localisé sur un donneur  $(D^0X)$ : les règles de sélection sont identiques pour ces deux complexes.

D'après les travaux de K.Kheng *et al.* [28] l'énergie de liaison du X<sup>-</sup> dans un puits de CdTe/CdZnTe est de 2.5 meV alors que celle du D<sup>0</sup>X dans les mêmes structures est de 4.4 meV. Cette étude a été réalisée pour des structures où la position des donneurs à différents endroits des puits et de la barrière était bien contrôlée. On retrouve ici une énergie de liaison de 2.5 meV, en PL et en absorption (figure 4.10), ce qui permet de conclure qu'il s'agit du trion négatif et non du D<sup>0</sup>X.

Finalement, le puits quantique de CdTe situé à 100 nm de la surface est faiblement peuplé par des électrons : le dopage résiduel des échantillons est de type n.



FIG. 4.9 – Position de raies de transmission enregistrées dans les deux polarisations circulaire  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . la ligne en trait pointillé correspond au déplacement diamagnétique.



FIG. 4.10 – Spectres de PL et de transmission - échantillon M1282 (puits quantique de CdTe à 25 nm de la surface).

Chapitre 4. Identification d'un gaz de porteurs dans un puits quantique dopé par la surface

## 4.3.2 Puits quantique de CdTe situé à 25 nm de la surface

L'influence de la surface sur le dopage est testée ici sur l'échantillon M1279, qui présente un puits quantique de  $CdTe/Cd_{0.65}Zn_{0.08}Mg_{0.27}Te$  situé à 25 nm de la surface (figure 4.11).



FIG. 4.11 – Structure de l'échantillon M1279.

La figure 4.12 représente les spectres d'absorption de l'échantillon M1279 en présence d'un champ magnétique. A 0 T, on observe deux raies séparées de 2.7 meV. Cette écart en énergie suggère que les deux raies correspondent à un trion et à l'exciton. Ceci est confirmé par l'évolution sous champ magnétique : la raie basse énergie est favorisée en polarisation  $\sigma^-$  alors qu'elle est défavorisée en polarisation  $\sigma^+$ . Les règles de sélection présentées au chapitre 2 permettent d'affirmer que la raie basse énergie correspond au trion positif (X+). L'observation du X<sup>+</sup> traduit la présence de trous dans le puits quantique.



FIG. 4.12 – Spectres en transmission de l'échantillon M1279 éclairé côté substrat.

Ce dopage ne correspond pas à un dopage résiduel, puisque nous avons montré au paragraphe précédent qu'il serait de type n. L'hypothèse avancée est qu'il existe des états de surface de type accepteur, qui épingle le niveau de Fermi en surface au voisinage de la bande de valence. Le système est à l'équilibre thermodynamique lorsque le niveau de Fermi,  $E_F$ , est identique à travers toute la structure. Ceci entraîne une courbure des bandes à proximité de la surface puisqu'en surface le niveau de Fermi est proche de la bande de valence alors que dans le matériau il est plus proche de la bande de conduction à cause du dopage résiduel de type n. Lorsque le puits quantique est loin de la surface, comme illustré figure 4.13 cas (a), il présente une faible densité d'électrons - reflet du dopage résiduel. Par contre, lorsque le puits est proche de la surface, le niveau de Fermi peut favoriser le transfert de trous vers le puits (figure 4.13 cas (b)).



FIG. 4.13 – Courbure de bande induite par la présence d'états accepteurs situés en surface de l'échantillon : quand le puits quantique est loin de la surface (a), il présente un faible dopage de type n reflétant le dopage résiduel. Par contre, lorsque le puits est suffisamment proche de la surface (b), la position des états accepteurs peut conduire à un transfert de trous vers le puits.

#### 4.3.3 Puits quantique "moins profond"



FIG. 4.14 – Structure de l'échantillon M1289.

On peut vérifier cette hypothèse, en considérant un échantillon avec un puits quantique de  $Cd_{0.9993}Mn_{0.007}Te/Cd_{0.84}Zn_{0.08}Mg_{0.08}Te$  (figure 4.14). La bande interdite des barrières est ici de 1788 meV ; au lieu de 2120 meV pour les barrières des autres échantillons présentés jusqu'ici (avec 27% de Mg et non 8%). Ainsi, la profondeur du puits quantique dans la bande de valence n'est plus que de 57 meV au lieu de 168 meV. On peut alors avoir un niveau de trous confinés dans le puits moins profond que le niveau accepteur en surface, ce qui bloquerait le transfert. C'est bien ce qu'on observe sur les spectres de transmission.

#### Chapitre 4. Identification d'un gaz de porteurs dans un puits quantique dopé par la surface

Ces derniers, réalisés sans photocréer de porteurs dans la barrière, c'est dire en illuminant l'échantillon côté substrat, sont rapportés figure 4.15. L'évolution sous champ magnétique, dans les deux polarisations, ne présente qu'une seule raie attribuée à l'exciton. En éclairant l'échantillon côté puits quantique (figure 4.16), ce qui autorise la photocréation de porteurs dans les barrières, on observe deux types de transitions : celle à basse énergie (notée  $X^{\pm}$ ), que l'on attribue au trion, est bien favorisée en polarisation  $\sigma^-$  et disparaît en polarisation  $\sigma^+$  au profit de l'exciton. Les règles de sélection dans le (Cd,Mn)Te ne permettent pas d'identifier avec certitude le type de porteurs.



FIG. 4.15 – Spectres de transmission de l'échantillon M1289 éclairé côté substrat.



FIG. 4.16 – Spectres de transmission de l'échantillon M1289 éclairé côté puits quantique.

Finalement, l'échantillon avec le puits quantique "peu profond" ne présente pas de porteur libre les spectres de transmission enregistrés lorsque l'échantillon est éclairé face arrière, c'est à dire sans photocréation de porteurs dans les barrières, ne présente qu'une raie liée à l'exciton. L'illumination de la structure côté puits quantique engendre une faible densité de porteurs dont le type ne peut pas être déterminé simplement par les règles de sélection.

#### 4.3.4 Etats de surface

Le rôle de ces états de surface, a partiellement été explicité grâce à un travail conjoint de W. Maslana et M. Bertolini [51] durant leur thèse. Ils ont pu montrer qu'un puits quantique de  $(Cd,Mn)Te/Cd_{0.65}Zn_{0.08}Mg_{0.27}Te$  (avec une composition en Mn de l'ordre de 1%) ne peut être dopé de type p grâce aux états de surface que sous deux conditions : la distance séparant le puits de la surface doit être comprise entre 15 et 60 nm (figure 4.17) et la surface de l'échantillon doit avoir été mise au contact d'oxygène. L'hypothèse avancée à l'heure actuelle est que les états responsables du dopage des puits de type p sont liés à l'oxydation de la surface. En effet, deux échantillons présentant un puits à 25 nm de la surface ont été réalisés conjointement dans le bâti d'épitaxie. Ils ont tous les deux été recouverts d'une couche de 5 nm Te amorphe. L'un des échantillons a été sorti du bâti et caractérisé par spectroscopie le jour même : le puits ne présente alors qu'une très faible densité de trous (de quelques  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ). L'autre échantillon a été conservé au contact de l'air durant plusieurs jours après avoir désorbé le Te amorphe : le puits présente alors une densité de trous de l'ordre de  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . Le Te amorphe, empêcherait donc la formation des niveaux accepteurs. Notons que la formation de TeO<sub>2</sub> est source d'états accepteurs dans le CdZnTe(111) [52].



FIG. 4.17 – Densité de trous en fonction de la distance entre puits quantique et surface. Les points correspondent aux mesures effectuées sur différents échantillons alors que la courbe en pointillés est le résultat d'un calcul qui permet d'estimer la position des niveaux accepteurs à  $\Delta E=90$  meV au-dessus du premier niveau de confinement (dans la bande de valence) du puits quantique [51]

L'hypothèse retenue à ce jour est que les niveaux accepteurs sont une conséquence de l'oxydation de la surface des échantillons. Une étude par mesure XPS et UPS réalisée par M. Bertolini tend à confirmer ceci, bien qu'une analyse quantitative reste encore difficile. Chapitre 4. Identification d'un gaz de porteurs dans un puits quantique dopé par la surface

## 4.4 Conclusion

Nous avons pu voir qu'un puits de CdTe situé à 25 nm de la surface présente un dopage de type p alors qu'une structure tout à fait similaire, avec cette fois un puits de CdTe situé à 100 nm, présente un faible dopage de type n.

Ainsi, les échantillons avec un puits quantique de CdTe(ou (Cd,Mn)Te)/(Cd,Zn,Mg)Te sont dopés de type p sans qu'aucun dopant ne soit introduit dans la structure. Ceci est attribué à la présence d'états de surface de type accepteurs, qui se forment lorsque la surface de l'échantillon est mise au contact de l'air.

Cette nouvelle méthode de dopage ouvre la porte à la réalisation de structures pour l'électronique de spin : on doit pouvoir contrôler la densité de trous dans une diode Schottky illustrée figure 4.18.



FIG. 4.18 – Diode Schottky qui doit permettre de contrôler la densité de trous par application d'une tension (V) entre les deux contacts métalliques. Le contact supérieur doit être fait après exposition de l'échantillon à l'oxygène afin de permettre la formation des niveaux accepteur de surface.

On peut aussi espérer étudier les effets de dimensionnalité en réalisant un réseau de fils par gravure à travers le puits quantique et étudier la mise en ordre des spins de Mn lors de la transition ferromagnétique 1D.

# Chapitre 5 Contrôle de la densité de trous

Dans le chapitre précédent, nous avons mis en avant une nouvelle méthode pour engendrer un gaz de trous bidimensionnel : l'utilisation des états de surface. Nous allons dans ce chapitre nous intéresser à des échantillons intentionnellement dopés de type p par incorporation d'ions azote. Les structures choisies permettent de piloter la population de trous, soit optiquement par la photocréation de porteurs dans les barrières, soit électriquement dans une structure à effet de champ. L'effet Zeeman géant permet de faire varier la polarisation en spin du gaz de trous.

Nous allons tout d'abord présenter le contrôle optique de la densité de trous pour un puits quantique de CdMnTe situé dans une structure à dopage par modulation de type pip : l'illumination de l'échantillon par un Laser argon permet de diminuer la densité de trous. La seconde partie du chapitre est consacrée à la démonstration du contrôle de la densité de trous pour un puits de CdMnTe situé dans une structure de diode pin.

## 5.1 Contrôle optique : structure pip

#### 5.1.1 Echantillon modèle : M1305



FIG. 5.1 – Composition de l'échantillon M1305.

Le contrôle optique de la densité d'un gaz de trous est présenté dans ce chapitre pour l'échantillon M1305 (figure 5.1). La couche dopée p située à 100 nm du puits permet d'épingler le niveau de Fermi : la position du niveau de Fermi est alors bien déterminée, indépendamment de tout dopage résiduel en profondeur (substrat, tampon). Celle localisée à 20 nm génère le gaz 2d de trous dans le puits. Avant d'entrer dans les détails des données spectroscopiques, des spectres de PL ont été enregistrés en différents

#### Chapitre 5. Contrôle de la densité de trous

points de l'échantillon afin d'en tester l'homogénéité. Chaque point est sondé par focalisation d'un faisceau laser Sa/Ti, d'une puissance de 5.6 mW, sur un diamètre de l'ordre de 150  $\mu$ m. la dispersion en énergie des maxima des raies de PL obtenus est inférieure au meV pour une largeur à mi-hauteur de 2.4 meV. L'introduction d'ions Mn conduit systématiquement à un élargissement des raies de PL, par rapport aux puits quantiques de CdTe étudiés précédemment.



#### 5.1.2 Transmission et photoluminescence sans photoneutralisation

#### Transmission

FIG. 5.2 – Spectres en transmission de l'échantillon M1305 éclairé côté substrat.

Les spectres de transmission sont présentés figure 5.2. Les transitions observées sont de type excitonique en polarisation  $\sigma^-$  alors qu'en  $\sigma^+$  l'absorption ne se laisse plus que deviner (indiquée par une flèche sur la figure). Suivant l'identification déjà présentée par Kossacki *et al.* [38], nous observons le trion positif en polarisation  $\sigma^-$  alors qu'en polarisation  $\sigma^+$  il s'agit de transitions de type bande à bande. Le passage d'un régime à l'autre explique le déplacement de la raie d'absorption, tout d'abord vers les hautes énergies entre 0 et 0.5 T en polarisation  $\sigma^+$ , avant de suivre le déplacement Zeeman attendu. Le déplacement de la raie d'absorption vers les basses énergies en polarisation  $\sigma^-$  entre 0 et 0.2 T, avant de suivre l'effet Zeeman géant (c'est à dire un déplacement vers les hautes énergies en  $\sigma^-$ ) pour les champs magnétiques plus élevés, s'explique par la polarisation du gaz de trous [38]. Les spectres de transmission présentent donc un comportement tout à fait similaire à ceux déjà observés en présence d'un gaz de trous et qui ont été rappelés au chapitre précédent.

#### Photoluminescence

Les spectres de PL, sous champ magnétique, sont présentés figures 5.3. On observe le déplacement Zeeman géant du trion positif  $X_S^+$  dans les deux polarisations circulaires  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . Contrairement aux mesures d'absorption, rapportées au paragraphe précédent, il est possible en PL de former le trion dans les deux polarisations circulaires : il n'y a plus de règles de sélection car l'excitation laser utilisée est hors résonance (les spins de porteurs peuvent se retourner pour former le  $X_S^+$ ). La notation  $X_S^+$  rappelle la configuration singulet des spins des deux trous qui forment le trion positif, l'un de moment  $\frac{3}{2}$  l'autre de moment  $-\frac{3}{2}$ . On devine une structure supplémentaire en polarisation  $\sigma$  + aux plus forts champs, sur laquelle on reviendra plus loin. Ici on se limite aux faibles champs pour lesquels les spectres se comprennent à partir des notions déjà introduites.



FIG. 5.3 – Spectres de PL de l'échantillon de l'échantillon M1305.

#### population de trous

La comparaison avec les spectres de transmission (figure 5.4) confirme la présence de trous : l'écart entre PL et absorption, mesuré à 0 T conduit à un décalage de Moss-Burstein de  $\Delta MB = 5.3$  meV (nous montrerons plus tard que le décalage de Stokes est de 0.5 meV). La densité de trous correspondante à ce décalage est de  $p=3x10^{11}$  cm-2 toujours suivant la relation 3.2 présentée au chapitre 3.



FIG. 5.4 – Ecart PL-absorption de l'échantillon M1305, mesuré à 0 T, qui conduit à un décalage de Moss-Burstein  $\Delta$ MB de 5.3 meV (le décalage de Stokes de cet échantillon est de 0.5 meV comme nous le montrerons fig. 5.10 et 6.3.

#### 5.1.3 Contrôle de la densité de trous : photoneutralisation

#### Principe et procédure expérimentale

Le dopage par modulation (dopage p à l'azote) conduit à une structure de bande, à l'équilibre thermodynamique, présentée figure 5.5. Comme le niveau de Fermi est épinglé au voisinage des niveaux accepteurs (à 57 meV de la bande de valence) la redistribution de charge au sein de l'échantillon, qui s'opère pour atteindre l'équilibre thermodynamique, conduit à la formation d'un champ électrique entre les couches dopées p. L'épaisseur du puits quantique, sa composition et la composition des barrières sont choisies telles que les premiers niveaux confinés dans la bande de valence soient énergétiquement les plus favorables pour les trous. De plus, la faible distance entre le puits quantique et la zone dopée p en surface favorise le transfert des trous vers le puits. Nous avons vu au paragraphe précédent qu'il est peuplé par un gaz de trous d'une densité  $p=3x10^{11}$  cm<sup>-2</sup>.



FIG. 5.5 – Bandes de valence (BV)et de conduction (BC) de l'échantillon M1305 : les flèches vides illustrent la photocréation de paires électron ( $e^-$ )-trou (h) dans les barrières et les flèches pleines la diffusion des porteurs photocréés sous influence du champ électrique présent dans la structure

Le contrôle de la densité de trous s'effectue au moyen du faisceau laser Argon, dont l'énergie des photons est suffisante pour photocréer des porteurs dans les barrières. Ce faisceau est défocalisé, de sorte que toute la surface de l'échantillon soit illuminée. Le profil de bande conduit à une dérive rapide des électrons photocréés dans les barrières vers le puits alors que les trous sont bloqués par le profil triangulaire de la bande de valence des barrières. Les trous ne peuvent aller vers le puits que par effet tunnel, qui est un mécanisme beaucoup plus lent que la diffusion des électrons. Le bilan de ces deux mécanismes est que lorsque l'équilibre dynamique est atteint, la densité de trous dans le puits est diminuée. Cette méthode a été décrite et utilisée pour des puits quantiques de GaAs [32, 53] et de (Cd,Mn)Te [38].

L'étude présentée dans la suite, avec une modulation optique de la densité de trous, consiste à enregistrer des spectres de PL et de transmission pour différentes puissances du faisceau laser Ar. En plus de ce faisceau laser, qui éclaire l'échantillon en continu, on utilise une lampe à filament pour les spectres de transmission ou un faisceau laser d'excitation rouge lorsque la puissance du laser Ar est trop faible pour recueillir un signal de PL significatif. L'excitation rouge correspond à un faisceau laser généré par un laser Saphir :Titane ou hélium-néon tous deux d'énergie inférieure à la bande interdite des barrières. Les spectres typiques de PL et de transmission, enregistrés en présence d'une excitation Ar de 1 mW à partir de l'échantillon M1305, sont présentés dans le paragraphe suivant.

#### Photoneutralisation laser Ar 1 mW

#### Transmission

Les spectres enregistrés en transmission et en présence d'une excitation Ar de 1 mW défocalisée sont présentés figure 5.6. Ces spectres illustrent la diminution de la densité de trous. En effet, les raies sont plus marquées (notamment en polarisation  $\sigma$ +) que dans la situation pour laquelle l'échantillon n'est pas illuminé par un faisceau laser Ar.



FIG. 5.6 – Spectres de transmission obtenus en parallèle d'une excitation de l'échantillon par un faisceau laser de 1 mW défocalisé.

#### Photoluminescence

Les spectres de PL en présence de la même excitation Ar de 1 mW défocalisée sont présentés figure 5.7. On observe à nouveau le déplacement Zeeman géant de la raie associée au trion positif  $X_S^+$  dans les deux polarisations circulaires.



FIG. 5.7 – Spectres de PL obtenus par excitation de l'échantillon avec un faisceau Laser de 1mW défocalisé.

#### Chapitre 5. Contrôle de la densité de trous

#### Population de trous

La figure 5.8 illustre l'écart entre PL et transmission. Ainsi en tenant compte des 0.5 meV de décalage de Stokes, le décalage de Moss-Burstein est de  $\Delta MB = 1.3$  meV. La densité de trous correspondante est de  $p=8.4 \times 10^{10}$  cm<sup>-2</sup>. La photoneutralisation n'est donc pas totale. Nous avons utilisé des puissances de laser supérieures à 1 mW sans observer de changement par rapport à ces spectres : nous n'avons pas durant cette journée de mesures, pu atteindre le régime de très faible densité de porteurs, caractérisé par la coexistence exciton-trion.

Néanmoins, la population de trous a pu être modifiée par photocréation de porteurs dans les barrières à l'aide d'un Laser Ar : la population de  $p=3x10^{11}$  cm<sup>-2</sup> sans photoneutralisation a été diminuée jusqu'à  $p = 8.4x10^{10}$  cm<sup>-2</sup>.



FIG. 5.8 – Ecart PL-absorption pour l'échantillon M1305, mesuré à 0 T, qui conduit à un décalage de Moss-Burstein de 1.5 meV (le décalage de Stokes est de 0.5 meV comme nous le montrerons fig. 5.10 et 6.3.

De nouvelles mesures ont été effectuées un an et demi après la croissance. Nous avons cette fois atteint le régime de très faible densité de trous (figure 5.9). Le décalage de Moss-Burstein sans illumination Ar est cette fois de 1.2 meV, ce qui correspond à une population de trous de  $p = 6.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . On retrouve le comportement en transmission présenté par Kossacki et al. [38], avec l'apparition de l'exciton lorsque la population de trous diminue. Au vu des intensités respectives des raies de transmission liées à l'exciton et au trion, il est possible d'évaluer la densité de trous pour la puissance maximale utilisée : elle est de l'ordre de  $3.5 \times 10^{10}$  cm<sup>-2</sup> pour le spectre enregistré sous une illumination Ar de 5.2 mW défocalisée. La population de trous présents dans le puits sans photoneutralisation a donc fortement diminué avec le temps puisqu'elle était, lors des mesures effectuées un an et demi plus tôt et présentées précédemment, de  $p=3x10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. Cette baisse de la densité de trous au cours du temps n'a pas été observée sur d'autres échantillons. Cette variation n'est, bien entendu, pas contrôlée, mais très intéressante pour la détermination de l'énergie de liaison du  $X_S^+$  dans la limite d'une faible densité de porteurs. L'énergie de liaison mesurée pour une illumination Ar de 5.2 mW est de 2.5 meV et est illustrée figure 5.10. Cette valeur est en bon accord avec les résultats obtenus par Kossacki dans des structures tout à fait similaires [38]. La luminescence de l'exciton neutre, pour une illumination Ar de 5.2 mW, montre que la densité de trous est très faible; on suppose que l'écart entre PL et absorption correspond alors uniquement au décalage de Stokes : les 0.5 meV déduis jusqu'à présent des écarts PL-absorption pour déterminer le décalage de Moss-Burstein.



 $\label{eq:FIG.5.9-Spectres} FIG. 5.9-Spectres de PL et de transmission enregistrés en parallèle d'une photo-excitation de l'échantillon par un faisceau laser Argon de puissance variable.$ 



FIG. 5.10 – Comparaison PL et transmission pour une puissance du laser Argon de 5.2 mW. L'énergie de liaison du trion est de  $E_b(X_S^+) = 2.5$  meV et le décalage de Stokes de 0.5 meV.

## 5.2 Contrôle électrique : structure pin

#### 5.2.1 Composition et principe de fonctionnement

L'idée développée ici est de se rapprocher des moyens mis en oeuvre en micro-électronique pour piloter la densité d'un gaz 2D de trous dans un puits quantique de semi-conducteurs II-VI. En d'autres termes, il s'agit de concevoir une structure qui permette de contrôler la population de porteurs d'un puits quantique par l'application d'une tension électrique. La structure choisie correspond à un puits quantique inséré dans une diode pin : la composition et la structure de bande à l'équilibre sont représentées figure 5.11 pour l'échantillon M1329. L'application d'une tension entre les couches de type p et n entraîne une modification de la position relative des quasi-niveaux de Fermi des trous et des électrons par rapport aux niveaux de confinement dans la bande de valence du puits. Ce faisant, la densité de trous augmente en polarisation directe (couche p au potentiel positif) et diminue en polarisation inverse.



FIG. 5.11 – Composition et structure de bande à l'équilibre de l'échantillon M1329.

## 5.2.2 Réalisation de grilles 2D et de contacts métalliques

La réalisation des diodes a nécessité d'adapter certaines techniques de micro-électronique, très largement utilisées pour le Silicium ou GaAs, aux composés II-VI. L'application d'une tension à travers la diode pin est passée par une mise au point, avec l'aide de Y. Genuist, de différentes étapes technologiques présentées dans ce qui suit. L'étude préliminaire, réalisée au laboratoire en 1999 par L. Gourdol durant son stage de fin d'études (IUT de Mesures Physiques de Grenoble), nous a servi de point de départ.

#### 5.2. Contrôle électrique : structure pin

#### Choix de la résine : positive ou négative.

Les motifs désirés, sont pour les plus petits, d'une dimension de 300  $\mu$ m, si bien qu'une lithographie optique est tout à fait suffisante. Pour cela, il s'agit de recouvrir l'échantillon d'une résine photosensible (*Microposit S1818 Photo Resist*) et de transférer le motif désiré dans cette résine par insolation UV et développement (*Microposit MF-319 Developer*). La résine est déposée sur l'échantillon à l'aide d'une tournette : à une vitesse de rotation de 5000 tours/min, l'épaisseur de résine déposée est de 1,8  $\mu$ m. Le motif désiré est préalablement préparé sous forme d'un film photographique. Lors de l'insolation, la diffusion de la lumière en bord de motif conduit à une exposition de la résine sous les zones masquées. Ainsi, le choix du type de résine est primordial pour le bon déroulement des étapes qui suivent la lithographie. En utilisant une résine dite positive, ce sont les zones exposée au rayonnement UV qui seront retirées de l'échantillon lors du développement. Au contraire, avec une résine négative, ce sont les zones non exposées lors de l'insolation à travers le masque qui seront retirées.



FIG. 5.12 – Profil des bords de motif avec utilisation d'une résine positive.



FIG. 5.13 – Procédé de lift-off en résine négative.

En utilisant une résine positive, le profil de résine présente une pente positive (figure 5.12), qui est bien adapté à une étape de gravure, mais pas à un dépôt métallique. Ce dernier formerait alors un film continu en surface de l'échantillon qui rendrait toute dissolution de résine très difficile, voire impossible. Le profil de la résine peut être inversé en choisissant une résine négative : on ajoute 2% d'Imidazole à la résine S1818. Les étapes de lithographie avec la résine négative sont présentées figure 5.13. Lors de l'insolation à travers le masque, les composants photoactifs (**P**) sont transformés en acides carboxyliques

#### Chapitre 5. Contrôle de la densité de trous

qui se lient à l'Imidazole (I) pour former des Sels carboxylate (S) solubles dans le développeur. Suit alors un recuit (110°C pendant 20 min) qui casse les chaînes de sels en délivrant du dioxyde de carbone et des composés Dérivés (D) insolubles dans le développeur et non photosensibles. Une nouvelle insolation de toute la surface permet de convertir les composants photosensibles (non exposés jusqu'ici) en sels. L'étape de développement dissout les parties non exposées lors de la première insolation ; ce qui conduit à des bords de motifs à pente négative. Le métal déposé après coup présentera donc des discontinuités permettant de retirer la résine restante par dissolution durant une nuit dans l'acétone.

#### Choix des métaux : travail de sortie

Dans un modèle simple, les contacts entre métaux et semi-conducteurs forment une barrière Schottky, qui provient de la différence de travail de sortie - c'est l'énergie qu'il faut fournir à un électron pour le faire passer du niveau de Fermi dans le matériau ( $E_{\rm F}^{\rm m}$  dans le métal ou  $emphE_{\rm F}^{\rm SC}$  dans le semi-conducteur) vers l'état du vide (figure 5.14). L'affinité électronique est définie par l'énergie qu'il faut fournir à un électron pour passer de la bande de conduction vers l'état du vide. Dans le cas de semi-conducteurs dégénérés, le niveau de Fermi est proche des niveaux d'impuretés :  $E_D=14$  meV pour le dopage à l'aluminium (dans un modèle hydrogénoïde  $E_D=13600\frac{m^*}{\varepsilon_{\tau}^2m_0}$  avec  $m^*=0.1m_0$  et  $\varepsilon_{\tau}=10$ ) et  $E_A=57$  meV pour l'azote dans CdTe [54]. L'affinité électronique du CdTe est de 4.3 eV [55]. En négligeant la position des niveaux d'impureté, on obtient respectivement un travail de sortie de 4.3 eV et 5.9 eV pour du CdTe dopé n et p.

L'équilibre thermodynamique est atteint, lors de la mise en contact du métal et semi-conducteur, par transfert de charges générant une zone de charge d'espace (W) dans le semi-conducteur. Afin d'obtenir des contacts ohmiques, c'est-à-dire sans caractéristique de "redresseur de courant", il faut diminuer la barrière Schottky. La hauteur de barrière peut être modifiée par le choix du métal alors que son épaisseur dépend du dopage du semi-conducteur : plus le dopage est fort et plus la barrière Schottky sera fine. Nous avons choisi de déposer de l'indium sur la couche dopée n - le travail de sortie ( $\phi_m=4.12$  eV [55]) est très proche de celui du CdTe dopé n. Par contre, il n'existe pas de métaux ayant un travail de sortie aussi proche de celui du CdTe dopé p : nous avons choisi l'or ( $\phi_m=5.1$  eV [55]).



FIG. 5.14 – Contact Schottky dans le cas d'un semi-conducteur dopé de type n.

#### Etape 1 : Plots de soudure et grille

La première étape consiste à déposer 4 plots de Cr(20 nm)-Au(300 nm) sur l'échantillon à travers un masque mécanique : une pièce métallique percée de trous de 800  $\mu$ m de diamètre. Ces plots représentent chacun un point d'ancrage des futures soudures sur la couche dopée de type p. Les échantillons sont transférés du bâti d'épitaxie vers le bâti d'évaporation de métaux sous atmosphère d'azote car l'oxydation de la surface semi-conductrice nuit à la bonne tenue des dépôts métalliques. Le masque mécanique est ensuite retiré et une fine couche d'or de 10 nm est déposée sur toute la surface de l'échantillon; cette couche formera la "grille". La faible épaisseur de la grille est indispensable puisque l'étude spectroscopique se fera à travers cette couche semi-transparente.

#### Etape 2 : Gravure

L'accès à la couche dopée de type n est obtenu en gravant l'échantillon par faisceau d'ions Ar, sous un angle de 30°. Une première étape de lithographie en résine positive (Séchage de la résine 2 min à 110°C puis insolation à 5 mW avec masque pendant 40 s - développement pendant environ 50 s.) permet de définir le motif à graver : une croix de 600  $\mu$ m de largeur délimitant 4 diodes de 2 mm par 2 mm sur l'échantillon de 5 mm par 5 mm.

#### Etape 3 : Dépôts contact arrière et lift-off

Le contact sur la couche de type n est réalisé par un procédé de "lift-off" d'Indium . La lithographie en résine négative est réalisée dans les conditions suivantes : Insolation 1 à 5.7 mW avec masque pendant 20 s, recuit de 20 min à 100°C, insolation 2 à 5.7 mW sans masque durant 3 min 15 s. La résine est développée pendant environ 50 s puis l'échantillon est plongé 10 secondes dans une solution acide (3 volumes d'eau, 1 volume d'eau oxygénée et 1 volume d'acide acétique) et rincé quelques minutes dans de l'eau désionisée. Cette attaque acide améliore la tenue mécanique de l'indium. Enfin, 300 nm d'Indium sont déposés avant de plonger le tout pour une nuit dans l'acétone.

#### Fixation et soudure

L'échantillon est alors fixé sur une plaquette de circuit imprimé. Il est important de noter que l'échantillon n'est pas collé, mais maintenu par des bandelettes de papier, afin d'éviter l'apparition de contraintes à basse température. Les soudures entre les plots d'or, l'indium et le circuit imprimé ont été réalisées par Y. Genuist à l'aide d'une microsoudeuse ("Micro Swiss").



FIG. 5.15 – Images MEB et vue en coupe de l'échantillon M1346 après réalisation des diodes.

#### Chapitre 5. Contrôle de la densité de trous

L'image 5.15 correspond à l'échantillon M1346, dont les propriétés sont exposées dans la seconde partie. Les étapes technologiques sont identiques à celles réalisées sur l'échantillon M1329. Le motif de gravure et le dépôt d'Indium ont été légèrement changés. L'élargissement en forme de disque au centre de l'échantillon facilite l'accès à l'Indium lors de la soudure : ceci diminue le risque de court-circuit entre la grille en or et le fil de soudure du contact arrière. On peut distinguer les 4 plots de Cr-Au, les sillons de gravure séparant les diodes, le dépôt d'indium et les fils d'or de connection (un n'est d'ailleurs plus connecté à l'indium).

Les étapes technologiques permettent de conserver une qualité d'échantillon tout à fait comparable à celle d'avant préparation des diodes. Les spectres de PL enregistrés avant et après les différentes étapes de la réalisation des diodes sont présentés figure 5.16 pour une température de 4.2 K. On peut noter un décalage des maxima de 3 meV et une largeur de raie de 7.2 meV avant process et de 8 meV après. Ces différences sont tout à fait raisonnables compte tenu de la largeur de la raie avant préparation des diodes : les spectres ont été enregistrés en focalisant le laser sur un diamètre de l'ordre de 150  $\mu$ m.



FIG. 5.16 – Spectres de PL enregistrés à 4.2 K sur l'échantillon M1346 avant et après réalisation des diodes suivant les étapes décrites ici.

#### 5.2.3 Réalisation de grilles digitales

Au lieu de déposer une grille semi-transparente d'or, nous avons aussi réalisé des grilles digitales non transparentes (20 nm de chrome et 100 nm d'or) présentées figure 5.17. Le dépôt des grilles sur la couche de surface p a été réalisé à l'Institut de Physique - Académie des sciences Polonaises par J.Wróbel, par lithographie électronique (la résine étant cette fois-ci du PMMA). Différents écarts entre les fils de chacune des grilles ont été testés. Les différentes diodes ne sont cette fois pas isolées les unes des autres. Ceci ne devrait pas poser de problème particulier puisqu'à 4 K nous n'avons jamais réussi à rendre une couche de (Cd,Zn,Mg)Te dopée de type p conductrice. Un contact commun à toutes les grilles est réalisé par gravure d'un coin de l'échantillon jusqu'à la couche n enterrée.



FIG. 5.17 – Illustration des différentes grilles digitales déposées sur l'échantillon M1381.

#### 5.2.4 Caractéristique courant-tension

La figure 5.18 illustre le caractère non linéaire du courant en fonction de la tension appliquée aux diodes réalisées avec des grilles 2D (échantillons M1329 et M1346) et digitales (M1381). Le courant est mesuré aux bornes d'une résistance de 10 ou 100 k $\Omega$ , connectée en série avec la diode. Pour les grilles 2D, la tension de seuil est de 1.4 V. Cette valeur est inférieure aux 2 V attendue, du fait de la bande d'énergie interdite des barrières qui est de 2090 meV. La tension de claquage ou d'apparition de fuite de courant est de -1.6 V pour la diode de l'échantillon M1329, alors qu'elle est de -0.8 V pour celle de l'échantillon M1346. Les diodes avec grille digitale présentent un comportement courant-tension plus proche de celui attendu : la tension seuil est de 1.7 V alors que la tension de claquage est de -7 V.



FIG. 5.18 - Caractéristique courant-tension des diodes avec une grille 2D (à gauche) ou digitale (à droite).



FIG. 5.19 – Densité de courant en fonction de la tension appliquée pour les deux types de grille étudiés.

Les étapes technologiques ne sont pas les mêmes lors de la réalisation des deux types de grille; néanmoins, l'amélioration des caractéristiques pourrait aussi être un effet de taille de diode : plus elles sont petites et moins elles sont sensibles à la présence de défauts et d'impuretés. S'il est vrai que la taille des diodes est très différente, les conclusions quant à l'amélioration des caractéristiques restent les mêmes si l'on représente la densité de courant en fonction de la tension appliquée (figure 5.19). On notera que l'excitation laser (He/Ne ou Sa/Ti d'énergies inférieures aux barrières) ne modifie que peu les caractéristiques I-V. De plus, aucune variation n'est observée entre 4.2 et 1.5 K, qui correspondent aux valeurs limites d'étude.

#### 5.2.5 Contrôle de la densité de trous

La démonstration du contrôle de la densité de trous par l'application d'une tension électrique est présentée ici pour l'échantillon M1329. Elle repose sur la comparaison des spectres de PL et de PLE enregistrés pour différentes tensions (figure 5.20). Les spectres de PL et PLE, que l'on compare, ont tous été enregistrés durant la même journée afin d'être dans des conditions de travail aussi proches que possible pour les deux types de mesures. Pour une tension de -4 V on ne voit plus de signal de luminescence. Ceci est très probablement une conséquence des fluctuations de champ électrique au sein de la zone intrinsèque de la diode, et donc dans le puits quantique. Non seulement la tension peut être appliquée de manière non uniforme, mais toute variation d'épaisseur, ou la localisation de charges électriques dans la structure, peuvent conduire à l'augmentation de la composante du champ électrique dans le plan. Ce faisant, les électrons et les trous sont séparés spatialement et leur recombinaison radiative est fortement défavorisée par rapport aux canaux non radiatifs.

Entre -2.5 et -1.5 V on peut observer une raie raisonnablement symétrique en PLE et une raie en PL qui présente une légère queue basse énergie : c'est une marque de l'inhomogénéité de l'échantillon, aussi bien d'un point de vue composition que de l'épaisseur du puits quantique et du champ électrique. Nous attribuons cette raie, aussi bien en PL qu'en PLE, à l'exciton X.

Une raie supplémentaire apparaît en PL pour -1.5 V à basse énergie alors qu'elle n'est visible qu'à partir de -1 V en PLE. Il s'agit du trion positif  $X_S^+$ , qui est favorisé en PL (la distribution thermique des porteurs favorise l'état de plus basse énergie), et domine les spectres enregistrés jusqu'à +3 V. Les spectres de PLE traduisent une évolution vers des transitions bande à bande pour des tensions de +1 à +3 V : le  $X_S^+$  présent à -1 V se transforme en singularité de bord de Fermi alors que l'exciton n'est plus visible au-delà de 0 V. On notera aussi que la partie haute énergie (vers 1645 meV et au-delà) des



FIG. 5.20 – Spectres de PL et de PLE pour différentes tensions appliquées à une diode de l'échantillon M1329.

spectres de PLE s'éloigne de plus en plus de la ligne de base : c'est aussi une marque de l'évolution vers des transitions bande à bande. La figure 5.21 illustre la nette différence de la position des maxima des raies de PL et PLE pour une tension de +3 V.



FIG. 5.21 – Spectres de PL et PLE pour une tension de +3 V sans champ magnétique.

La figure 5.22 illustre le décalage de Stokes mesuré soit à 3 T pour une tension de -2.5 V soit à 0 T pour une tension de -2 V. Nous obtenons dans le premier cas un décalage de Stokes de 2.5 meV alors qu'à 0 T on mesure 3 meV. Le décalage est important, si l'on compare aux autres échantillons (sans structure

de diode), mais il faut souligner que les raies de PL et PLE sont aussi plus larges sur cet échantillon.



FIG. 5.22 – Estimation du décalage de Stokes à 3 T pour une tension de -2.5 V et à 0 T pour une tension de -2 V.

Les positions des transitions observées en PL et PLE sont reportées figure 5.23a et les différences entre les positions marquées par les flèches sont représentées figure 5.23b. Les 2.5-3 meV résiduels à -1.5 et -2 V correspondent, comme nous l'avons présenté précédemment, au décalage de Stokes : on peut donc supposer que la densité de trous à -1 et -2 V est nulle. Pour les autres tensions, elle est déduite du décalage de Moss-Burstein mesuré  $\Delta$ MB (figure 5.24) : 2.5 meV ont été retirés de la différence PLE-PL présentée figure 5.23b pour les tensions comprises entre -1. 5 et 3 V.



FIG. 5.23 - (a): Positions des maxima obtenus en PL (symboles pleins) et PLE (symboles ouverts); les étoiles correspondent à l'exciton X, les cercles à l'exciton chargé  $X_S^+$  alors que les losanges représentent l'évolution du  $X_S^+$ vers la singularité de bord de Fermi. (b) Différence entre maxima de PLE et PL indiqués par les flèches sur la figure a : pour -2 et -1.5 V, la différence entre PLE et PL correspond au décalage de Stokes.



FIG. 5.24 – Variation du décalage de Moss-Burstein et de la population de trous correspondante en fonction de la tension appliquée à la diode M1329.

On observe une nette variation de la population en fonction de la tension appliquée à la diode : la densité de trous augmente lorsqu'on diminue le champ électrique au sein de la zone intrinsèque de la diode ; c'est-à-dire quand on passe d'une tension appliquée de -2 V + 3 V. Nous verrons au 5.2.6 que la variation de la population correspond raisonnablement à ce qui est attendu de la structure de l'échantillon si on tient compte des contacts électriques qui ne sont pas parfaits.

#### 5.2.6 Estimation numérique de la densité de trous

Nous avons vu qu'expérimentalement il est nécessaire d'appliquer une tension inverse de l'ordre de -1 V pour dépléter le puits quantique qui est initialement (à tension nulle) peuplé par une densité de trous de  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. Il s'agit ici de rendre compte de la variation de la densité de trous et de la structure de bande de la diode en fonction de la tension appliquée.

#### Modèle et hypothèses

La détermination de la structure de bande pour différentes tensions passe par la résolution de l'équation de Poisson,  $\Delta V = -\frac{\rho}{\varepsilon\varepsilon_0}$ , à travers toute la diode pin (avec V: le potentiel électrique,  $\varepsilon$  la perméabilité relative du matériau considéré et  $\varepsilon_0$  la perméabilité du vide). On considère que les charges sont réparties uniformément, aussi bien dans les zones de charges d'espace côté p et n mais aussi dans le puits quantique : l'équation de Schrödinger n'a pas été résolue pour les différentes tensions. La distribution de charge utilisée est présentée figure 5.25 avec  $N_d=10^{18}$  cm<sup>-3</sup> et  $N_a=3x10^{-17}$  cm<sup>-3</sup> qui sont estimées à partir des conditions de croissance établies durant la thèse d'Alexandre Arnoult. Les positions des niveaux donneurs et accepteurs sont respectivement fixées à  $E_d=14$  meV (suivant modèle hydrogénoïde) et  $E_a=57$  meV [55]. Un seul niveau de trou (HH1) est pris en compte et l'on suppose que k<sub>B</sub>T  $\ll E_F$ . Enfin, la bande interdite des barrières et du puits sont fixées respectivement à 2090 meV et 1610 meV. Ces valeurs sont en accord avec la position des pics de PL pour une barrière de Cd<sub>0.67</sub>Zn<sub>0.08</sub>Mg<sub>0.25</sub>Te et le puits quantique de Cd<sub>0.9974</sub>Mn<sub>0.26</sub>Te. Ceci conduit à une position du niveau HH1 par rapport à la bande de valence de la barrière à l'interface puits/barrière de 160 meV.



FIG. 5.25 – Modélisation de la diode pin utilisée pour le calcul de bande en fonction de la tension appliquée. Les niveaux accepteurs et donneurs définissent l'état d'équilibre, la tension appliquée correspond à la différence entre l'énergie d'équilibre et l'énergie calculée au niveau de la zone dopée n. Les longueurs  $L_a$  et  $L_d$  correspondent respectivement aux longueur de déplétion côté p et n. Les valeurs calculées sont écrites en gras sur le schéma.

#### Résolution

La résolution de l'équation de Poisson est menée pas à pas, à partir de la surface, à travers toute la structure pour différentes longueurs de déplétion (*L*a). La densité de trous est déterminée par comparaison du niveau d'énergie calculé à l'interface barrière-puits (position notée  $X_1$ ) au niveau d'équilibre défini par le quasi-niveau de Fermi des trous supposé coïncider avec le niveau accepteur. Si l'énergie en  $X_1$  est supérieure au niveau accepteur, la différence correspond au niveau de Fermi  $E_F$  des trous dans le puits quantique. La densité de trous est alors  $p = \rho_{2D} E_F$  avec  $\rho_{2D} = \frac{m_L^*}{\pi \hbar^2}$  la densité d'état du gaz bidimensionnel de trous. La détermination de la densité de charges dans le puits quantique permet de définir la longueur de déplétion côté n par conservation de la charge à travers la structure :  $N_a L_a + N_d L_d + p = 0$ . La tension appliquée à la diode correspond à la différence d'énergie entre la position calculée en X2 et la position à l'équilibre ( $E_G$ - $E_d$ ).

#### Résultats

La figure 5.26 illustre l'évolution de la structure de bande en fonction de la tension appliquée à la diode et la comparaison de la variation de la densité de trous expérimentale à celle déterminée par le calcul est illustrée figure 5.27.



FIG. 5.26 – Estimation numérique du profil de la bande de valence en fonction de la tension appliquée à la diode M1329. Un agrandissement de la partie correspondant au puits quantique est présenté en insert. Le puits quantique est peuplé par des trous (lignes continues) tant que la tension est supérieure à -0.5 V. En-dessous, le puits est déplété.

Le dopage n est si fort que la zone de déplétion correspond, pour les tensions représentées ici, à quelques Angström à peine visibles sur le graphique. On notera que la variation est beaucoup plus rapide à partir du moment où le puits quantique est vide : l'effet principal de l'application de la tension en présence des trous se traduit par la modification du champ électrique entre la zone déplétée du coté dopé n et le puits quantique. Une bonne approximation de la tension nécessaire pour dépléter le puits de ses trous peut donc se déduire de l'expression suivante :

$$V = \frac{epL}{C} \quad ; \quad C = \frac{\varepsilon\varepsilon_0}{L}$$

où C est la capacité par unité de surface de la couche intrinsèque, de longueur L, séparant le puits de la zone dopée n.

La tension inverse (négative) pour laquelle le puits quantique est déserté de ses trous est expérimentalement plus importante (en valeur absolue) que celle déterminée par le calcul. Ceci peut être une conséquence de contacts électriques de mauvaise qualité - à savoir non ohmiques : une partie de la tension appliquée à la structure est perdue dans la polarisation des contacts Schottky. En décalant les données obtenues par le calcul d'une tension de -0.9 V, l'accord avec les données expérimentales est raisonnable pour les tensions négatives. Par contre, l'augmentation de la densité de trous en tension positive est beaucoup plus lente que celle attendue. Les contacts sont dans ce cas polarisés en inverse : ils sont donc de plus en plus résistifs et nuisent d'autant plus au passage du courant que la tension appliquée à la structure est
#### Chapitre 5. Contrôle de la densité de trous

grande. On notera également que de toute façon le modèle ne peut pas rendre compte de la densité de trous lorsqu'un courant traverse la structure, ce qui est le cas au delà de 1.4 V.



FIG. 5.27 – Variation de la densité de trous en fonction de la tension appliquée à l'échantillon M1329 : les points correspondent à la variation expérimentale déterminée via le décalage de Moss-Burstein présenté fig. 5.24, la droite en pointillés illustre les résultats du modèle présenté ici alors que celle en trait plein correspond à la droite calculée décalée d'une tension de -0.9 V.

# 5.3 conclusion

Les résultats de spectroscopie magnéto-optique présentés dans ce chapitre montrent que nous sommes en mesure de contrôler la densité de trous dans un puits quantique de (Cd,Mn)Te; ceci optiquement, par illumination des barrières du puits ou électriquement, par application d'une tension électrique à une structure FET (une diode pin). Une tension de l'ordre de -1 V est suffisante pour dépléter le puits quantique de ses trous.

Le contrôle optique permet de faire passer la densité de trous de  $p=3x10^{11}$  cm<sup>-2</sup> à  $p = 8.4x10^{10}$ cm<sup>-2</sup> sous illumination Argon dans la structure pip.

En ce qui concerne la diode pin, il est possible d'atteindre une population de  $p=2.8\times10^{11}$  cm<sup>-2</sup> pour une tension de +3 V et de supprimer les trous pour une tension de l'ordre de -1 V. La variation de la population de trous expérimentale est en bon accord avec celle calculée pour la structure FET. La valeur de la tension pour laquelle le puits est déserté de ses trous est plus importante que celle calculée. L'écart entre les deux peut être attribué aux contacts électriques qui limitent la modification du champ électrique à travers la zone intrinsèque de la diode. On notera aussi que la largeur des raies est plus importante dans la structure pin (6 à 7 meV) que dans la structure pip (2.5 meV).

# Chapitre 6

# Propriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman

Ce chapitre est dédié à la présentation des spectres magnéto-optiques, en particulier de PL, pour des champs magnétiques supérieurs à ceux présentés jusqu'ici. On verra que l'exciton chargé positivement disparaît au profit d'une double raie pour une séparation Zeeman de la bande de valence de l'ordre de 3 meV. Grâce à l'effet Zeeman géant, cette séparation est obtenue pour des champs magnétiques inférieurs à 1 T ce qui très loin des champs magnétiques nécessaires pour voir apparaître la quantifications des niveaux d'énergie en niveaux de Landau.

Les trois types d'échantillons utilisés jusqu'ici - à savoir un puits quantique de (Cd,Mn)Te dopé par la surface (M1269), placé dans une structure pip (M1305), ou dans une structure pin (M1329) - sont repris afin de prouver que cet effet de basculement ne dépend pas de la méthode de dopage mais bien de la présence du gaz de trous.

# 6.1 Echantillon dopé par la surface : M1269

#### 6.1.1 Transmission

Les spectres de transmission de l'échantillon M1269 sont rappelés figure 6.1; les positions des raies sont indiquées figure 6.3. On rappelle que la population de trous est de  $p=2.8 \times 10^{11}$  cm<sup>-2</sup>.



FIG. 6.1 – Spectres de transmission de l'échantillon M1269 ( $x_{eff}=0.56$ ), éclairé côté substrat, en fonction du champ magnétique et analysés en polarisation circulaire  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . La densité de trous vaut p=2.8x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.

# 6.1.2 Photoluminescence

Les spectres de PL (figure 6.2) présentent à faible champ magnétique, comme nous avons pu le voir dans le chapitre 3, l'exciton chargé positivement  $X_S^+$ . Le  $X_S^+$  suit le déplacement Zeeman géant. En polarisation  $\sigma^-$  l'intensité de la raie décroît faiblement entre 0 et 0.25 T; la décroissance s'accélère vers 0.375 T jusqu'à disparition pour un champ magnétique de l'ordre de 0.75 T. La situation en polarisation  $\sigma^+$  est bien plus complexe. En effet, on observe, au-delà de 0.375 T, la disparition de la luminescence du  $X_S^+$  au au profit d'une double raie que l'on note  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$  et d'une raie de plus faible intensité notée  $D_{sup}^{LO}$ . Le champ de basculement,  $B_{bascul}=0.75$  T, correspond, pour 0.7 % de Mn à 1.7 K, à une séparation Zeeman de 4 meV, qui se répartissent pour  $\frac{1}{5}$  (<1 meV) dans la bande de conduction et  $\frac{4}{5}$  (3 meV) dans la bande de valence. L'identification des raies sera faite au chapitre suivant (chap.7).



FIG. 6.2 – Spectres de PL sur l'échantillon M1269 ( $x_{eff}=0.56$ ) en fonction du champ magnétique, enregistrés en polarisation  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . La densité de trous vaut p=2.8x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.

# 6.1.3 Position des raies

Les positions des raies de transmission et de PL sont illustrées figure 6.3. Toutes les positions suivent relativement bien la fonction de Brillouin utilisée pour ajuster les données de réflectivité (chap.6). Un écart net à la fonction de Brillouin est toutefois visible pour le  $X_S^+$  entre + 0.3 T et - 0.3 T. Nous verrons dans le chapitre suivant que ceci peut s'expliquer par le processus même de recombinaison, en centre de zone de Brillouin et en présence d'un gaz de trous non polarisé à 100% - une fois le gaz polarisé, les positions rejoignent la fonction de Brillouin. Aucune étude systématique n'a été faite sur la raie de plus



FIG. 6.3 – Positions des raies de transmission (triangles) et de PL (cercles). Les positions suivent la fonction de Brillouin utilisée pour l'ajustement des données de réflectivité (dans la situation d'une faible densité de trous illustrée au chap.3). Seul trois tracés de la fonction de Brillouin, décalée verticalement, ont été reporté afin de ne pas surcharger la figure : en traits pointillés pour les données de transmission et en trait plein pour les positions de la raie notée  $D_{sup}$ . On notera que les positions du trion positif s'écartent de la fonction de Brillouin à faible champ magnétique : deux segments de droite sont reporté entre + 0.3 T et - 0.3 T afin de guider l'oeil du lecteur. Les intensités sont indiquées par l'aire des symboles.

haute énergie, celle dont la position varie entre 1633 et 1637 meV en polarisation  $\sigma$ +. Nous n'observons pas cette raie sur les échantillons avec un puits de 8 nm : elle est probablement rejetée à des énergies plus grandes qui coïncident avec l'absorption du substrat et de la couche tampon.

# 6.2 Structure pip :M1305

Les spectres de transmission de PL et la position respective des raies sont présentés ici pour trois configurations : la première sans photoneutralisation, puis sous illumination Ar de 0.1 mW et enfin sous illumination Ar de 1 mW.

# 6.2.1 Sans photoneutralisation

#### Transmission-PL

La figure 6.4 rappelle les données de transmission obtenues à partir de l'échantillon M1305 alors que celles de PL sont illustrées figure 7.5. La densité de trous sans photoneutralisation, ce qui est le cas pour ces deux figures, est de  $p=2.5 \times 10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. On retrouve le basculement du trion  $X_S^+$ , en polarisation  $\sigma^+$  pour un champ magnétique de 0.45 T, en faveur de la double raie  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$ , et la disparition du  $X_S^+$  en polarisation  $\sigma^-$ .



FIG. 6.4 – Spectres en transmission de l'échantillon M1305 ( $x_{eff}=0.38$ ) sans photoneutralisation (illumination côté substrat). La densité de trous vaut p=2.5x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.



FIG. 6.5 – Spectres de PL enregistrés à partir de l'échantillon M1305 ( $x_{eff}=0.38$ ) sans photoneutralisation. La densité de trous vaut p=2.5x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.

#### Positions des raies

Les positions des raies de transmission et de PL présentées figures 6.4 et 7.5 sont tracées figure 6.6. Une seule fonction de Brillouin permet d'ajuster toutes les positions, si ce n'est pour le  $X_S^+$  entre + 0.2 T et - 0.2 T.



FIG. 6.6 – Positions des raies de PL (en symboles pleins) et de transmission (symboles ouverts). Le  $X_S^+$  est visible à faible champ magnétique en PL, et en polarisation  $\sigma^-$  en transmission. En polarisation  $\sigma^+$  on retrouve une absorption de type bande à bande (b à b) et la double raie notée  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$ . La densité de trous vaut p=2.5x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.

#### 6.2.2 Photoneutralisation 0.1 mW Ar

#### Transmission-PL

Avec une illumination Ar de 0.1 mW défocalisée, on observe les spectres de transmission et de PL présentés figures 6.7 et 6.8. En transmission, on observe toujours le  $X_S^+$  en polarisation  $\sigma^-$  alors qu'en polarisation  $\sigma^+$  les spectres présentent dès 0.5 T une forme de raie qui suggère des transitions de type bande à bande. On peut observer que l'intensité de  $D_{sup}$  est maintenant plus grande que celle de  $D_{inf}$  Le décalage de Moss-Burstein mesuré à 0 T est de 2.2 meV, ce qui correspond à une population de trous de  $1.1 \times 10^{11}$  cm<sup>-2</sup> (suivant la même procédure que celle utilisée jusqu'ici et présentée au chapitre 2).





FIG. 6.7 – Spectres en transmission de l'échantillon M1305 ( $x_{eff}=0.38$ ) en présence d'une illumination Ar de 0.1 mW défocalisée. La densité de trous vaut p=1.1x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.



FIG. 6.8 – Spectres de PL enregistrés à partir de l'échantillon M1305 ( $x_{eff}=0.38$ ) en présence d'une illumination Ar de 0.1 mW défocalisée. La densité de trous vaut p=1.1x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.

#### Positions des raies

Les positions des raies de PL et de transmission pour l'échantillon M1305 en présence d'une densité de trous de  $1.1 \times 10^{11}$  cm<sup>-2</sup> sont illustrées figure 6.9. On notera que le champ magnétique de basculement n'a pas changé. De plus, l'écart entre le  $X_S^+$  et  $D_{sup}$  a très peu varié par rapport à la situation sans photoneutralisation alors que  $D_{sup}$  s'est fortement rapprochée du  $X_S^+$ .



FIG. 6.9 – Positions des raies de PL (en symboles pleins) et de transmission (symboles ouverts) en présence d'une illumination Ar de 0.1 mW défocalisée. Le  $X_S^+$  est visible à faible champ magnétique en PL, et en polarisation  $\sigma^-$  en transmission. En polarisation  $\sigma^+$  on retrouve une absorption de type bande à bande (b à b) et la double raie notée  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$ . La densité de trous vaut p=1.1x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.

#### 6.2.3 Photoneutralisation 1 mW Ar

#### Transmission-PL

En présence d'une illumination Ar de 1 mW défocalisée, la population de trous est de p =  $7.2 \times 10^{10}$  cm<sup>-2</sup>. Les spectres de transmission sont rappelés figure 6.10, ceux de PL sont présentés figure 6.11. Le basculement du  $X_S^+$  vers la double raie  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$  est beaucoup moins net. L'intensité relative de la raie  $D_{inf}$  par rapport à la raie  $D_{sup}$  est bien plus faible. Bien que le pointé de  $D_{inf}$  soit plus difficile que précédemment, il est clair que cette raie s'est encore rapprochée du  $X_S^+$  alors que l'écart entre  $X_S^+$  et  $D_{sup}$  et le champ magnétique de basculement n'ont quasiment pas changé.





FIG. 6.10 – Spectres en transmission de l'échantillon M1305 ( $x_{eff}=0.38$ ) en présence d'une illumination Ar de 1 mW défocalisée. La densité de trous vaut p=7.2x10<sup>10</sup> cm<sup>-2</sup>.



FIG. 6.11 – Spectres de PL enregistrés à partir de l'échantillon M1305 ( $x_{eff}=0.38$ ) en présence d'une illumination Ar de 1 mW défocalisée. La densité de trous vaut p=7.2x10<sup>10</sup> cm<sup>-2</sup>.

#### Positions des raies

Les positions des raies de transmission et de PL de l'échantillon M1305 sous faisceau las er Ar de 1 mW défocalisé sont illustrées figure 6.12.



FIG. 6.12 – Positions des raies de PL (en symboles pleins) et de transmission (symboles ouverts) en présence d'une illumination Ar de 1 mW défocalisée. Le  $X_S^+$  est visible à faible champ magnétique en PL, et en polarisation  $\sigma^-$  en transmission. En polarisation  $\sigma^+$  on retrouve une absorption de type bande à bande et la double raie notée  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$ ; cette dernière est moins bien marquée que dans les spectres présentés sans photoneutralisation ou sous 0.1 mW Ar.

# 6.3 Structure pin : M1329

# 6.3.1 Photoluminescence

Les spectres de PL obtenus sous champ magnétique, sont présentés figure 6.13. L'ajustement des positions des raies (figure 6.14) par une fonction de Brillouin modifiée conduit à une composition effective en Mn de  $x_{eff}=0.25$ . On retrouve une déstabilisation du  $X_S^+$  au profit des raies  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$ . Le  $X_S^+$  persiste jusqu'à un champ magnétique de 3 T bien qu'à ce champ la séparation Zeeman de la bande de valence soit de 4.8 meV (pour  $x_{eff} = 0.25$ ). L'évolution est qualitativement similaire à celle observée sur les deux autres types de structures présentées jusqu'ici (M1269 et M1305) mais elle est plus douce, le trion persiste plus longtemps.



FIG. 6.13 – Spectres de PL de l'échantillon M1329 ( $x_{eff}=0.25$ ) pour une tension de grille nulle, à 1.7 K. La densité de trous vaut p=1.7x10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>



FIG. 6.14 – Position des maxima des spectres de PL rapportés fig. 6.13.

Le comportement des spectres de PL pour la même diode et les positions des maxima à 3 T en fonction de la tension sont rapportés figure 6.15. On retrouve trois raies principales  $(D_{inf}, X_S^+ \text{ et } D_{sup})$  pour les tensions positives, et négatives jusqu'aux environs de -0.1 V. A cette tension, on perd le trion singulet : seul la double raie  $(D_{inf}, D_{sup})$  persiste jusque vers -2 V.

On notera aussi qu'une raie supplémentaire apparaît vers -0.3 - 0.4 V à plus haute énergie. Elle gagne en intensité de -0.3 à -2 V puis décroît et disparaît quasiment vers -3.4 V. Cette raie est attribuée à l'exciton, qui est moins sensible au champ électrique que le  $X_S^+$ , et favorisée par le fait que la densité de trous diminue avec l'augmentation du champ électrique (en tension inverse).



FIG. 6.15 – Spectres de PL et positions correspondantes à 1.7 K et un champ magnétique de 3 T pour différentes tensions de grille. Les losanges correspondent à  $D_{inf}$ , les carrés à  $X_S^+$ , les cercles à  $D_{sup}$  et les triangles à l'exciton X.

Cette figure met aussi en avant la diminution de l'écart entre les raies  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$  lorsque l'on diminue la densité de trous dans le puits quantique; c'est-à-dire en augmentant la tension en inverse (négative). En supposant que dans ce cas - c'est à dire à 3 T et pour une autre série de mesure - la variation de la population est identique à celle présentée figure 5.24 du chapitre 4 pour le même échantillon, on peut tracer l'écart entre les deux raies  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$  en fonction de la densité de trous p (figure 6.16). Ce tracé montre clairement que l'écart entre  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$  est d'autant plus grand que la population est importante.

Chapitre 6. Propriétés magnéto-optiques sous forte séparation Zeeman



FIG. 6.16 – Estimation de l'évolution de l'écart entre les raies  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$  à partir de l'échantillon M1329 en fonction de la densité de trous. La densité de trous est supposée être la même que celle déterminée fig. 5.24 pour la même diode mais à 0 T et lors d'une autre série de mesures.

# 6.4 Conclusion

On observe donc le trion positif dans l'état singulet  $X_S^+$  en présence d'un gaz de trous. Celui-ci disparaît dans les deux polarisations pour le même champ magnétique : en polarisation  $\sigma$ - on perd la luminescence du puits quantique alors qu'en polarisation  $\sigma$ + on note l'émergence d'une double raie notée  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$ .

Ce comportement est indépendant du mode de dopage puisque nous avons pu constater le même type d'évolution suivant que le puits quantique est dopé par les accepteurs de surface, par modulation dans une structure pip, ou encore par modulation dans une diode pin - bien que la qualité optique de ce dernier échantillon soit moins bonne.

L'évolution originale des transitions optiques en fonction de la population totale de trous dans le puits et de leur répartition relative entre les deux sous-bandes de spins est analysée au chapitre suivant. L'attention est alors portée sur l'identification des raies, qui s'appuie sur la proposition d'un mécanisme responsable du basculement de la luminescence du  $X_S^+$  vers le doublet ( $D_{inf}$ ,  $D_{sup}$ ).

# Chapitre 7

# Identification et évolution des états sous champ magnétique

Ce chapitre est dédié à l'analyse des transitions optiques observées et présentées dans les chapitres 4, 5 et 6. L'identification des différents états mis en jeu dans les transitions optiques enregistrées en présence d'un gaz de trous ainsi qu'un possible mécanisme de déstabilisation du trion positif sous champ magnétique sont discutés. Cette étude repose sur la confrontation de résultats obtenus sur les échantillons que j'ai caractérisés au laboratoire, à l'exception du M1132. Un récapitulatif plus exhaustif des mesures et travaux réalisés au laboratoire en collaboration avec P. Kossacki et J. Gaj est présenté dans la référence [25]. Tous les échantillons présentent un puits quantique de (Cd,Mn)Te, pour une concentration en Mn inférieure à 1%, avec des barrières en  $Cd_{65}Zn_{0.08}Mg_{0.27}Te$ . Le dopage des puits est généré soit par l'influence des états accepteurs de surface, soit par dopage azote par modulation, formant alors un structure pip ou pin (on se reportera à l'annexe pour une présentation de leur structure).

Le premier point de ce paragraphe rappelle la situation bien établie de l'évolution des spectres de PL en présence d'une très faible densité de trous : on observe alors, sous champ magnétique, un basculement du trion positif vers l'exciton.

Le second point traite de l'évolution du  $X_S^+$  sous faible champ magnétique, en mettant l'accent sur la situation pour laquelle le gaz de trous n'est pas totalement polarisé : la PL conduit le système vers un état excité du gaz de trous.

Suit alors une proposition d'un mécanisme responsable de la disparition, dans les deux polarisations, du  $X_S^+$  au profit de la double raie ( $D_{inf}$ ,  $D_{sup}$ ). De manière analogue à la situation présentée dans le premier point, c'est le croisement avec un état dans lequel tous les trous sont dans la sous-bande majoritaire, qui déstabilise le  $X_S^+$ . On montrera aussi que les deux transitions  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$  ne diffèrent que par leur état final.

Enfin, nous présenterons les énergies caractéristiques du système liées à la photoluminescence : l'énergie de dissociation du  $X_S^+$ , une mesure de l'énergie de Fermi du gaz de trous qui suggère la prise en compte d'interactions entre trous, et l'évolution de l'énergie d'excitation du gaz de trous laissée dans le système après la recombinaison correspondant à la raie notée  $D_{inf}$ .

# 7.1 A faible densité de trous

A faible densité de trous et sans champ magnétique, il est bien établi que c'est le trion positif (dans l'état singulet) qui est observé en PL et en absorption (transmission et PLE). La figure 7.1 illustre la formation du  $X_S^+$  ainsi que l'évolution des énergies des états pris en compte en fonction de l'énergie Zeeman. Le  $X_S^+$  peut être formé dans deux états, susceptibles d'émettre de la lumière polarisée  $\sigma$ + ou  $\sigma$ -. On notera dans la suite  $X_{\sigma+}^+$  le trion positif, dans l'état singulet, formé de deux trous de spins opposés et d'un électron de spin  $-\frac{1}{2}$ , susceptible de se désexciter en polarisation  $\sigma$ +. De même, on notera  $X_{\sigma-}^+$  celui susceptible de se recombiner en polarisation  $\sigma$ - : il est formé de deux trous de spins opposés et d'un électron de spin  $\frac{1}{2}$ .

#### Chapitre 7. Identification et évolution des états sous champ magnétique

Ces deux états sont séparés sous champ magnétique par l'effet Zeeman géant dans la bande de conduction,  $E_z^e$ , puisque l'effet Zeeman dans la bande de valence se compense (gain d'énergie Zeeman pour le trou  $-\frac{3}{2}$  et perte d'autant pour le trou  $\frac{3}{2}$ ). La désexcitation de ces états peut donc bien se faire dans les deux polarisations circulaires, suivant le spin de l'électron mis en jeu. On notera que la recombinaison en polarisation  $\sigma$ - laisse le système dans l'état fondamental alors qu'on retrouve un électron dans la bande minoritaire  $-\frac{3}{2}$  après recombinaison en polarisation  $\sigma$ + : le système est alors dans un état excité.



FIG. 7.1 – (a) :  $X_{\sigma+}^+$  trion positif dans l'état singulet susceptible de se recombiner en polarisation  $\sigma+$  et  $X_{\sigma-}^+$  celui susceptible de désexciter en  $\sigma-$ ; les densités d'états des électrons et des trous mis en jeu dans des transitions en polarisation  $\sigma+$  et  $\sigma-$  sont respectivement notées  $\rho_+$  et  $\rho_-$ . (b) : évolution des états d'énergie du  $X_{\sigma+}^+$ , du  $X_{\sigma-}^+$  et d'un trou de spin  $\frac{3}{2}$  ou  $-\frac{3}{2}$ , en fonction du déplacement Zeeman  $E_z$ .  $E_z^h$  correspond au déplacement Zeeman de la bande de valence et  $E_z^e$  à celui de la bande de conduction. Les grandes flèches représentent le spin des trous, les petites celui des électrons.

L'évolution des spectres de PL enregistrés à partir d'un puits de  $Cd_{0.0063}Mn_{0.0037}$ Te en présence d'une faible densité de trous (estimée à  $2 \times 10^{10}$  cm<sup>-2</sup> [25]) est présentée figure 7.2 dans les deux polarisations circulaires.

A champ nul on observe une raie prédominante qui est attribuée au trion positif. Une autre raie de plus faible intensité est décelable à plus haute énergie : c'est l'exciton neutre. Ces deux raies sont également observées en réflectivité, ce qui permet leur identification. Les intensités relatives des raies varient lorsqu'on applique un champ magnétique. En polarisation  $\sigma$ -, l'exciton neutre a disparu dès 0.25 T alors que le trion persiste jusqu'à 1 T. En polarisation  $\sigma$ +, l'intensité de la raie associée à l'exciton augmente alors que celle liée au trion diminue. Alors que les intensités sont comparables vers 0.6 T le trion a disparu au-delà de 4 T. Nous avons vérifié, à partir de différents échantillons, avec des compositions en Mn variables, que le basculement du trion vers l'exciton est gouverné par la valeur de la séparation Zeeman de la bande de valence.

Ce comportement peut être compris à partir du rôle de l'effet Zeeman géant dans le diagramme d'énergie du système à trois particules, soit sous la forme du trion, soit sous la forme d'un exciton neutre en présence d'un trou dans la sous-bande de spin majoritaire. En ajoutant sur la figure 7.1 l'évolution de l'exciton neutre (en présence d'un trou  $\frac{3}{2}$ ) on obtient la figure 7.3. Alors que l'énergie du trion évolue peu avec l'énergie Zeeman, celle de l'exciton en présence d'un trou  $\frac{3}{2}$  décroît suivant le décalage Zeeman de la bande de conduction et deux fois celui de la bande de valence (il y a deux trous  $\frac{3}{2}$  dans l'état considéré). Lorsque la séparation Zeeman de la bande de valence est égale à l'énergie de liaison du trion, les deux états de trion  $(X_{\sigma+}^+ \text{ et } X_{\sigma-}^+)$  croisent l'état de l'exciton neutre susceptible d'émettre en polarisation  $\sigma+$ . Ainsi, avant le point de croisement on observe préférentiellement le trion alors qu'au-delà, c'est l'exciton qui est favorisé. On notera qu'un croisement d'états induit par l'effet Zeeman géant a déjà été observé et



FIG. 7.2 – Spectres de PL d'un puits quantique de  $Cd_{0.0063}Mn_{0.0037}$ Te en présence d'une densité de trous de  $p = 2 \times 10^{10}$  cm<sup>-2</sup>. Les lignes en pointillés correspondent à la polarisation  $\sigma$ – et les lignes en trait plein à la polarisation  $\sigma$ +.

est responsable de la déstabilisation de l'exciton lié à un accepteur  $(A^0X)$  en faveur de l'exciton neutre dans des couches épaisses de semi-conducteurs magnétiques dilués [56]. On va retrouver un mécanisme de ce type en présence d'une forte densité de trous.



FIG. 7.3 – Croisement des états du trion positif  $(X_{\sigma+}^+ \text{ et } X_{\sigma-}^+)$  avec celui de l'exciton se recombinant en polarisation  $\sigma+$ .  $E_z^h$  correspond au déplacement Zeeman de la bande de valence et  $E_z^e$  à celui de la bande de conduction.

# 7.2 A plus forte densité de trous

# 7.2.1 Référence d'énergie

Les niveaux d'énergie seront dans la suite repérés par rapport à l'état fondamental du gaz de trous, noté  $|fond\rangle$ . L'évolution de cet état en fonction de l'énergie Zeeman est illustrée figure 7.4.



FIG. 7.4 – Evolution de l'état fondamental d'un gaz de trous, noté  $|fond\rangle$ , en fonction de l'énergie Zeeman  $E_z$ . On note toujours  $E_z^h$  le déplacement Zeeman de la bande de valence et  $E_z^e$  celui de la bande de conduction.

# 7.2.2 Pour de faibles séparations Zeeman : le $X_S^+$

# Etats initiaux

Expérimentalement, nous observons en polarisation  $\sigma$ - et pour une gamme de champs magnétiques (en fait de séparation Zeeman de la bande de valence), une raie bien définie en transmission (voir par exemple fig.6.4) et en photoluminescence (voir par exemple fig. 7.5). De plus, on retrouve sous champ magnétique et après soustraction d'un décalage de Stokes, les mêmes positions en énergie pour les transitions enregistrées en transmission et en photoluminescence en polarisation  $\sigma$ - (voir par exemple fig. 6.6). On associe donc par continuité avec les configurations à peu de porteurs présentées au paragraphe précédent, la raie observée en polarisation  $\sigma$ - (en transmission et en PL) à la formation du  $X_{\sigma}^+$ .

On remarque que la formation du  $X_{\sigma+}^+$  est possible par simple retournement du spin de l'électron. Si l'on suppose que les interactions avec le reste du gaz sont faibles (échange...), on doit retrouver une photoluminescence en polarisation  $\sigma+$  dans la continuité de celle en polarisation  $\sigma-$ .

C'est bien ce qu'on peut observer, par exemple figure 6.6: les positions de la raie observée à faible champ magnétique en polarisation  $\sigma$ + se placent sur la même fonction de Brillouin que celle qui permet d'ajuster les positions du  $X_{\sigma-}^+$  en polarisation  $\sigma$ -. On attribue donc la raie de PL à faible champ magnétique (ou plutôt à faible séparation Zeeman) en polarisation  $\sigma$ + au  $X_{\sigma+}^+$ .

Finalement, l'état initial de la photoluminescence à faible séparation Zeeman correspond, même en présence d'une densité de trous de l'ordre de  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup> au  $X_S^+$ : le trion positif dans l'état singulet.

L'écart des positions des raies par rapport à la fonction de Brillouin que l'on peut observer par exemple fig. 6.6 avant la polarisation complète du gaz - un déplacement plus rapide du maximum de PL en polarisation  $\sigma$ -, et moins rapide en polarisation  $\sigma$ +, que celui décrit par la fonction de Brillouin - est discuté au paragraphe suivant : c'est une conséquence de la recombinaison du  $X_S^+$  vers un état excité du système.

La variation des états d'énergie du  $X_{\sigma+}^+$  et du  $X_{\sigma-}^+$  sous champ magnétique est illustrée figure ?? en prenant comme énergie de référence du système celle correspondant au gaz de trous dans l'état fondamental. L'état initial de la PL correspond à une situation pour laquelle une paire électron-trou photocrée lie un trou initialement présent dans le système afin de former le  $X_S^+$ . On passe, lors de la formation du  $X_{\sigma+}^+$  ou du  $X_{\sigma-}^+$ , d'une configuration à N trous vers une situation où deux trous et un électron sont liés dans un environnement de (N-1) trous libres. Puisque nous prenons maintenant l'état fondamental à N trous comme référence, les niveaux d'énergies du  $X_{\sigma+}^+$  et du  $X_{\sigma-}^+$  suivent le décalage Zeeman de la bande de valence (un trou de spin  $-\frac{3}{2}$  de plus dans le système) auquel s'ajoute ou se soustrait le décalage Zeeman de la bande de conduction, suivant l'état de spin de l'électron.



FIG. 7.5 – Evolution des niveaux d'énergie du  $X_{\sigma+}^+$  et  $X_{\sigma-}^+$  en présence d'un gaz de trous en fonction de l'énergie Zeeman  $E_z$ . L'état fondamental du gaz de trous constitué de N trous est noté  $|fond\rangle$  et illustré fig 7.4); l'énergie correspondante est choisie comme référence.  $E_z^h$  représente le déplacement Zeeman de la bande de valence et  $E_z^e$  celui de la bande de conduction.

#### **Etats finaux**

Comme nous avons pu le voir dans le paragraphe précédent, le trion positif peut se recombiner dans les deux polarisations suivant le spin de l'électron mis en jeu. L'émission se fait au voisinage du centre de la première zone de Brillouin, si bien que la recombinaison d'un électron et d'un trou (en respectant les règles de sélection, bien entendu) laisse un électron en haut de la bande de valence. Suivant le taux de polarisation du gaz de trous et la polarisation circulaire du photon émis, le système peut être laissé dans un état excité comme l'illustre la figure 7.6.

Considérons les situations pour lesquelles le gaz de trous est totalement polarisé (cas 3 et 4 sur la fig. 7.6). Nous observons expérimentalement la raie  $X_{\sigma-}^+$  en polarisation  $\sigma-$  (fig. 7.5). Il s'agit d'une recombinaison de l'électron  $\uparrow$  avec le trou  $\Downarrow$ ; le trou  $\Uparrow$  se replace dans le gaz complètement polarisé. L'état final de la PL à partir du  $X_{\sigma-}^+$  est donc, lorsque la séparation Zeeman de la bande de valence est suffisante pour polariser le gaz de trous à 100%, l'état fondamental du système.

En polarisation  $\sigma+$ , c'est le  $X_{\sigma+}^+$  qui est mis en jeu : l'électron de spin  $\downarrow$  peut se recombiner avec le trou  $\uparrow$ . Dans le processus de recombinaison, l'électron va préférentiellement se recombiner avec un trou du haut de la bande de valence. Ainsi, après recombinaison en polarisation  $\sigma+$ , il manque un trou  $\uparrow$  alors qu'un trou  $\Downarrow$  est laissé dans la sous-bande de spin minoritaire; ce qui correspond à une excitation du gaz de trous avec retournement de spin. Expérimentalement, on détecte la raie  $\sigma+$  à proximité de l'énergie attendue pour un trou  $\Downarrow$  à k = 0 et un électron  $\uparrow$  aussi à k = 0 (figure 7.8).

On trace alors la position de l'état final, pour les cas 3 et 4 de la figure 7.6 (i-e lorsque le gaz est complètement polarisé), après recombinaison en polarisation  $\sigma$ - et  $\sigma$ + (figure 7.8a) et l'évolution des

Chapitre 7. Identification et évolution des états sous champ magnétique



FIG. 7.6 – Représentation des états finaux du système après recombinaison du  $X_{\sigma+}^+$  en polarisation  $\sigma+$  et du  $X_{\sigma-}^-$  en  $\sigma-$  en fonction du champ magnétique appliqué H. Les points noirs représentent l'électron qui peut être laissé en haut de la bande de valence, les ronds blancs illustrent le trou mis en jeu dans la formation du trion. Les états finaux correspondant sont notés  $|Fin^+\rangle$  après recombinaison en  $\sigma+$  et  $|Fin^-\rangle$  après recombinaison en  $\sigma-$ .

transitions optiques correspondantes (sachant que l'état initial correspond au trion positif dans l'état singulet).

A très faibles champs magnétiques (à nouveau, c'est l'énergie Zeeman de la bande de valence qui importe), les mécanismes présentés ci-dessus ne permettent pas de rendre compte des observations expérimentales. La figure 7.7a représente les positions du trion singulet obtenues en PL à partir des échantillons M1269, M1305 et M1329. La position des raies (en transmission et en PL) ne peut plus être ajustée par une fonction de Brillouin à très faible champ magnétique : le déplacement de la raie en  $\sigma$ - est plus rapide que celui décrit par la fonction de Brillouin, alors qu'en  $\sigma$ + il est moins rapide. De plus, l'écart à la fonction de Brillouin est bien observable jusqu'à une valeur de champ magnétique identique en PL et en transmission ; ceci est visible pour les échantillons M1305 et M1329).

Il a été montré référence [38], que l'écart à la fonction de Brillouin des positions des raies de transmission est directement lié à la polarisation incomplète du gaz de trous : le point de rebroussement, marqué par un trait vertical discontinu sur la figure 7.7a, correspond à la situation limite de polarisation complète du gaz de trous (c'est le cas 3 sur la figure 7.6).



FIG. 7.7 – Position (a) et Séparation Zeeman (b) du trion singulet sous faible champ magnétique - comparées aux ajustements par une fonction de Brillouin. Les symboles pleins correspondent aux positions enregistrées en PL alors que ceux ouverts sont issus des données de transmission; la polarisation du gaz de trous est définie à partir des positions d'absorption - c'est le minimum d'énergie indiqué par un trait discontinu pour l'échantillon M1305 et M1269.

Nous allons maintenant discuter l'écart à la fonction de Brillouin en PL à partir des états finaux représentés figure 7.6 cas n°2; c'est-à-dire pour une polarisation partielle du gaz de trous. On retrouve après recombinaison en polarisation  $\sigma$ + un électron en haut de la bande de trous majoritaires et un trou  $\Downarrow$  supplémentaire alors qu'après recombinaison en polarisation  $\sigma$ - on retrouve un électron dans la sous-bande de spin minoritaire et un trou  $\Uparrow$  de plus. L'énergie de l'état final après recombinaison en polarisation  $\sigma$ -. On notera que les états finaux, notés  $|\text{Fin}^+\rangle$  après recombinaison en  $\sigma$ + et  $|\text{Fin}^-\rangle$  après recombinaison en  $\sigma$ -, représentent tous les deux un état excité du gaz de trous : l'électron laissé en haut de la bande de valence doit relaxer vers le niveau de Fermi (vers le trou supplémentaire laissé dans l'autre sous-bande de spin) pour atteindre l'état fondamental.

Cette description nous conduit naturellement à la situation pour laquelle aucun champ magnétique n'est appliqué (cas n°1 de la figure 7.6). L'électron qui est laissé en haut de la bande de valence doit perdre une énergie égale à l'énergie de Fermi  $E_{\rm F}$  du gaz de trous (en négligeant les interactions entre trous) pour atteindre l'état fondamental.

Les positions des états initiaux (le trion positif dans l'état singulet) et finaux sont illustrées figure 7.8a. Ainsi, à 0 T, l'énergie d'excitation du gaz (par la présence de l'électron en haut de la bande de valence) vaut  $E_F$ . En appliquant un champ magnétique, on a vu qu'à la polarisation complète du gaz de trous (cas 3) et pour des champs supérieurs (cas 4), l'état final après recombinaison  $\sigma$ - est l'état fondamental alors que c'est un état excité après recombinaison en  $\sigma$ +. L'énergie de ce dernier évolue en fonction du champ magnétique comme la séparation Zeeman de la bande de valence - l'énergie nécessaire pour retourner le spin d'un trou. A la limite de polarisation on retrouve une différence d'énergie entre les états finaux  $|Fin^-\rangle$  et  $|Fin^-\rangle$  de  $2E_F$  - l'énergie maximale que peut perdre l'électron laissé en haut de la bande de valence.

#### Chapitre 7. Identification et évolution des états sous champ magnétique

Les énergies des transitions optiques, qui découle de la recombinaison du X<sup>+</sup> vers les états finaux décrits précédemment, sont illustrées figure 7.8b. On retrouve, comme ce qui est observé expérimentalement (fig. 7.7), l'effet Zeeman géant au-delà de la polarisation totale du gaz de trous. De plus, on remarque une nette dissymétrie de l'évolution de l'énergie de PL lorsque le gaz de trous n'est pas complètement polarisé : la raie du X<sup>+</sup><sub>S</sub> se déplace suivant le décalage Zeeman de la bande de conduction en polarisation  $\sigma$ + alors qu'elle se déplace suivant le décalage de la bande de conduction plus celui de la bande de valence en polarisation  $\sigma$ -.

Les pentes indiquées figure 7.8b ne correspondent pas tout à fait avec celles observées expérimentalement (fig. 7.7a). Ceci est d'autant plus visible sur la figure 7.7b, qui représente la séparation Zeeman en fonction du champ magnétique : la fonction de Brillouin déterminée précédemment pour chaque échantillon semble sous-estimer la séparation Zeeman mesurée avant polarisation du gaz.



FIG. 7.8 – (a) : Variation de l'énergie des états initiaux, à savoir le trion positif dans chacune des polarisations  $(X_{\sigma+}^+ \text{ et } X_{\sigma-}^+)$  et des états finaux,  $|\text{Fin}^+\rangle$  et  $|\text{Fin}^-\rangle$ , décrits figure 7.6, en fonction de l'énergie Zeeman  $E_z$ . C'est  $E_0$ , l'énergie du gaz de trous, qui a été choisie comme énergie de référence. (b) : Evolution de l'énergie des transitions optiques du  $X_{\sigma+}^+$  en pointillés et du  $X_{\sigma-}^+$  en trait plein. Les repères 1, 2, 3 et 4 sur la figure b font référence aux situations présentées figure 7.6.

# 7.2.3 A plus fortes séparations Zeeman : émergence de $D_{inf}$ et $D_{sup}$

#### Etats initiaux

Lorsque la séparation Zeeman est suffisante, on voit apparaître une double raie que nous avons notée  $(D_{sup}, D_{inf})$  dans les spectres présentés chapitre 3, 4 et 5 (voir par exemple figure 7.5).

Une étude par photoluminescence résolue en temps, menée par piotr Kossacki [25], montre que les deux transitions  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$  émanent du même état initial, et qui est différent - on s'y attendait - du  $X_S^+$ . En se plaçant au champ magnétique de basculement du  $X_S^+$  vers la double raie, les temps de montée de  $D_{inf}$  et de  $D_{sup}$  sont tous les deux égaux et valent 80 ps. En revanche, le temps de montée du  $X_S^+$  set

7.2. A plus forte densité de trous



FIG. 7.9 – Etats initiaux mis en jeu en PL sous champ magnétique. Le trion  $X_S^+$  est un état qui évolue de façon opposée au  $X_S^+$  sous champ magnétique : le trou photo-créé a le même spin que ceux du gaz préexistant. Le croisement des niveaux s'effectue pour une séparation Zeeman de la bande de valence  $\Delta_h^{bascul}$ . On notera que le croisement apparaît dans notre cas systématiquement après la polarisation complète du gaz de trous. Les recombinaisons possibles sont représentées par les flèches dans les deux polarisations :  $\sigma$ - en trait continu et  $\sigma$ + en pointillés.

de 140 ps. Le temps de déclin est quant à lui identique pour les trois transitions. Les transitions  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$  ne diffèrent donc que par leur état final; ceci est présenté dans la suite.

Comme pour la situation à faible densité de trous (7.1), on peut avoir un état où les spins des trous sont orientés parallèlement, et non avec deux trous en singulet comme pour le  $X_S^+$ . La figure 7.9 illustre l'évolution des états pris en compte : le  $X_S^+$  qui peut se recombiner dans les deux polarisations circulaires et un état dans lequel le trou photo-créé a un spin  $\uparrow$ , le même que les trous du gaz préexistant dans l'état fondamental, et l'électron photo-créé un spin  $\downarrow$ . On notera que ce dernier état est uniquement actif optiquement en polarisation  $\sigma+$ . Son évolution sous champ magnétique est donnée par le déplacement de la bande de valence plus celui de la bande de conduction.

Compte tenu de l'évolution opposée de l'énergie des états considérés, à savoir une augmentation suivant l'énergie Zeeman de la bande de valence (plus ou moins celle de la bande de conduction suivant le spin de l'électron) pour le trion et une diminution comme le déplacement de la bande de valence plus celui de la bande de conduction, pour l'état à (N+1)trous  $\uparrow$  et un électron  $\downarrow$ , il existe une énergie Zeeman pour laquelle les états se croisent. On note  $\Delta_h^{bascul}$  l'énergie Zeeman de la bande de valence au point de croisement. Ainsi, pour les faibles champs magnétiques - c'est à dire pour ceux engendrant une séparation Zeeman de la bande de valence inférieure à  $\Delta_h^{bascul}$  - la luminescence s'opère à partir du  $X_S^+$ . En revanche, pour des champs magnétiques plus élevés, i-e au-delà de  $\Delta_h^{bascul}$ , c'est l'état avec tous les trous de spin  $\uparrow$  qui est responsable de la luminescence observée.

La disparition du  $X_S^+$  et l'émergence des raies  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$  s'explique donc par le croisement des niveaux du trion dans l'état singulet avec un état pour lequel les trous ont le même spin.

#### Etats finaux

En se plaçant au champ de basculement, on note que sur tous les échantillons, les énergies de transition du  $X_S^+$  en polarisation  $\sigma$ - et de  $D_{sup}$  sont à peu près égales : une différence de l'ordre de 1 meV est en partie due à la séparation Zeeman de la bande de conduction (de l'ordre de 0.5 meV au champ de

#### Chapitre 7. Identification et évolution des états sous champ magnétique

basculement), le reste est probablement lié aux différences de forme de raie qui engendrent une imprécision de pointé. Ainsi, l'état final de la transition  $D_{sup}$  est l'état fondamental du système, au même titre que le  $X_S^+$  en polarisation  $\sigma$ - puisqu'au champ de basculement les énergies des états initiaux coïncident.

Dans une image bande à bande illustrée figure 7.10, le vecteur d'onde des photons est négligeable par rapport au vecteur d'onde de Fermi, si bien que la transition  $D_{sup}$  doit être indirecte : l'électron doit se recombiner avec un trou au niveau de Fermi.



FIG. 7.10 – Recombinaison indirecte d'un électron en bas de bande de conduction avec un trou du niveau de Fermi : une recombinaison qui ne peut être qu'indirecte car le vecteur d'onde du photon est négligeable par rapport au vecteur d'onde de Fermi.

On remarque sur la figure 7.11 que la raie notée  $D_{sup}^{LO}$  au chapitre 5 est séparée de la raie  $D_{sup}$  par une énergie de 22 meV; rien de tel n'est observable pour la raie notée  $D_{inf}$ . Cette énergie correspond à l'énergie d'un phonon LO dans le CdTe massif. En supposant que l'énergie d'un phonon LO dans le puits quantique est la même que celle dans le CdTe massif, on peut associer la raie  $D_{sup}^{LO}$  à une réplique phonon de la raie  $D_{sup}$ . Ceci conforte l'hypothèse selon laquelle  $D_{sup}$  est une transition indirecte. On notera que la figure ne présente que la situation pour les trois échantillons présentés dans les chapitres 4, 5 et 6, mais qu'il en est de même pour tous les échantillons similaires (à savoir un puits quantique de (Cd,Mn)Te dopé p).



FIG. 7.11 – Raies de PL pour un champ magnétique supérieure au champ de basculement : les raies sont décalées de sorte à faire coïncider la raie de plus basse énergie (raie  $D_{sup}^{LO}$ ).

# 7.3 Energies caractéristiques

#### 7.3.1 Energies liées au gaz de trous

#### polarisation du gaz

Le champ magnétique nécessaire à la polarisation totale du gaz de trous peut être défini à partir du point de rebroussement des positions des raies d'absorption enregistrées en polarisation  $\sigma$ - [38]. De plus, nous avons vu au 7.2.2 que le champ nécessaire à la polarisation complète du gaz coïncide avec celui pour lequel la position des raies de PL du  $X_S^+$  rejoignent la fonction de Brillouin.

Un récapitulatif de la séparation Zeeman de la bande de valence à la limite de polarisation totale du gaz de trous, à partir de différents échantillons [25] présentant tous un puits quantique de (Cd,Mn)Te dopé de type p avec moins de 1% de Mn, est présenté figure 7.12 pour différentes densités de trous. On peut voir que cette séparation est inférieure à l'énergie de Fermi à une particule,  $E_{\rm F}$  polarisé (pour le gaz totalement polarisé), déterminée à partir des masses effectives des trous présentées au chapitre 1 : la droite inférieure correspond à une masse des trous de  $0.25m_0$  alors que la droite supérieure correspond à une masse des trous de  $0.25m_0$  alors que la droite supérieure correspond à une masse de fermi du gaz mesurée via la séparation Zeeman de la bande de valence à la polarisation du gaz est plus de deux fois plus petite que l'énergie de Fermi à une particule. Il s'agit d'une augmentation du facteur g gaz de trous qui est un résultat des interactions à N-particules et qui est généralement calculé pour un gaz d'électrons [57, 58]. Nos échantillons permettent donc de mettre en avant les interactions entre trous d'un gaz 2D.



FIG. 7.12 – Les triangles représentent la séparation Zeeman de la bande de valence à la limite de la polarisation complète du gaz de trous. L'énergie de Fermi à une particule du gaz polarisé,  $E_{\rm F}$  polarisé, correspondant à la population, est illustrée par la zone hachurée délimitée par deux droites définies en prenant  $0.17m_0$  ou  $0.25m_0$  comme masse effective du trou lourd [25].

Chapitre 7. Identification et évolution des états sous champ magnétique

#### Etat final excité : $D_{sup}$ - $D_{inf}$

Nous avons vu que la transition  $D_{sup}$  laisse le système dans l'état fondamental et que la transition  $D_{inf}$  se fait vers un état excité du système. Dans une image bande à bande, un électron du bas de la bande de conduction (à k = 0) peut se recombiner avec tous les trous compris entre k = 0 et  $k_F$ , en particulier si les règles de conservation du vecteur d'onde sont relâchées par la présence de désordre. L'intensité est renforcée en k = 0 car c'est une transition permise alors qu'en  $k_F$  elle est exaltée par la singularité de bord de Fermi. Dans ce cas, l'écart entre les raies correspond au niveau de Fermi du gaz. On notera que dans notre cas le gaz est polarisé, si bien que l'énergie de Fermi à prendre en compte correspond à 2 fois celle du gaz non polarisé.

La figure 7.13 représente l'évolution de l'écart entre les raies  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$ , ce qui est une mesure de l'énergie d'excitation du gaz de trous, en fonction de la population. Pour les plus fortes densités de trous (au-delà de  $2x10^{11}$  cm<sup>-2</sup>), l'écart entre les deux composantes correspond bien à l'énergie de Fermi du gaz polarisé; on est donc bien dans une configuration bande à bande. Pour de plus faibles densités de trous, l'écart entre les deux composantes est plus grand que l'énergie de Fermi du gaz polarisé. L'écart tend vers 3 meV pour les plus faibles densités de trous, il ne change pas entre  $4x10^{10}$  et  $8x10^{10}$ . La raie  $D_{sup}$  change de nature en fonction de la densité de trous (comme nous avons déjà pu le voir); il s'agit de l'exciton neutre en présence d'une faible densité de trous, et d'une transition de type bande à bande en présence d'une forte population de trous. Il n'est cependant pas possible, à ce stade, d'exclure d'autres excitations du gaz de trous : on peut penser à des combinaisons d'excitations à une particule, d'excitations à plusieurs particules ou encore des excitations collectives de type plasmon.



FIG. 7.13 – Les symboles représentent l'écart entre les raies  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$  en fonction de la population; les droites correspondent à l'énergie de Fermi (pour le gaz polarisé,  $E_{\rm F}$ ) à une particule, déterminée pour une masse effective des trous de  $0.17m_0$  ou  $0.25m_0$ .

# 7.3.2 Energie liée à l'exciton chargé

#### Energie de dissociation

Dans le mécanisme proposé ici, l'énergie Zeeman de la bande de valence au champ de déstabilisation du  $X_S^+$  est une mesure de l'énergie de dissociation de ce dernier : l'énergie Zeeman de la bande de valence au basculement est égale à l'écart entre le  $X_S^+$  et l'état avec tous les trous dans la sous-bande de spin majoritaire à champ magnétique nul. Si dans la situation avec très peu de porteurs c'est clairement l'énergie de liaison du trion qu'on mesure (c'est-à-dire l'énergie que l'on gagne à lier un trou à l'exciton), la situation est plus délicate en présence de trous. L'état avec tous les trous  $\frac{3}{2}$  évolue de l'exciton vers une situation bande à bande lorsque la densité de trous augmente. Ce faisant, la nature même de l'écart entre les deux états change avec la densité de trous.

La figure 7.14 illustre, à partir de l'échantillon M1305, la variation de l'intensité de la raie  $X_S^+$  par rapport à celle de l'ensemble formé par les raies  $D_{sup}$  et  $D_{inf}$ . Les intensités sont normalisées par rapport à l'intensité totale de luminescence enregistrée dans les deux polarisations. On observe bien la décroissance simultanée de la raie du  $X_S^+$  dans les deux polarisations et l'émergence de l'ensemble ( $D_{sup}$ ,  $D_{inf}$ ). Cette analyse permet de définir le champ magnétique de basculement - le champ pour lequel l'intensité de la raie du  $X_S^+$  est divisée par 2; ce qui est le cas ici pour un champ de 0.45 T.



FIG. 7.14 – Intensités normalisées des raies de PL enregistrées à partir de l'échantillon M1305 (sans photoneutralisation) : la normalisation est faite par rapport à la somme des intensités observées dans les deux polarisations.

La figure 7.15 représente la séparation Zeeman de la bande de valence et l'écart d'énergie entre les raies  $D_{sup}$  et  $X_S^+$  en fonction de la population, mesurées pour le champ de basculement. Deux résultats sont à souligner. Tout d'abord, il y a un accord quasi-parfait entre l'écart en énergie des deux raies considérées et l'énergie Zeeman, qui conforte le mécanisme de déstabilisation par croisement des niveaux explicité précédemment. Ensuite, l'évolution de l'écart entre les raies  $D_{sup}$  et  $X_S^+$  évolue peu : l'écart entre les raies varie entre 2 et 3 meV, contrairement à la situation présentée par Kossacki et Huard [37, 38] par mesures en transmission. Ceci peut s'expliquer suivant les travaux de Suris [59] et Esser [60], qui ont montré théoriquement que l'augmentation de l'énergie de dissociation mesurée en transmission est le fait de diffusion exciton-porteurs. On n'observe donc pas l'exciton en absorption mais un état de plus haute énergie issu de la diffusion exciton-porteurs.

Chapitre 7. Identification et évolution des états sous champ magnétique



FIG. 7.15 – Variation de l'écart en énergie entre la raie  $D_{sup}$  et  $X_S^+$ , et séparation de la bande de valence pour le champ de basculement  $X_S^+$ - $(D_{sup}, D_{inf})$ .

# 7.4 conclusion

La figure 7.16 résume la position des états identifiés dans ce chapitre.

Nous avons, par comparaison avec une situation bien connue d'un basculement trion-exciton en présence d'une faible densité de trous, pu établir un mécanisme responsable de la déstabilisation du  $X_S^+$  au profit du doublet ( $D_{inf}$ ,  $D_{sup}$ ). Ceci est lié au croisement entre les états du  $X_S^+$  avec un état pour lequel les trous sont tous dans la même sous-bande de spin. Les deux transitions,  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$ , s'opèrent à partir du même état initial : elle ne diffèrent que par leur état final.

L'étude menée ici nous a permis de mettre en avant trois énergies caractéristiques du système. Tout d'abord, la mesure de la séparation de la bande de valence à la polarisation complète du gaz,  $\Delta E_z^{polar}$ , permet de mesurer l'énergie de Fermi du gaz de trous. Une comparaison avec l'énergie de Fermi à une particule permet de mettre en avant un effet des interactions entre les trous du gaz. Ceci est une originalité permise par l'effet Zeeman géant de nos échantillons dopés p en conservant une bonne qualité optique.

Une autre énergie importante est la séparation Zeeman de la bande de valence au champ de basculement, notée  $\Delta_h^{bascul}$ . Aucune variation significative de  $\Delta_h^{bascul}$  n'est observée lorsque la population varie de  $0.8 \times 10^{11}$  à  $4 \times 10^{11}$  cm<sup>-2</sup>.

Enfin, une des transitons du doublet qui apparaît au-delà de  $\Delta_h^{bascul}$ , à savoir la raie  $D_{inf}$ , laisse le gaz de trous dans un état excité alors que la raie  $D_{sup}$  conduit le système vers son état fondamental : la mesure de l'écart énergétique entre les deux composantes permet donc de déterminer l'énergie d'excitation du gaz. Une nette augmentation de cette énergie avec la population est observée. Si la situation à "forte" densité de trous (quelques  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup>) est bien de type bande à bande, elle évolue vers une situation pour laquelle la raie  $D_{sup}$  correspond à l'exciton neutre. Ainsi, l'écart entre  $D_{inf}$  et  $D_{sup}$  change de nature en changeant la densité de trous : il représente l'énergie de Fermi pour les fortes densités alors qu'à faible population de trous il représente l'énergie de liaison du trion positif (mesurée par rapport à l'exciton). L'identification du type d'excitations mises en jeu à forte densité ne peut pas être faite à ce stade de l'étude : s'agit-il de processus à une particule, multi-particules, ou collectif de type plasmon?

7.4. conclusion



FIG. 7.16 – Récapitulatif de la position des états en fonction de l'énergie Zeeman :  $\Delta E_z^{polar}$  correspond à l'énergie Zeeman de la bande de valence à la limite de polarisation totale du gaz de trous,  $\Delta_h^{bascul}$  est l'énergie Zeeman de la bande de valence au basculement  $X_S^+$  -  $(D_{inf}, D_{sup})$ .

Chapitre 7. Identification et évolution des états sous champ magnétique

Troisième partie

Contrôle de l'aimantation d'un puits quantique de (Cd,Mn)Te par une grille électrostatique. La mise en évidence des propriétés ferromagnétiques de semi-conducteurs III-V dopés avec des ions Mn a été rapportée par H. Ohno *et al.* [6] en 1992. Suit alors la prédiction proposée par T.Dietl *et al.* [61] d'une possible transition ferromagnétique dans des semi-conducteurs II-VI, avec quelques pour cents d'ions Mn et dopés de type p (par exemple par l'incorporation d'azote). La première observation de cette transition dans les semi-conducteurs II-VI a été faite par A. Haury *et al.* en 1997 [62] : la transition de phase dans un puits quantique de  $Cd_{0.976}Mn_{0.024}Te/Cd_{0.66}Mg_{0.27}Zn_{0.07}$  Te : N, qui apparaît à 1.8 K, a pu être mise en évidence par spectroscopie magnéto-optique. Un des intérêts majeurs des semi-conducteurs magnétiques dilués, en vue d'une future utilisation en électronique de spin, réside dans le fait que l'ordre magnétique entre les ions magnétiques (Mn) est transmis par les porteurs libres dans le matériau - il doit donc être possible de piloter la mise en ordre magnétique via les porteurs. Koshihara *et al.* ont démontré en 1997 [63] l'apparition de la phase ordonnée par photo-création de porteurs, dans une hétérostructure (In,Mn)As/GaSb dopée p, en-dessous de 35 K. Dans les puits de (Cd,Mn)Te, on pouvait faire disparaître la transition ferromagnétique par illumination [62]. Se rapprochant encore des méthodes employées en micro-électronique H. Ohno *et al.* [7] ont démontré en 2000 la possibilité de piloter l'aimantation d'une couche (In,Mn)As, par application d'une tension électrique.

Cette partie présente les résultats de spectroscopie obtenus sur une structure FET (transistor à effet de champ) à base de tellurures. L'organisation de cette partie est la suivante :

Le premier chapitre décrit les interactions de type RKKY, responsables du couplage entre les ions Mn. Celles-ci conduisent à une température critique de transition de phase magnétique, qui est de l'ordre de 3 K dans un puits quantique de  $Cd_{0.95}Mn_{0.05}$ Te. Suit alors une description de la mise en évidence expérimentale de cette transition - l'analyse des données spectroscopiques fait appel à la prise en compte de domaines magnétiques. Une détermination du champ d'échange vu par un spin peut aussi être déduit des mesures spectroscopiques, suivant une procédure qui est explicitée en fin de ce chapitre.

Le second chapitre présente les résultats de spectroscopie obtenus à partir d'un puits quantique de CdMnTe inséré dans une diode pin à base de tellurures - Le point marquant est la démonstration du contrôle électrique de la transition ferromagnétique par l'application d'une tension électrique de l'ordre de 1 volt.

# Chapitre 8 Transition Ferromagnétique

Ce chapitre présente les interactions de type RKKY, responsables du couplage entres les ions Mn, dans un système 3D et 2D. Ce type d'interaction a été mis en évidence par Ohno *et al.* dans l'(In,Mn)As [6] et par A. Haury dans un puits quantique de (Cd,Mn)Te [62]. La modélisation de ce type d'interaction dans les semi-conducteurs magnétiques a été présentée par Dietl *et al.* [61]. La détermination de l'aimantation des ions Mn, couplés par ces interactions dans un puits quantique, est décrite ici en supposant que la polarisation des trous et que l'aimantation des Mn sont uniforme. La méthode de mesure de la transition ferromagnétique par spectroscopie optique est ensuite présentée avant d'illustrer l'effet de la présence de domaines magnétiques sur les spectres de PL. Ce chapitre ce termine par une présentation de la détermination du champ d'échange.

# 8.1 Interaction RKKY (Ruderman, Kittel, Kasuya, Yosida)

Ce sont les interactions de type RKKY qui gouvernent la mise en ordre magnétique dans les semiconducteurs magnétiques dilués en présence de trous. RKKY fait référence aux noms des chercheurs qui ont conduit à la compréhension de ces interactions. Ruderman et Kittel [64] se sont attaché, en 1954, à décrire l'influence du spin des électrons sur les spins nucléaires dans les métaux. Kasuya [65], en 1956, a utilisé cette description pour interpréter le ferromagnétisme des métaux de terres rares. Enfin, Yosida [66], en 1957, a utilisé la même approche pour interpréter la polarisation des électrons au voisinage d'ions localisés dans les alliages CuMn.

#### 8.1.1 Interaction d'échange : 3D

On considère un gaz de porteurs de spin  $\vec{s}$  sans interaction, dans l'approximation parabolique. La réponse magnétique, l'aimantation  $\vec{M}$ , de ce gaz à l'application d'un champ magnétique  $\vec{H}$ , s'écrit dans l'approximation d'une réponse linéaire  $\vec{M} = \chi \vec{H}$ ; ce qui définit la susceptibilité  $\chi$  du gaz. De manière plus générale, on définit  $\chi(\vec{q})$  pour la réponse à un champ modulé dans l'espace, de vecteur d'onde  $\vec{q}$ . A température nulle, la susceptibilité s'écrit pour un système 3D [67] :

$$\chi(\overrightarrow{q}) = \chi^0 f(\frac{\|\overrightarrow{q}\|}{2k_f}); \quad avec \quad f(x) = \frac{1}{2} + \frac{1-x^2}{4x} \ln|\frac{1+x}{1-x}|$$

avec  $\chi^0 = \rho(E_F)(g_h\mu_B)^2$  la susceptibilité de Pauli à vecteur d'onde nul, et  $\rho(E_F)$  la densité d'états du gaz au niveau de Fermi.

En présence d'un ion magnétique de spin  $\overrightarrow{S}$  le gaz est perturbé suivant l'Hamiltonien ("Kondo") d'échange [68] :

$$H = -\beta \, \overrightarrow{S} \, . \, \overrightarrow{s} \, \delta(\overrightarrow{r}) \tag{8.1}$$

avec  $\beta$  l'intégrale d'échange entre le porteur de spin  $\vec{s}$  en  $\vec{r}$  et l'ion magnétique situé à l'origine. Cette interaction locale conduit à la polarisation du gaz de trous (c'est à dire une différence entre le nombre

#### Chapitre 8. Transition Ferromagnétique

de porteurs de spin up et down). Ainsi, un autre ion magnétique, de spin  $\vec{S'}$ , situé à une distance  $\vec{R}$  du premier va ressentir l'effet de polarisation du gaz par le premier ion magnétique. Les deux ions magnétiques séparés de  $\vec{R}$  sont donc couplés, par le gaz de trous, suivant l'Hamiltonien RKKY :

$$H^{2Mn}_{RKKY} = -J(\vec{R})\vec{S}.\vec{S'}$$

avec  $J(\vec{R})$  l'intégrale d'échange entre les deux ions :

$$J(\vec{R}) = \frac{\rho(E_F)k_F^3}{2\pi} F_{3D}(2k_f \|\vec{R}\|) \quad ; \quad F_{3D}(x) = \frac{\sin(x) - x \cdot \cos(x)}{x^4}$$

Finalement, la somme des interactions d'échange RKKY entre toutes les paires de spin  $S_i$ ,  $S_j$  localisés sur les sites cristallins (indexés i et j) conduit à l'Hamiltonien d'échange  $H_{RKKY}$ :

$$H_{RKKY} = -\sum_{i \neq j} J_{ij} \overrightarrow{S_i} . \overrightarrow{S_j}$$

en notant

$$J_{ij} = J_{RK} F_{3D}(2k_f \| \overrightarrow{R_i} - \overrightarrow{R_j} \|) \quad ; \quad J_{RK} = \frac{3\pi}{8} p \beta^2 \rho(E_F)$$



FIG. 8.1 – Comportement de  $F_{3D}$  en fonction de la distance r qui sépare deux ions magnétiques.

L'intégrale d'échange est donc proportionnelle à la densité de trous, au carré de l'intégrale d'échange  $\beta$  et à la densité d'état du gaz au niveau de Fermi. On notera qu'il s'agit d'interactions à longue portée qui oscillent avec une période caractéristique  $\frac{2}{k_f}$ , qui dépend directement du dopage de la structure (figure 8.1). Le calcul de  $H_{RKKY}$  passe en principe par l'évaluation de la somme des interactions RKKY entre toutes les paires d'ions magnétiques. Nous verrons, dans le cas particulier d'un système 2D, qu'il est possible d'évaluer  $H_{RKKY}$  par l'intégrale sur une distribution continue de spins.

#### 8.1.2 Intégrale d'échange : 2D

Il s'agit ici de décrire l'échange entre un gaz de porteurs 2D et des spins localisés. On considère une distribution aléatoire d'ions magnétiques (Mn) sur les sites cationiques d'un puits de CdTe (épaisseur de

#### 8.1. Interaction RKKY (Ruderman, Kittel, Kasuya, Yosida)

8 nm). Compte tenu de la courte portée des corrélations magnétiques [69] entre spins localisés, on suppose que les états du Mn sont identiques, dans le puits, à ceux d'une couche épaisse. On ne va par la suite s'intéresser qu'au premier niveau de trous lourds (HH1). Ils sont supposés être non couplés aux trous légers (séparés des trous lourds d'environ 40 meV) si bien que leur spin  $s=\pm\frac{1}{2}$  ne peut-être dirigé que suivant l'axe de croissance (0z). Le couplage RKKY entre ces trous et les spins de Mn va donc présenter une anisotropie perpendiculaire au plan des couches. La fonction enveloppe des trous HH1 est notée  $\varphi$ . Un spin de Mn sur le site i est repéré par  $z_i$  et  $\vec{r_i}$ , qui représentent respectivement sa position suivant l'axe de croissance, et celle dans le plan du puits quantique. En notant  $J_n$  et  $Y_n$  les fonctions de Bessel de première et deuxième espèce, l'Hamiltonien d'échange entre deux spins de Mn,  $S_i$  et  $S_j$ , s'écrit [61] :

$$H_{RKKY} = -\sum_{i \neq i} J_{ij} S_{iz} . S_{jz}$$

avec

$$J_{ij} = \rho_{2D} p \beta^2 F_{2D}(2k_f \| \overrightarrow{r_i} - \overrightarrow{r_j} \|) |\varphi(z_i)|^2 |\varphi(z_j)|^2$$

 $\operatorname{et}$ 

$$F_{2D}(x) = \frac{\pi}{4} \left( J_0(\frac{x}{2}) Y_0(\frac{x}{2}) + J_1(\frac{x}{2}) Y_1(\frac{x}{2}) \right)$$

Le comportement de  $F_{2D}$  en fonction de la distance  $r_{ij}$  qui sépare les deux ions magnétiques que l'on



FIG. 8.2 – Comportement de  $F_{2D}$  en fonction de la distance r qui sépare deux ions magnétiques.

considère, est représenté figure 8.2 pour une densité de trous de  $2x10^{11}$  cm<sup>-2</sup>. Le signe de  $F_{2D}$  donne le type de couplage entre les spins de Mn; à savoir ferromagnétique si  $F_{2D} > 0$ , et antiferromagnétique si  $F_{2D} < 0$ . Les oscillations sont d'autant plus rapides que la densité de porteurs libres est grande.

La période des oscillations  $(2k_f^{-1} \simeq 130 \text{\AA})$  est grande par rapport à la maille cristalline (a=6.4 Å) ce qui permet d'assimiler la distribution discrète de spins sur les sites cristallins à une distribution continue de densité de spins  $x_{eff}$ .

# 8.1.3 Aimantation dans l'approximation de champs d'échanges uniformes

#### A 3 dimensions

Le traitement en champ moyen du système couplé (spins de Mn, spins des trous) décrit par l'Hamiltonien Kondo (8.1) est ici effectué en supposant que l'aimantation des Mn et la polarisation des trous sont uniformes. L'Hamiltonien "Kondo" est, ici aussi, traité dans l'approximation de champ moyen et du cristal virtuel (comme au 2.3.2). Ainsi, en présence d'un champ magnétique externe  $\vec{H}$ , la polarisation des trous  $\vec{P}_h$  s'écrit, avec  $\chi_h^0$  la susceptibilité de Pauli des trous :

$$\overrightarrow{P_h} = \chi_h^0 (H + \frac{\beta}{g_h g_{Mn} \mu_B^2 \mu_0} \overrightarrow{M_{Mn}})$$
(8.2)

Le premier terme de l'équation 8.2 décrit l'effet Zeeman direct alors que le second est une conséquence du couplage RKKY.

Il est alors possible d'écrire l'aimantation  $\overrightarrow{M_{Mn}}$  du système de spins de Mn sous champ magnétique et en interaction avec un gaz de trous de manière tout à fait similaire, avec  $\chi_{Mn}$  la susceptibilité des Mn :

$$\overrightarrow{M_{Mn}} = \chi_{Mn} (\overrightarrow{H} + \frac{\beta}{g_h g_{Mn} \mu_B^2 \mu_0} \overrightarrow{P_h})$$
(8.3)

où

$$\chi_{Mn} = \frac{C_0 x_{eff}}{T + T_{AF}} \quad ; \quad C_0 = \frac{N_0 S(S+1)(2\mu_B)^2}{3k_B}$$

La résolution du système d'équations 8.2 et 8.3 couplées conduit, en négligeant l'effet direct du champ magnétique sur l'aimantation des trous, à :

$$\overrightarrow{M_{Mn}} = \frac{C_0 x_{eff}}{T + T_{AF} - T_F} \overrightarrow{H}$$
(8.4)

où

$$T_F = C_0 x_{eff} \beta^2 \frac{\chi_h^0}{(g_h \mu_B)^2 (g_{Mn} \mu_0 \mu_B)^2}$$
(8.5)

#### A 2 dimensions

La situation à 2 dimensions conduit au même type d'expression pour l'aimantation que celle présentée pour un système 3D (équations (8.4) et 8.5). La différence majeure réside néanmoins dans le fait que le spin des trous lourds est bloqué suivant la direction de croissance, si bien que l'expression de l'aimantation n'est valable que dans cette direction. Il faut aussi introduire une épaisseur effective du puits quantique,  $L_{eff}$ , qui vaut 6 nm pour nos puits quantique de (Cd,Mn)Te de 8 nm de large. Ainsi, à deux dimensions, l'aimantation M suivant l'axe de croissance pour un champ magnétique H appliqué perpendiculairement aux interfaces s'écrit :

$$M_{Mn} = \frac{C_0 x_{eff}}{T + T_{AF} - T_F} H \tag{8.6}$$

où :

$$T_F = \frac{1}{g_{Mn}^2} C_0 \rho_{2D} x_{eff} \beta^2 \frac{1}{L_{eff}} \quad ; \quad \frac{\rho_{2D}}{L_{eff}} = \frac{\chi_h^0}{(g_h \mu_B)^2}$$

#### Validité

Nous n'avons considéré qu'une seule bande de spins : ceci est bien adaptée à la situation de nos puits quantiques de (Cd,Mn)Te "légèrement contraint", pour lesquels les trous lourds et légers sont très largement séparés. Ceci n'est plus le cas si l'on considère une couche épaisse de (Cd,Mn)Te, (Zn,Mn)Te ou des matériaux tels que (Ga,Mn)As pour lesquels le mélange entre trous lourds et légers est incontournable. Le traitement des interactions RKKY est alors beaucoup plus complexe.

#### 8.2. Mise en évidence de la transition ferromagnétique par spectroscopie optique

L'approche présentée ici suppose que l'on soit en présence d'un gaz de porteurs délocalisés ou faiblement localisés. De plus, les interactions entre trous ont jusqu'alors été négligées. Elle sont d'autant plus importantes que l'on se rapproche de la limite de forte localisation, qui correspond à la situation pour laquelle le libre parcours moyen élastique des porteurs (de l'ordre de 10 nm) est comparable à la longueur d'onde de Fermi. Un traitement des effets de localisation et d'interactions entre trous a été proposé par Dietl et Alts [ref]. Leur approche conduit à une modification de la température d'ordre  $T_F$  par un coefficient multiplicatif  $A_F$ . Ce paramètre est en général introduit, dans la théorie du liquide de Fermi, pour le traitement des interactions entre électrons. Pour les densités de porteurs qui nous concernent  $A_F$  est proche de 2.

#### Expression finale de $T_F$

L'expression finale de la température d'ordre  $T_F$  à 2 dimensions s'écrit, en prenant en compte le paramètre  $A_F$ :

$$T_F = A_F C_0 \rho_{2D} x_{eff} \beta^2 \frac{1}{L_{eff}}$$

Alors que dans un système 3D,  $T_F$  varie avec la densité de trous à travers la densité d'état qui intervient dans l'expression de la susceptibilité, elle ne dépend que de paramètres intrinsèques dans un système 2D : l'intégrale d'échange  $\beta$ , la composition en éléments magnétiques  $x_{eff}$  et la densité d'état  $\rho_{2D}$  indépendante de la densité de trous. Le couplage entre les spins de Mn et les trous conduit donc à une singularité de la susceptibilité en  $T_{CW}$ =- $T_{AF}$ + $T_F$  et non plus en - $T_{AF}$ . La température de Curie-Weiss,  $T_{CW}$ , est une mesure des interactions dans la phase paramagnétique lorsque les spins sont alignés par un champ magnétique externe. Une situation pour laquelle  $T_{CW}$  > est positive signifie que les interactions sont en majorité ferromagnétiques. Dans un modèle de champ moyen, comme c'est le cas ici,  $T_{CW}$  donne aussi la température critique de transition vers une phase ordonnée uniforme (ferromagnétique).

# 8.2 Mise en évidence de la transition ferromagnétique par spectroscopie optique

La mise en évidence de la transition de phase magnétique peut donc se faire de deux manières complémentaires présentées pour la première fois par A. Haury *et al.* [62] dans un puits de  $Cd_{0.976}Mn_{0.024}Te/Cd_{0.66}Zn_{0.07}Mg_{0.27}Te$  dopé par modulation de type p (dopage Azote). L'une consiste à mesurer la susceptibilité du système dans la phase paramagnétique. Cette procédure est décrite dans le paragraphe suivant. L'autre consiste à mettre en évidence l'apparition de l'aimantation spontanée du système en traversant la température critique. Cette méthode, utilisée dans la suite de l'étude, est explicitée à partir de l'échantillon M1399 au 8.2.2. Cet échantillon présente un puits quantique de  $Cd_{0.976}Mn_{0.024}Te/Cd_{0.66}Zn_{0.07}Mg_{0.27}Te$  dopé par modulation.

#### 8.2.1 Susceptibilité de la phase paramagnétique

La procédure de détermination de la susceptibilité magnétique des ions Mn, est illustrée par la figure 8.3. Les spectres de PL sont enregistrés dans les deux polarisations circulaires pour de faibles champs magnétiques (de 0 à 450 G). A faible champ magnétique, la susceptibilité correspond à la pente de l'aimantation en fonction du champ magnétique. Comme l'aimantation est directement proportionnelle à la séparation Zeeman, la variation de la susceptibilité en fonction de la température suit l'évolution de la séparation Zeeman. On reporte alors l'inverse de la susceptibilité mesurée pour différentes températures : la température pour laquelle  $\frac{1}{\chi}$  s'annule correspond à  $T_{CW}$ : la température de Curie-Weiss. La situation présentée figure 8.3 correspond au puits quantique avec ou sans trous. En l'absence de trous (photoneutralisés par une lumière blanche) le système est antiferromagnétique puisque  $\frac{1}{\chi}$  s'annulerait à une température négative. Par contre, en présence de trous, la température de transition est positive, ce qui signifie que les interactions sont majoritairement ferromagnétiques. Des interaction de type ferromagnétique sont donc bien engendrées par les trous.


FIG. 8.3 – La figure a présente les positions de PL enregistrées à partir d'un puits quantique de  $d_{(0.976}Mn_{0.024}Te dopé p$  (échantillon 2). L'inverse de la susceptibilité est tracée figure b pour le même échantillon (n°2) avec le puits peuplé par des trous (ronds pleins) et déplété par illumination (cercles ouverts). Le carré ouvert correspond à un autre échantillon (n°4) non dopé [62].

# 8.2.2 Dédoublement spontané de la raie de PL lors de la mise en ordre magnétique

Le comportement typique des spectres de PL en fonction de la température, lors de l'apparition de la phase ferromagnétique, est présenté figure 8.4 pour l'échantillon M1399.



FIG. 8.4 – Mise en évidence de l'aimantation spontanée du système (échantillon M1399) : un dédoublement spontané de la raie de PL apparaît pour des températures inférieures à la température critique  $T_C=2.5$  K.

Au-delà de la température critique, c'est-à-dire dans la phase paramagnétique, et en présence de trous, les spectres de PL présentent une raie d'émission, qui correspond au trion  $X^+$  dans l'état singulet. La mise en ordre magnétique se traduit par un dédoublement spontané de la raie de PL en-dessous de  $T_C=2.5 \text{ K}$ : la température critique de transition. La séparation entre les deux composantes du doublet est directement proportionnelle à l'aimantation spontanée des spins de Mn, conséquence de l'apparition du champ d'échange. On montre au paragraphe suivant que le doublet qui apparaît pour des températures inférieures à la température critique est de nature différente au doublet  $(D_{sup}, D_{inf})$  présenté dans la seconde partie de ce manuscrit.

## 8.3 Domaines magnétiques

L'évolution typique des spectres de PL en fonction du champ magnétique, dans la phase magnétique ordonnée, est présentée figure 8.5



FIG. 8.5 – Spectres typiques de PL enregistrés par David Ferrand [24] à partir d'un puits de  $Cd_{0.966}Mn_{0.044}$ Te sous faibles champs magnétiques :  $\sigma$ + en trait continu et  $\sigma$ - en pointillés.

On voit que la double raie en champ nul évolue dans chaque polarisation circulaire vers une raie unique; à basse énergie en polarisation  $\sigma$ + et à plus haute énergie en polarisation  $\sigma$ -. Ceci peut être interpété par la formation de domaines magnétiques d'aimantation perpendiculaire au plan des couches.

La figure 8.6 représente les règles de sélection des transitions optiques attendues en présence de domaines magnétiques ainsi que les intensités de PL. L'amplitude du champ interne  $H_{int}$  (le champ magnétique vu par les spins de Mn couplés aux trous) ainsi que sa direction (perpendiculaire au plan des couches) sont les mêmes en tout point du puits mais son orientation diffère :  $H_{int}$  pointe vers le haut dans un type de domaine (domaine up) et vers le bas dans l'autre (domaine down). On retrouve bien des transitions à deux énergies,  $E_a$  et  $E_b$ , correspondant aux deux composantes du doublet de PL observé. On notera que la convention de polarisation est définie, une fois pour toutes, par rapport à l'orientation du

#### Chapitre 8. Transition Ferromagnétique

champ magnétique appliqué. Les spectres de PL enregistrés moyennent le signal émis par de nombreux domaines : la partie basse énergie (énergie  $E_a$ ) du doublet correspond donc à la luminescence des domaines up en  $\sigma$ + et des domaines down  $\sigma$ -. La composante haute énergie ( $E_b$ ) est la somme des contributions des domaines up en  $\sigma$ - et des domaines down en  $\sigma$ +. On peut voir sur la figure 8.5 que les spectres à 0 G sont identiques dans les deux polarisations. Ceci reste le cas après avoir effectué des cycles de champ magnétique jusqu'à 3 T. Ceci suggère que l'aimantation rémanente du système est nulle ou trop faible pour être observée : l'émission provient d'un volume égal de domaines up et down.



FIG. 8.6 – Règles de sélection imposées par le champ magnétique interne de sens opposé au sein de deux types de domaines magnétiques (up et down). Les énergies  $E_a$  et  $E_b$  correspondent aux énergies des deux composantes du doublet de PL dans la phase ferromagnétique.

En appliquant un champ magnétique perpendiculaire aux couches, la situation évolue d'une configuration en domaines magnétiques vers une situation d'aimantation uniforme dans tout le puits : le champ appliqué conduit petit à petit à la disparition des domaines down (minoritaires) par rapport aux domaines up (majoritaires). La disparition du doublet, dans les deux polarisations (vers 200 G) correspond à la disparition des domaines minoritaires. En présence d'un champ magnétique inférieur à 200 G on peut observer 4 raies de PL, d'énergie  $E_2$  et  $E_4$  en polarisation  $\sigma$ +, et  $E_1$  et  $E_3$  en  $\sigma$ - (avec  $E_1 > E_2 > E_3 > E_4$ ). L'origine de ces raies est illustrée figure 8.7. Le champ appliqué,  $B_z$ , et le champ interne  $H_{int}$ , sont dans le même sens dans les domaines up, ce qui conduit à une augmentation de la séparation Zeeman, alors que dans les domaines down, le décalage Zeeman est réduit car les champs s'opposent. L'intensité de PL issue des domaines down diminue car le volume occupé par ces domaines diminue avec le champ magnétique appliqué (qui leur est opposé).

L'évolution sous champ magnétique de la double raie présente à 0 G montre que nous sommes en présence d'un doublet d'origine magnétique et non spectroscopique, comme montré dans la seconde partie de ce manuscrit. Si l'on suppose que la double raie à O G correspond au doublet  $(D_{sup}, D_{inf})$  en présence de domaines magnétiques, alors il devrait persister, au moins dans les domaines majoritaires. Si maintenant on ignore les domaines magnétiques, il n'y a pas de raison, au vu des résultats de la seconde partie, d'observer le doublet  $(D_{sup}, D_{inf})$  dans les deux polarisations circulaires.

Enfin, l'écart entre les raies de PL dans la phase ferromagnétique est bien une mesure du champ interne  $H_{int}$ , dont la détermination est explicitée au paragraphe suivant.

#### 8.4. Détermination du champ interne



FIG. 8.7 – Origine des 4 raies de PL (d'énergies  $E_1, E_2, E_3, E_4$ ) observées sous faible champ magnétique en polarisation  $\sigma$ + (trait plein) et  $\sigma$ - (pointillés).

## 8.4 Détermination du champ interne

Ce paragraphe permet d'introduire la méthode, qui sera utilisée au chapitre suivant, pour déterminer le champ interne  $H_{int}$ : le champ magnétique vu par les spins de Mn couplés aux spins des trous.  $H_{int}$  se déduit de l'évolution de la séparation Zeeman des raies de PL en fonction du champ magnétique. Il s'agit d'ajuster l'évolution de la différence en énergie des raies E1-E4 pour les domaines majoritaires et  $E_2$ - $E_3$  pour les domaines minoritaires par une fonction de Brillouin modifiée. L'ajustement des données dans la phase ferromagnétique nécessite de décaler la fonction de Brillouin par le champ interne,  $H_{int}$  (figure 8.8). On retrouve la séparation spontanée,  $\Delta$ , entre les deux composantes du doublet sans champ magnétique appliqué.



FIG. 8.8 – Champ magnétique d'échange obtenu par translation de la fonction de Brillouin modifiée.

Chapitre 8. Transition Ferromagnétique

# 8.5 Conclusion

La séparation spontanée de la raie de PL en abaissant la température permet de définir la température critique de la transition paramagnétique-ferromagnétique.

Dans la phase ferromagnétique, la double raie observée à 0 T est non polarisée et évolue sous champ magnétique vers deux raies polarisées : l'une à haute énergie en polarisation  $\sigma$ -, dont l'intensité décroît, et l'autre à plus basse énergie en polarisation  $\sigma$ +, dont l'intensité augmente. Ceci peut être compris en prenant en compte la formation de domaines magnétiques perpendiculaires au plan des couches.

Enfin, la double raie observée dans la phase ferromagnétique est de nature différente de la double raie  $(D_{inf}, D_{sup})$  rencontrée dans la partie précédente.

# Chapitre 9

# Contrôle électrique de l'aimantation

Comme nous avons pu le voir dans le chapitre précédent, le couplage ferromagnétique entre spins de Mn est véhiculé par les trous : le pilotage des propriétés magnétiques peut se faire par le contrôle de la densité du gaz de trous ([63, 7]. Nous allons montrer dans ce chapitre qu'il est possible de piloter l'aimantation d'un puits quantique de (Cd,Mn)Te inséré dans une diode pin. Le système passe d'une phase ferromagnétique à paramagnétique par l'application d'une tension de l'ordre de 1 V.

## 9.1 Echantillon

La structure FET utilisée pour cela (échantillon M1346) est tout à fait similaire à celle présentée dans la première partie (M1329) : une diode pin qui contient un puits quantique de  $Cd_{0.95}Mn_{0.05}Te$ . Le but étant de contrôler les propriétés magnétiques, la composition en Mn a été augmentée à 5% par rapport à la diode M1329 utilisée pour l'étude des propriétés spectroscopiques dans la première partie. Les



FIG. 9.1 – Structure de l'échantillon M1346 : une structure FET similaire à celle présentée dans la première partie (M1329), si ce n'est que la composition en Mn est plus élevée; elle est cette fois de 5%.

spectres de réflectivité, qui permettent de déterminer précisément la composition en Mn, sont présentés figure 9.2. Ils ont été enregistrés à partir d'une des diodes de l'échantillon M1346 pour une tension de grille de -2 V. La tension permet de dépléter le puits. En effet, en présence de porteurs, on perdrait le signal en polarisation  $\sigma$ +. Ici, la raie  $\sigma$ + reste intense et s'affine sous champ magnétique alors qu'en  $\sigma$ - la largeur de raie augmente. Ceci peut s'expliquer par un désordre d'alliage. Considérons un puits de  $Cd_{(1-x)}Mn_x$ Te dont la composition en Mn fluctue entre deux valeurs limites,  $x_1$  et  $x_2$  avec  $x_1 < x_2$ . A chacune des compositions correspondent donc une valeur de bande d'énergie interdite et un décalage Zeeman géant. Il se trouve que pour les transitions en  $\sigma$ - les deux contributions s'ajoutent, alors qu'en polarisation  $\sigma$ + elles se compensent en partie : la diminution de la bande d'énergie interdite en passant de  $x_2$  à  $x_1$  est contrebalancée par la diminution du décalage Zeeman géant.





FIG. 9.2 -Spectres de réflectivité enregistrés à partir d'une des diodes de l'échantillon M1346 pour une tension de grille de -2 V (la tension permet de dépléter le puits et donc d'obtenir un signal d'absorption excitonique, qui rend les pointés plus précis qu'en présence des porteurs).



FIG. 9.3 – Ajustement des données de réflectivité par une fonction de Brillouin modifiée : la composition effective en Mn est de 2.9% qui correspond à une composition d'alliage de 5%.

L'ajustement des positions des raies de réflectivité (figure 9.3), par une fonction de Brillouin modifiée, permet de déterminer la composition en Mn ainsi que la séparation Zeeman à saturation des spins de Mn. Cette dernière valeur correspond à la séparation Zeeman obtenue lorsque tous les spins de Mn sont orientés suivant le champ magnétique. Le champ magnétique maximal disponible lors de cette mesure n'a pas permis d'atteindre la saturation des spins de Mn. A saturation, la séparation Zeeman est extrapolée à 80 meV, qui sera comparée à la séparation spontanée,  $\Delta$ , induite lors de la transition ferromagnétique, au paragraphe suivant.

# 9.2 Aimantation spontanée

La figure 9.4a présente les spectres de PL obtenus en fonction de la température lorsque la grille est maintenue à un potentiel nul. On peut observer le dédoublement de la raie de PL lorsque l'on abaisse la température. Ceci traduit la mise en ordre des spins de Mn comme nous avons pu le voir dans le chapitre précédent. Les positions des raies (figure 9.5) permettent de déduire la température critique,  $T_C=3$  K, en-dessous de laquelle l'aimantation spontanée apparaît.

Les spectres de PL (figure 9.4b) ne présentent plus de dédoublement lorsqu'une tension de -0.7 V est appliquée à la grille : le système demeure paramagnétique sur toute la gamme de températures étudiées.



FIG. 9.4 – Spectres de PL en fonction de la température pour deux tensions de grille appliquée à la diode a : 0 et -0.7 V.



FIG. 9.5 – Positions des raies de PL (a) et séparation des raies en fonction de la température (b) : la température critique de la transition ferromagnétique est de 3 K pour cet échantillon. Les lignes sont des guides pour les yeux.

## 9.3 Domaines magnétiques

### 9.3.1 Tension de grille nulle

L'évolution du doublet de PL, caractéristique de la phase ferromagnétique, sous l'effet d'un faible champ magnétique (0-450 G) est présentée figure 9.6. On notera que le doublet disparaît dans les deux polarisations pour un champ magnétique de l'ordre de 200 G. La situation est identique aux spectres typiques présentés au 8.3. Les positions des raies de PL et la séparation Zeeman que l'on peut en déduire, pour chaque domaine magnétique, sont présentées respectivement figure 9.7a et b. L'ajustement de la séparation Zeeman par la fonction de Brillouin déterminée lors des mesures de réflecivité (pointillés fig. 9.7b), conduit à une valeur du champ d'échange,  $B_{ech}$ , de 0.2 T à 1.5 K. La séparation spontanée des raies,  $\Delta$ , est de 6.9 meV ce qui correspond à 8.7% de la séparation Zeeman à saturation.

La position des raies (et non leur écart) est plus délicate à interpréter. On remarque qu'il n'est pas possible d'ajuster les positions relatives à chaque domaine par une seule fonction de Brillouin; en particulier le déplacement de la raie en polarisation  $\sigma$ - des domaines majoritaires est moins rapide que celui attendu (fonction de Brillouin tracée en pointillés). La description de l'évolution des maxima de PL passe par une modélisation du transfert des trous de spin  $-\frac{3}{2}$  (qui correspond au spin des trous du gaz totalement polarisé dans les domaines minoritaires) vers la sous-bande de spin  $+\frac{3}{2}$  des domaines majoritaires. Ceci est indispensable puisque la position absolue de luminescence du trion chargé dépend de la population de trous.

Une confrontation entre l'expérience et un modèle qui reste encore à établir est donc indidpensable à la compréhension de l'évolution de la position des raies de PL, en fonction du champ magnétique, dans la phase ferromagnétique.



FIG. 9.6 – Spectres de PL sous faible champ magnétique pour une tension de grille de 0 V appliquée à la diode a.



FIG. 9.7 – Positions des raies de PL dans les deux polarisations circulaires pour une tension de grille nulle (a) et décalage Zeeman qui s'en déduit (b) en fonction du champ magnétique. Les lignes pointillées correspondent à la fonction deBrillouin utilisée lors de l'ajustement des positions des raies enregistrées en réflectivité.

## 9.3.2 Tension de grille : -1 V

Lorsque le puits quantique est déplété de ces trous, aucune mise en ordre des spins de Mn n'est observable : une seule raie de PL apparaît dans chacune des polarisations circulaires (figure 9.8). La position de ces raies peut être ajustée par la fonction de Brillouin utilisée pour ajuster les données de réflectivité (figure 9.9). Le système reproduit donc le caractère paramagnétique attendu en l'absence de trous.



FIG. 9.8 – Spectres de PL sous faible champ magnétique pour une tension de -1V appliquée au contact p de la diode a.



FIG. 9.9 – Positions des raies de PL obtenues pour une tension de grille de -1V : l'ajustement correspond à la fonction de Brillouin obtenue à partir des mesures de réflectivité.

## 9.4 Population-aimantation : discussion

On a pu montrer que dans une structure pip l'aimantation évolue linéairement avec la densité de trous, comme le prévoit le modèle de champ moyen [70]. Pour la diode pin, on s'est jusqu'ici limité à la présentation des résultats pour deux cas limites : lorsque le puits est peuplé par des trous (à tension nulle) ou lorsqu'il est déplété (pour une tension de -1 V). On peut se demander si l'on retrouve une variation linéaire de l'aimantation avec la population de trous. Il faut, pour cela, comparer l'évolution de l'écart entre les deux composantes des spectres de PL pour  $T < T_C$  à la variation de population induite par le changement de tension appliquée à une diode.

### 9.4.1 Aimantation

Les spectres de PL, ainsi que les positions des maxima, sont présentés figure 9.10 pour la diode b de l'échantillon M1346.



FIG. 9.10 – Spectres de PL normalisés par rapport au maximum de la raie haute énergie et positions des maxima, à T=1.5 K <T<sub>C</sub>, et positions des raies en fonction de la tension appliquée à la diode b de l'échantillon M1346.

La variation de la séparation des raies de PL, déduite de la figure 9.10 est tracée figure 9.11. L'écart entre les deux raies de PL est très faible en direct (tension positive). Elle diminue bien en inverse - elle passe de 6.2 meV à 0 V à environ 4 meV pour une tension de -1.5 V. On notera qu'il est de plus en plus difficile de pointer deux raies de PL à mesure que l'on passe de 0 à -2 V. L'effet majeur de l'application de la tension est visible sur l'intensité de la composante basse énergie du doublet. L'intensité relative de cette dernière décroît fortement en diminuant la densité de trous (tension négative), si bien que pour -2 et -2.5 V une seule raie est encore observable. On montrera au paragraphe suivant que la raie unique qui persiste est liée à l'exciton.



FIG. 9.11 – Variation de la séparation des raies de PL en fonction de la tension.

## 9.4.2 Population

Les spectres de PL et de PLE enregistrés pour la même température (1.5 K) sous un champ magnétique de 1 T, qui est suffisant pour faire disparaître les domaines magnétiques, sont présentés figure 9.12.



FIG. 9.12 – Spectres de PL et de PLE, à T=1.5 K < T $_C,$  sous un champ magnétique de 1T pour la dio de b.

Une interprétation similaire à celle réalisée pour la diode M1329 présentée dans la première partie permet de montrer que l'on bascule d'une situation pour laquelle on observe le trion  $X^+$  vers l'exciton neutre. Entre +7 V et +1 V, les spectres de PL ne présentent qu'une raie avec une queue haute énergie. Ceux de PLE pour cette même gamme de tension présentent un profil d'absorption bande à bande. A 0 V, on voit apparaître en PL une raie à plus haute énergie, dont l'intensité augmente de 0 V à -1.5 V : cette raie persiste seule entre -2 et -2.5 V. Les spectres de PLE sont "bruités" et cet échantillon présente aussi des raies plus larges, si bien qu'il est difficile de voir apparaître une raie liée au trion positif. Toujours est-il qu'à -2.5 V, les raies de PLE sont relativement symétriques et l'intensité de la raie de PLE revient à un niveau proche de zéro pour une énergie supérieure à 1705 meV. Cette évolution conjointe, en PL et PLE, comparée à celle présentée pour l'échantillon M1329 permet d'attribuer les raies de PL à l'exciton X et au trion positif X<sup>+</sup> - comme illustré figure 9.12.

La coexistence entre X et X<sup>+</sup>, d'intensité comparable sur les spectres de PL à 0 V, traduit la présence d'une densité de trous de quelques  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup>. Pour des tensions de -2 et -2.5 V on observe juste l'exciton, si bien que l'on suppose que la densité de trous est nulle.



FIG. 9.13 - A gauche : positions des maxima de PL (symboles pleins) et PLE (symboles ouverts). En PL, les ronds correspondent au trion positif alors que les losanges correspondent à l'exciton. A droite, les différences d'énergie entre les positions de PLE et de PL, indiquées par une flèche sur le graphique de gauche.

Les positions des maxima de PL et PLE et leur différence conduisant à la détermination du décalage de Moss-Burstein sont présentés figure 9.13. L'écart entre PL et PLE pour des tensions entre -2.5 et -2 V est attribué au décalage de Stokes. Le décalage de Moss-Burstein  $\Delta MB_{polarise}$ , est alors tracé figure 9.14 en ayant soustrait 4 meV à la différence PLE-PL tracée figure 9.13. La densité de trous correspondante, déterminée par la relation 3.3 du chapitre 3 est reportée sur l'échelle de droite.

On retrouve, comme pour l'échantillon M1329, une variation rapide de la population de trous pour des tensions comprises entre -0.5 V et 1 V. Rappelons que la diode laisse passer le courant au-delà de 1.4 V et que les contacts sont polarisés en inverse lorsque la tension électrique est positive.



FIG. 9.14 – Décalage de Moss-Burstein (échelle de gauche) et population de trous correspondante (échelle de droite), en fonction de la tension appliquée à la diode.

### 9.4.3 Comparaison

Finalement, pour les tensions positives, la population varie trop peu pour faire une comparaison quantitative de la variation de l'aimantation et de la densité de porteurs. En polarisation inverse, on note une franche diminution de la population de trous, mais l'apparition de l'exciton rend le pointé des raies très difficile.

# 9.5 Vers une mesure directe de l'aimantation d'un puits quantique ?

Toutes les mesures des propriétés magnétiques des DMS sous forme de couches minces reposent sur des mesures indirectes; soit des mesures magnéto-optiques, soit des mesures de transport basées sur l'effet Hall anormal. La relation entre ces mesures indirectes et l'aimantation des couches repose sur une analyse des données par des modèles. La difficulté majeure à surmonter, pour mesurer directement l'aimantation de DMS sous forme de couches minces, est le fait qu'il présente une très faible quantité d'éléments magnétiques. Ainsi, un puits de  $Cd_{0.96}Mn_{0.04}$ Te d'une épaisseur de 10 nm contient l'équivalent d'une monocouche d'ions Mn. Il s'agit non seulement de détecter des signaux très faibles, mais aussi de pouvoir s'affranchir des contributions paramagnétiques (induites par la présence d'impuretés) et diamagnétiques de toute la structure semi-conductrice englobant le puits : substrat, tampon, barrières.... La structure FET étudiée jusqu'ici doit permettre de contourner cette difficulté, en mesurant directement l'aimantation par une méthode de détection synchrone du signal magnétique du puits modulé électriquement.

### 9.5.1 Montage expérimental SQUID et stratégie mise en oeuvre

#### Schéma et principe de détection

Un schéma du montage utilisé pour l'expérience est présenté figure 9.15. L'échantillon est placé dans un cryostat qui permet soit d'immerger l'échantillon dans l'hélium liquide et de contrôler sa température entre 4.2 K et 1.6 K, soit de le placer dans un flux d'hélium gazeux à des températures de 5 K jusqu'à température ambiante. L'aimantation de l'échantillon est détectée par trois bobines supra-conductrices : le bobinage de la bobine centrale est opposé à celui des bobines situées de part et d'autre. La contribution au signal SQUID de la bobine centrale étant opposée à la contribution des deux autres bobines, l'amplitude

9.5. Vers une mesure directe de l'aimantation d'un puits quantique?



FIG. 9.15 – Montage expérimental des mesures d'aimantation (SQUID).

du signal dépend fortement de la position de l'échantillon : le signal détecté correspond à la somme algébrique du flux magnétique qui traverse les trois bobines. Afin d'optimiser le signal collecté et de calibrer le montage, nous avons placé, à côté de l'échantillon, une bobine formée par 10 boucles d'un diamètre de 6 mm en fil de cuivre. L'aimantation correspondant à la circulation d'1  $\mu$ A dans la bobine est de  $2.8 \times 10^{-7}$  emu (M=IS; avec M l'aimantation générée, I le courant et S la surface totale formée par les 10 boucles). Une tension alternative est appliquée à la diode de façon à moduler les propriétés magnétiques du puits de (Cd,Mn)Te; comme nous avons pu le voir, il est possible de faire basculer le système d'une phase paramagnétique vers une phase ferromagnétique. Cette même tension sert aussi de signal référence à la détection synchrone. Le signal SQUID est alors enregistré via la détection synchrone qui sélectionne la contribution à la même fréquence et même phase que la modulation électrique. Puisque la tension alternative n'agit que sur la diode pin, seul le signal magnétique issu du puits devrait être collecté : les signaux parasites qui pourraient être issus d'autres parties de l'échantillon n'ont aucune raison d'être modulés.

### Calibration de détection

La figure 9.16a montre que la réponse du montage est clairement linéaire en fonction du signal magnétique généré par la bobine (placée proche de l'échantillon) parcourue par un courant continu. La dépendance de la détection en fonction de la fréquence du courant injecté dans la bobine est illustrée figure 9.16b. On notera la forte décroissance du signal lorsque l'on augmente la fréquence. Ceci est une conséquence des courants de Foucault qui se développent dans le cryostat, qui comporte de nombreuses parties en cuivre. La formation de courants de Foucault constitue une limite importante qui ne nous a pas permis de travailler à des fréquences supérieures à quelques Hertz (1 à 3 Hz) sans perte significative de signal. La bobine de calibration permet aussi de déterminer la position verticale optimale de l'échantillon :



FIG. 9.16 – Calibration et optimisation du montage de détection.

la figure 9.16c présente la variation de signal en fonction de la position de la bobine, par rapport à un point de référence sur le cryostat : l'optimum est obtenu pour une distance de 13 cm. L'échantillon sera alors placé à cette position par simple translation de la distance bobine-échantillon.

Une autre donnée très importante est la sensibilité de détection que l'on peut également sonder via la bobine de calibration. Il s'agit de tester les limites de détection du montage. L'application d'un champ magnétique perpendiculaire à l'échantillon (ou la bobine de calibration) tend à augmenter le bruit de détection car les bobines de détection, sont très sensibles à toute variation du flux magnétique perpendiculaire de 200 Oe, qui correspond à l'amplitude de champ que nous utiliserons durant les mesures d'aimantation de l'échantillon, à une température de 4.2 K et pour des courants de 1.3 Hz d'amplitude variable. Les acquisitions faites durant plusieurs minutes (figure 9.17) permettent d'améliorer la sensibilité : la valeur moyenne du signal détecté pour chaque courant est reportée figure 9.18. On retrouve le comportement linéaire du signal détecté avec le courant injecté dans la bobine, attendu jusqu'à des signaux de quelques  $10^{-9}$  emu.



FIG. 9.17 – Signal SQUID pour différents courants injectés dans la bobine : la valeur moyenne pour chaque courant est représentée par un trait continu.



FIG. 9.18 – Sensibilité du montage raisonnablement de l'ordre de quelques  $10^{-9}$  emu.

#### Chapitre 9. Contrôle électrique de l'aimantation

#### **Résultats - Discussion**

Nous avons utilisé des modulations de tension sous forme de signaux créneaux ou sinusoïdaux allant jusqu'à des amplitudes crête à crête de 1 V auxquelles nous avons ajouté un décalage de tension continue variable de 0 V à -0.7 V. L'idée de ce décalage est de se placer au voisinage de la tension de basculement d'une phase à l'autre, et de moduler la diode autour de ce point critique. Suivant les amplitudes de tensions utilisées, il est possible de faire passer un courant dans la structure et de détecter le signal magnétique qui résulte de la circulation de courant dans les fils de connection. Cet effet doit être indépendant de la température (et reste très faible). Ainsi nous avons enregistré le signal SQUID en abaissant la température de 4.2 K (supérieure à la température critique) à 1.7 K. Nous avons aussi appliqué différents champs magnétiques perpendiculaires (de 100, 200, 500 et 1000 Oe), afin de permettre le développement d'une aimantation macroscopique : celle-ci peut être fortement atténuée par la formation des domaines magnétiques. Rappelons que, d'après les mesures spectroscopiques, un champ magnétique de l'ordre de 200 Oe est suffisant pour orienter les domaines. La variation de signal attendue correspond à la différence de flux magnétique généré par un système qui bascule entre une phase ferromagnétique et une phase paramagnétique, en-dessous de la température critique, alors qu'au-dessus de la température critique il reste paramagnétique. Nous nous attendions à mesurer des signaux de l'ordre de  $10^{-7}$  emu. L'estimation du signal attendu résulte de la composition effective d'ions Mn (2.9%), d'une épaisseur effective du puits de 6 nm, d'une surface étudiée de 11 mm<sup>2</sup> (trois diodes en parallèle), d'un moment magnétique de  $5\mu_B$  par ion de Mn et d'une aimantation des ions Mn correspondant à 8.7 % de l'aimantation à saturation de ce sous système de spins. Aucune trace de variation en fonction de la température n'a pu être mise en évidence.

## 9.6 Conclusion

Nous avons clairement pu montrer qu'il est possible de faire basculer de manière réversible, les spins de Mn d'un puits quantique de CdMnTe, d'une phase paramagnétique vers une phase ferromagnétique par simple application d'une tension de l'ordre du volt. Il reste encore à affiner la qualité de la structure et la compréhension fine de la position des raies de luminescence en fonction du champ magnétique.

Un premier essai de mesure de l'aimantation a été fait, en collaboration avec M. Sawicki et T. Dietl de l'Institut de Physique de l'Académie des Science Polonaise à Varsovie. La méthode de détection par modulation électrique s'avère très efficace puisqu'il est possible de détecter des signaux de l'ordre de quelques quelques  $10^{-9}$  emu, ce qui est au moins d'un ordre de grandeur plus sensible qu'un SQUID en fonctionnement standard.

Afin de mieux comprendre pourquoi nous n'avons pas pu détecter de signal magnétique issu du puits quantique par cette dernière méthode, il faudrait faire une mesure quantitative du signal émis par le puits modulé électriquement; mais cette fois en détectant le signal de PL : quelle est l'intensité alors émise par rapport aux mesures faite en PL avec une tension continue appliquée à la diode?

# Chapitre 10

# Conclusion générale

#### Travail accompli

La réalisation d'une structure FET, une diode pin, à base de tellurures a été menée avec succès par des méthodes conventionnelles de la micro-électronique : lithographie optique, gravure par faisceau d'ions, lift-off pour la réalisation de contacts. Cette structure nous a permis d'atteindre une densité de trous de quelques  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup> pour une tension de quelques volts, alors qu'elle est quasi-nulle pour une tension de -1 V. Ce contrôle électrique, en plus d'être une méthode plus proche de celles qui pourraient être utilisées pour de futurs composants en micro-électronique, vient en complément du contrôle réalisé par modulation optique de la densité de trous. En effet, il est possible de moduler la densité de porteurs sur une plus large plage sans risquer de chauffer localement l'échantillon comme cela peut arriver en modulant la population par un faisceau laser. La configuration de champ électrique au niveau du puits quantique est aussi différentes : le champ électrique est diminué lors de la photoneutralisation des trous dans le puits quantique alors qu'il est fortement augmenté lors de la déplétion du puits par l'application d'une tension électrique.

Les spins de Mn sont, dans le (Cd,Mn)Te, et en présence d'un gaz de porteurs, couplés par un Hamiltonien de type RKKY. Il est possible de détecter la transition de phase paramagnétique-ferromagnétique par photoluminescence, en particulier par la séparation spontanée de la raie de luminescence en abaissant la température en-dessous de la température critique (de l'ordre de 3 K dans nos structures). A. Haury a démontré, en 1997, qu'il est possible de piloter l'aimantation d'un puits quantique de (Cd,Mn)Te par modulation de la densité de trous dans le puits. Nous avons réalisé une telle modulation par l'application d'une tension électrique de l'ordre du volt; une tension suffisante pour dépléter le puits quantique. Ceci confirme l'importance majeure des trous dans le couplage entre les spins de Mn et conforte l'idée selon laquelle les semi-conducteurs magnétiques dilués ont un rôle important à jouer dans la compréhension et la réalisation de futurs composants pour l'électronique de spin.

D'un point de vue spectroscopique, les études par photoluminescence de puits quantiques de (Cd,Mn)Te dopés de type p révèlent un comportement original sous champ magnétique. Ainsi, pour des densités de trous qui varient entre quelques  $10^{10}$  et quelques  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup>, on observe à faible champ magnétique (en réalité à faible séparation Zeeman) le trion positif dans l'état singulet. Celui-ci disparaît pour de plus fortes séparations Zeeman au profit d'une double raie dont les composantes ont été notées Dinf et Dsup. La confrontation de résultats obtenus à partir de différents échantillons nous a permis d'identifier les raies Dinf et Dsup et de proposer un mécanisme responsable de la disparition du trion positif. On notera que nous avons pu tirer profit des diodes pin et pip qui autorisent le contrôle de la densité de trous au sein de la même structure.

L'émergence du doublet (Dinf, Dsup) est attribué au croisement du niveau de trion positif, pour lequel les deux trous sont de spin opposé, avec un état pour lequel les trous ont tous un spin  $\frac{3}{2}$ . Ce croisement s'opère pour une séparation Zeeman de la bande de valence de l'ordre de 3 meV et est très peu sensible à la population de trous. Alors que la transition Dsup laisse le système dans son état fondamental, la transition Dinf conduit le système vers un état excité du gaz de trous. La nature des excitations n'a pas

#### Chapitre 10. Conclusion générale

pu être établie, mais une dépendance nette de l'énergie de ces excitations en fonction de la population de trous a pu être mesurée.

Finalement, nous avons mis en évidence un effet des interactions entre trous du gaz : l'énergie de Fermi déterminée à partir des masses effectives "non renormalisées" est plus importante que l'énergie Zeeman de la bande de valence nécessaire à la polarisation complète du gaz de trous.

#### A venir?

Un effort net d'amélioration des diodes pin réalisées jusqu'ici peut être fait, notamment du point de vue des caractéristiques électriques qui restent encore médiocres. Il faudrait pour cela mener une étude plus systématique du comportement courant-tension en modifiant les étapes technologiques.

La réalisation d'échantillons de ce type me semble aussi très intéressante pour mener à bien les mesures directes d'aimantation (SQUID) par détection synchrone du signal magnétique modulé électriquement. Aucun résultat n'a pu être obtenu sur la diode utilisée mais la méthode, au vu de la sensibilité de détection atteinte, me semble prometteuse.

Il est aussi certain qu'un approfondissement théorique devrait permettre de mieux comprendre les effets spectroscopiques observés. Il s'agit en particulier de déterminer le rôle des interactions entre trous : est-ce bien cela qui rend compte de l'écart entre l'énergie de Fermi mesurée et celle déduite des masses effectives "non renormalisées" ?

Enfin, des expériences complémentaires de type spectroscopie Raman, pourraient permettre d'identifier le type d'excitations du gaz de trous laissées dans le système après recombinaison à fort champ magnétique (au-delà du basculement).

# Annexe A

# Structure des échantillons utilisés : classification par numéro.

échantillon	épaisseur	composition	densité de porteurs	type
	puits (nm)	Mn(%)	$\max (10^{10} \text{ cm}^{-2})$	
M976	8	0.40	<b>trous</b> : 32	dopage azote : pip
M1132	8	0.53	$\mathbf{trous}: 38$	dopage azote : pip
M1269	10	0.7	$\mathbf{trous}: 28$	dopage par états de surface
M1279	10	0	${f trous}:\simeq 3^*$	dopage par états de surface
M1282	10	0	électrons $\simeq 1^*$	pas de dopage intentionnel
M1289	10	0.7	trous ou électrons : $\simeq 1^*$	dopage par états de surface
M1290	10	0.7	$\mathbf{trous}: 15$	dopage par états de surface
M1305	8	0.40	$\mathbf{trous}:32$	dopage azote : pip
M1329	8	0.3	$\mathbf{trous}: 28$	diode pin - grille 2D
M1346	8	5	<b>trous</b> : 18	diode pin - grille 2D
M1381	8	4	<b>trous</b> : 20	diode pin - grille digitale
M1399	8	5	$\mathbf{trous}: 15$	dopage azote : pip

 $\ast$ :<br/>densité de trous estimée des intensités X/X $^\pm$ observées en absorption (<br/>et non une mesure à partir du décalage de Moss-Burstein)

#### $\mathbf{M976}$





Annexe A. Structure des échantillons utilisés : classification par numéro.

### M1132



FIG. A.2 – M1132: dopage p par modulation. Un échantillon complémentaire pour l'analyse des énergies caractéristiques observées (chap.7).

M1269



FIG. A.3 – M1269 : Dopage p par les états accepteurs de surface.



FIG. A.4 – M1279 : Mise en évidence de la présence de trous dans un puits de CdTe proche de la surface.



FIG. A.5 – M1282 : Test du dopage résiduel : une faible densité d'électrons.

M1289



FIG. A.6 – M1289 : Une estimation de la position des niveaux de surface - un puits "moins profond".

M1290



FIG. A.7 – M1290 : Dopage p<br/> par les états accepteurs de surface.

Annexe A. Structure des échantillons utilisés : classification par numéro.

### M1305



FIG. A.8 – M1305 : structure pip. Etude magnéto-optique en présence d'un gaz de trous 2D de densité contrôlée optiquement.



FIG. A.9 – M1329 : Diode pin. Etude magnéto-optique en présence d'un gaz de trous 2D de densité contrôlée par une grille électrostatique.

M1346



FIG. A.10 – M1346 : Diode pin. Contrôle de l'aimantation par une grille électrostatique 2D.



FIG. A.11 – M1381 : Diode pin. Contrôle de l'aimantation par une grille électrostatique digitale.

Annexe A. Structure des échantillons utilisés : classification par numéro.

### M1399



FIG. A.12 – M<br/>1399 : structure pip. Séparation spontanée de la raie de PL en fonction de la température - transition ferromagnétique.

# Bibliographie

- M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001) Fe / (001) Cr magnetic superlattices. *Phys. Rev. Lett*, 61 :2472, 1988.
- [2] S. Datta and B. Das. Electronic analog of the electro-optic modulator. Appl. Phys. Lett., 56 :665, 1990.
- [3] J.M. Kikkawa and D. Awschalom. Lateral drag of spin coherence in gallium arsenide. *Nature*, 397 :139, 1999.
- [4] Y. Ohno, D.K. Young, B. Beschoten, F. Matsukura, H. Ohno, and D.D. Awschalom. Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure. *Nature*, 402 :790, 1999.
- [5] R. Fiederling, M. Keim, G. Reuscher, W. Ossau, G. Schmidt, A. Waag, and L.W. Molenkamp. Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode. *Nature*, 402:787, 1999.
- [6] H. Ohno, H. Munekata, T. Penney, S. von Molnar, and L. L; Chang. Magnetotransport properties of p-type (In,Mn)As diluted magnetic III-V semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 68 :1992, 1992.
- [7] H. Ohno, D. Chiba, F. Matsukura, T. Omiya, E. Abe, T. Dietl, Y. Ohno, and K. Ohtani. Electric field control of ferromagnetism. *Nature*, 408 :944, 2000.
- [8] Landolt-Börstein. Numerical data and functional relationships in science and technology, volume 17. Springer-Verlag Berlin, 1982.
- [9] J.M. Hartmann, J. Cibert, F. Kany, H. Mariette, M. Charleux, P. Alleysson, R. Langer, and G. Feuillet. CdTe/MgTe heterostructures : growth by atomic layer epitaxiy and determination of MgTe parameters. J. Appl. Phys., 80 :6257, 1996.
- [10] E. Janik et al. Thin Solid Films, 267 :74, 1995.
- [11] G. Fishman. Energie et fonctions d'onde dans les semi-conducteurs. Monographie de physique, 1988.
- [12] Le Si Dang, G. Neu, and R. Romestain. Optical detection of cyclotron resonance of electron and holes in CdTe. Solid State Comm., 44 :1187, 1982.
- [13] J.K. Furdyna. Diluted magnetic semiconductor. J. Appl. Phys., 64 :R29, 1988.
- [14] V.A. Tyagai, O.V. Snitko, V.N. Bondarenko, N.I. Vitrikhovskii, V.B. Popov, and A.N. Krasiko. Electroreflection spectra of  $\operatorname{Zn}_x \operatorname{Cd}_{(1-x)}$  Te. Sov. Phys. Solid State, 16:885, 1974.
- [15] S. Wei and A. Zunger. Calculated natural band offsets of all II VI and III V semiconductors : Chemical trends and the role of cation d orbitals. Appl. Phys. Lett., 72 :2011, 1998.
- [16] G. Fishman. Hole subbands in strained quantum-well semiconductors in [hhk] directions. Phys. Rev. B, 52 :11132, 1995.
- [17] D. G. Thomas. J. Appl. Phys., 32 :2298, 1961.
- [18] Y. Merle d'Aubigné, H. MAriette, N. Magnea, H. Tuffigo, R. T. Cox, G. Lentz, Le Si Dang, J. L. Pautrat, and A. Wasiela. J. Cryst. Growth, 101 :650, 1990.
- [19] R.D. Greenough and S. B. Palmer. The elastic constants and thermal expansion of single-crystal CdTe. J. Phys. D : Appl. Phys., 6 :587, 1973.
- [20] W. Wardzynski, W. Girat, H. Szymczak, and R. Kowalczyk. Stress-induced splitting od excitons due to exchange interaction in zinc telluride. *Phys. Stat. Sol. B*, 49:71, 1971.

#### Bibliographie

- [21] D. Berlincourt, H. Jaffre, and L. R. Shiozawa. Electrostatic properties of the sulfide, selenides, and tellurides of zinc and cadmium. *Phys. Rev.*, 129 :1009, 1963.
- [22] J. A. Gaj, R. Panel, and G. Fishman. Relation of magneto-optical properties of free excitons to spin alignment of  $Mn^{2+}$  ions in  $Cd_{1-x}Mn_x$ Te. Sol. Sta. Comm, 29:435, 1979.
- [23] J.A. Gaj, W. Grieshaber, C. Bodin-Geshayes, J. Cibert, G. Feuillet, Y. Merle d'Aubigné, and A. Wasiela. Magneto-optical study of interface mixing in the CdTe-(Cd,Mn)Te system. *Phys. Rev. B*, 50 :5512, 1994.
- [24] D. Ferrand. Intéractions d'échange ferromagnétiques induites par un gaz de trous dans des hétérostructures 2D et des couches 3D de semi-conducteurs II-VI. Master's thesis, Université Joseph Fourier, 1999. p.134.
- [25] P. Kossacki, H. Boukari, M. Bertolini, D. Ferrand, J. Cibert, S. Tatarenko, J.A. Gaj, and M. Potemski. Photoluminescence of p-doped quantum wells with strong spin splitting. sur le point d'être soumis à Phys. Rev. B, 2003.
- [26] A. Nakamura, D. Paget, C. Hermann, C. Weisbuch, G. Lampel, and B. C. Cavenett. Optical detection of electron spin resonance in CdTe. Sol. St. Comm., 30 :411, 1979.
- [27] K. Saminadayar, D. Galland, and E. Molva. Electron paramagnetic resonance studies of chlorine, indium and aluminium-doped CdTe crystals. Sol. St. Comm., 49 :627, 1984.
- [28] K. Kheng, R.T.Cox, Y. Merle d'Aubigné, F.BAssani, K.Saminadayar, and S.Tatarenko. Observation of negatively charged excitons X in semiconductor quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :1752, 1993.
- [29] B. König, I. A. Merkulov, D. R. Yakovlev, W. Ossau, S. M. Ryabchenko, M. Kutrowski, T. Wojtowicz, G. Karczewski, and J. Kossut. Energy transfer from photocarriers into the magnetic ion system mediated by a two-dimensional electron gas in (Cd,Mn)Te / (Cd,Mg)Te quantum wells. *Phys. Rev.* B, 61 :16810, 2000.
- [30] P. Lefebvre, P. Christol, and H. Mathieu. Unified formulation of excitonic absorption spectra of semiconductor quantum wells, superlattices, and quatum wires. *Phys. Rev. B*, 48:17308, 1993.
- [31] M. A. Lampert. Mobile and immobile effective-mass-particle complexes in nonmetallic solids. *Phys. Rev. Lett.*, 1 :450, 1958.
- [32] A. J. Shields, J. L. Osborne, M. Y. Simmons, M. Pepper, and D. A. Ritchie. Magneto-optical spectroscopy of positively charged exciton in GaAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, 52 :R5523, 1995.
- [33] H. Buhmann, L. Mansouri, J. Wang, P.H. Beton, N. Mori, L. Eaves, M. Henini, and M. Potemski. Electron-concentration-dependent quantum-well luminescence : evidence for a negatively charged exciton. *Phys. Rev. B*, 51 :7969, 1995.
- [34] J. L. Osborne, A. J. Shields, M. Pepper, F. M. Bolton, and D. A. Ritchie. Photoluminescence due to positively charged excitons in undoped GaAs /  $Al_xGa_{(1-x)}As$  quantum wells. *Phys. Rev. B*, 53 :13002, 1996.
- [35] D. Gekhtman, E. Cohen, Arza Ron, and L. N. Pfeiffer. Charged and neutral exciton phase formation in the magnetically quantized two-dimensional electron gas. *Phys. Rev. B*, 54 :10320, 1996.
- [36] A.Haury, A. Arnoult, V. A. Chitta, J. Cibert, Y. Merle d'Aubigné, S. Tatarenko, and A. Wasiela. Observation of charged X<sup>-</sup> and X<sup>+</sup> excitons and metal-to-insulator transition in CdTe / CdMgZnte modulation-doped quantum wells. *Supperlatt. and Microstruct.*, 23 :1097, 1998.
- [37] V. Huard, R. T. Cox, K. Saminadayar, A. Arnoult, and S. Tatarenko. bound states in optical absorption of semiconductor quantum wells containing a two-dimensional electron gas. *Phys. Rev. Lett*, 84 :187, 2000.
- [38] P.Kossacki, J. Cibert, D. Ferrand, Y. Merle d Aubigné, A. Arnoult, A. Wasiela, S. Tatarenko, and J. A. Gaj. Neutral and positively charged excitons : A magneto-optical study of a p-doped CdMnTe quantum well. *Phys. Rev. B*, 60 :16018, 1999.
- [39] R. A. Sergeev and R. A. Suris. The triplet state of X<sup>+</sup> trion in 2D quantum wells. Phys. Sta. Sol. B, 227 :387, 2001.

- [40] I. Brener, W. H. Knox, and W. Schäefer. Virtual excitation of the fermi-edge singularity in modulation-doped quantum wells. *Phys. Rev. B*, 51 :2005, 1995.
- [41] G. D. Mahan. Excitons in metals. Phys. Rev., 153:882, 1967.
- [42] P. Nozières and C. T. de Dominicis. Singularities in the X-ray absorption and emission of metals. one-body theory exact solution. *Phys. Rev*, 178 :1097, 1969.
- [43] M. S. Skolnick, J. M. Rorison, K. J. Nash, D. J. Mowbray, P. R. Tapster, S. J. Bass, and A. D. Pitt. Observation of a many-body edge singularity in quantum-well lunminescence spectra. *Phys. Rev. Lett.*, 58 :2130, 1987.
- [44] S. L. Sondhi, A. Karlhede, S. A. Kivelson, and E. H. Rezayi. Skyrmions and the crossover from the integer to fractional quantum hall effect at small zeeman energies. *Phys. Rev. B*, 47:16419, 1993.
- [45] H. A. Fertig, L. Brey, R. côté, and A. H. MacDonald. Charge spin-texture excitation and the hartree-fock approximation in the quantum hall effect. *Phys. Rev. B*, 50 :11018, 1994.
- [46] E. H. Aifer, B. B. Goldbergrs, and D. A. Broido. Evidence of skyrmion excitations about nu = 1 in n-modulation-doped single quantum wells by interband optical transmission. *Phys. Rev. Lett.*, 76 :680, 1996.
- [47] P. Hawrylak. Optical hole in a two-dimensional electron gas. Phys. Rev. B, 42:8986, 1990.
- [48] P. Hawrylak. Resonant magnetoexcitons and the fermi-edge singularity in a magnetic field. Phys. Rev. B, 44 :11236, 1991.
- [49] K. J. Nash, M. S. Skolnick, M. K. Saker, and S. J. Bass. Many body shakeup in quantum well luminescence spectra. *Phys. Rev. Lett*, 70 :p. 3115, 1993.
- [50] G. Finkelstein, H. Shtrikman, and I. Bar-Joseph. Mechanism of shakeup processes in the photoluminescence of a two-dimensional electron gas at high magnetic fields. *Phys. Rev. B*, 56 :p. 10326, 1997.
- [51] W. Maslana, P. Kossacki, M. Bertolini, H. Boukari, D. Ferrand an S. Tatarenko, J. Cibert, and J. A. Gaj. p type doping of quantum wells II-VI heterostructures from surface states : Application to ferromagnetic CdMnTe. Appl. Phys. Lett., 82 :1875, 2003.
- [52] J. Yang, Y. Zidon, and Yoram Shapiraa. Alloy composition and electronic structure of  $Cd_{(1-x)}Zn_xTe$  by surface photovoltage spectroscopy. J. Appl. Phys., 91:703, 2001.
- [53] A. J. Shields, J. L. Osborne, M. Y. Simmons, D. A. Ritchie, and M. Pepper. Semicond. Sci. Tehnol., 11:890, 1996.
- [54] T. Baron, K. Saminadayar, and N. Magnea. Nitrogen doping of te-based II-VI compounds during growth by molecular beam epitaxy. J. Appl. Phys., 83 :1354, 1998.
- [55] Handbook of chemistry and Physics. 65th edition edition, 1984-85.
- [56] R. Planel, J. Gaj, and C. Benoit. J. Physique C, 41(C5) :C5-39, 1980.
- [57] B.B. Goldberg, D. Heinman, and A. Pinczuk. Phys. Rev. Lett., 63 :1102, 1989.
- [58] J.K. Wang, D.C. Tsui, M. Santos, and M. Shayegan. Phys. Rev. B, 45:4384, 1992.
- [59] R.A. Suris, V.P. Kochereshko, D.R. Yakovlev G.V. Astakhov, W. Ossau, J. Nurnberger, W. Faschinnger, G. Landwehr, T. Wojtowicz, G. Karczewski, and J. Kossut. *Phys. Stat. Sol. B*, 227 :343, 2001.
- [60] A. Esser, R. Zimmerman, and E. Runge. Phys. Stat. Sol. B, 227:317, 2001.
- [61] T. Dietl, A. Haury, and Y. Merle d'Aubigné. Free carrier-induced ferromagnetism in structures of diluted magnetic semiconductors. *Phys. Rev. B*, 55 :R3347, 1997.
- [62] A.Haury, A.Wasiela, A. Arnoult, J.Cibert, S.Tatarenko, T.Dietl, and Y.Merle d'Aubigne. Observation of a ferromagnetic transition induced by two-dimensional hole gas in modulation-doped CdMnTe quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 79 :511, 1997.
- [63] S. Koshihara, A. Oiwa, M. Hirasawa, S. Katsumoto, Y. Iye, C. Urano, H. Takagi, and H. Munekata. Ferromagnetic order induced by photogenerated carriers in magnetic III-V semiconductor heterostructures of (In,Mn)As/GaSb. *Phys. Rev. Lett.*, 78:4617, 1997.

Bibliographie

- [64] M. A. Ruderman and C. Kittel. Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons. *Phys. Rev.*, 96 :99, 1954.
- [65] T. Kasuya. Prog. Theor. Phys., 16:45, 1956.
- [66] K. Yosida. Magnetic properties fo Cu-mn alloys. Phys. Rev., 106:803, 1957.
- [67] G. Bastard. Wave mechanics applied to semiconductor heterostructure. les éditions de physique edition, 1988.
- [68] B. Coqblin. The electronic structure of Rare-Earth metals and alloys : the magnetic heavy rare-earth. Academic press edition, 1977.
- [69] T. Dietl. Handbook on semiconductors, volume 3b. T. S. Moss (North-Holland, Amsterdam), 1994.
- [70] H. Boukari, P. Kossacki, M. Bertolini, D. Ferrand, J. Cibert, S. Tatarenko, A. Wasiela, J. A. Gaj, and T. Dietl. Light and electric field control of ferromagnetism in magnetic quantum structures. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :207204, 2002.