

Thèse de doctorat

Influence de la densité de trous sur la
dynamique des charges et d'aimantation dans
du (Ga,Mn)As en couche.

Soutenue publiquement le 12 octobre 2012 par

Jean BESBAS

Réalisée sous la direction de

Pierre GILLIOT et Giovanni MANFREDI

JURY

Catherine GOURDON	Rapporteur externe
Xavier MARIE	Rapporteur externe
Anne-Sophie CORDAN	Examineur
Omar MORANDI	Examineur
Pierre GILLIOT	Directeur de thèse
Giovanni MANFREDI	Directeur de thèse

À Hélène et Bruno BESBAS

Remerciements :

Étudiant en début de thèse, la science apparaît classiquement. Le thésard pense partir d'un point A pour rejoindre linéairement un point B. Comme le soupçonne tout lecteur physicien de ces lignes, la réalité est différente ; la dualité onde-corpuscule et le principe de Huygens appliqués aux thésards impliquent une propagation depuis le point A sans recouvrement assuré du point B en fin de thèse. Durant cette propagation, le thésard diffuse sur des obstacles tout en interagissant avec d'autres champs. Ces derniers font du docteur en devenir une personne particulière dans la société et de son projet un recueil abscons d'idées et de découvertes parfois utiles. Je tiens donc à remercier sincèrement ces quelques « champs » tant pour leurs contributions respectives à ce projet que pour la structure actuelle de ma fonction d'onde.

Mes remerciements vont tout d'abord à mon jury de thèse, Catherine GOURDON, Xavier MARIE et Anne-Sophie CORDAN, pour avoir accepté la tâche laborieuse de rapporter et discuter mon travail.

Je remercie Pierre GILLIOT, co-superviseur de ce projet et directeur de recherche au CNRS, pour la confiance accordée lors de l'accès à un matériel coûteux. Je salue de plus sa disponibilité, ainsi qu'une vaste expertise, gentiment mise à mon service. J'en garde une vision informelle de la dynamique de excitons et des multiples facettes de l'interaction spin-orbite. Il a subi sans broncher une personnalité têtue et solitaire, pour cela aussi, je lui en suis reconnaissant.

Je remercie Giovanni MANFREDI, co-superviseur de ce projet et directeur de recherche au CNRS, pour son encadrement, les multiples discussions de physique et l'opportunité d'accès au serveur de calcul. Merci de plus pour les corrections de mon manuscrit, le sérieux à toute épreuve et les nombreux conseils de tout ordre.

Je remercie Paul-Antoine HERVIEUX, professeur des universités à Strasbourg. Ses encouragements ont souvent été les bienvenus tout comme sa rigueur, élément nécessaire pour me recadrer de temps à autre. Je le remercie de plus pour la correction de mon manuscrit, l'accès au serveur de calcul et pour ses remarques toujours pondérées et avisées.

Je remercie Mathieu GALLART, maître de conférences à l'université de Strasbourg, pour m'avoir enseigné à la fois la physique des semi-conducteurs et l'art de bien la communiquer. Je le remercie pour son calme, la propreté de son travail et sa capacité d'analyse parfois tranchante. Je le remercie de plus sur un plan plus personnel pour les discussions hors cadre du travail qui ont alimenté ma motivation.

Je remercie Olivier CREGUT, ingénieur de recherche au CNRS et éminence grise de la science, pour m'avoir enseigné l'optique linéaire et non linéaire. Alors que je ne savais rien, il m'a tout appris avec patience et gentillesse et je n'aurais rien pu faire sans lui.

Je remercie Bernd HÖNERLAGE, professeur des universités à Strasbourg. Je le re-

mercie pour la patience et les conseils ainsi que pour toute cette jubilation propre à la découverte de choses nouvelles qu'il m'a apportées au long de mon processus de découverte de la physique des semi-conducteurs cristallins. J'espère un jour maîtriser le dixième de ce que Bernd connaît sur les excitons, les polarons, les polaritons et toutes ces petites bêtes.

Je remercie Jean-Yves BIGOT, directeur de recherche au CNRS, d'avoir financé les deux derniers mois nécessaires à l'écriture de mon manuscrit.

Je remercie Omar MORANDI pour m'avoir laissé l'opportunité d'utiliser les codes qu'il avait conçu et pour le temps passé à m'expliquer leur fonctionnement.

Je remercie Laura THEVENARD et Aristide LEMAÎTRE pour les échantillons mais aussi pour les discussions éclairées et pour leur savoir-faire en terme de physique du (Ga,Mn)As. Je remercie en particulier Laura pour sa motivation, pour les conseils et pour l'émulation scientifique dont elle est l'origine pour moi.

Je remercie Marc ZIEGLER, ingénieur d'étude au CNRS, pour ses encouragements, son aide toujours inconditionnelle et son savoir-faire qu'il n'est jamais avare de partager.

Je remercie Gauthier DEKYNDT pour l'usinage des deux porte-échantillons que j'ai été amené à utiliser, Christine TUGENE et Dominique QUINCE pour les services efficaces en terme d'informatiques et enfin Isabelle KITZINGER et Estelle BRUNETTE pour avoir mis à mon service leur capacité à se balader dans les méandres obscurs du secrétariat.

Je remercie Annette WINTER et Jean-Pierre BUCHER, secrétaire et directeur de l'école doctorale de physique et chimie-physique de Strasbourg respectivement pour leur gestion des thésards dont moi.

Plus indirectement, d'autres personnes m'ont côtoyé durant ce passage à l'IPCMS et je les remercie également. Il s'agit de Virginie STORTZ, Stefan HAACKE, Honorat Kokou DORKENOO, Sebastien HARLEP, Mircea VOMIR, Marie BARTHELEMY, Valérie HALTE, Dietmar WEINMANN, Michelle ALBRECHT, Jean-Pierre VOLA, Mebarek ALOUANI, Xavier LEDOUX, Patricia TOURON TOUCEDA, Marel PELAÏS, Atef GADALLA, Stéphane BERCIAUD, Fabien MULLER, Christian MENY et bien d'autres que je m'excuse d'oublier.

D'un point de vue plus personnel, certains de mes collègues thésards et de mes amis méritent tout aussi bien des remerciements. Ils sont la face cachée de ma thèse et m'ont soutenu dans les moments difficiles.

Je remercie mon ami Bertrand YUMA, pour tant de choses que je ne saurai en citer une seule.

Je remercie Thomas GELLOT, mon petit tenshinhan adoré pour son amabilité et sa sincérité.

Je tiens à remercier aussi tout particulièrement Alexandre SOLLE qui me fait comprendre l'importance de l'amitié ainsi que Lucie SCHWARTZ.

Je remercie Lukáš ONDIČ, le thésard aux mille publications, pour m'avoir fait l'honneur de son amitié ainsi que pour ses conseils.

Je remercie Thibaut BERDOT, mon compagnon de la première heure pour sa gentillesse et son grain de folie.

Je remercie Hélène VONESH, Hélène FELDNER et Amani ZAGDOUD pour les nombreuses discussions, pour leur humour et le plaisir que j'ai eu à les fréquenter.

Merci à Yannick HINSCHBERGER, pour le plaisir que j'ai eu à partager l'amour de la physique. On peut dire qu'avant de le rencontrer, je n'avais pas compris le modèle de Drude-Lorentz :).

Je remercie Thomas ROLAND qui a un cœur d'or. C'était vraiment agréable de te côtoyer mon vieux.

Je remercie Alexandre CHEMINAL et Déborah PERSUY en début de thèse en leur souhaitant au passage bon courage pour la suite.

Je remercie les collègues thésards que j'ai côtoyé parfois un peu rapidement au cours de ces trois années. Il s'agit de Ovidiu CRETU, Logan TATI-BISMATH, Philippe SCHLEICHER, Nabil NAJJARI, Nicolas LEHOUX, Marzena MATERSKA, Christophe BURGER, Paulin BUCHWEISER, Brice BASLY, Virginie VERGNAT, Deung-Jang CHOI, Romain CREGET, Walid BALIZ, Jean-Baptiste BEAUFRAND, Till SOHIER, Laureen MANGOT, Wojciech SZEWC, Yas YAMIN, Vina FARAMAZI, Romain MASSON, Reda MOUBAH, Stéphane DESPAX, Delphine TOULEMON, Sébastien BRIAND, Rafal JASIAK, Piotr et Marcelina KLAJNER, Puja DEY et Saquib JAVAID .

Je remercie du fond du cœur Rania MAKKI qui m'a épaulé sur ma fin de thèse.

Je remercie Josselin KIEFFER, Rima MAKKI et Pedro MONTEIRO pour leur soutien.

Enfin, pour finir, je remercie mon papa Henri STRIEGEL et ma maman Christiane GEIST qui ont eu la bonne idée de me remettre mon premier « science et vie junior » dans les mains et à qui je dois l'étincelle qui m'a amené jusqu'ici.

Résumé

Cette thèse étudie la dynamique d'aimantation sur des semi-conducteurs magnétiques dilués entre 1ps et 1ns. L'introduction d'atomes de manganèse dans une matrice semi conductrice d'arséniure de gallium permet à ce dernier d'acquérir des propriétés para et ferromagnétiques. Le manganèse est à l'origine à la fois d'un dopage accepteur et d'un apport de moments magnétiques localisés. L'origine du magnétisme est la suivante : chaque spin d'atome de manganèse interagit avec les spins de trous délocalisés ou faiblement localisés sur l'ensemble du système. Cette interaction permet aux spins des atomes de manganèse de s'aligner entre eux et mène à une aimantation macroscopique. Optiquement, il est possible d'interagir avec les trous délocalisés à la fois au niveau de la charge et du spin permettant un contrôle direct de l'interaction d'échange et donc de l'aimantation.

L'objectif était d'étudier expérimentalement et théoriquement la dynamique d'aimantation en fonction de la concentration de porteurs dans des couches de $\text{Ga}_{0.93}\text{Mn}_{0.07}\text{As}$ dont le dopage accepteur a été passivé au préalable par l'ajout d'atomes d'hydrogène. La problématique est le comportement hors équilibre de l'aimantation et des charges dans le $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ dans un régime de densité de porteurs faible et de concentration d'atomes de manganèse élevée. Dans ce régime, les niveaux d'impuretés associés aux atomes de manganèse se recouvrent et sont à l'origine de nouvelles bandes de symétrie d ou pd alors que le niveau de Fermi se rapproche du haut dans la bande de valence.

La première partie est l'approche expérimentale dans laquelle six couches de 50nm sur substrat de GaAs de densité de porteurs p variant de 10^{17}cm^{-3} à $7.9 \times 10^{20}\text{cm}^{-3}$ ont été étudiés par des expériences de pompe sonde non dégénérées. La pompe est d'énergie 3.1eV (400nm) et la sonde 1.55eV(800nm). La pompe fait transiter des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction. La sonde, d'une durée de 240fs, est utilisée pour sonder le système au voisinage du point Γ . La température est de 25K et un champ magnétique de 0.35T est appliqué dans la direction perpendiculaire au plan de l'échantillon pour se placer en configuration polaire. Les mesures sont des transitoires de réflectivité et de rotation Kerr (TR-MOKE). Ce travail de thèse s'applique donc à évaluer la correspondance entre la dynamique magnéto-optique et la densité de trous dans l'état fondamental. Elle met de plus en parallèle les dynamiques de charge et d'aimantation au travers des évolutions de la réflectivité ΔR et de la rotation Kerr θ_K après excitation optique.

Les résultats de réflectivité indiquent l'existence de deux processus de relaxation en fonction du temps. Le premier consiste en une relaxation de la température des charges menant à un changement de la répartition des porteurs dans les bandes de conduction et de valence et se manifeste par une montée du signal de réflectivité différentielle lors du refroidissement du réseau sur 200ps. Le second est un processus de recombinaison et de diffusion des porteurs hors de la zone d'excitation et mène au retour à l'équilibre avec perte du signal sur un temps d'une nanoseconde.

Chacun de ces processus présente un comportement dépendant de la densité de porteurs à l'équilibre traduit par des valeurs des taux de relaxation différentes d'un échantillon à l'autre. Ces dépendances s'interprètent bien par des considérations de remplissage

dans un schéma de bande simple avec des bandes de valence et de conduction paraboliques. Les densités de porteurs associées au dopage à l'équilibre et aux charges photo-crées se traduisent alors par l'énergie de Fermi ($T=0K$) et le potentiel chimique ($T \simeq 0K$).

Lorsque le système est excité, à $\tau \simeq 0ps$, avec τ le retard entre les impulsions de pompe et de sonde, les trous et électrons thermalisent par interaction coulombienne pour former deux ensembles chauds de charges. La température définie alors pour ce sous-système est très supérieure à celle du réseau et dépend à la fois de la quantité de charges injectées optiquement et de l'énergie cinétique des charges photo-crées. Celle-ci définit une répartition de charge initiale dans l'espace des phases et traduit une valeur de la réflectivité différente. Alors que les électrons sont piégés par des impuretés de As_{Ga} ($\tau \simeq 1ps$), le gaz de trous se refroidit ensuite ($\tau \simeq 10ps$) au profit du réseau et adopte temporairement une température intermédiaire entre celle du réseau à l'équilibre et sa température initiale. La température du couple réseau-gaz de trous décroît enfin vers la température d'équilibre ($\tau_{th} \simeq 100ps$). Le changement de la répartition des charges est vu en réflectivité. Enfin, les électrons piégés et les trous recombinent sur un temps d'une nanoseconde (τ_{rec}).

Les résultats de réflectivité concernent les deux dernières étapes de la relaxation des charges. L'évolution du temps τ_{th} en fonction de la densité de porteurs s'interprète en considérant l'élévation de la température des trous après injection en vue de la quantité totale de trous présents dans le système. Le processus de thermalisation entre électrons et trous mène alors à des gaz plus froids dans le cas des hautes densités de trous à l'équilibre favorisant le peuplement au voisinage du niveau de Fermi pour les trous. Le comportement du temps de recombinaison en fonction de la densité de porteur s'interprète par des effets de remplissage et de superposition des trous et électrons au niveau du haut de bande de valence et des orbitales pièges dans l'espace réciproque. Lorsque le niveau de Fermi diminue, la recombinaison radiative devient plus probable raccourcissant le taux de recombinaison à une valeur à saturation déterminée par la valeur de l'élément de matrice de l'opérateur de polarisation entre les niveaux pièges et du haut de bande de valence respectivement.

Les résultats en aimantation consistent en une suite de transitoires d'angle de rotation Kerr en fonction de la concentration de trous initiale. Ces transitoires, reliés à l'aimantation, présentent des évolutions non triviales d'un échantillon à l'autre. Les transitoires d'aimantation présentent de plus des similarités fortes avec la dynamique de réflectivité traduisant la corrélation entre dynamiques des charges et aimantation du système. Ce résultat suggère qu'une partie de la dynamique d'aimantation puisse être simplement étudiée par des expériences de transmission ou de réflectivité.

L'apparition d'oscillations sur le signal de certains échantillons a été interprétée comme de la précession d'aimantation et traduisent l'évolution de l'état magnétique après un transfert initial de moment cinétique entre l'onde électrique incidente et le système de charges. Ce résultat démontre la possibilité d'agir de manière non thermique sur la dynamique de précession du vecteur aimantation. La désaimantation sub picoseconde par rapport à la concentration de trous dans l'état fondamental dépend à la fois de l'échange de moment cinétique avec la lumière et de l'échauffement du système. Il s'ensuit que la désaimantation regroupe les contributions de deux effets thermique et non thermique.

Le second travail consiste à compléter l'approche expérimentale par une approche théorique. Les simulations sont réalisées à partir des données des échantillons déterminées expérimentalement. L'ensemble de ce travail concerne les aspects statique et dynamique bien que seul le premier soit traité dans cette thèse.

Les résultats expérimentaux laissent penser que l'approximation de la masse effective puisse être pertinente pour l'étude de la physique des échantillons. Le premier code se base donc sur un formalisme d'une bande parabolique dans un puits de potentiel infini avec interaction d'échange entre des charges de spin $1/2$ et des atomes de manganèse de spin $5/2$ répartis de manière homogène. Ce programme de calcul utilise la théorie de la fonctionnelle de la densité puisqu'un potentiel d'échange et de corrélation dépendant du spin est utilisé (LSA) dans le cadre d'une approche auto consistante. Ce programme de calcul permet de retrouver le diagramme de phase associé à chaque échantillon, avec une bonne comparaison avec l'expérience, et apporte une base d'interprétation des résultats expérimentaux en ce qui concerne le remplissage de l'espace des phases. De plus, l'amplitude de couplage magnétique entre les trous et les impuretés de manganèse est exprimé par une valeur J_{pd} . Adjoint aux résultats expérimentaux, concernant la température de Curie et la densité de trous à l'équilibre, le programme de calcul permet d'estimer une valeur pertinente de J_{pd} valant $0.1095\text{eV}\cdot\text{nm}^3$.

Table des matières

Table des matières	1
Introduction	5
1 Structure quantique et interaction avec la lumière du semi-conducteur semi magnétique (Ga,Mn)As à l'équilibre thermodynamique et hors équilibre	9
1 Les semi-conducteurs de symétrie T_d	10
1.1 La méthode k.p	10
1.2 Théorie des invariants et structure de bande	13
1.3 Structure semi-conductrice confinée	17
1.4 Quelques remarques générales	18
2 Les semi-conducteurs magnétiques dilués : cas du (Ga,Mn)As	18
2.1 Induire le ferromagnétisme dans une structure cristalline non magnétique	18
2.2 (Ga,Mn)As : Aspects structurels et relation de dispersion	19
2.3 Le ferromagnétisme dans le (Ga,Mn)As	21
2.4 Conditions de croissance du (Ga,Mn)As	27
3 Propriétés optiques du (Ga,Mn)As et aimantation	30
3.1 Propriétés optiques du GaAs	30
3.2 Influence de l'état magnétique sur les propriétés optiques de (Ga,Mn)As	31
3.3 Contrôle optique de l'aimantation dans (Ga,Mn)As	32
4 Dynamique de charges dans le GaAs	34
4.1 Processus d'interaction entre charges et régime de relaxation	34
4.2 Effet des défauts cristallins sur la dynamique	38
5 Dynamique de l'aimantation à l'échelle de la picoseconde	39
5.1 Dynamique de thermalisation et de refroidissement des charges	39
5.2 Étude optique de la dynamique de l'aimantation du (Ga,Mn)As	41
5.3 Dynamique de l'aimantation en fonction de la température	42
5.4 Dynamique de l'anisotropie	43
2 Propriétés des échantillons	45
1 Méthode de croissance	45
2 Propriétés non magnétiques des échantillons	47
2.1 Les changements structuraux	47
2.2 La densité de trous	48
3 Les propriétés magnétiques des échantillons	48

3.1	La température de Curie T_C	48
3.2	Les diagrammes de phase	49
3.3	Les constantes d'anisotropie magnéto cristalline	50
3	Mesures de dynamique d'aimantation	55
1	Effets polarimétriques circulaires dans les matériaux magnétiques	55
1.1	Origines et conséquences des phénomènes circulaires	55
1.2	Mesure dynamique de θ_K et η et relation avec M	57
2	Le montage expérimental	58
2.1	La préparation des impulsions	58
2.2	Au voisinage de l'échantillon	61
3	Traitement du signal	64
3.1	Forme du signal polarimétrique	64
3.2	Traitement du signal : démodulation du signal statique	66
3.3	Traitement du signal : démodulation du signal dynamique	66
4	Dynamiques de charge et d'aimantation en fonction de la densité de trou dans l'état fondamental	69
1	Mesures de dynamiques de charges et d'aimantation	70
1.1	Dynamique de la réflectivité dans un semi-conducteur idéal en équilibre ou quasi-équilibre	70
1.2	Relation entre mesures polarimétriques et aimantation	74
2	Utilisation des signaux différentiels pour établir la relaxation des charges et de l'aimantation	78
2.1	Étude de la réflectivité entre $\tau = 0$ ps et $\tau = 1$ ns	79
2.2	Interprétation de la dynamique d'aimantation par effet Kerr magnéto-optique et dichroïsme résolu en temps	83
3	Dynamique des trous en fonction de la densité de trous à l'équilibre	87
3.1	Tendance générale de la réflectivité différentielle en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental	87
3.2	Évolution des mécanismes de relaxation avec la densité de trous dans l'état fondamental	89
4	Dynamique d'aimantation en fonction de la densité de trous à l'équilibre	92
4.1	Dynamique de la norme de l'aimantation en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental	93
4.2	Dynamique de la direction de l'aimantation en phase ferromagnétique - Précession de l'aimantation	98
5	Discussion et conclusion du chapitre	102
5.1	Évolution de M après une excitation optique	102
5.2	Effet de thermalisation de spin sur la rotation initiale d'aimantation - Transfert optique de spin	107
5.3	Variation des axes d'anisotropie magnéto-cristalline	107
5	Étude numérique de l'état fondamental d'une couche de (Ga,Mn)As en fonction de la densité de trous	109
1	Description de la couche ferromagnétique	110
1.1	Forme géométrique et constituants de la couche semi-conductrice	110

1.2	Interactions dans la couche	112
2	Structure du programme de calcul	113
2.1	Approche auto cohérente pour l'état magnétique d'une couche de (Ga,Mn)As	113
2.2	L'initialisation des variables de calcul	115
2.3	Structure de la boucle de calcul	116
3	Les résultats	119
3.1	Simulations des états fondamentaux de plusieurs semi-conducteurs pour $d = 2\text{nm}$	119
4	Estimation de la constante d'échange magnétique	122
5	Simulations des états fondamentaux à $T \sim 30\text{K}$ en fonction de la densité de porteurs	123
5.1	La densité d'état à trois dimensions en fonction de la densité de porteurs	124
5.2	Polarisation des trous en fonction de la densité de porteurs dans l'état fondamental	127
6	Diagrammes de phase et comparaison avec l'expérience	130
7	Conclusion du chapitre	133
Conclusions et perspectives		135
1	Approche expérimentale : dynamiques des trous en fonction du niveau de Fermi à l'équilibre	135
1.1	Piégeage électronique et contrôle de la recombinaison	135
1.2	Dynamique du vecteur aimantation	136
2	Étude de l'état fondamental par DFT	137
2.1	Conclusions sur les simulations des couches dans l'état fondamental	137
2.2	Perspectives théoriques	138
A Remplissage des états quantiques du système.		141
1	Densité d'états dans le plan de la couche	141
2	Le remplissage des états	142
3	L'énergie totale du système	143
3.1	Expression de l'énergie totale pour le calcul numérique	143
3.2	Expression de l'énergie totale du système pour une détermination analytique	144
Bibliographie		147

Introduction

Dès 1978, les alliages ternaires à base de semi-conducteurs II-VI et d'atomes de manganèse tels $(\text{Zn,Mn})\text{S}$, $(\text{Zn,Mn})\text{Se}$, $(\text{Zn,Mn})\text{Te}$, $(\text{Cd,Mn})\text{S}$, $(\text{Cd,Mn})\text{Se}$, $(\text{Cd,Mn})\text{Te}$, $(\text{Hg,Mn})\text{S}$, $(\text{Hg,Mn})\text{Se}$, et $(\text{Hg,Mn})\text{Te}$ commencent à être étudiés tant pour la possibilité de contrôler le gap et les propriétés intrinsèques du semi-conducteur hôte que pour leurs propriétés magnétiques particulières telles que l'effet Faraday géant [23] [22]. Bien que des semi-conducteurs magnétiques à base de fer ou cobalt aient été produits [30] et étudiés [81] [82] [22], le manganèse s'est imposé pour son remplissage optimum des orbitales 3d en faisant une impureté magnétique de qualité. Lorsque l'impureté magnétique est présente en faible quantité, ces alliages prennent le nom de semi-conducteurs magnétiques dilués (Diluted Magnetic Semiconductor : DMS) ou semi-conducteurs semi-magnétiques.

Les semi-conducteurs III-V à base d'arsenic solubilisent peu le manganèse pour qui l'incorporation dans la matrice mène à la formation d'agrégats de MnAs avec un couplage antiferromagnétique Mn-Mn dominant [15] [14] et à une répartition inhomogène du manganèse ne produisant pas un semi-conducteur ferromagnétique. Les propriétés physiques des alliages ternaires à base de semi-conducteurs III-V restent donc inexplorées jusqu'en 1989 où H. Munekata *et al.* parviennent à réaliser le premier alliage de type $(\text{III,Mn})\text{V}$: $(\text{In,Mn})\text{As}$ [64] [63]. Ceci ouvre la voie à un nouveau type de semi-conducteur magnétique dilué et relance l'intérêt dans le domaine. Enfin dès 1996, H. Ohno *et al.* réalisent du $(\text{Ga, Mn})\text{As}$ ferromagnétique que cette thèse se propose d'étudier [70] [68] [29].

La possibilité inédite de fabriquer du GaAs ferromagnétique offre des perspectives pour la spintronique. Le désaccord de conductivité à l'interface entre un métal et un semi-conducteur dépolarise les courants de spins [20] [33]. Une interface semi-conducteur magnétique/semi-conducteur non magnétique minimise ce désaccord et rend l'injection de courant de spin dans un semi-conducteur non magnétique plus efficace [71] [98]. Une autre application est la possibilité de fabriquer des diodes électroluminescentes émettant de la lumière polarisée circulairement [21].

Dans le $(\text{Ga,Mn})\text{As}$, le manganèse introduit un dopage accepteur et des moments magnétiques localisés permettant le ferromagnétisme. Le champ électrique associé à une onde lumineuse interagissant avec les charges, le rôle de la densité de charges comme vecteur de l'interaction d'échange magnétique laisse envisager un possible contrôle optique de l'aimantation qui est démontré à la fin des années 90 [48] [69].

L'année 1996 marque aussi la naissance d'un domaine mêlant magnétisme et optique ultra-rapide : le femtomagnétisme. En 1996, la possibilité d'une désaimantation subpico-

seconde est démontrée par l'équipe de J.-Y. Bigot à Strasbourg [5] sur des films minces de nickel. La spintronique entre alors dans le domaine de la dynamique ultra-rapide.

Le ferromagnétisme des métaux est de type itinérant avec des charges délocalisées se polarisant en spin. Le critère de Stoner compare gain d'énergie cinétique et échange magnétique pour établir la possibilité d'un ordre ferromagnétique. Dans les semi-conducteurs semi-magnétiques, les charges véhiculent l'interaction entre moments magnétiques localisés. L'existence de sous-ensembles de spin en interaction, de niveaux localisés dans le gap dans la structure de bande et d'effets de relaxation associés aux impuretés font du femtomagnétisme des semi-conducteurs dilués un domaine à part entière encore peu exploré.

L'engouement pour le (Ga,Mn)As va grandissant jusqu'aux années 2005 à 2007 à partir desquelles la possibilité d'un ferromagnétisme à température ambiante est contestée [1]. Alors que l'intérêt pour les applications technologiques s'amenuise, les premières expériences de pompe sonde sur (Ga,Mn)As sont effectuées autour de 2003 par Kojima *et al.* [45]. La première expérience de dynamique d'aimantation sur (In,Mn)As est faite en 2005 [102], puis sur (Ga,Mn)As en 2006 par J. Wang *et al.* [103] [27] [101]. Malgré les doutes sur l'obtention prochaine d'une aimantation spontanée à température ambiante, l'intérêt pour le (Ga,Mn)As se situe désormais à un niveau plus fondamental.

Dans le cadre du femtomagnétisme et de la dynamique d'aimantation, les problématiques associées aux (Ga,Mn)As ne manquent pas. Comme il a été vu plus haut, le manganèse est source de moments magnétiques et de trous. Les densités de trous et de moments, si elles ne sont pas égales, restent corrélées rendant une étude indépendante malaisée. Bien que la littérature soit abondante sur la dynamique du (Ga,Mn)As, ces études ne concernent souvent qu'un échantillon pour lequel seuls la température et le champ magnétique appliqué sont variés. Les incertitudes sur la caractérisation des densités de trous et d'impuretés rendent la comparaison des résultats difficile d'une publication à l'autre. Dans ce contexte, une étude systématique pour des conditions de croissance identiques liant densité de trous à l'équilibre, dynamique des charges et dynamique d'aimantation présente un intérêt certain.

La suite de cet exposé traite donc des effets de la densité de trous p à l'équilibre sur la dynamique d'aimantation et des charges dans le (Ga, Mn)As. Cette thèse est le fruit de la collaboration entre une équipe d'expérimentateurs, sous la direction de **P. Gilliot**, et une équipe de théoriciens sous la direction de **G. Manfredi**, toutes deux du département d'optique ultra-rapide et nanophotonique de l'institut de physique et chimie des matériaux de Strasbourg. Une double approche, d'une part expérimentale et d'autre part théorique, est utilisée pour répondre à la problématique. Du point de vue expérimental, des expériences de polarimétrie optiques résolues en temps ont été mises en place au sein d'une expérience de pompe-sonde. Théoriquement, un code développé au préalable sert à la simulation des états d'équilibre et des diagrammes de phase en fonction de la densité de trous en l'absence d'excitation lumineuse.

L'étude de la physique de la matrice semi-conductrice est l'approche naturelle pour aborder les semi-conducteurs magnétiques dilués. Cependant, à mesure que la concentration d'impuretés magnétiques augmente, les semi-conducteurs magnétiques dilués de-

viennent des structures inédites. Le nombre et la position des états sont modifiés, changeant les comportements statique et dynamique, et un nouvel aspect magnétique apparaît. Le premier chapitre introduit donc tout d'abord la structure de bande et la dynamique des charges dans le GaAs. Les spécificités du (Ga,Mn)As, comme les hautes densités d'impuretés et le magnétisme, sont ensuite discutées. La fin du chapitre s'intéresse à la description des effets dynamiques connus dans le (Ga,Mn)As.

Les six échantillons utilisés ont fait l'objet de plusieurs thèses et de nombreuses mesures de caractérisation. Ils ont été originalement conçus avec des concentrations en trous différentes et des concentrations en impuretés identiques. De plus, les paramètres de maille, les concentrations de trous et les caractéristiques magnétiques sont connues. Le second chapitre présente la méthode de croissance ainsi que les propriétés essentielles issues de la caractérisation des échantillons.

Les résultats expérimentaux de cette thèse sont des mesures de la dynamique optique d'échantillons présentant des densités de porteurs différentes. Elles impliquent la mise en place d'une expérience de type « pompe sonde » et d'un dispositif permettant une mesure de la variation de polarisation d'un faisceau lumineux après réflexion sur un échantillon. Le troisième chapitre se consacre à la description du dispositif expérimental, de la chaîne de détection et des effets polarimétriques circulaires détectés.

Le quatrième chapitre présente les résultats expérimentaux. La première partie se consacre à la détermination précise de la dynamique des charges à partir de la littérature et des mesures de réflectivités et polarimétriques résolues en temps. Dans la seconde partie sont présentées et discutées les mesures de réflectivité différentielle et de variation de polarisation résolue en temps entre 0ps et 1ns. Cette partie permet de résoudre plusieurs régimes et particularités discutés individuellement.

Dans le cinquième chapitre, un programme de calcul utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité dépendant du spin sert à la simulation de l'état d'équilibre magnétique. En premier lieu, ce chapitre se consacre à la description du programme de calcul et des valeurs physiques d'initialisation utilisées. En second lieu, les résultats des simulations numériques sont discutés puis confrontés aux résultats expérimentaux du chapitre 2.

Chapitre 1

Structure quantique et interaction avec la lumière du semi-conducteur semi magnétique (Ga,Mn)As à l'équilibre thermodynamique et hors équilibre

Cette thèse étudie la dynamique du (Ga, Mn)As et, plus précisément, la relation entre densité de trous à l'équilibre thermodynamique et relaxation des populations et de l'aimantation sur une échelle de temps entre 0.1ps et 1ns après une excitation lumineuse femtoseconde de forte intensité.

Un semi-conducteur semi magnétique est composé d'une matrice dans laquelle des impuretés magnétiques ont été diluées permettant l'apparition d'un ordre ferromagnétique, *i.e.* un alignement spontané des moments magnétiques entre eux en dessous d'une température dite de Curie par codopage via un gaz de porteurs. Dans le cas présent, le semi-conducteur est l'arséniure de gallium noté GaAs et l'impureté magnétique l'élément manganèse noté Mn. L'étude du (Ga,Mn)As nécessite une bonne connaissance du semi-conducteur hôte.

La première partie de ce chapitre décrit les positions des niveaux énergétiques du GaAs par la méthode $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ et ses symétries par la théorie des invariants. Ces deux approches sont limitées mais ont l'avantage d'être analytiques et plus intuitives que les méthodes numériques. De plus, elles peuvent évaluer les effets de contrainte d'un substrat et de confinement dans un puits.

La présence de manganèse dans (Ga,Mn)As a des conséquences magnétiques et non magnétiques. La deuxième partie décrit (Ga,Mn)As comme un semi-conducteur semi magnétique parfait. Puis sont discutées les différences structurelles avec le GaAs et l'importance des conditions de croissance sur la structure d'un échantillon.

Pour tout système quantique, les positions, les symétries et le remplissage des niveaux énergétiques déterminent la réaction du système à une excitation lumineuse. Ceci est important car cette thèse présente des résultats issus de l'étude du (Ga,Mn)As hors équilibre par des moyens magnéto-optiques. L'une des promesses technologiques du (Ga,Mn)As est

le contrôle cohérent de l'aimantation par l'utilisation des règles de sélection optiques bien définies du GaAs. La troisième partie récapitule ces règles à partir de la symétrie des états dans GaAs et des efforts faits pour les mettre à profit pour détecter et manipuler l'aimantation.

La quatrième partie concerne la dynamique optique du GaAs massif. L'étude de la relaxation des charges dans le GaAs après une excitation optique permet d'introduire les mécanismes de base dominant la dynamique des charges entre 100fs et 1ns. Bien que celle-ci soit fortement influencée par les conditions de croissance dans (Ga,Mn)As, les processus de relaxation déterminés à partir de la dynamique de GaAs persistent.

La dernière partie de ce chapitre introduit la dynamique connue d'aimantation et des charges après une excitation optique polarisée linéairement de (Ga,Mn)As. Cette partie traite de l'évolution des températures des gaz de quasi particules thermalisées en équilibre quasi statique, de la précession de l'aimantation et des effets transitoires du remplissage dû aux charges photo-crées.

1 Les semi-conducteurs de symétrie T_d

Un semi-conducteur est caractérisé par l'existence d'orbitales liantes et antiliantes séparées par une énergie généralement comprise entre 1.5eV et 3.1eV et par une valence telle que les orbitales liantes soient totalement remplies et les orbitales non liantes vides à $T = 0K$. Les semi-conducteurs inorganiques se regroupent en familles dont la dénomination renvoie à la valence des éléments constitutifs, *i.e.* I-VII (CuCl), II-VI (CdSe, CdS, CdTe, ZnO, ...), III-V (GaAs, InAs, GaN, InN) et IV-IV (diamant, Ge, Si).

Le GaAs, représenté sur la figure 1.1 est un cristal de la famille des III-V qui s'organise en deux sous-réseaux cubiques à faces centrées (cfc). Les nœuds des sous-réseaux, décalés l'un par rapport à l'autre d'un quart de la grande diagonale, sont occupés par des atomes de gallium Ga et d'arsenic As respectivement. Cette structure est dite de type « blende » et possède deux groupes de symétrie qui sont l'ensemble des translations laissant le réseau invariant et le groupe ponctuel des symétries du tétraèdre nommé groupe T_d .

Plusieurs approches théoriques permettent de reconstruire la répartition des états en fonction de l'énergie, ou relation de dispersion, dans les cristaux de type blende. Parmi elles, la méthode $\mathbf{k.p}$ [19] [106] [56] et la théorie des invariants, basée sur l'étude du groupe T_d , donnent une idée des effets des contraintes biaxiales, des champs magnétique et électrique et des interactions entre particules sur la relation de dispersion des électrons du cristal [32].

1.1 La méthode $\mathbf{k.p}$

Par symétrie, toute solution de l'équation de Schrödinger se transforme en changeant sa phase globale sous les opérations du groupe de translation. Ceci impose la forme mathématique (1.1) à la fonction d'onde, appelée « fonction de Bloch », où les bons nombres quantiques sont le quasi-moment \mathbf{k} et l'indice de bande n [43].

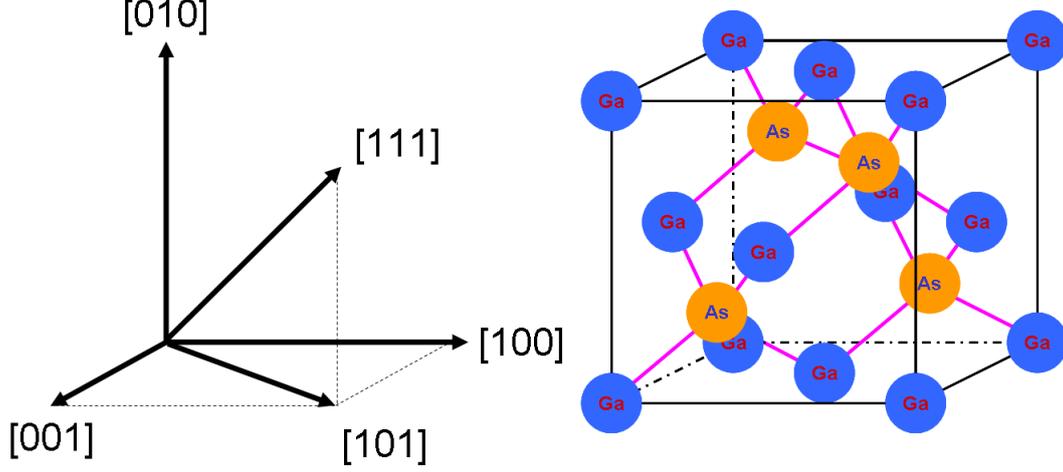


FIGURE 1.1 – À droite, représentation schématique d'une maille de GaAs. Les cercles oranges représentent des atomes d'arsenic notés As et les cercle bleus des atomes de gallium notés Ga. À gauche, représentation des directions de haute symétrie.

$$\Psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \exp(i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (1.1)$$

En champ moyen à une particule, l'hamiltonien de l'électron (1.2) est la somme de l'opérateur d'énergie cinétique, dépendant de la masse m et de la quantité de mouvement $\hat{\mathbf{P}}$, et du potentiel électrostatique moyen. Ce dernier est représenté par une fonction d'espace périodique et dépend des positions des noyaux et des autres électrons.

$$\hat{H}\Psi_{n,\mathbf{k}} = \left(\frac{\hat{\mathbf{P}}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) + V_{\text{so}}(\hat{\mathbf{P}}, \mathbf{r}, \hat{\boldsymbol{\sigma}}) \right) \Psi_{n,\mathbf{k}} = E_{n,\mathbf{k}}\Psi_{n,\mathbf{k}} \quad (1.2)$$

Le terme de spin-orbite V_{so} , dont l'expression mathématique en fonction des opérateurs $\hat{\mathbf{r}}$, $\hat{\mathbf{P}}$ et de spin $\hat{\boldsymbol{\sigma}}$ est donnée par (1.3), traduit l'action du champ électrostatique sur le spin des électrons en mouvement [11]. Il influence la structure de bande, les propriétés magnétiques et la dynamique des spins et des charges.

$$V_{\text{so}} = -\frac{\hbar}{4m^2c^2} \hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \hat{\mathbf{P}} \wedge \nabla V \quad (1.3)$$

La méthode $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ calcule l'hamiltonien (1.4) de vecteurs propres $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ à partir de (1.1) et (1.2) avec $\boldsymbol{\pi} = \mathbf{k} + \frac{\hbar}{4mc^2} \hat{\boldsymbol{\sigma}} \wedge \nabla V$ et $H_0 = -\frac{\hbar^2 \Delta}{2m} + V(\mathbf{r})$ [77].

$$\left\{ H_0 + \frac{\hbar}{m} \mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\pi} + \frac{\hbar}{4m^2c^2} \hat{\mathbf{P}} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} \wedge (\nabla V) \right\} u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \left(E_{n,\mathbf{k}} - \frac{\hbar k^2}{2m} \right) u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (1.4)$$

L'équation (1.4) en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$, donnée par l'équation (1.5) avec conditions aux limites périodiques $u_{n,0}(\mathbf{r}) = u_{n,0}(\mathbf{r} + \mathbf{R})$, est un problème de type atomique auquel la symétrie T_d impose des conditions supplémentaires sur les fonctions $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$. Le spectre énergétique est discret avec l'indice de bande n et le moment cinétique total \mathbf{J} , issu de la composition des moments cinétiques orbital \mathbf{L} et de spin \mathbf{S} avec $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$, pour bons nombres quantiques.

$$\left\{ -\frac{\hbar^2 \Delta}{2m} + V(\mathbf{r}) + \frac{\hbar}{4m^2 c^2} \hat{\mathbf{P}} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} \wedge (\nabla V) \right\} u_{n,0}(\mathbf{r}) = E_n u_{n,0}(\mathbf{r}) \quad (1.5)$$

Après le développement perturbatif en \mathbf{k} , les états de symétrie s et p forment respectivement une bande de conduction et de valence. Dans le (Ga,Mn)As, les états d forment des états discrets localisés ou des bandes selon que la concentration de manganèse soit inférieure ou supérieure à 1%. Les nombres quantiques magnétiques associés au moment cinétique orbital sont respectivement $l = 0$, $l = 1$ et $l = 2$ selon la symétrie s, p ou d des orbitales atomiques. Avec une valeur du nombre quantique de spin de $\frac{1}{2}$, les nombres quantiques magnétiques totaux sont donc dans l'ordre $j = \frac{1}{2}$, $j = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}$ et $j = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}$ pour les orbitales s, p et d.

États p de la bande de valence [7]

Les états s sont triviaux, car de symétrie sphérique, avec une relation de dispersion isotrope dans l'espace réciproque. Les états de symétrie p ont une dispersion anisotrope. Leur symétrie explique les règles de sélection optiques et l'anisotropie magnéto-cristalline dans le (Ga,Mn)As.

$$\begin{aligned} \phi_{\frac{3}{2}\frac{3}{2}} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (X + iY) \alpha \\ \phi_{\frac{3}{2}\frac{1}{2}} &= \frac{i}{\sqrt{6}} [(X + iY) \beta - 2Z\alpha] & \phi_{\frac{1}{2}\frac{1}{2}} &= \frac{1}{\sqrt{3}} [(X - iY) \beta + Z\alpha] \\ \phi_{\frac{3}{2}\frac{-1}{2}} &= \frac{1}{\sqrt{6}} [(X - iY) \alpha + 2Z\beta] & \phi_{\frac{1}{2}\frac{-1}{2}} &= \frac{1}{\sqrt{6}} [-(X - iY) \alpha - Z\beta] \\ \phi_{\frac{3}{2}\frac{-3}{2}} &= \frac{i}{\sqrt{2}} (X - iY) \beta \end{aligned} \quad (1.6)$$

Les équations (1.6) présentent la forme analytique des états p avec pour indices et exposants les nombres quantiques azimutaux et magnétiques de l'opérateur \mathbf{J} . X, Y et Z sont les fonctions d'onde orbitales et α et β les vecteurs propres de $\hat{\sigma}_z$.

Le bande de split-off : Le traitement en perturbation de l'interaction spin-orbite provoque, comme pour l'atome d'hydrogène, une levée de dégénérescence entre états de nombres quantiques azimutaux $j = \frac{1}{2}$ et $j = \frac{3}{2}$ dont l'amplitude, pour le GaAs, vaut $\Delta_{so} = -0.34\text{eV}$. Par définition, l'énergie des états $j = \frac{3}{2}$ est nulle et l'énergie la plus basse correspond à $j = \frac{1}{2}$. La relation de dispersion issue de cette dernière énergie est obtenue par le traitement en perturbation au deuxième ordre du terme $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ et constitue une bande dite de « split-off ».

États en $\mathbf{k} \neq \mathbf{0}$: Le développement perturbatif en \mathbf{k} utilise le recouvrement des états $u_{n,0}$ pour estimer les énergies $E_{n,\mathbf{k}}$ et les niveaux $u_{n,\mathbf{k}}$. Au voisinage d'un extremum de l'énergie, les termes d'ordre k^2 dominent et la relation de dispersion est un paraboloïde. Le GaAs a un gap direct en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ au point Γ . Pour $\mathbf{k} \neq \mathbf{0}$, les états de l'ensemble des bandes se mélangent et j n'est plus un bon nombre quantique. De la même manière, le caractère s, p ou d devient moins affirmé.

L'anisotropie magnétique : Bien que le remplissage électronique des orbitales d des impuretés magnétiques de Mn ne soit favorable à aucune direction d'équilibre du vecteur d'aimantation, une anisotropie magnétique a néanmoins été expérimentalement mesurée dans (Ga,Mn)As [83]. Celle-ci est dépendante de la densité de trous ainsi que des conditions de contrainte appliquées aux échantillons étudiés et s'applique donc sur les trous. Ainsi, cette anisotropie s'explique par le mélange des vecteurs propres (1.6) lié aux termes $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ et de spin-orbite ainsi que par le remplissage et l'anisotropie de la bande de valence. En conséquence, l'anisotropie magnétique est influencée à la fois par la densité de trous et par la disposition des états de la bande de valence.

États d près de la bande de valence

Dans le GaAs intrinsèque, les états d présentent un intérêt limité. Cependant, le (Ga,Mn)As implique des états d localisés autour des atomes de Mn et il est donc pertinent de discuter leur symétrie. L'interaction spin-orbite lève la dégénérescence des états hydrogénoïdes d avec $j = \frac{3}{2}$ et $j = \frac{5}{2}$ formant deux sous-ensembles d'états $e_{2g} \{d_{x^2-y^2}, d_{z^2}\}$ dégénérés quatre fois et $t_{2g} \{d_{xy}, d_{xz}, d_{yz}\}$ dégénéré six fois respectivement. Si ces états sont suffisamment délocalisés, leur recouvrement forme de nouvelles bandes.

1.2 Théorie des invariants et structure de bande

Si la méthode $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ explicite la symétrie des états et les interactions entre bandes, une autre méthode, la théorie des invariants, basée sur l'analyse du groupe T_d et de la symétrie par renversement du temps K calcule les termes non nuls issus du développement en puissance d'un hamiltonien de dimension finie [9] [10] [32]. Les coefficients associés à ces termes sont appelés invariants et une expression analytique peut leur être donnée par la méthode $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$.

La théorie des invariant détermine les termes issus de la décomposition en puissance de l'hamiltonien dans un sous espace de dimension fini de l'espace de Hilbert. La figure 1.2 présente schématiquement la relation entre les symétries du cristal et les opérateurs physiques qu'elles engendrent.

Dans tout espace de dimension n , il existe un ou plusieurs ensembles non similaires d'applications linéaires reproduisant la table de multiplication du groupe de symétrie avec la multiplication matricielle pour loi interne. Ces ensembles, symbolisés par des cercles verts sur la figure 1.2, sont des représentations du groupe de symétrie dans l'espace vectoriel de dimension n et sont nommés $\Gamma_1, \Gamma_2, \Gamma_3, \Gamma_4$ et Γ_5 pour le groupe T_d ou K^+ et K^- pour la symétrie par renversement du temps.

En algèbre tensorielle, les représentations de dimensions n définissent les quantités qu'elles transforment. Celles-ci sont les tenseurs symbolisés par les carrés magenta de la figure 1.2 qui sont ensuite associés à des grandeurs physiques en gris. En mécanique quantique, ces dernières sont des opérateurs se contractant pour construire un hamiltonien invariant sous l'action des symétries et se transformant comme des scalaires avec la représentation (Γ_1, K^+) . Les termes de la décomposition en puissance de l'hamiltonien sont donc des scalaires au sens de la figure 1.2.

L'hamiltonien de Luttinger-Kohn [57], de dimension six, est adapté pour décrire la bande de valence. C'est une approximation de masse effective car il réunit tous les termes

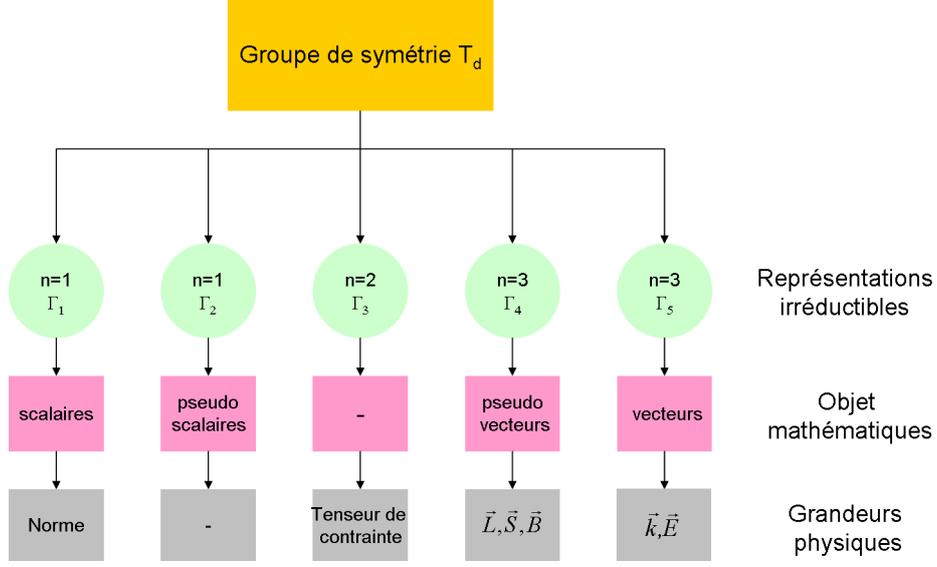


FIGURE 1.2 – Schéma descriptif de la méthode des invariants décrite dans le texte. Les symétries donnent lieu à des représentations qui, selon les dimensions, appliquent les transformations du groupe T_d à des tenseurs de différents types. Ces derniers peuvent être identifiés à des grandeurs physiques et servir à la fabrication d'hamiltonien de bonne symétrie Γ_1 (non représenté).

en k^2 de symétrie (Γ_1, K^+) ce qui induit une parabolicité de la relation de dispersion au voisinage des valeurs du quasi moment pour lesquelles le premier ordre du développement perturbatif est nul. Ceci permet une description des électrons en termes de pseudo-particules libres.

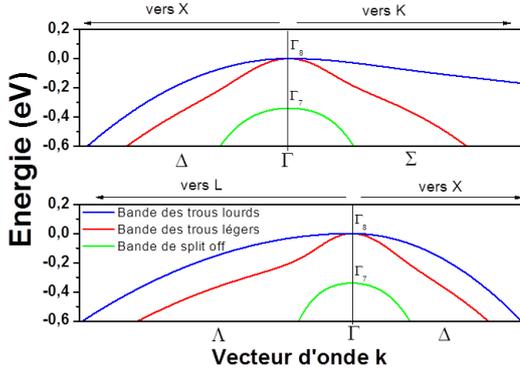
Hamiltonien de Luttinger-Kohn

L'hamiltonien de Luttinger-Kohn est donné par l'expression (1.7) dans laquelle les coefficients de Luttinger-Kohn γ_1 , γ_2 et γ_3 sont des grandeurs phénoménologiques appelés invariants. Les variables k_i sont les composantes du quasi moment et \mathbf{J} est une représentation irréductible du moment cinétique en dimension six. $\{A, B\}$ est l'opération d'anti-commutation entre les opérateurs A et B avec $\{A, B\} = AB + BA$. Cette expression explicite les différentes façon de contracter le moment \mathbf{k} avec lui-même pour obtenir des termes respectant la symétrie d'un hamiltonien de dimension six. L'expression (1.8) est le développement de l'expression (1.7) après explicitation de \mathbf{J} .

$$H_{\mathbf{k}, \mathbf{p}} = \gamma_1 k^2 + \gamma_2 [(3k_z^2 - k^2) (3J_z^2 - J^2) + 3(k_x^2 - k_y^2) (J_x^2 - J_y^2)] + 2\gamma_3 (k_y k_z \{J_y, J_z\} + c.p.) \quad (1.7)$$

La figure 1.3 présente une comparaison de la dispersion entre les points de haute symétrie de la première zone de Brillouin calculée d'une part à partir de l'hamiltonien de Luttinger-Kohn de l'équation (1.8) et d'autre part par la méthode des pseudo-potentiels par Chelikowsky *et al.* [8]. Dans le premier cas, l'expression mathématique de l'hamiltonien est donnée par les équations (1.7) et (1.8) dans laquelle $P = \gamma_1 k^2$, $Q = \gamma_2 (k_x^2 + k_y^2 - 2k_z^2)$, $L = -i2\sqrt{3}\gamma_3 (k_x - ik_y) k_z$, $M = \sqrt{3} [\gamma_2 (k_x^2 - k_y^2) - i2\gamma_3 k_x k_y]$ et $\Delta = \frac{2m_0 \Delta_0}{\hbar^2}$. Les valeurs des coefficients de Luttinger-Kohn du GaAs utilisées sont

a) Approximation de la masse effective



b) Méthode des pseudo potentiels

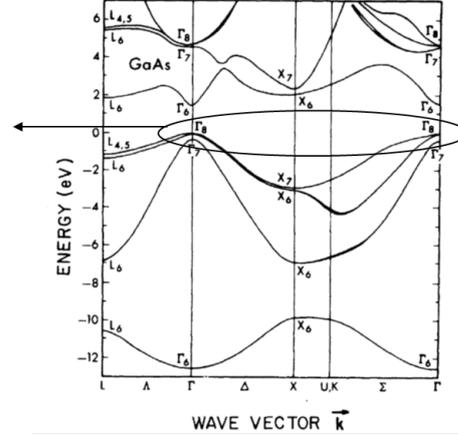


FIGURE 1.3 – A gauche, les relations de dispersion des bandes de valence au voisinage du point Γ dans diverses directions de la première zone de Brillouin obtenues après diagonalisation numérique de l'hamiltonien (1.8) sur Scilab[®]. Les bandes bleue, rouge et verte sont dites de « trous lourds », de « trous légers » et de « split off ». A droite, les relations de dispersion selon les directions de haute symétrie obtenues par la méthode du pseudo potentiel par Chelikowsky et al. dans la référence [8]. Les points L , Γ , X , W , U et K et les directions Λ , Δ et Σ sont les points et directions de haute symétrie dans la première zone de Brillouin.

$\gamma_1 = 6.85$, $\gamma_2 = 2.1$ et $\gamma_3 = 2.9$. La comparaison montre l'efficacité de l'approximation de la masse effective pour décrire la structure de bande au voisinage du point Γ du GaAs.

La figure 1.3 à gauche montre trois bandes de valence de courbure négative. A l'idée d'électrons de masses négatives est préférée celle de trous de masses et de charges positives. Ces relations de dispersion sont donc associées à des particules libres de masses positives appelées « trous ». Deux bandes sont dégénérées en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ avec $E = 0\text{eV}$ et prennent le nom de bande de trous lourds (HH) et trous légers (LH). La troisième bande est la bande de split-off positionnée à $E = -\Delta_{so}$. Enfin, les trous ont un degré de liberté supplémentaire de spin qui donne une dégénérescence double à tout point de la bande de valence.

$$H_{\mathbf{k},\mathbf{p}} = \frac{\hbar^2}{2m_0} \begin{pmatrix} P+Q & L & M & 0 & i\frac{L}{\sqrt{2}} & -i\sqrt{2}M \\ L^* & P-Q & 0 & M & -i\sqrt{2}Q & -i\sqrt{3/2}L \\ M^* & 0 & P-Q & -L & -i\sqrt{3/2}L^* & -i\sqrt{2}Q \\ 0 & M^* & -L^* & P+Q & -i\sqrt{2}M^* & -i\frac{L^*}{\sqrt{2}} \\ -i\frac{L^*}{\sqrt{2}} & i\sqrt{2}Q & i\sqrt{2}M & P+\Delta & P+\Delta & 0 \\ i\sqrt{2}M^* & -i\sqrt{3/2}L^* & i\sqrt{2}Q & iL/\sqrt{2} & 0 & P+\Delta \end{pmatrix} \quad (1.8)$$

Un autre caractère mis en avant dans la figure 1.3 à gauche est l'anisotropie des relations de dispersion dans la première zone de Brillouin. Celle-ci change le remplissage

dans le cas d'une levée de dégénérescence entre trous lourds et légers au centre de zone ce qui influe sur les propriétés magnétique de (Ga,Mn)As.

En première approximation, les états de \mathbf{k} quelconque sont des combinaisons linéaires des fonctions (1.6) pour lesquelles j n'est plus un bon nombre quantique. Ceci change la symétrie des états ce qui revêt une importance dans la dynamique et limite l'injection optique de spin loin du point Γ .

Hamiltonien de contraintes biaxiales

Les contraintes biaxiales, dues au substrat par exemple, peuvent modifier le paramètre de maille et induire une anisotropie dans la maille cubique face centrée menant entre autre à une levée de la dégénérescence entre états de trou lourd et léger au point Γ . La forme mathématique de l'hamiltonien de contrainte 6×6 , présenté par l'équation (1.9) dans la base des états (1.6) est encore donnée par la théorie des invariants. Les paramètres s'expriment en fonction des éléments ϵ_{ii} du tenseur de contraintes $Q_\epsilon = \epsilon_{zz} - \frac{(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy})}{2}$ et $R_\epsilon = \frac{\sqrt{3}(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy})}{2}$.

$$H_{BS} = b \begin{pmatrix} -Q_\epsilon & 0 & R_\epsilon & 0 & 0 & -i\sqrt{2}R_\epsilon \\ 0 & Q_\epsilon & 0 & R_\epsilon & i\sqrt{2}Q_\epsilon & 0 \\ R_\epsilon & 0 & Q_\epsilon & 0 & 0 & i\sqrt{2}Q_\epsilon \\ 0 & R_\epsilon & 0 & -Q_\epsilon & -i\sqrt{2}R_\epsilon & 0 \\ 0 & -i\sqrt{2}Q_\epsilon & 0 & i\sqrt{2}R_\epsilon & 0 & 0 \\ i\sqrt{2}R_\epsilon & 0 & -i\sqrt{2}Q_\epsilon & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.9)$$

La figure 1.4 présente les relations de dispersion des trous lourds, des trous légers et de la bande de split-off en considérant des contraintes en tension dans le cas a) et en compression dans le cas b). Les paramètres utilisés sont $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \Delta a/a = \pm 0.02$, $\epsilon_{zz} = -2 \times 0.453 \times \epsilon_{xx}$ et le potentiel de déformation $b = -1.7\text{eV}$ [13].

La contrainte biaxiale du substrat sur une couche de GaAs permet donc de contrôler les énergies relatives des bandes de trous lourds et légers. Une contrainte en tension crée un chevauchement des bandes des trous lourds et légers alors qu'une contrainte en compression écarte ces deux bandes. La levée de dégénérescence entre bandes de trous lourd et légers liée aux contraintes biaxiales est, avec le mécanisme d'échange magnétique dans le (Ga,Mn)As, la base de la description de l'anisotropie magnéto-cristalline.

Hamiltonien associé au champ magnétique externe

L'hamiltonien d'interaction magnétique avec un champ magnétique extérieur se calcule au premier ordre en B par la théorie des invariants. Il est la somme de deux termes $H_M = H_Z + H_L$ représentant l'interaction de l'induction magnétique \mathbf{B} avec les moments cinétiques respectivement intrinsèque et extrinsèque des trous. Le champ magnétique lève la dégénérescence de spin des trous et crée des niveaux de Landau. Alors que H_Z agit directement sur les spins des trous, H_L doit se calculer en fonction du niveau de Landau considéré.

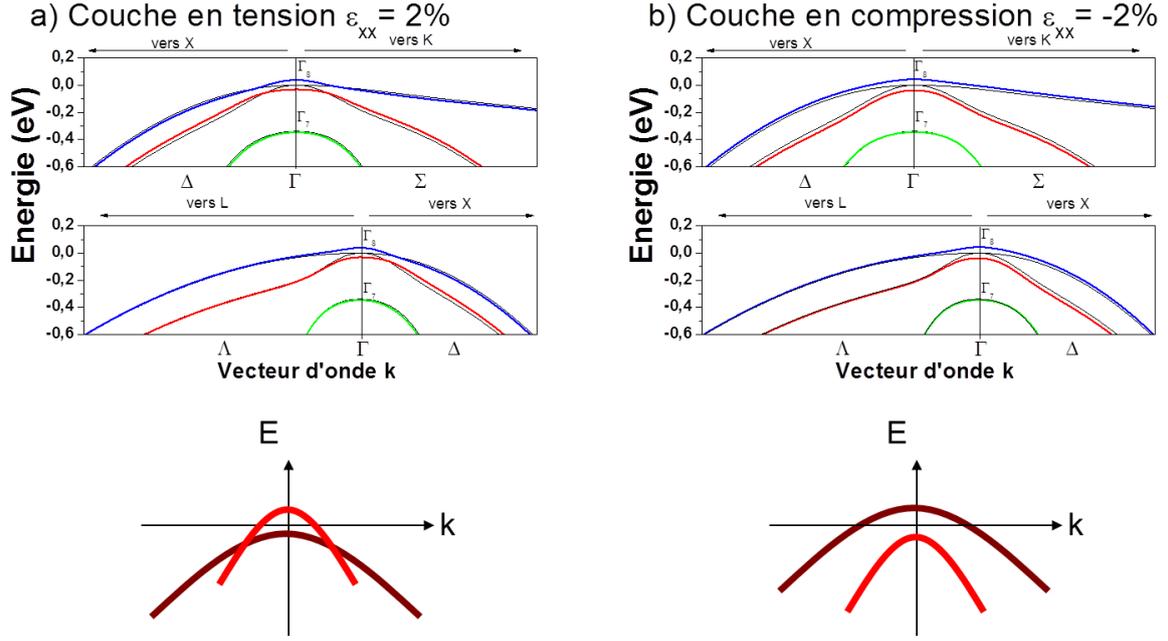


FIGURE 1.4 – Relations de dispersion des électrons de la bande de valence au voisinage du point Γ avec contraintes biaxiales. a) Contrainte en tension avec $\Delta a/a = 0.02$. b) Contrainte en compression avec $\Delta a/a = -0.02$. Les courbes noires sont les dispersions des électrons de la bande de valence du GaAs sans contrainte et sont données pour comparaison. Les schémas représentent qualitativement l'évolution de la dégénérescence au point Γ . Les points L , Γ , X , W , U et K et les directions Λ , Δ et Σ sont les points et directions de haute symétrie dans la première zone de Brillouin.

1.3 Structure semi-conductrice confinée

Cette thèse étudie des couches minces de (Ga,Mn)As dans lesquelles le confinement peut induire des modifications de la structure de bande. Une couche mince possède *a priori* la symétrie planaire dans le plan de croissance, une rotation autour de l'axe de croissance et une symétrie par réflexion par rapport au plan. Pour le cas d'une couche dont l'axe cristallographique de croissance est [001], les groupes ponctuels de symétrie à étudier sont donc D_{2d} et S_4 sans et avec champ magnétique externe respectivement d'après [106]. Dans un système bidimensionnel, la symétrie de translation mène à des ondes de Bloch à deux dimensions alors que le problème dans la direction perpendiculaire se ramène à celui d'une particule dans une boîte unidimensionnelle. Les états quantiques sont donnés par la fonction (1.10) dans laquelle i est l'indice de bande et k_{\parallel} le quasi moment dans le plan.

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^{+\infty} \xi_i(z) u_{i,k_{\parallel}}(\mathbf{r}_{\parallel}) \quad (1.10)$$

Cette approximation de la fonction enveloppe ou EFA découple les problèmes dans et perpendiculaire au plan comme dans les équations (1.11).

$$\left\{ \begin{array}{l} \left\{ \frac{\hbar^2}{2m_{\parallel}} \left(\frac{\partial^2}{\partial^2 x} + \frac{\partial^2}{\partial^2 y} \right) + V(\mathbf{r}_{\parallel}) \right\} = \epsilon_{k_{\parallel}} u_{i,k_{\parallel}}(\mathbf{r}_{\parallel}) \\ \left\{ \frac{\hbar^2}{2m_z} \frac{\partial^2}{\partial^2 z} + V(z) \right\} \xi_i(z) = \epsilon_i \xi_i(z) \end{array} \right. \quad (1.11)$$

Dans le plan, l'approximation de la masse effective (MFA) permet de trouver des solutions dont la relation de dispersion est parabolique et k_{\parallel} le bon nombre quantique. La détermination des solutions dans le plan constitue l'essentiel du travail numérique discuté au chapitre 5.

1.4 Quelques remarques générales

Les considérations précédentes sont suffisantes pour avoir une idée générale de la physique des semi-conducteurs intrinsèques à l'équilibre. Il est utile d'en rappeler les limites.

Dans un premier temps, la description faite jusqu'à présent s'attache à la bande de valence uniquement. Ceci n'est pas anodin et relève du fait qu'une description en terme de bande de valence est suffisante pour comprendre la physique élémentaire des semi-conducteurs magnétiques dilués. Cependant, il est nécessaire de garder à l'esprit qu'après une excitation optique, la bande de conduction est transitoirement peuplée ce qui influence les propriétés optiques hors équilibre.

Ensuite, si la population de la bande de valence est modifiée, des effets de renormalisation des invariants apparaissent. La masse effective, le facteur de Landé ou la taille du gap énergétique dépendent en effet de la densité de charges au travers du champ coulombien moyen $V(\mathbf{r})$. Ces effets, bien connus, restent donc à discuter dans la suite tant sur le plan statique que sur le plan dynamique.

Enfin, une problématique essentielle dans le monde des semi-conducteurs magnétiques dilués est le contrôle du magnétisme. Comme il sera vu ultérieurement, le magnétisme dépend beaucoup de la structure de bande. Ainsi, les contraintes imposées par un substrat, le champ magnétique extérieur et le confinement sont autant de paramètres permettant le contrôle statique du magnétisme des semi-conducteurs magnétiques dilués.

2 Les semi-conducteurs magnétiques dilués : cas du (Ga,Mn)As

Il s'agit donc maintenant d'étendre les considérations précédentes au cas des semi-conducteurs magnétiques dilués. Ceci ne peut se faire sans une courte introduction en ce qui concerne ces systèmes particuliers.

2.1 Induire le ferromagnétisme dans une structure cristalline non magnétique

En 1951, C. Zener émit l'idée que l'aimantation spontanée ou ferromagnétisme puisse être induite par l'introduction d'éléments de transition dans une matrice métallique [108]

[109].

D'une part, dans les métaux de transition, les spins des électrons s'alignent entre eux au sein d'une orbitale d du même atome et s'anti-alignent avec les électrons des orbitales d d'atomes voisins. D'autre part, au sein d'un atome, les spins des électrons des orbitales s la plus énergétique et d non remplie se couplent fortement avec une énergie de couplage d'environ 0.5eV.

Ainsi, un atome de transition dans une matrice cristalline présentant des éléments d'orbitales d vides peut mener à un fort couplage de l'ensemble des spins d, alignés, de l'élément de transition avec les spins des orbitales s et p délocalisées de l'hôte. Sachant cela, l'inclusion de plusieurs atomes d'éléments de transition mènera à un couplage magnétique fort entre leur spin d au travers des spins délocalisés des orbitales s et p de la matrice. Cependant, les éléments de transition doivent être suffisamment dilués pour empêcher un couplage magnétique direct entre les orbitales d. La réalisation de ces conditions permet un alignement spontané, en dessous d'une certaine température appelée température de Curie T_C , des spins du métal de transition et des spins des charges de la matrice entre eux.

Le magnétisme d'un tel système dépend de l'amplitude relative de trois effets. Le premier est l'interaction d'échange directe, antiferromagnétique pour le manganèse, entre impuretés voisines. Le deuxième est l'augmentation de l'énergie cinétique du système d'électrons lors de la levée de dégénérescence des bandes de porteurs et le troisième est l'amplitude d'interaction véhiculée par les porteurs entre impuretés magnétiques voisines.

Les semi-conducteurs qui réalisent ces conditions sont dits semi-conducteurs ferromagnétiques dilués ou semi-conducteurs semi-magnétiques, la dilution permettant de minimiser le couplage antiferromagnétique en augmentant la distance moyenne entre impuretés magnétiques.

2.2 (Ga,Mn)As : Aspects structurels et relation de dispersion

Cette thèse s'intéresse à un semi-conducteur III-V, le GaAs, dans lequel l'impureté magnétique utilisée est l'élément manganèse. Mettre des atomes de manganèse dans une matrice de GaAs donne un semi-conducteur magnétique dilué appelé (Ga,Mn)As. L'ajout d'impuretés de manganèse modifie la structure de bande du GaAs et l'occupation des dites bandes influant sur les propriétés magnétiques.

Importance du dopage en accepteurs

Il existe une différence dans le remplissage des bandes de valence entre semi-conducteurs magnétiques à base de II-VI et de III-V. Les semi-conducteurs de type (II,Mn)VI ont une bande de valence pleine et de conduction vide à $T = 0K$. Au sein de la bande de valence, les populations ne changent pas au cours d'une levée de la dégénérescence de spin rendant le ferromagnétisme impossible sans codopage.

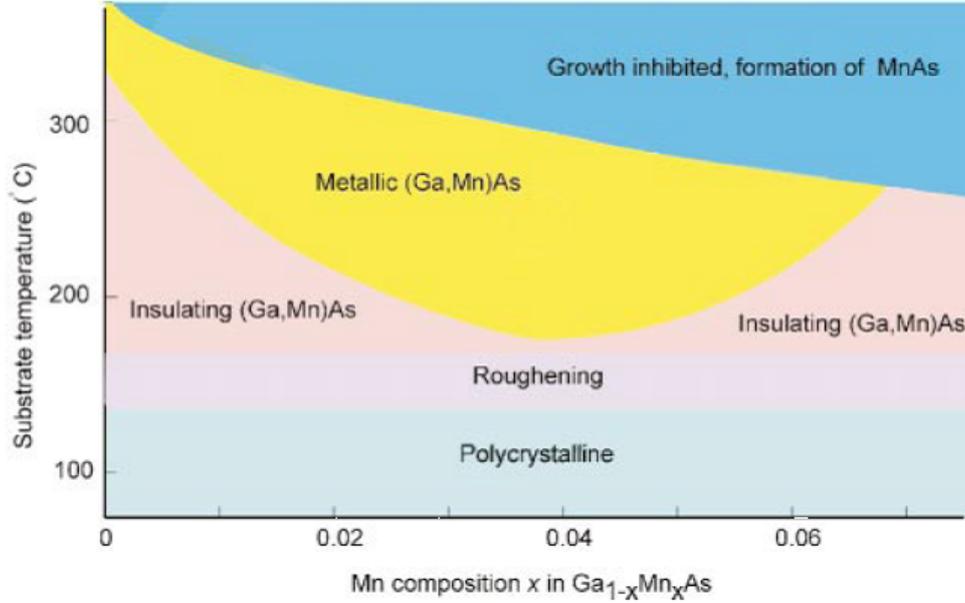


FIGURE 1.5 – Solubilité du manganèse dans le GaAs en fonction des conditions de croissance par Ohno *et al.*. En abscisse la concentration d'impuretés et en ordonnée la température de croissance. La croissance du (Ga,Mn)As se fait entre 180K et 300K. [68]

Dans le (Ga,Mn)As qui est un III-V, le manganèse prend la place du gallium et se note Mn_{Ga} . La différence de valence entre ces deux derniers éléments enlève quelques électrons de la bande de valence à basse température. Les densité de manganèse utilisées vont de 0.1% à 13% empêchant de formellement voir le (Ga,Mn)As comme un semi-conducteur dopé. Pour des concentrations de manganèse trop élevées, (Ga,Mn)As acquiert même un comportement quasiment métallique. La figure 1.5 montre un diagramme de phase associé à la solubilité des atomes de manganèse dans la matrice de GaAs.

A la différence d'un II-VI, une levée de dégénérescence provoque une polarisation de spin par remplissage asymétrique des bandes de spin opposés et favorise le ferromagnétisme sans nécessiter de codopage.

Il a été démontré en 1998 par Matsukara *et al.* [58] que le ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As est lié aux trous dans la bande de valence dont le spin interagit avec le spin des impuretés localisées. Idéalement, pour un seul type de trous, la polarisation de spin est maximale pour une bande de valence à moitié vide permettant à tous les trous d'occuper le même état de spin. Pratiquement, la problématique consiste à réunir température de Curie élevée, pour favoriser la phase ferromagnétique, et densité de trous basse, pour conserver les propriétés du semi-conducteur, ce qui n'arrive en réalité jamais. *Ceci souligne l'importance de la position du niveau de Fermi, niveau le plus énergétique occupé à 0K, pour l'amplitude du couplage ferromagnétique.*

En phase paramagnétique, la densité de trous élevée provoque d'une part un décalage virtuel de la bande interdite mesurée optiquement appelé décalage de Moss-Burstein et d'autre part une renormalisation des invariants clés tels que la largeur de la bande

interdite et les masses effectives des électrons et trous. L'augmentation du nombre de trous dans la bande de valence est dû au piégeage des électrons par des niveaux d'impuretés énergétiquement situés à proximité de la bande de valence. Ces niveaux sont spatialement localisés sur les impuretés de manganèse.

Régime de dopage faible et niveaux quantiques associés à Mn_{Ga}

D'après le théorème de superposition, le potentiel électrostatique d'une impureté est la somme du potentiel électrostatique sans impureté et de la différence entre le potentiel de l'impureté et des mailles sur laquelle elle a une influence. Le premier problème a été traité en section 1. Le second est un problème de type atome dans un champ cristallin asymétrique avec pour solution des fonctions d'onde d'énergies quantifiées se superposant à la structure de bande du GaAs. Ces états n'ont pas de dispersion et peuvent piéger les électrons ou les trous selon la valence relative de l'impureté et de l'élément dont elle a pris la place. Selon le cas, ces états sont des niveaux **accepteurs**, **donneurs** ou **profonds**.

Dans le GaAs, le manganèse est un accepteur noté A d'énergie de liaison environ $E_a^0 = 120 \pm 10 \text{meV}$ et de rayon de Bohr $r_B = 0.78 \text{nm}$ avec deux configurations électroniques, neutre A^0 , avec d^4 ou $(d^5 + h)$, ou ionisée A^- avec (d^5) . Les mesures de résonance paramagnétique électronique montrent que la forme $(d^5 + h)$, où d représente l'orbitale et h un trou, prédomine avec un facteur de Landé $g = 2.77$ [91] [53].

Le manganèse a une configuration électronique $4s^2 3d^5$ avec une sous couche 3d à demi pleine. La sous couche d est formée de cinq électrons dont le moment total j peut prendre les valeurs $\frac{3}{2}$ et $\frac{5}{2}$. Les électrons peuplant cette orbitale d sont localisés mais leur recouvrement peut augmenter avec la densité d'atomes de manganèse pour donner lieu à une bande. Ces électrons interagissent avec les électrons des orbitales s et p délocalisées et sont l'origine du ferromagnétisme.

Régime de dopage fort et délocalisation des niveaux d'impureté

Une concentration de manganèse moyennement élevée provoque le recouvrement des niveaux d'impuretés jusqu'alors localisés avec pour conséquence la formation d'une bande d'impuretés dans laquelle la conduction peut se faire par saut des trous localisés entre les différents sites. Pour une concentration de manganèse encore supérieure, la bande d'impuretés recouvre la bande de valence [35]. Ce changement d'un comportement isolant à un comportement métallique est une transition de phase. Cette thèse se place dans le régime de haute concentration de dopant et une forte altération de la structure de bande est supposée au moins au centre de la zone de Brillouin pour la bande de valence.

2.3 Le ferromagnétisme dans le (Ga,Mn)As

Le ferromagnétisme est issu de la proximité de moments magnétiques qui se couplent fortement. Les interactions magnétostatiques seules entre dipôles magnétiques n'expliquent pas l'amplitude du couplage mesuré dans les ferromagnétiques. L'interaction magnétique directe s'explique quantiquement à l'aide du champ électrostatique coulombien et d'arguments de symétrie dus à l'indiscernabilité des électrons.

L'interaction d'échange directe n'explique cependant pas le magnétisme à elle seule. Selon le système, un certain nombre de mécanismes d'échange indirects se mettent en place. Le magnétisme n'admet donc pas un cadre général et nécessite une description au cas par cas. Dans les semi-conducteurs magnétiques dilués, plusieurs mécanismes d'échange magnétiques indirects sont en compétition ; leurs natures dépendant du semi-conducteur. Les mécanismes d'échange indirects varient au sein d'un même semi-conducteur magnétique selon le régime de dopage en impuretés magnétiques et la position d'un système par rapport à la transition entre isolant et métal. Ceci explique en partie la disparité des résultats en ce qui concerne le (Ga,Mn)As.

Les mécanismes favorables au ferromagnétisme dans le (Ga,Mn)As mettent toujours en jeu une interaction entre spins des impuretés de manganèse et trous. La première approximation possible consiste à oublier les corrélations entre moments magnétiques ce qui constitue une approximation de champ moyen. Ceci est rapidement décrit dans la troisième partie.

Enfin, la symétrie du cristal impose des axes d'orientation de l'aimantation privilégiés en phase ferromagnétique appelé axes de facile aimantation. La dernière partie de cette section traite donc de l'anisotropie magnéto-cristalline.

Origine et description de l'interaction d'échange magnétique

Le ferromagnétisme est possible lorsqu'un ensemble de moments magnétiques, issus de moments cinétiques orbitaux et de spins, interagissent suffisamment pour s'aligner. D'après le théorème spin-statistique, l'état de deux fermions est impair par l'échange de position entre des particules identiques. Par conséquent, le produit entre les parties orbitale et de spin des fonction d'ondes peut être du type pair-impair ou impair-pair. La structure orbitale de la fonction d'onde influence donc le spin du système par ce biais [4]. L'interaction coulombienne entre deux fermions dans des états orbitaux différents double le terme d'énergie électrostatique en des termes direct et d'échange. Le terme d'échange lève la dégénérescence en fonction de la symétrie de la partie de spin et crée une interaction d'échange spin-spin expliquant l'amplitude des champs moléculaires de Weiss [105].

L'hamiltonien de Kondo (1.12) réduit une description difficile du terme d'échange en une interaction à deux spins et une intégrale de recouvrement des parties orbitales $J(\hat{\mathbf{r}})$.

$$H = -J(\hat{\mathbf{r}}) \hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2 \quad (1.12)$$

Une intégrale positive ou négative crée respectivement une interaction de type ferromagnétique ou anti ferromagnétique. Dans l'hamiltonien (1.12) le moment cinétique total du couple trou-impuretés de manganèse est un bon nombre quantique et prend les valeurs $j = 2, 3$ et $j = 1, 2, 3$ et 4 respectivement pour un couplage entre trous légers ou lourds de spin respectif $\frac{1}{2}$ ou $\frac{3}{2}$ et orbitales d de moment $\frac{5}{2}$ de l'atome de manganèse.

Les constantes d'échange des couplages sd et pd entre charges des bandes de conduction et de valence et orbitales d du manganèse sont respectivement positive et négative et valent $N_0 J_{sd} \simeq 0.09 \pm 0.03 \text{eV}$ [65] et $N_0 J_{pd} \simeq -1.2 \text{eV}$ [75] [90]. Le couplage H_{pd} avec

les trous lourds est antiferromagnétique et domine l'échange.

La forme du recouvrement dépend du système étudié. Le ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As a des origines différentes selon les mécanismes d'échange mis en jeu et dépend de la densité de porteurs et de manganèse.

Mécanismes d'échange magnétiques dans les (III,Mn)V

L'échange itinérant de Stoner, l'échange direct, le super-échange de Kramer, le double échange de Zener et l'interaction d'échange indirecte constituent quelques mécanismes d'échanges magnétiques. Parmi eux, seuls les trois derniers présentent une importance dans le cas de semi-conducteurs magnétiques dilué de type (III,Mn)V.

- **Le super échange de Kramer** agit entre deux atomes magnétiques séparés par un atome non magnétique. Un atome magnétique polarise l'atome non magnétique qui polarise à son tour le prochain atome magnétique. Ce processus est favorisé dans le (Ga,Mn)As lorsque la concentration de manganèse est élevée car il couple anti ferromagnétiquement les impuretés de manganèse voisines et réduit donc l'aimantation à saturation [3].
- **Le double échange de Zener** [108] [109] est issu du mécanisme de diffusion d'une charge entre des atomes magnétiques éloignés. Le spin de la charge couple par échange direct et véhicule le moment magnétique entre les impuretés tout en réalisant la conduction électrique. Dans les (III,Mn)As, ce processus domine dans un régime de basses concentrations de manganèse associée à un gap large.
- **L'échange cinétique de Zener ou échange indirect** est réalisé lorsque les moments magnétiques sont portés par des bandes de type d ou f localisées interagissant avec des bandes s ou p délocalisés [107]. Les orbitales d ou f et les orbitales s ou p peuvent coupler par interaction d'échange directe ou s'hybrider entre elles. La polarisation des électrons délocalisés assure la médiation de l'interaction d'échange entre sites voisins. Lorsque le couplage est faible, la théorie Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) peut être utilisé et le caractère ferromagnétique ou antiferromagnétique du couplage change avec la distance Mn-Mn. Pour un couplage fort, la distinction entre les bandes d ou f localisées et les bandes sp tend à s'effacer. Des bandes d'impuretés apparaissent et le système retourne dans un régime où le double échange de Zener domine.

Cette thèse porte sur des échantillons dont la concentration de Mn est de l'ordre de 7%. Pour une telle concentration, l'échange cinétique de Zener prédomine.

Théorie statique du champ moyen pour deux spins en interaction

Dans la phase paramagnétique, l'hamiltonien d'un spin dans un champ magnétique est donné par $\mathbf{H} = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B}$ avec $\boldsymbol{\mu} = \frac{gq}{2m} \mathbf{S}$. L'équation (1.13) donne la fonction de partition pour un spin en choisissant le système d'axe tel que \mathbf{B} se dirige selon (Oz). Dans celle-ci $\alpha = \frac{gq}{2m} \hbar B$ et $\beta = \frac{1}{k_B T}$ avec T la température et k_B la constante de Boltzmann.

$$z(\beta) = \frac{\sinh(\alpha\beta(s + \frac{1}{2}))}{\sinh(\frac{\alpha\beta}{2})} \quad (1.13)$$

L'équation (1.13) mène au calcul de la moyenne $\langle m_s \rangle$ de la projection du spin selon l'axe (Oz) dont le résultat est donné dans l'équation (1.14). Avec j et s les nombres quantiques magnétiques des impuretés et des porteurs respectivement, les grandeurs m_j et m_s sont les nombre magnétiques azimutaux et $B_s(X)$ est la fonction de Brillouin.

$$\langle m_s \rangle = -\frac{1}{\alpha} \frac{\partial \ln(z(\beta))}{\partial \beta} = sB_s(\alpha s) \quad (1.14)$$

Dans l'approximation du champ moyen, l'hamiltonien de Kondo donné par (1.12) se simplifie et se réduit à l'équation (1.15).

$$H = J_{pd}p \langle \mathbf{S} \rangle \cdot \mathbf{J} + J_{pd}\rho_{Mn}\mathbf{S} \cdot \langle \mathbf{J} \rangle \quad (1.15)$$

Ceci permet de poser $\alpha_1 = J_{pd} \langle \mathbf{S} \rangle$ et $\alpha_2 = J_{pd} \langle \mathbf{J} \rangle$ et de calculer les polarisations de spin moyennes des trous et des impuretés magnétiques dont le résultat est donné dans l'équation (1.16).

$$\begin{cases} \langle m_s \rangle = sB_s(\alpha_2 s) \\ \langle m_j \rangle = jB_j(\alpha_1 j) \end{cases} \quad (1.16)$$

Les équations (1.16) peuvent facilement être découplées ce qui est fait dans le système (1.17). Dans ce système, les inconnues sont les moyennes des polarisations de spin $\langle m_s \rangle$ et $\langle m_j \rangle$ pour les trous et les impuretés respectivement.

$$\langle m_j \rangle = jB_j(j s J_{pd} \beta p B_s(s J_{pd} \beta \rho_{Mn} \langle m_j \rangle)) \quad (1.17)$$

$$\langle m_s \rangle = sB_s(j s J_{pd} \beta \rho_{Mn} B_j(j J_{pd} \beta p \langle m_s \rangle)) \quad (1.18)$$

Le système (1.17) est non linéaire et n'a pas de solution analytique a priori. La résolution numérique est cependant facile à mettre en place et mène aux résultats présentés sur la figure (1.6). Ces résultats correspondent à la résolution du système (1.17) avec pour valeurs numériques $J_{pd} = 0.07396 \text{eV} \cdot \text{nm}^3$, $p = 0.11 \text{nm}^{-3}$ et $\rho_{Mn} = 1.5498 \text{nm}^{-3}$. La valeur de ρ_{Mn} est calculée pour une concentration de manganèse effective de 7% de atomes de Ga dans un cristal de GaAs. Pour simplifier, seul les trous lourds avec $s = \frac{3}{2}$ sont considérés. Cette hypothèse se justifie dans le cadre du (Ga,Mn)As pour des échantillons dont la contrainte biaxiale compressive est élevée comme représenté sur la figure 1.2 à droite. Dans ceux-ci, la forte levée de dégénérescence entre états de trous lourds et légers favorise l'existence de trous lourds au détriment des trous légers. Cette hypothèse trouve sa limite lorsque les amplitudes de levées de dégénérescence associées à la contrainte biaxiale et à l'aimantation deviennent comparables.

Ce modèle surestime la température de Curie T_c par rapport à la réalité. Dans cet exemple, les trous lourds ne possèdent qu'un degré de liberté associé à leur spin et leur dispersion est ignorée. Dans une structure de bande, la levée de dégénérescence de spin des trous mène à une redistribution de ceux-ci dans la bande de valence. L'aimantation spontanée est alors un phénomène d'ensemble lié au remplissage. Dans ce cas, la polarisation magnétique d'un trou résulte à la fois de l'interaction avec le champ magnétique

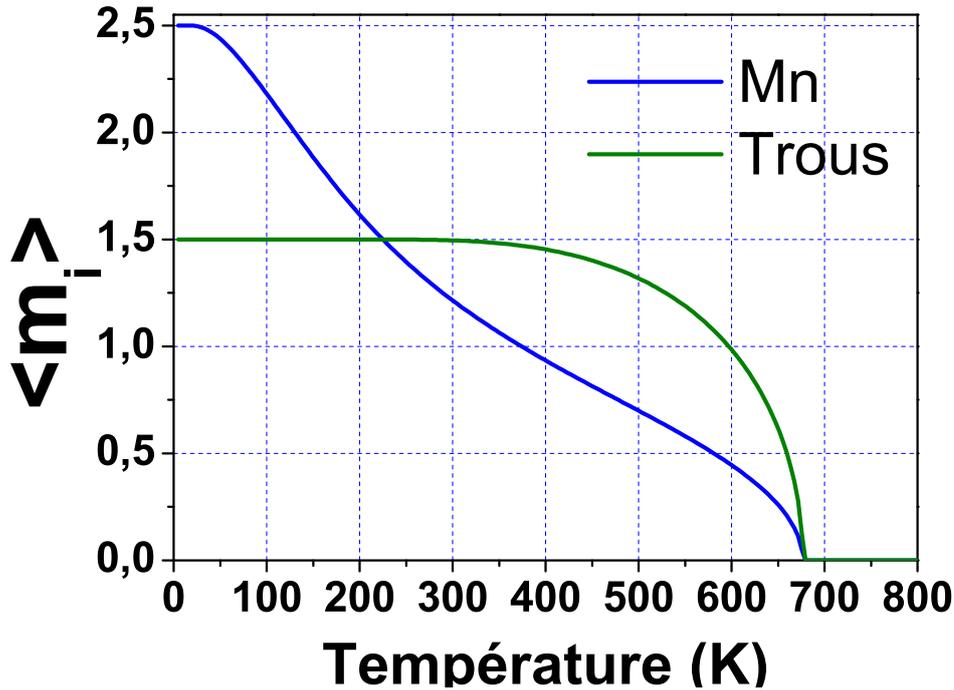


FIGURE 1.6 – Moyenne des projections de spin des trous lourds (courbe verte) et Mn (courbe bleue). La constante de couplage magnétique est $J_{pd} = 0.07396 \text{ eV} \cdot \text{nm}^3$. Les concentrations de trous lourds et de manganèse valent respectivement $p = 0.11 \text{ nm}^{-3}$ et $\rho_{Mn} = 1.5498 \text{ nm}^{-3}$. Les nombres quantiques associés aux spins des trous et des atomes de manganèse sont respectivement $s = \frac{3}{2}$ et $j = \frac{5}{2}$.

effectif des impuretés magnétiques et du gain d'énergie cinétique au cours de l'occupation d'un état de spin opposé à l'interaction magnétique. L'existence d'une dispersion et d'une possibilité de diminution de l'énergie cinétique totale du gaz de trous défavorise l'aimantation spontanée et explique partiellement la valeur trop importante de T_c sur la figure 1.6.

Ce modèle donne cependant un aperçu du comportement couplé des polarisations magnétiques des trous et impuretés. Ainsi ce résultat met en avant la dépolarisation magnétique plus facile des impuretés avec l'augmentation de température par rapport à celle des trous. Sur la figure (1.6), entre 0 et 300K, les impuretés magnétiques se dépolarisent tout en restant suffisamment polarisés pour saturer la polarisation magnétique des trous. Ceci s'explique par la plus forte densité d'impuretés. Au-delà de cette température, la dépolarisation des impuretés précipite la dépolarisation des trous d'où le changement de courbure et la chute rapide de l'aimantation dans les deux cas.

Ferromagnétisme en champ moyen et approximation de la masse effective

L'aimantation des impuretés magnétiques et la polarisation de spin des trous sont considérées indépendamment comme deux champs magnétiques moyens agissant l'un sur l'autre. Le modèle développé dans la section 1 peut être complété par un nouveau terme H_{pd} dans l'hamiltonien en utilisant la constante d'échange magnétique J_{pd} comme inva-

riant.

Anisotropie magnéto-cristalline du (Ga, Mn)As

Plusieurs études expérimentales et théoriques mettent en lumière les effets importants d'anisotropie magnéto-cristalline dans le (Ga,Mn)As. Les parties 1.2 et 2.2 ont traité de l'importance des contraintes biaxiales et du niveau de Fermi ϵ_F dans ces systèmes et cette partie s'intéresse à leur influence couplée.

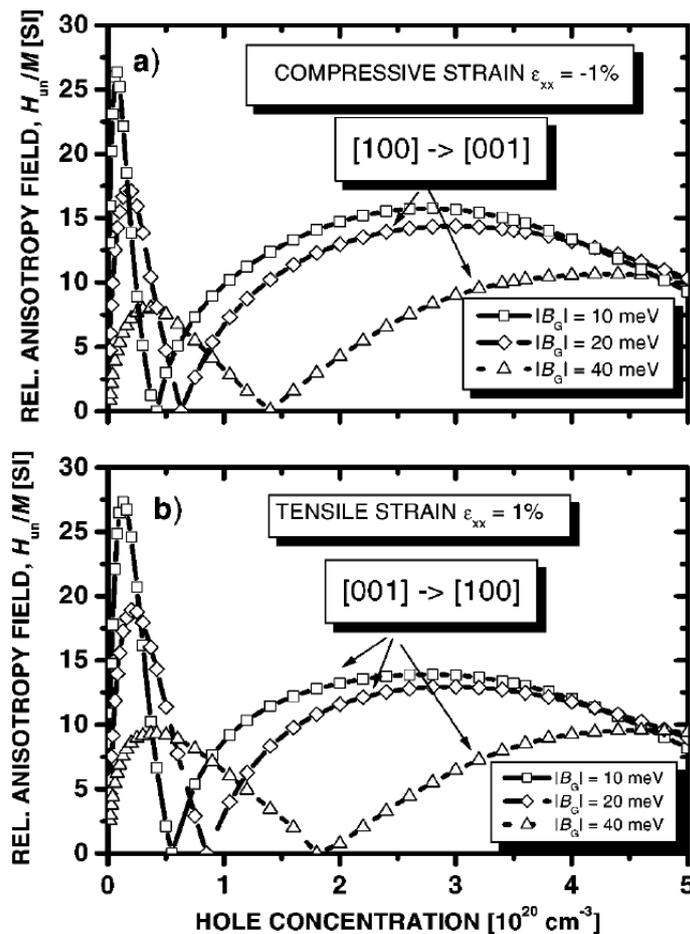


FIGURE 1.7 – Amplitude théorique d'anisotropie en fonction de la concentration en trous a) pour une couche en compression b) couche en tension. B_g est une constante de couplage entre les trous et l'aimantation moyenne. D'après T. Dietl et al. dans [16]

Les contraintes biaxiales imposées par le substrat lèvent la dégénérescence entre trous lourds et légers. La bande de trous lourds est plus énergétique que celle des trous légers pour une couche en compression. Le dopage induit par les atomes de manganèse remplit en priorité les bande de trous lourds dans les couches en compression et *vice et versa* pour les couches en tension. L'asymétrie de spin décrite par les fonctions d'onde (1.6) fait que, pour un trou de moment \mathbf{k} , une couche en compression aura une aimantation parallèle à \mathbf{k} alors qu'une couche en tension mettant en jeu des trous légers, aura une aimantation

perpendiculaire à \mathbf{k} .

L'anisotropie magnéto-cristalline dépend de ϵ_F pour le remplissage des bandes, de l'aimantation et de la contrainte pour le positionnement relatif des différentes bandes constitutives de la bande de valence et du quasi moment de Fermi k_f quand les niveaux en cause s'éloignent du point Γ . De plus, au travers de l'aimantation, la température T et le champ magnétique \mathbf{B} jouent un rôle prépondérant en agissant fortement sur l'aimantation et le repositionnement des bandes.

La théorie des invariants décrite en 1.2 peut être utilisée pour décrire le magnétisme dans les semi-conducteurs magnétiques dilués. Cette démarche a été réalisée en 2000 par T. Dietl *et al.* [17] [16]. La démarche consiste à calculer la structure de bande du (Ga,Mn)As puis d'imposer une certaine densité de trous. Selon l'amplitude du couplage magnétique, l'aimantation apparaît alors spontanément. L'aspect magnétique y est traité en champ moyen. Ceci permet de calculer l'évolution de l'aimantation en fonction des paramètres de base du problème et en particulier les effets de l'anisotropie en fonction de la densité de porteurs comme représenté sur la figure 1.7. Ce résultat met clairement en évidence que, selon le remplissage et les contraintes du substrat, les axes de facile aimantation, *i.e.* les axes d'équilibres du vecteur aimantation, changent.

Ce modèle donne de bons résultats et prédit une aimantation spontanée à 300K pour des densités de manganèse de 10%. En réalité, ceci ne se réalise jamais car l'augmentation de la densité de trous au cours de la croissance d'échantillons est limitée. Plus généralement, les conditions de croissances influent sur le peuplement de la bande interdite par des niveaux d'impuretés et mènent à un découplage souvent non contrôlé des densités de trous et de manganèse.

2.4 Conditions de croissance du (Ga,Mn)As

Une couche de GaAs monocristalline s'obtient par exemple en déposant des atomes de gallium et d'arsenic sur un substrat adapté par épitaxie à jet moléculaire à $T \sim 600^\circ C$. Le choix du substrat et l'épaisseur du dépôt influence la structure de bande du système et, en conséquence, les propriétés de relaxation des charges. Une couche de GaAs est un bon substrat pour faire croître du (Ga, Mn)As sans dislocation. Ce dernier est obtenu par épitaxie à jet moléculaire basse température $T \sim 250^\circ C$. Ceci assure l'inclusion des atomes de manganèse en position gallium sans nucléation de MnAs mais abaisse la qualité des échantillons en étant à l'origine de défauts cristallographiques. Ces défauts sont à l'origine de nouveaux états quantiques dont l'énergie est dans la bande interdite.

La figure 1.8 représente la densité d'états locale de (Ga,Mn)As en fonction de la position sur une ligne le long de l'échantillon et de l'énergie. Le substrat de GaAs est mesuré en bas sur 200nm, celui-ci laisse apparaître une bande interdite libre de tout état d'impureté de environ 1.52eV. Après 200nm, la densité d'état du (Ga,Mn)As est représentée sur 80nm. Celle-ci montre toujours une bande interdite dont la taille a été renormalisée d'environ 100meV. La qualité de la bande interdite est fortement dégradée et laisse voir de nombreux états localisés principalement à 250meV au-dessus de la bande de valence et à 600meV sous la bande de conduction. A ces deux niveaux, les impuretés semblent alors

suffisamment étendues pour se recouvrir et commencer à former des bandes d'impuretés dans la bande interdite en bleu clair sur la figure.

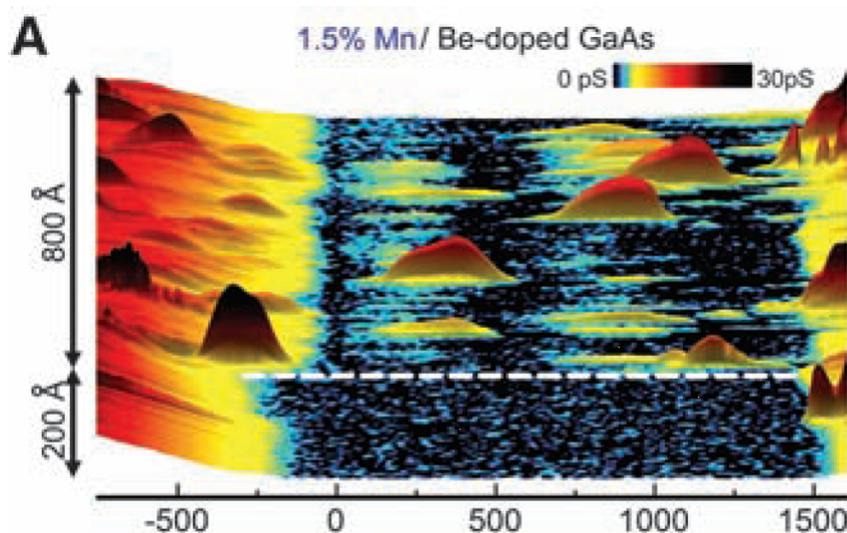


FIGURE 1.8 – Densité d'état locale obtenue par microscopie à effet tunnel sur du $Ga_{0.985}Mn_{0.015}As$ avec substrat de GaAs dopé par du béryllium. Il s'agit d'un dopage par modulation dans le but de contrôler la densité de trous dans $(Ga,Mn)As$. L'abscisse est la différence de potentiel entre la pointe et l'échantillon normalisée et donne l'énergie dans la première zone de Brillouin. L'ordonnée est une dimension spatiale.

Trois principaux types de défaut peuvent apparaître dans le $(Ga, Mn) As$: les As_{Ga} , les Mn_I et les Mn_{II} . Ces deux dernières correspondent à des impuretés de manganèse en position interstitielle à deux niveaux dans la maille du système comme décrit sur la figure 1.9. Enfin, il peut exister en petite quantité des lacunes de gallium V_{Ga} et d'arsenic V_{As} aillant peu d'effet sur les propriétés optiques et magnétiques du $(Ga,Mn)As$ et qui ne seront pas discutées ici [54].

Les antisites d'arsenic

Certains atomes d'arsenic prennent la position d'atomes de gallium lors de la croissance du GaAs par épitaxie à jets moléculaires. Ces défauts s'appellent des antisites d'arsenic et se notent As_{Ga} . Lorsque la croissance s'effectue sur un substrat à $600^\circ C$, la désorption des atomes d'arsenic au cours même de la croissance empêche une incorporation excessive de ces défauts. Pour une croissance à $250^\circ C$ à basse température, le rapport stœchiométrique entre l'As et le Ga n'est plus respecté et les As sont incorporés en excès. La concentration d' As_{Ga} peut atteindre jusqu'à $10^{20} cm^{-3}$ et peut être contrôlée dans le GaAs non dopé par le temps de recuit.

Les As_{Ga} sont des défauts doublement donneurs profonds, les énergies de première et seconde ionisation étant de $0.52 eV$ et $0.75 eV$ respectivement. Leur incorporation compense

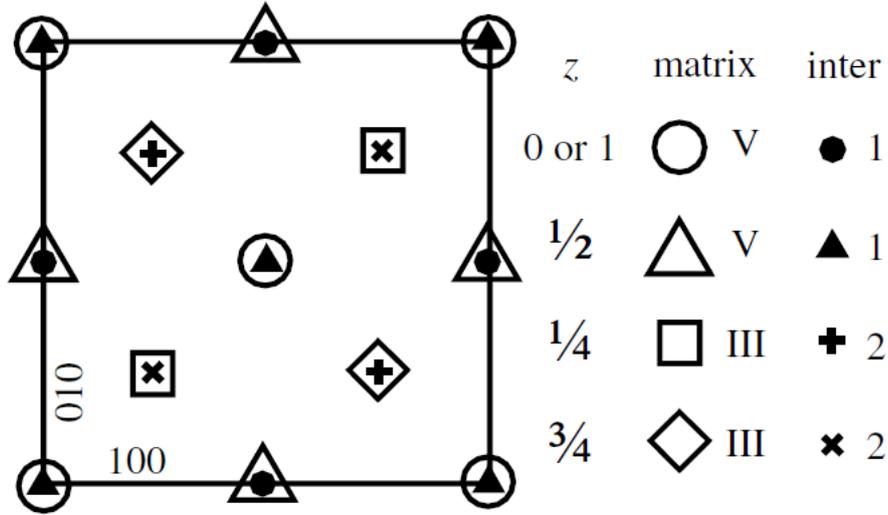


FIGURE 1.9 – Positions des atomes gallium, d'arsenic et de manganèses interstitiels de type 1 et 2 dans la structure de la blende de maille cubique à faces centrées selon F . Glas et al. [24]. Dans les trois colonnes de droite, la première est la position hors du plan, la seconde donne la position des éléments de valence V et III et la dernière celle des impuretés de type 1 et 2.

la dopage induit par les Mn_{Ga} et diminue la concentration de trous libres et donc la température de Curie de l'échantillon.

Il est possible de faire désorber ces défauts par recuit à des température de plus de $400^{\circ}C$ [49]. Cependant cette gamme de température est suffisante pour faire décroître la qualité des échantillons de $(Ga,Mn)As$ en favorisant la nucléation et la précipitation d'agrégats de $MnAs$. Ainsi la maîtrise de la concentration d' As_{Ga} ne peut se faire qu'au travers d'un choix pertinent des paramètres de croissance à savoir un faible rapport de flux $\frac{As}{Ga}$ associé à une température de croissance basse.

Les Mn_I et Mn_{II}

Lors de la croissance basse température du $(Ga,Mn)As$, les atomes de manganèse ne prennent pas tous la position d'un Ga et se placent parfois en position interstitielle. Dans la maille, deux positions interstitielles non équivalentes existent et sont représentées sur 1.9.

D'une part, les atomes de manganèse en position interstitielle sont des défauts doubles donneurs. Ils compensent le dopage p des Mn_{Ga} de la même façon que les As_{Ga} . D'autre part, leur charge ionique opposée à celle des Mn_{Ga} , les poussent à former des paires de spin gelées avec ces derniers. Les atomes de manganèse en position interstitielle constituent donc un énorme inconvénient du $(Ga,Mn)As$. Ils diminuent fortement la température de Curie diminuant le dopage et l'aimantation en bloquant les spins des Mn_{Ga} . Lors de la croissance à basse température, cette compensation peut atteindre 70%.

Une énergie de Fermi faible durant la croissance favorise l'apparition des défauts discutés. Plus le dopage est élevé et plus le phénomène de compensation sera important. Ainsi,

pour une concentration de Mn_{Ga} suffisamment importante, la compensation sera équivalente au dopage et le niveau de Fermi atteindra une position limite ϵ_F^{min} . *Finalement, la densité de trous participant à l'aimantation dépendra de la concentration de manganèse mais aussi très fortement des conditions de croissance et du recuit post-croissance.*

Les Mn_{Ga} diffusent à la surface avec une énergie d'activation de 0.7eV [18].

L'équation (1.19) encadre les densités de porteurs et de moments magnétiques en fonction des concentrations de Mn_{Ga} notée x_{Ga} et de défauts Mn_{I} et Mn_{II} notés respectivement x_{MnI} et x_{MnII} .

$$\begin{cases} p = x_{\text{MnGa}} - 2(x_{\text{MnI}} + x_{\text{MnII}} + x_{\text{AsGa}}) \\ S_{\text{Mn}} \times (x_{\text{MnGa}} - x_{\text{MnI}} - x_{\text{MnII}}) < S_{\text{tot}} < S_{\text{Mn}} \times x_{\text{MnGa}} \end{cases} \quad (1.19)$$

3 Propriétés optiques du (Ga,Mn)As et aimantation

Les propriétés optiques des semi-conducteurs cristallins sont dominées par leur densité d'état et le remplissage de ces niveaux et par les règles de sélections optiques. D'une part, les semi-conducteurs magnétiques dilués héritent de la structure optique du semi-conducteur hôte. D'autre part, ils présentent des caractéristiques optiques particulières reliées à la possibilité d'une phase ferromagnétique et à la présence d'un grand nombre d'impuretés et de défauts cristallins.

3.1 Propriétés optiques du GaAs

Le remplissage des bandes des semi-conducteurs les différencie optiquement des métaux par l'impossibilité de réaliser efficacement des transitions intra-bandes, donnant une très bonne visibilité optique de la bande interdite, et par des règles de sélection très bien définies en $k = 0$.

Le paramètre de maille du GaAs intrinsèque cristallin est $a = 0.565\text{nm}$, bien en dessous des 400nm de longueur d'onde minimale de la lumière visible. D'une part, ceci permet d'appliquer l'approximation dipolaire qui consiste à supposer un champ électrique uniforme dans chaque maille du GaAs. D'autre part, la quantité de mouvement d'un quantum d'excitation lumineuse est très inférieure au quasi moment des électrons et les transitions optiques inter-bandes au premier ordre se font entre états électroniques de même \mathbf{k} .

Au point Γ , les états quantiques ont la même symétrie que dans le cas d'un problème atomique et les règles de sélection découlent du recouvrement des harmoniques sphériques.

Les transitions induites par un champ électrique polarisé linéairement de pulsation ω relient un état d'énergie E_n à un état d'énergie $E_n + \hbar\omega$ avec un changement de parité telle que $l_{\text{fin}} = l_{\text{ini}} \pm 1$ ou l est le nombre quantique azimutal et le nombre quantique magnétique orbital $\Delta m = \pm 1$. Les états de symétrie p sont donc optiquement couplés aux états de symétrie s et d. Dans le cas d'un semi-conducteur magnétique, les transitions lumineuses impliquent aussi bien les bandes de valence et de conduction que les bandes

de valence et états localisés d.

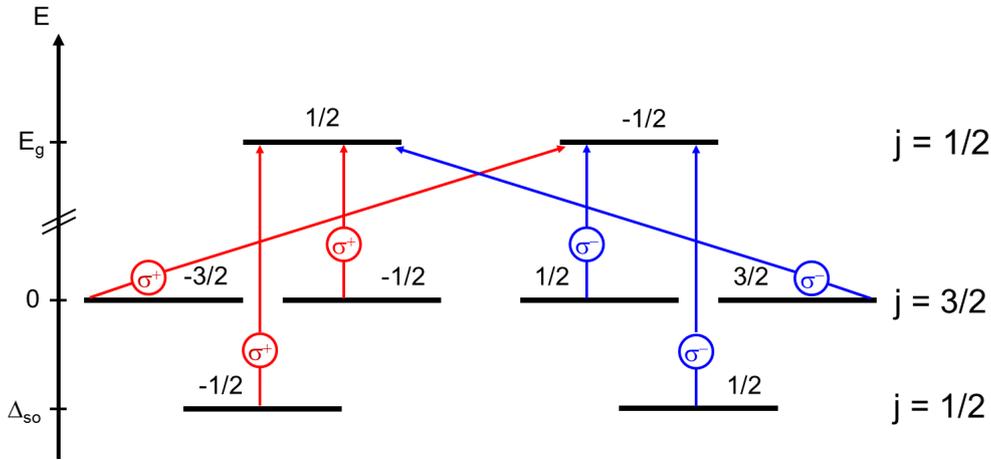


FIGURE 1.10 – Règles de sélection optiques pour $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. j est le moment angulaire de l'électron. La position des états est prise pour un semi-conducteur de symétrie T_d avec une interaction spin-orbite représentée par la levée de dégénérescence Δ_{so} . Les flèches représentent des transitions optiques permises de polarisations circulaires opposées. L'hélicité vaut -1 en bleu et $+1$ en rouge. En ordonnée l'axe des énergies.

La figure 1.10 montre les transitions possibles en fonction de la polarisation circulaire de la lumière. Celle-ci couple les états de moment cinétique orbital différents entre eux. Enfin, l'interaction spin-orbite permet une manipulation optique du spin des charges. Le moment cinétique total est conservé au cours d'une transition optique.

La levée de dégénérescence des niveaux au moyen d'un champ magnétique ou de contrainte permet de discriminer trous lourds et trous légers et donc de photo-créeer des paires électrons-trous de pseudo spins prédéterminés. Le (Ga,Mn)As est donc source d'effets de polarisation circulaire importants. De plus, son état d'aimantation doit être sensible à la polarisation d'une onde électromagnétique incidente.

3.2 Influence de l'état magnétique sur les propriétés optiques de (Ga,Mn)As

La figure 1.11 présente l'absorption de deux échantillons de (Ga,Mn)As dans un régime de concentrations d'impuretés élevées. Cette figure met clairement en avant la relation entre les règles de sélection optiques et le spectre d'absorption en montrant le décalage spectral dans l'absorption des deux polarisations circulaires de la lumière. Ce décalage spectral est directement lié à la levée de dégénérescence des niveaux de la bande de valence et de la bande de conduction.

Ce résultat montre un pic d'absorption supplémentaire, par rapport à celle du GaAs, à une énergie de 1.4eV en dessous de l'énergie de la bande interdite. Cette absorption est reliée aux transitions optiques d'électrons depuis la bande de valence vers des niveaux localisés dans la bande interdite du GaAs. Etant donnée l'énergie de la transition, ces

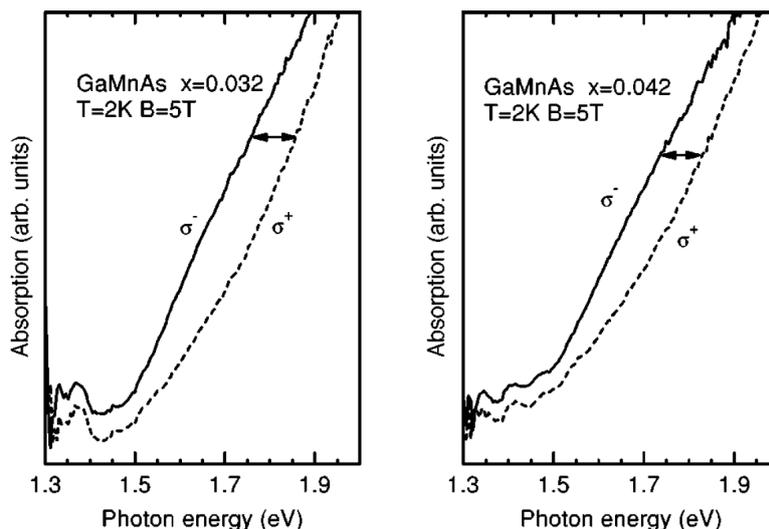


FIGURE 1.11 – Bord d'absorption de couches de $2\mu\text{m}$ de $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ en fonction de la polarisation de la lumière incidente pour deux échantillons en phase ferromagnétique d'après [90]. L'absorption est en ordonnée. L'abscisse est l'énergie de la lumière incidente. Les lignes pleines et pointillées sont les spectres d'absorption de la lumière polarisée σ^- et σ^+ respectivement.

niveaux sont associés à la présence d'impuretés d' As_{Ga} .

La figure 1.12 rapporte une comparaison entre le signal de dichroïsme circulaire et d'aimantation réalisée par Komori *et al.*. Cette figure montre que l'allure du signal associé à l'aimantation en fonction de la température et du champ magnétique extérieur appliqué reproduit très bien le signal de dichroïsme circulaire à 1.73eV . Ceci plaide en faveur d'une origine magnétique des effets de polarimétrie circulaire.

Par la suite, il est supposé que *le dichroïsme circulaire et l'aimantation présentent une dépendance identique en fonction du champ magnétique et de la température.*

3.3 Contrôle optique de l'aimantation dans $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$

D'autres études présentent l'importance de la densité de trous dans le ferromagnétisme [58] et révèlent l'éventualité d'un contrôle optique de l'aimantation, rapidement réalisé, par injection optique polarisée en spin [73].

Sur la figure 1.13, la résistance de Hall est représentative de l'état magnétique. L'expérience dont les résultats sont présentés sur cette figure démontre la possibilité d'un contrôle optique de l'état magnétique. Une analyse plus attentive de la figure 1.13 montre que les valeurs de la résistance de Hall avant et après illumination ne sont pas les mêmes et donc que la lumière polarisée change l'aimantation de manière permanente.

Dynamiquement, cela place le $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ dans les domaines de recherche sur la dynamique de spin et le femtomagnétisme car ses particularités de semi-conducteur permettent

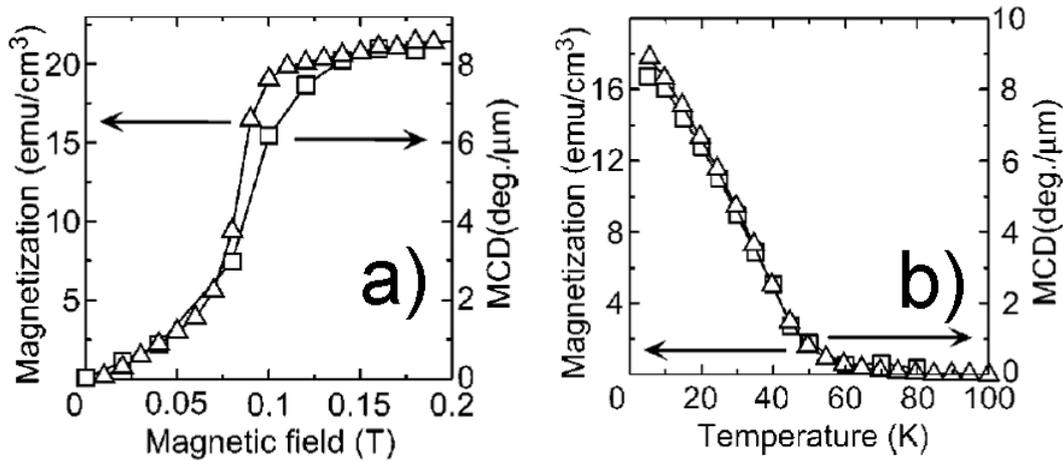


FIGURE 1.12 – Comparaison entre aimantation moyenne (triangle et échelle de gauche) obtenue par magnétométrie SQUID et dichroïsme circulaire (carré et échelle de droite) à 1.73eV dans un échantillon de $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ avec $x \simeq 2\%$ d'après [46]. a) Cycle d'hystérésis réalisé à $T=5\text{K}$ b) Aimantation en fonction de la température. Le champ magnétique appliqué est de 0.2T .

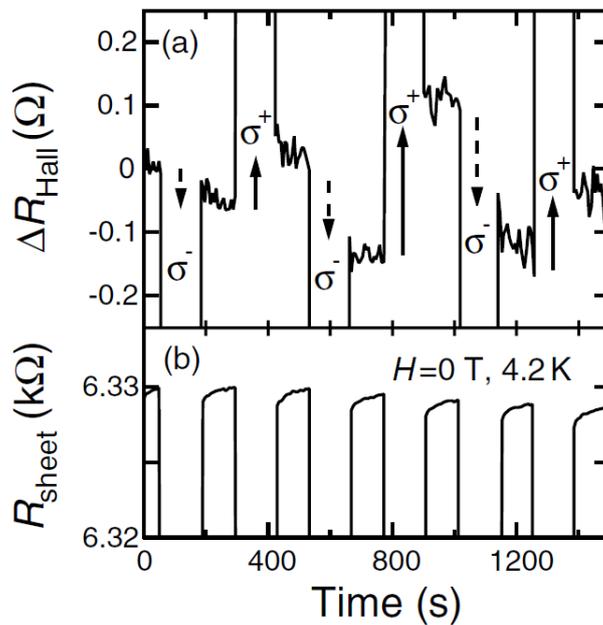


FIGURE 1.13 – a) Variation de résistance Hall en fonction du temps. Plusieurs excitations optiques de polarisations circulaires différentes sont appliquées et indiquées par des flèches sur la figure. b) Résistance de l'échantillon en fonction du temps. D'après le travail de A. Oiwa et al. [72]

de contrôler l'aimantation par une injection optique de spin. En d'autres termes, les règles de sélection des semi-conducteurs offrent la possibilité de réaliser un contrôle optique non thermal de l'aimantation dans les semi-conducteurs magnétiques dilués.

4 Dynamique de charges dans le GaAs

La dynamique d'un système peut s'étudier optiquement par des expériences dites « pompe sonde » dont le principe est expliqué dans le chapitre 3. L'étude des variations des coefficients de transmission et de réflexion en fonction du temps informe sur la dynamique des charges. L'étude de l'évolution de la biréfringence et du dichroïsme linéaire avec le temps informe sur la dynamique de l'aimantation.

Dans un schéma à un électron, comme représenté sur la figure 1.14, l'excitation optique fait transiter verticalement des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction. Après excitation, l'interaction de chaque charge avec son environnement provoque décohérence et redistribution dans les niveaux d'énergie et de spin. Ces interactions sont des processus de diffusion entre quasi-particules caractérisés par le temps moyen entre deux diffusions dépendant à la fois de la densité de quasi-particules et du potentiel d'interaction. Chaque processus de diffusion est donc caractérisé par une échelle de temps sur laquelle se fait la redistribution des quasi particules impliquées.

4.1 Processus d'interaction entre charges et régime de relaxation

L'approximation de la masse effective, décrite dans la section 1, présente les électrons et trous comme des quasi particules libres. Dans un solide, les électrons, les trous et les phonons sont décrits comme un gaz de quasi-particules en collision échangeant de l'énergie, du moment et de la quantité de mouvement. Hors équilibre, ceci mène à la création et la redistribution des quasi particules dans les niveaux énergétiques avec une certaine dynamique. Pour le GaAs, qui est un cristal polaire, ces quasi particules sont les électrons, les trous et les phonons acoustiques et optiques comme le montre la figure 1.15 sur laquelle la branche optique se distingue nettement.

Les expériences réalisées sur les semi-conducteurs, dont le GaAs, depuis les années 1970 ont permis de déterminer quatre régimes de relaxation entre 0ps et quelques nanosecondes après une excitation optique ultracourte : le régime cohérent, non-thermal, des porteurs chauds et isothermal [85]. Parmi eux, seul les trois derniers se déroulent au-delà de la picoseconde et nécessitent d'être décrits pour la suite de ce travail.

La figure 1.14 a) présente schématiquement l'injection optique de charges à $t \sim 0$ ps que crée l'impulsion laser ultracourte à $t \sim 0$ ps et qui sort le système de son état d'équilibre.

Le régime athermal

Après 200fs, le régime cohérent s'achève. Entre 0ps et 2ps environ, le système est hors équilibre et le taux d'occupation des bandes de conduction et de valence n'est pas une distribution de Fermi-Dirac [76]. La température quasi-statique n'est définie pour aucun sous-système de quasi particules, *i.e. principalement phonons et charges*, et le régime est dit athermal. Celui-ci est dominé par les processus physiques qui redistribuent les charges dans les bandes de conduction et de valence. Ce régime prend fin lorsqu'une température

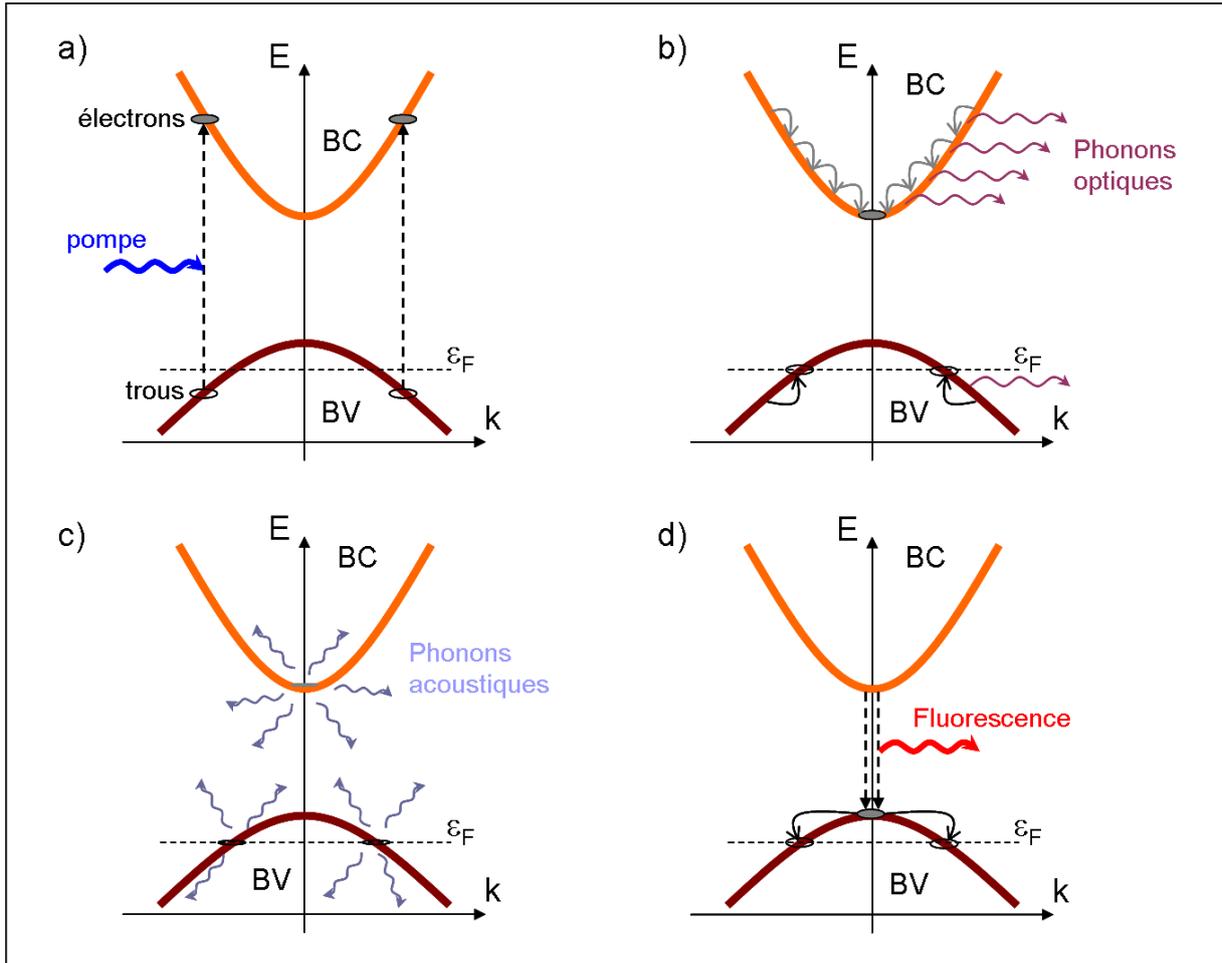


FIGURE 1.14 – Représentation schématique de l'évolution des porteurs dans les bandes de valence (en brun) et de conduction (en orange) après excitation pour la pompe. ϵ_F est le niveau de Fermi, k le quasi moment et E l'énergie. Les gaz d'électrons et de trous sont les taches grises et transparentes respectivement. a) $t = 0ps$, des électrons passent de la bande de valence à la bande de conduction sous l'action de la pompe. b) $t \simeq 7ps$, les charges émettent des phonons optiques pour rejoindre le centre de la bande de conduction (électrons) et le niveau de Fermi (trous). c) $t \simeq \tau_{th}$, les gaz de porteurs chauds refroidissent en réchauffant le réseau. d) $t \simeq \tau_{rec}$, les charges libres photo créées disparaissent, le système retourne à l'équilibre.

est définie pour les systèmes de charge.

Durant ce régime et pour les régime d'excitation fort, les processus de thermalisation les plus rapides sont dus aux collisions entre charges [52] [51]. Celles-ci peuvent se faire entre charges identiques ou entre trous et électrons et mènent à l'établissement de températures pour les sous-systèmes de charge. Ceci se produit graduellement avec une thermalisation au sein des bandes, d'abord de valence (collision trou-trou) [97] et puis de conduction (collision électron-électron) et enfin entre les bandes (collisions électron-trou). Parallèlement se produit une émission de phonons optiques. Ceci diminue l'énergie totale des charges au profit de celle du réseau et réduit donc la température des charges.

Pour des densités d'excitation optique plus faibles, la probabilité de collision entre charges décroît et seules les collisions entre charges et phonons optiques participent au processus de thermalisation. La figure 1.15 montre la dispersion des phonons dans GaAs où les phonons optiques correspondent aux bandes supérieures de faible dispersion. Ceci montre que les phonons optiques ne peuvent pas être émis par des charges dont l'excès d'énergie est inférieur à une certaine valeur qui est de 36meV pour le GaAs. Les charges relaxent alors en cascade comme représenté sur la figure 1.14 b) en émettant des phonons optiques ce qui est vu en photoluminescence comme des pics d'émission séparés d'une énergie de 36meV. Ce mode de relaxation s'appelle une « cascade à phonons ».

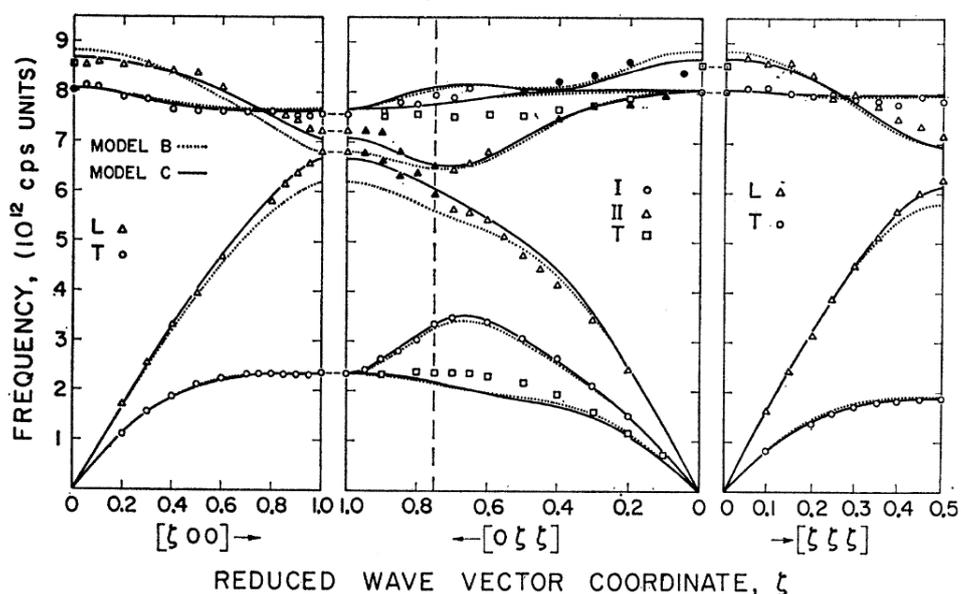


FIGURE 1.15 – Dispersion des phonons dans le GaAs à 10K d'après [104]. Les points présentent des données expérimentales et les traits des données théoriques.

Lorsque les phonons optiques sont en nombre trop important, la probabilité de collisions entre charge et phonons optiques augmente et ceux-ci sont susceptibles de restituer leur énergie aux charges. Ce phénomène augmente le temps de relaxation de l'énergie des charges et s'appelle *l'effet de phonons chauds* [99].

La figure 1.16 représente l'occupation du centre la première zone après une excitation optique plus énergétique que la valeur de la bande interdite avant et après le régime athermal. Celui-ci se définit donc très bien par le temps d'établissement du quasi équilibre entre charges.

Le régime des porteurs chauds

Entre quelques picosecondes et 100ps, les gaz chauds de charges se refroidissent au profit du réseau qui se réchauffe [86]. Durant ce régime, les charges ont une température supérieure à celle du réseau d'où le nom de *régime de porteurs chauds*.

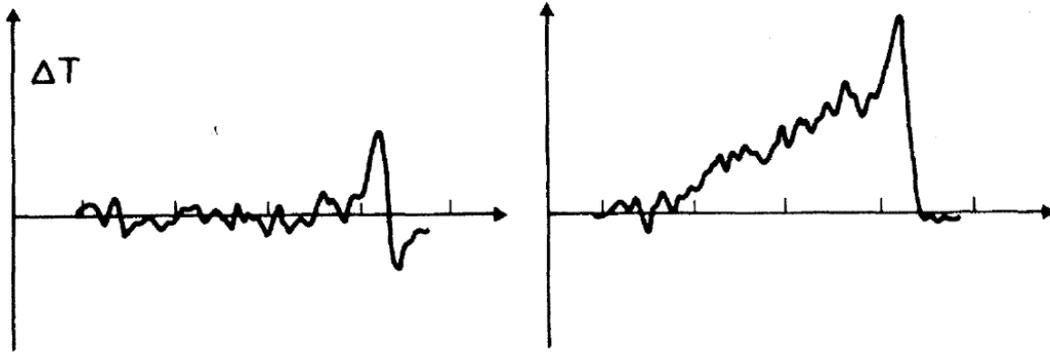


FIGURE 1.16 – Variation de transmission ΔT de GaAs massif au voisinage du gap à 1ps (à gauche) et 12ps (à droite) après une excitation optique d'énergie supérieure au gap. L'abscisse présente l'énergie de l'impulsion de sonde au voisinage du gap. L'ordonnée est la variation différentielle de transmission. Cette mesure a été effectuée par Shank et al. et est présentée dans la référence [87]

Ce régime se caractérise par une augmentation de la population de phonons acoustiques. D'une part, le contenu de la branche optique se vide dans la branche acoustique et, d'autre part, les charges refroidissent par collisions avec les phonons acoustiques comme cela est représenté sur la figure 1.14 c).

Le régime de porteurs chauds ne s'identifie pas avec la dynamique de réchauffement du gaz de phonons acoustiques puisque le refroidissement des charges se fait aussi par émission de phonons optiques hors effet de cascade à phonons. Au vu de la relation de dispersion de la figure 1.15, le refroidissement par émission de phonons optiques est possible tant que $k_B T > 36\text{meV}$. Le temps moyen d'émission de phonons optiques étant estimé entre 165fs et 190fs, le refroidissement se fait donc d'abord rapidement puis se ralentit brusquement.

Dans cette discussion, les températures des gaz de charges et de phonons acoustiques sont différentes et s'égalisent progressivement. Cependant, la différence de capacité calorifique fait que le réchauffement du réseau est faible devant l'échauffement initial du gaz de charges.

Le régime de porteur chauds prend fin lorsque le gaz de phonons acoustiques a la même température que le gaz de charges.

Le régime isothermal

Après 100ps, tous les sous-systèmes de quasi particules ont la même température. Dans ce régime, le système doit se mettre en équilibre avec le réservoir extérieur de photons. Les couples électrons-trous interagissent avec le champ électromagnétique et émettent des photons par un processus appelé recombinaison. Le nombre de paires électrons-trous

en excès diminue jusqu'à ce que le potentiel chimique ait retrouvé sa valeur initiale. Les règles de sélection optique imposent l'annihilation d'un électron avec un trou de même quasi-moment \mathbf{k} .

La description de la relaxation faite jusqu'à présent implique l'utilisation de GaAs massif parfaitement cristallin. Le changement de dimensionnalité et les défauts cristallins peuvent provoquer des changements dans le schéma de relaxation.

4.2 Effet des défauts cristallins sur la dynamique

La partie 2.4 explique que la croissance de (Ga,Mn)As entraîne des défauts cristallins contribuant éventuellement à la dynamique. Le (Ga,Mn)As présente des conditions de croissance similaires à celle du GaAs à basse température ou LT-GaAs. Les deux ont en commun une concentration importante de As_{Ga} ce qui pousse à la comparaison.

Dynamique de charge dans le GaAs basse température : rôle des As_{Ga}

Le LT-GaAs présente un terrain idéal pour isoler les contributions des As_{Ga} à la dynamique optique. La concentration de As_{Ga} influence fortement la dynamique des électrons après une injection optique [89] en les piégeant dans les niveaux d'impuretés du As_{Ga} ce qui est l'origine de la dynamique ultra rapide de la transmission différentielle de LT-GaAs [54] [84] [89] [88] [6] [80]. Dans LT-GaAs, il a été montré que les temps et température de recuit permettent de contrôler la densité de As_{Ga} et conséquemment le temps de vie des électrons dans la bande de conduction. Ce temps dépend du couplage des électrons avec les niveaux d'impuretés et des densités relatives d'états pièges et d'électrons. Le (Ga,Mn)As et le LT-GaAs ayant en commun une grande densité de porteurs, il est naturel de comparer leurs dynamiques de piégeage des électrons [42].

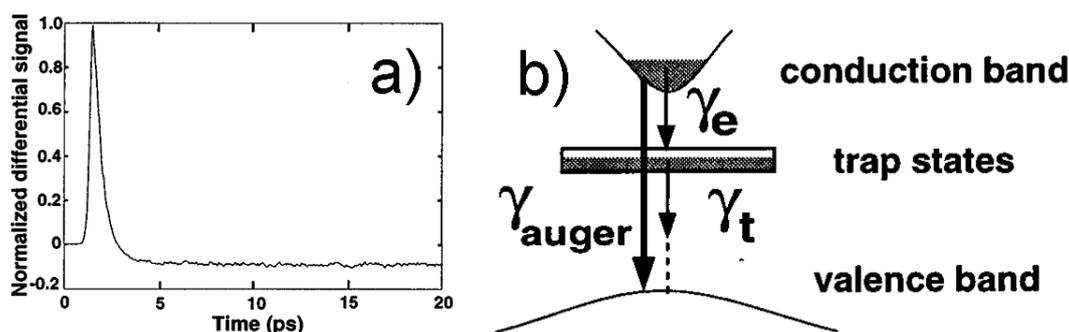


FIGURE 1.17 – *Dynamique de transmission après une excitation optique de $1.5eV$ et une détection à la même énergie. a) Transmission différentielle en fonction du temps b) Schéma de niveaux. D'après T.S. Sosnowski [89].*

La figure 1.17 a) présente une courbe de transmission différentielle dans laquelle une contribution ultra rapide est attribuée au mécanisme de piégeage électronique. La dynamique de la transmission commence par une transparence induite par la saturation de l'absorption due à l'excitation lumineuse. Le signal décroît ensuite au cours du piégeage sur les As_{Ga} . Ce temps de décroissance informe sur le temps de piégeage. La transmission

différentielle négative consécutive s'explique par l'absorption induite entre niveaux pièges et bande de conduction. Le signal de transmission négative décroît ensuite lorsque les niveaux pièges optiquement actifs se vident ce qui est non représenté sur la courbe.

Malgré les points communs au niveau de la concentration de As_{Ga} , de grosses différences existent entre LT-GaAs et (Ga,Mn)As. A l'équilibre, le LT-GaAs a des électrons dans sa bande de conduction alors que la compensation dans (Ga,Mn)As met des trous dans sa bande de valence. Ceci peut clairement créer une différence de relaxation entre charges de même type entre les deux systèmes. Enfin la présence de bande d'impuretés associées au manganèse laisse supposer de nouveaux canaux pour le dépiégeage des électrons.

5 Dynamique de l'aimantation à l'échelle de la picoseconde

E. Beaupaire *et al.* ont montré la possibilité d'une désaimantation ultra rapide en 1996 [5]. La figure 1.18 est célèbre pour marquer le début de l'étude de la dynamique d'aimantation à l'échelle sub-picoseconde. Bien que celle-ci concerne un film métallique de nickel, l'aspect essentiellement thermique des phénomènes décrits à cette échelle de temps présente des similarités avec le cas des semi-conducteurs magnétiques. Dans la discussion suivante, la dynamique d'aimantation ultra-rapide du nickel est prise comme base pour expliquer la désaimantation ultra-rapide et les effets thermiques dans les cristaux inorganique magnétiques. La partie suivante concerne ensuite plus spécifiquement le cas du (Ga,Mn)As qui est l'objet de l'étude. Enfin, la dernière partie s'intéresse à la précession de l'aimantation dans le (Ga,Mn)As.

5.1 Dynamique de thermalisation et de refroidissement des charges

La dynamique de l'aimantation rémanente présentée sur la figure 1.18 est la conséquence d'une dynamique électronique décrite dans cette section.

L'impulsion lumineuse de 60fs crée une distribution athermale d'électrons à $t \simeq 0ps$. Celle-ci se superpose à la distribution thermique déjà existante. Toute deux relaxent vers une distribution thermique électronique plus chaude par des collisions entre électrons en environ 260fs. Au-delà de la phase de thermalisation, les électrons constituent une distribution de Fermi-Dirac d'électrons dont la température est supérieure à celle du réseau. Dans un métal paramagnétique ou diamagnétique, les électrons relaxeraient leur énergie thermique vers le réseau et la relaxation se décrirait par un modèle à deux températures *i.e.* celles des électrons et du réseau. Dans le cas du métal ferromagnétique, l'ensemble des spins du système est un nouveau réservoir auquel les électrons peuvent donner leur énergie. La dynamique d'un métal ferromagnétique se décrit alors par une approche à trois températures : celles des électrons en tant que charges, en tant que spins et celle des phonons. La désaimantation est alors provoquée par le transfert d'énergie qui s'effectue entre la population chaude de charges thermalisées et les spins. Le réchauffement de l'ensemble des spins mène à une dépolarisation vue macroscopiquement comme une

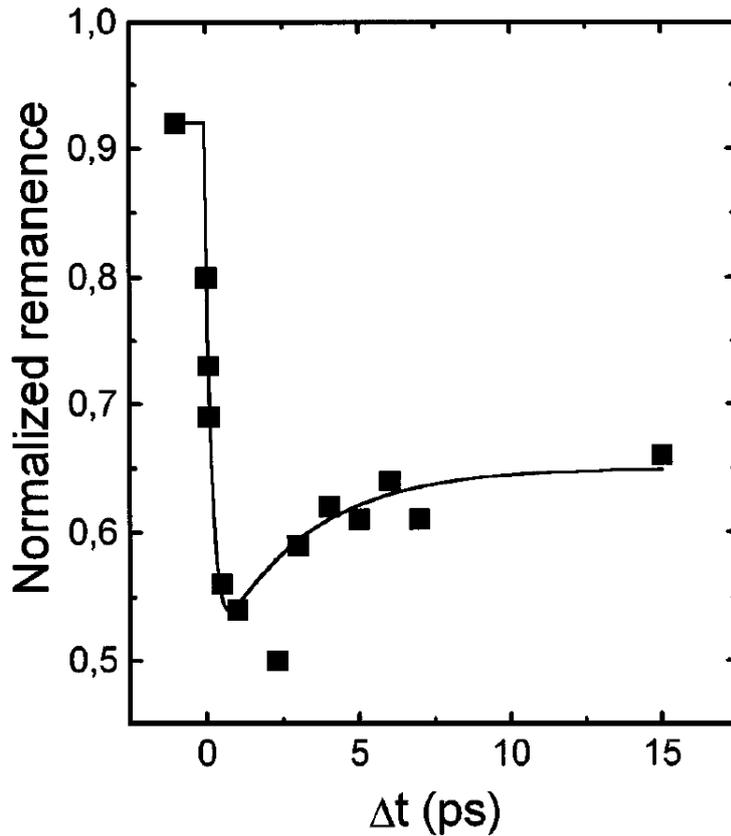


FIGURE 1.18 – Aimantation à rémanence d'un film de nickel de 22nm après une excitation optique par une impulsion lumineuse de durée 60fs avec une énergie surfacique moyenne de 7mJ.cm^{-2} . Les mesures se font entre 0ps et 15ps après l'excitation. Ce signal est renormalisé par rapport à la valeur de l'aimantation rémanente sans pompe. La mesure se fait en réflectivité à température ambiante et utilise l'effet Kerr magnéto-optique. Le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan d'incidence. [5]

désaimantation. La désaimantation ultra rapide est donc la signature d'au moins un mécanisme de transfert d'énergie et de moment angulaire couplant les charges au spins et la controverse porte alors sur l'origine de ce mécanisme et sur la conservation du moment angulaire au court du processus.

A l'instar du nickel, le (Ga,Mn)As ferromagnétique présente une dynamique de désaimantation sub-picoseconde reposant sur la dynamique des charges. Celles-ci sont alors des trous soumis aux mêmes effets thermiques que les métaux. Cependant, à la différence des métaux, le magnétisme de (Ga,Mn)As repose aussi sur l'existence d'atomes de manganèse en nombre supérieur. La valeur absolue de l'aimantation vue macroscopiquement repose essentiellement sur ces impuretés magnétiques et le rôle de médiateur de l'interaction joué par les trous donne un aspect non thermique supplémentaire à la dynamique de l'aimantation.

5.2 Étude optique de la dynamique de l'aimantation du (Ga,Mn)As

L'étude optique de la dynamique de (Ga,Mn)As est poussée par la motivation technologique qu'est le contrôle ultra-rapide de l'aimantation. L'étude du (Ga,Mn)As revêt cependant un caractère plus fondamental qui réside dans ses différences avec les métaux. La polarisation des trous peut être contrôlée optiquement au moyen de la polarisation lumineuse incidente de la perturbation optique ultra rapide et des règles de sélection optiques propres aux semi-conducteurs. Ceci ouvre la voie à la possibilité de contrôler l'aimantation sans échauffement.

Chronologiquement, les premières expériences de dynamique dans (Ga,Mn)As ont été réalisées en 1999 [37]. Étonnamment, une couche de (Ga,Mn)As, de dynamique inconnue, est alors associée à du GaAs pour un travail portant sur l'action du magnétisme sur le spin des noyaux. À partir de 2004, la littérature fait référence à des expériences plus complètes s'intéressant à la dynamique d'aimantation dans le (Ga,Mn)As [74] [36] [59].

Majoritairement, les expériences réalisées jusqu'à présent dans ce domaine sont des études de l'effet Kerr magnéto-optique dépendant du temps en fonction de la densité de trous et de manganèse, de la température, du champ magnétique appliqué et de la taille de confinement. La résolution spectrale fait souvent défaut et les études dynamique plus « classiques » telles que la réflectivité et la transmission dépendantes du temps aussi.

Schéma général de la dynamique des charges dans (Ga,Mn)As

Une étude optique de la dynamique d'aimantation dans (In,Mn)As et (Ga,Mn)As a été réalisée par J.Wang *et al.* entre 2007 et 2009 [102] [103] [100] [101] [12]. Dans ces références, les auteurs créent des paires électrons-trous au moyen d'une impulsion ultra courte polarisée linéairement. Les règles de sélection optiques ne sont pas mises à profit et ils réalisent une étude de la dynamique des températures des constituants du système. Seules les dynamiques de rotation de l'angle de polarisation traduisant l'aimantation sont mises à disposition et suffisent à elles seules à expliquer la dynamique des charges.

Ce travail dégage les idées essentielles dans la dynamique des charges. Après création optique de paires électrons trous, les électrons sont naturellement rapidement piégés sur les antisites As_{Ga} . Ces électrons ne participent pas à la dynamique jusqu'à la recombinaison qui met fin au processus de relaxation. La dynamique d'aimantation est donc dominée par les trous.

La désaimantation est issue de la diffusion d'un gaz athermal de trous photo-crées non polarisés en spin sur des impuretés de manganèse polarisées. Le couplage entre les spins des atomes de manganèse et des trous est donné par l'hamiltonien de Kondo de l'équation (1.12) par un mécanisme similaire à celui décrit par J. Kondo dans [47]. La figure 1.19 donne un aperçu du mécanisme de désaimantation. Ce processus est un échange de chaleur et de moment angulaire entre deux ensembles de spins portés par les trous et les atomes de manganèse. Il n'exclut pas la possibilité d'une dépolarisation du gaz de trous au travers d'un canal similaire à celui des métaux.

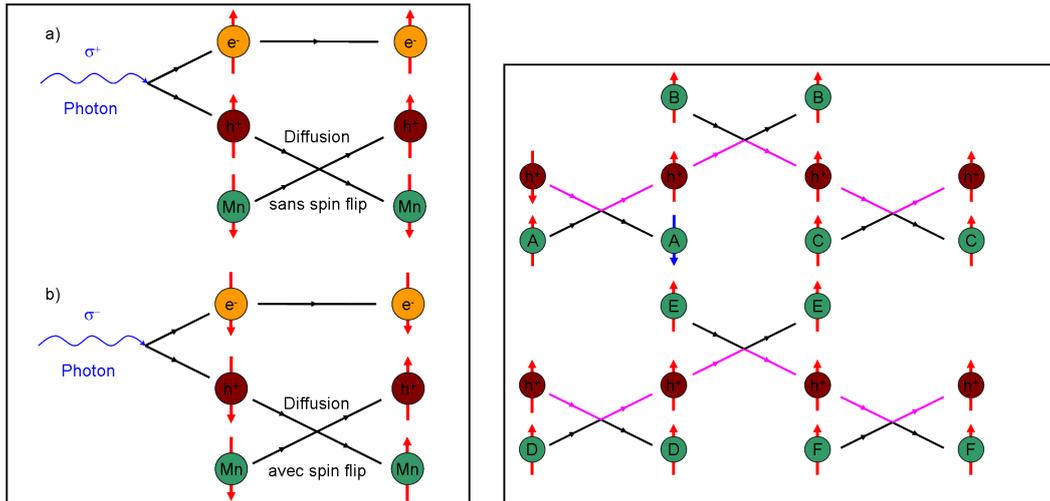


FIGURE 1.19 – *A gauche, processus élémentaire de diffusion sans a) et avec b) échange de spin entre les trous photo créés et les impuretés de manganèse. De gauche à droite, un photon de pompe crée une paire électron-trou dont les spins sont déterminés par les règles de sélection optiques. Le trou diffuse sur un atome de manganèse et échange éventuellement un quantum de spin si les règles de conservation du moment cinétique le permettent. A droite, illustration du processus de diffusion des trous sur les atomes de manganèse pour un système entièrement polarisé dans lequel la concentration de trous photo créés est très inférieure à la concentration de manganèse. En brun, les trous. Les lettres indiquent des atomes de manganèse différents. En rose la trajectoire des trous. Les flèches rouges représentent les spins majoritaires et les flèches bleues les spins minoritaires. Ce processus est une thermalisation de spins entre deux populations et mène à une diminution de l'aimantation totale.*

Le processus de thermalisation des trous par émission de phonons optiques a lieu très rapidement et n'est pas résolu temporellement. Au-dessous d'une certaine température, la conservation de l'énergie empêche l'émission des phonons optiques. Le refroidissement des trous ralentit alors brusquement et s'effectue plus lentement par émission de phonons acoustiques entre 0ps et 100ps.

Enfin, trous et les électrons recombinent, le système rejoint son état d'équilibre. La littérature n'est pas très riche en ce qui concerne la dynamique des électrons entre le piégeage et la recombinaison.

Cette interprétation s'inspire très largement des études en dynamique dans GaAs et LT-GaAs. Cependant, un phénomène assez particulier a lieu si une étude de la dynamique de (Ga,Mn)As est réalisée en fonction de la température.

5.3 Dynamique de l'aimantation en fonction de la température

La figure 1.20 présente une expérience effectuée par J. Wang *et al.* en 2008 dans laquelle une impulsion sub-picoseconde de 3.1eV crée des paires électrons-trous [101]. La figure de gauche retrace l'évolution de l'aimantation en fonction du temps en testant la biréfringence circulaire à 1.51eV pour différentes températures. Dans cette expérience, la

température de Curie est de 77K et d'après les tracés de gauche, l'aimantation augmente transitoirement même après que la température de Curie est dépassée.

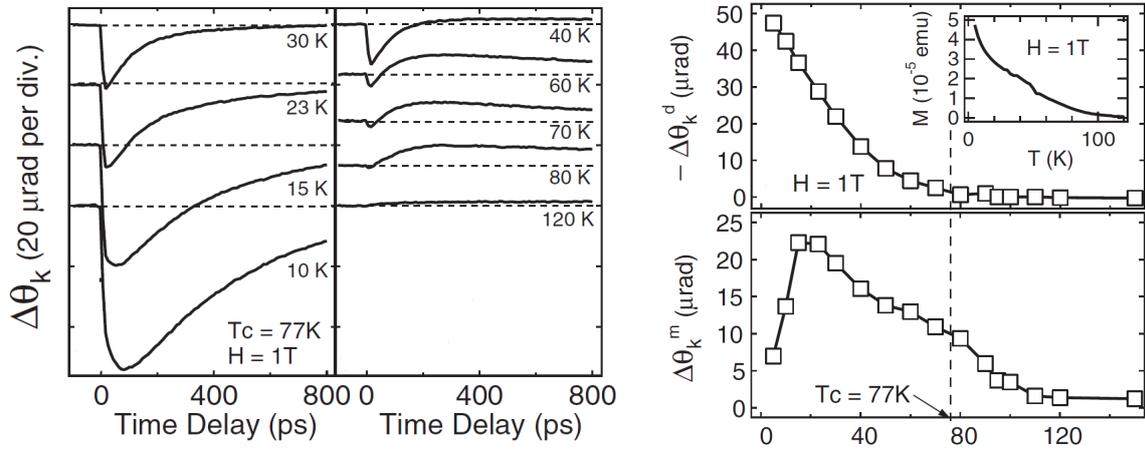


FIGURE 1.20 – *Dynamique d'aimantation en fonction de la température d'après [101]. A gauche, dynamique de la biréfringence circulaire en fonction du temps à 1.51eV reflétant la dynamique de l'aimantation. A droite, les amplitudes de désaimantation et réaimantation en fonction de la température obtenues par ajustement des résultats expérimentaux.*

En bas à droite de la figure 1.20 est représentée l'amplitude de la variation d'angle de rotation Kerr obtenue par ajustement en tenant compte de l'augmentation transitoire d'aimantation. Cette caractéristique est expliquée par l'augmentation transitoire du nombre de trous s'additionnant aux trous déjà existant. Ceux-ci augmentent l'aimantation à saturation en renforçant l'interaction d'échange entre Mn_{Ga} . Cette expérience met en évidence une augmentation transitoire de la température de Curie et *démontre la possibilité pour l'aimantation du $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ d'être contrôlée autrement qu'en changeant la température de l'échantillon et sans avoir recours à l'injection optique de spins.*

Les expériences réalisées par J. Wang *et al.* ont beaucoup contribué à la compréhension de la dynamique du $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ mais ne reportent pas d'observation de précession dans $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$.

5.4 Dynamique de l'anisotropie

De nombreuses références rapportent l'observation d'oscillations dans le signal magnétique [93] [78] [79].

La figure 1.21 présente une expérience de dynamique d'aimantation résolue en temps dans laquelle des oscillations ont été mesurées. Ici, la pompe fait passer des électrons de la bande de valence sur des niveaux pièges dans le gap. La rotation Kerr en configuration polaire observe la composante M_z de l'aimantation \mathbf{M} dans la direction de propagation de la lumière.

D'après J. Qi *et al.* [79], la précession s'explique par une variation de la direction d'anisotropie suite au changement transitoire du nombre ou et/ou de la température des trous provoqué par l'impulsion lumineuse excitatrice. Cette nouvelle direction d'anisotropie constitue alors une position d'équilibre transitoire autour de laquelle l'aimantation

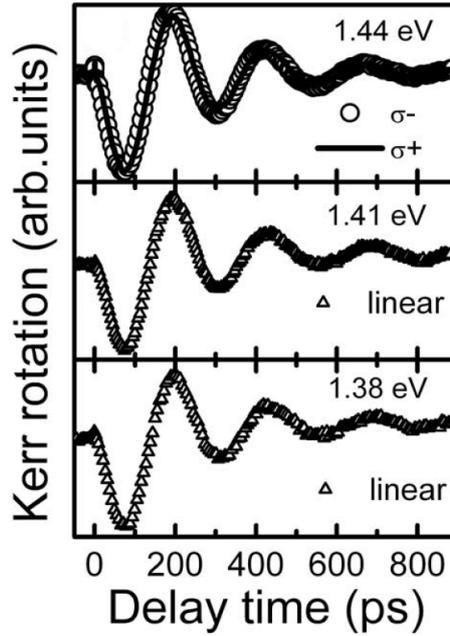


FIGURE 1.21 – *Dynamique de rotation Kerr résolue en temps à $T = 10K$ d'après [79]. La pompe et la sonde ont même énergie. De haut en bas, l'énergie est 1.44eV, 1.41eV et 1.38eV avec des polarisations de pompe circulaires dans le premier cas et linéaire pour les deux mesures du bas.*

entame un mouvement de précession. La composante perpendiculaire de l'aimantation perpendiculaire au plan présente alors un signal oscillant détecté par effet Kerr magnéto-optique ou dichroïsme circulaire résolue en temps.

La dynamique de (Ga,Mn)As après 1ps se décompose en une dynamique d'anisotropie magnéto-cristalline, des dynamiques associées aux températures des gaz de particules libres et une dynamique de la température de Curie. Ceci rend l'étude de la dynamique dans (Ga,Mn)As complexe et fortement dépendante des conditions de croissance.

Dans ce cadre, notre étude porte sur un ensemble d'échantillons se différenciant uniquement par la densité de trous à l'équilibre. Ces échantillons sont étudiés au moyen d'expériences de réflectivité différentielle et de rotation Kerr résolue en temps dans le but d'avoir un aperçu sur l'évolution des processus de relaxation des charges en fonction de la densité de trous à l'équilibre.

Comme le rapporte ce premier chapitre, la structure des niveaux dans le (Ga,Mn)As est non triviale et fortement dépendante des conditions de croissance. Il est donc pertinent de décrire les échantillons et leur caractérisation afin de déterminer exactement le régime dans lequel se place l'étude.

Chapitre 2

Propriétés des échantillons

Les six échantillons étudiés dans cette thèse ont été réalisés par L. Thevenard *et al.* et ont fait l'objet de plusieurs publications [94] [95] [38] [39] et thèses [96] [40]. Initialement produits pour étudier la relation entre densité de trous et anisotropie magnéto-cristalline, ils ont l'avantage d'avoir été très bien caractérisés.

D'un échantillon à l'autre la densité de trous est différente et les densités de défauts et d'impuretés magnétiques identiques. Les propriétés se déduisent du schéma de fabrication original, décrit dans la première partie de ce chapitre, et développé dans le cadre de la thèse de L. Thevenard [96]. L'approche réalise un découplage contrôlé entre densités de trous et de manganèse par passivation du dopage accepteur à l'aide d'atomes d'hydrogène.

La caractérisation des échantillons est présentée dans la seconde partie du chapitre. Celle-ci traite plus particulièrement des changements structuraux, de la mesure des densités de trous et des propriétés magnétiques.

1 Méthode de croissance

La problématique est de réaliser un contrôle de la densité de trous sur un ensemble d'échantillons tout en altérant peu les autres caractéristiques et en obtenant la température de Curie la plus élevée, *i.e.* en diminuant la surcompensation du dopage induite par les défauts donneurs. À ces fins, une méthode de croissance a été imaginée par A. Lemaître et L. Thevenard au laboratoire de photonique et nanostructure (LPN) de Marcoussis.

La croissance par épitaxie par jet moléculaire ou MBE (molecular beam epitaxy) requiert plusieurs étapes :

- croissance d'une couche tampon de GaAs non dopée par MBE à 600°C
- croissance d'une couche de (Ga,Mn)As par épitaxie par jet moléculaire basse température ou LT-MBE à 250°C
- recuit durant une heure à 250°C
- exposition à un plasma d'hydrogène pendant trois heures à 130°C
- morcellement en six de l'échantillon et recuit à l'air à 190°C. La durée de recuit varie entre 0 et 3000 minutes d'un échantillon à l'autre.

La croissance de la couche de (Ga,Mn)As : Les deux premières étapes servent à la fabrication d'une couche de (Ga,Mn)As avec $T_C = 66\text{K}$ dont la structure est représentée sur la figure 2.1.

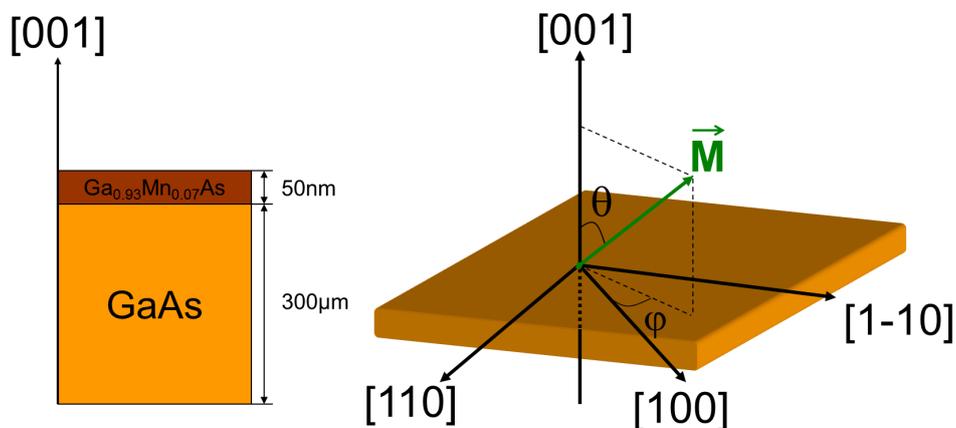


FIGURE 2.1 – Schéma de la couche et du substrat. A gauche, une vue de la section des échantillons. A droite, une vue en plongée avec, en vert, un vecteur d'aimantation \vec{M} quelconque. θ et φ sont les angles qui repèrent la direction de l'aimantation par rapport aux axes cristallographiques $[001]$, $[110]$ et $[1\bar{1}0]$.

Le choix du substrat de GaAs assure une faible concentration de dislocations et impose une contrainte épitaxiale compressive dans la couche avec $\epsilon_{xx} = 0.17\%$. Le $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ forme une couche de 50nm d'épaisseur sur un substrat de $300\mu\text{m}$ comme représenté sur la figure 2.1 avec $x = 0.07$. La croissance par LT-MBE crée une densité de défauts approximativement égale à 10^{20}cm^{-3} dont il est utile de se débarrasser pour augmenter T_C d'après le chapitre 1 à la section 2.4 (p. 27).

Le contrôle des densités de défauts : Comme discuté dans le chapitre 1 aux sections 2.2 (p.19) et 2.4 (p.29), les défauts diminuent la densité de trous et la température de Curie. Le recuit post-croissance à 250°C permet la diffusion des défauts cristallins hors de la couche ce qui diminue la compensation du dopage accepteur et augmente la densité de trous libres et T_C de 66K à 130K .

Le contrôle de la densité de trous : L'exposition à un plasma d'hydrogène (H) permet l'incorporation d'atomes H dans la matrice de (Ga,Mn)As. La complexation entre les gaz de manganèse et d'hydrogène assure la passivation du dopage accepteur par la réaction présentée dans l'équation (2.1).



Le recuit à basse température post-passivation fait migrer l'hydrogène hors de la couche, augmentant la densité de trous libres pour le transport et diminuant la résistivité. Celle-ci est présentée sur la figure 2.2 en fonction du temps de recuit. Sur cette dernière, la résistivité constante d'un échantillon de référence sans hydrogène démontre que les changements du signal ne sont pas dus au dégazage des défauts restant dans la

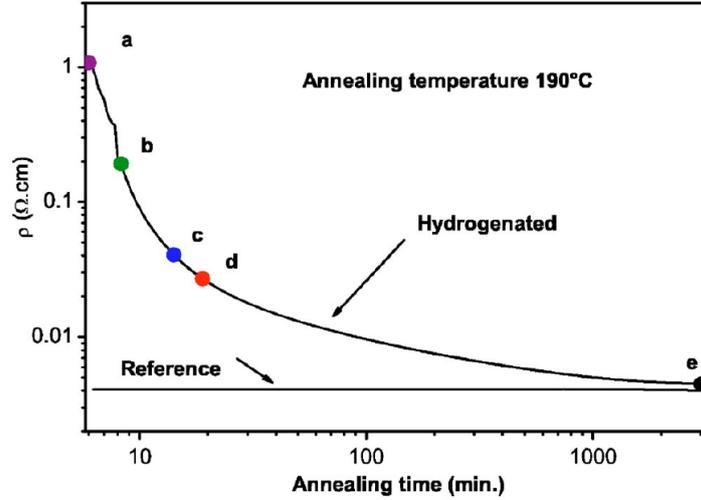


FIGURE 2.2 – Évolution de la résistivité des échantillons en fonction du temps de recuit post-passivation par L. Thevenard et al. d’après [94].

couche par la diminution de la compensation du dopage p . Ceci exclut les défauts comme origine du changement de résistivité et attribue bien ce dernier à la diminution de la concentration en atomes d’hydrogène dans les couches.

Les mesures *in situ* sont en faveur d’une incorporation homogène de l’hydrogène dans la couche sans changement de l’état magnétique du manganèse. *L’hydrogénation est donc un moyen de diminuer de manière contrôlée la densité de trous sans changer les propriétés paramagnétiques.*

2 Propriétés non magnétiques des échantillons

L’incorporation d’hydrogène modifie le paramètre de maille, le transport et les propriétés magnétiques. Cette section s’intéresse aux résultats des expériences de caractérisation. Ces valeurs sont toutes extraites de la thèse de L.Thevenard [96].

2.1 Les changements structuraux

La diffraction de rayons X (XRD) informe sur la structure cristalline d’un échantillon. Le paramètre de maille se calcule à partir de la position du pic de diffraction connaissant la direction de croissance et supposant une couche monocristalline. Le tableau 2.1 met en avant la diminution du paramètre de maille avec le temps de recuit et donc son augmentation avec la quantité d’hydrogène introduite.

Le changement de paramètre de maille traduit un désaccord de maille ϵ_{xx} entre échantillon et substrat qui décroît avec le temps de recuit. Les valeurs du paramètres de maille ϵ_{xx} données dans le tableau 2.1 ont été calculées à partir des différences de paramètre de maille entre les couches et leur substrat de GaAs. Ainsi, la contrainte biaxiale compressive du substrat sur la couche augmente avec la quantité d’hydrogène dissout ce qui influence

Échantillons	Temps de recuit (min)	Paramètre de maille (Angström)	ϵ_{xx} (%)
Passivé	0	5.6913	0.36
Recuit A	6	5.6871	0.32
Recuit B	8	5.6856	0.31
Recuit C	14	5.6847	0.30
Recuit D	19	5.6819	0.27
Recuit E	3000	5.6721	0.18

TABLE 2.1 – Temps de recuit t_{recuit} post-passivation et propriétés structurales des échantillons. a est le paramètre de maille permettant le calcul de la contrainte biaxiale ϵ_{xx} . Ce paramètre de maille doit se comparer à celui du GaAs qui vaut $a_{GaAs} = 5.65325\text{\AA}$.

la structure de bande et par extension l'anisotropie magnéto-cristalline.

2.2 La densité de trous

Échantillons	p_{HT} ($\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$)	p_{HB} ($\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$)	p_R ($\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$)	ϵ_F (meV)
Passivé	-	-	-	-
Recuit A	-	-	-	-
Recuit B	0.026 ± 0.01	0.030 ± 0.01	-	34
Recuit C	0.085 ± 0.06	0.053 ± 0.02	0.086 ± 0.02	63
Recuit D	0.22 ± 0.02	0.17 ± 0.04	0.19 ± 0.04	129
Recuit E	-	0.83 ± 0.05	0.27 ± 0.07	300

TABLE 2.2 – Densité de trous p et énergies de Fermi ϵ_F des échantillons. p_{HT} , p_{HB} et p_R sont des valeurs déterminées respectivement par mesure de la résistance de Hall à haute température puis en champ fort et par spectroscopie Raman.

Les densités de trous ont été estimées à partir de mesures de la résistance de Hall haute température, de la résistance de Hall en champ fort et de spectroscopie Raman et sont récapitulées dans le tableau 2.2. Dans ce même tableau, l'énergie de Fermi est estimée à partir de la densité de porteurs en remplissant la structure de bande obtenue en champ moyen par T. Dietl *et al.* dans la référence [16].

3 Les propriétés magnétiques des échantillons

Les propriétés magnétiques sont les températures de Curie, les diagrammes de phase, l'aimantation à saturation et la direction de l'aimantation.

3.1 La température de Curie T_C

La température de Curie T_C est la donnée magnétique la plus triviale déterminée en faisant varier la température dans des mesures de transport à quatre points, de magnéto-métrie avec un SQUID (Superconducting quantum interference device) et de résonance

Echantillons	Mesure à quatre points	SQUID	FMR
Passivé	PM	PM	PM
Recuit A	25	39	PM
Recuit B	25	42	42
Recuit C	58	70	72
Recuit D	80	83	86
Recuit E	130	-	137

TABLE 2.3 – *Température de Curie en K déterminées par des mesures à quatre points, du SQUID et de la résonance ferromagnétique (FMR).*

ferromagnétique ou FMR. Les températures de Curie obtenues par ces méthodes sont récapitulées dans le tableau 2.3. Les mesures de transport montrent que la résistivité ρ_{xx} augmente de 0K à T_C avec la température puis diminue au-delà de T_C . T_{extrmC} est le maximum de la courbe $\rho_{xx}(T)$.

Les techniques utilisant un SQUID et la résonance ferromagnétique donnent plus d'informations que la seule température de Curie et sont discutées séparément.

3.2 Les diagrammes de phase

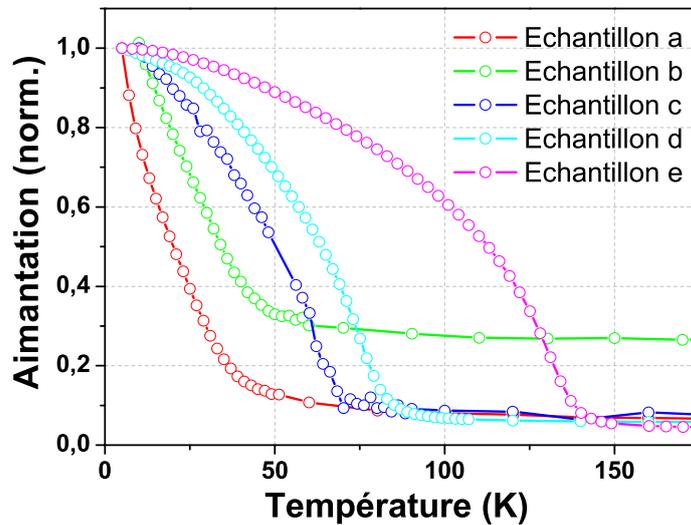


FIGURE 2.3 – *Diagrammes de phase déterminés par SQUID sous un champ $H = 5000e$ dans la direction (110). Toutes les aimantations sont normalisées par la valeur du premier point.*

Un diagramme de phase montre le paramètre d'ordre en fonction de la température et quantifie une transition de phase. Pour la transition ferro-para, le paramètre d'ordre est la norme du vecteur aimantation. Un SQUID mesure l'aimantation moyenne de l'échantillon

dans une direction cristallographique donnée et permet de reconstruire le diagramme de phase en faisant varier la température. La température de Curie est la température pour laquelle la transition de phase se produit. La figure 2.3 présente les diagrammes de phase obtenus par cette technique qui seront utilisés et discutés dans le chapitre 5.

3.3 Les constantes d'anisotropie magnéto cristalline

Échantillon	T (K)	$K_{2\perp}$ (erg.cm ⁻³)	$K_{2\parallel}$ (erg.cm ⁻³)	$K_{4\perp}$ (erg.cm ⁻³)	$K_{4\parallel}$ (erg.cm ⁻³)	M (erg.cm ⁻³)
Recuit B	4	18270	1265	2629	13980	15,4
Recuit B	10	5237	1226	7210	16950	13
Recuit B	20	203	229	2444	5507	9,47
Recuit B	30	-475	331	-29	1093	4,92
Recuit C	4	-23210	3112	-2054	26110	29,93
Recuit C	20	-24640	3009	-6172	11760	26,98
Recuit C	40	-23450	2130	-4167	2467	21,64
Recuit C	60	-6962	551	-98	138	10,13
Recuit D	4	-34700	2513	-10420	16880	30,72
Recuit D	20	-30620	1921	-8231	6016	23,2
Recuit D	70	-4494	145	-1066	50	9,2
Recuit E	4	-59610	3616	-1635	6162	36
Recuit E	20	-49390	2655	-10190	3466	28,53
Recuit E	80	-10450	0	-3398	1123	22,25
Recuit E	110	-6092	-530	-3648	-39	14,26

TABLE 2.4 – Constantes d'anisotropie magnéto-cristallines pour différentes températures d'après Kh. Khazen et al. [38].

La flèche verte de la figure 2.1 est le vecteur aimantation dont la direction est définie par les composantes sphériques θ et φ . A l'équilibre, l'aimantation prend spontanément une direction déterminée par des facteurs tels que le champ magnétique appliqué au système ou la symétrie du cristal. Cette dernière est traduite par des grandeurs physique appelées constantes d'anisotropie permettant de connaître la direction d'équilibre du vecteur aimantation en fonction du champ magnétique appliqué.

Les constantes traduisant l'influence de la symétrie du cristal sur la direction de l'aimantation sont les constantes d'anisotropie magnéto-cristallines. Celles-ci ont été déterminées pour les échantillons utilisés par H.J. Von Bardeleben et Kh. Khazen de l'institut des nanosciences de Paris (Paris VI) par la technique de la résonance ferromagnétique (FMR). Leur dépendance à la température est récapitulée dans le tableau 2.4 et sur la figure 2.4 d'après la référence [38].

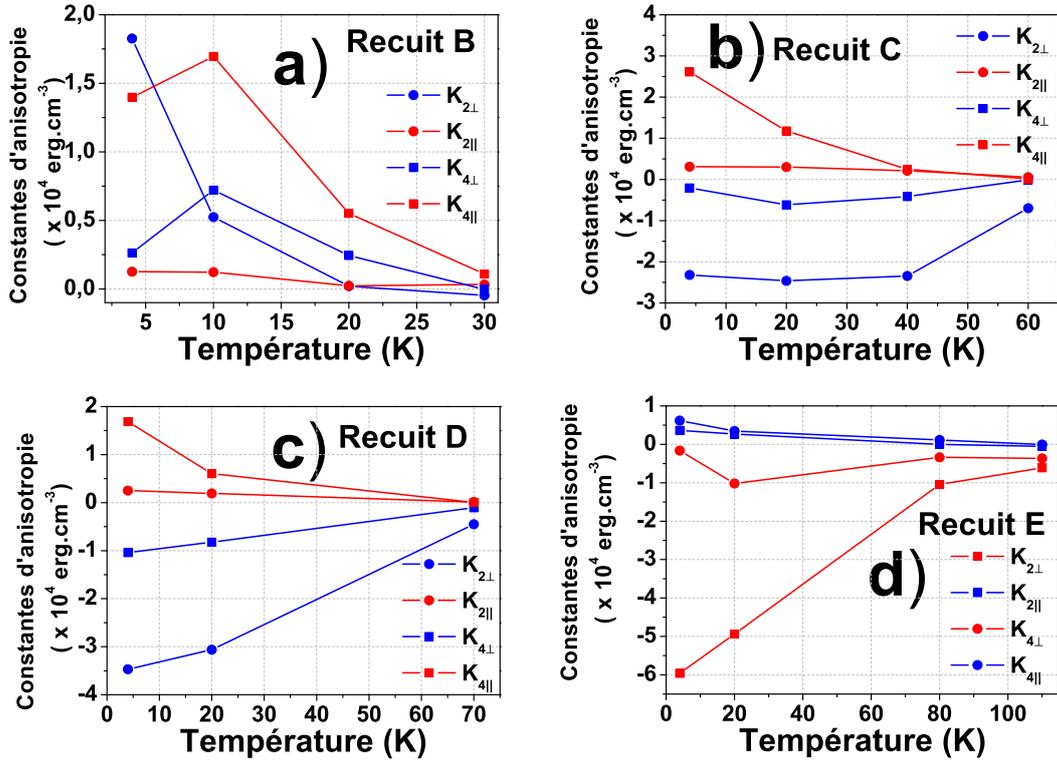


FIGURE 2.4 – Constantes d'anisotropie magnéto-cristalline des échantillons en fonction de la température d'après Kh. Khazen et al. [38]. a) Échantillon recuit B b) Échantillon recuit C, c) Échantillon recuit D et d) Échantillon recuit E.

Aimantation à l'équilibre

Le modèle phénoménologique de Stoner-Wohlfarth a été développé pour prédire la direction de l'aimantation moyenne d'un échantillon dans des conditions de température précises et soumis à un champ d'induction magnétique externe uniforme noté \mathbf{H} .

Dans ce modèle, tout facteur influençant la direction de l'aimantation est considéré comme un champ magnétique effectif auquel est soumis l'aimantation. La direction d'équilibre du vecteur aimantation minimise alors l'énergie libre magnétique $F = -\mathbf{M}(\theta, \varphi) \cdot \mathbf{H}_{\text{eff}}$. \mathbf{H}_{eff} est la somme vectorielle du champ magnétique appliqué, du champ effectif associé à la symétrie du cristal et des interactions magnétostatiques entre dipôles magnétiques.

Le champ magnétique appliqué H s'exprime en fonction de deux angles θ_H et φ_H dans le même système d'axe que sur la figure 2.1. L'anisotropie magnéto-cristalline du (Ga,Mn)As est prise en compte aux travers de quatre coefficients phénoménologiques notés $K_{2\parallel}$, $K_{4\parallel}$, $K_{2\perp}$ et $K_{4\perp}$. Ces derniers permettent de déterminer des champs magnétiques effectifs en interaction avec l'aimantation et pousse cette dernière à s'aligner dans

des directions privilégiées dites de « facile aimantation ». Ces directions dépendent de la symétrie axiale et cubique du (Ga,Mn)As ainsi que des conditions de température et de la densité de porteurs comme discuté dans le chapitre 1.

Enfin, l'auto-interaction de l'aimantation représentée sur la figure 2.1 traduit l'existence d'interactions magnétostatiques entre dipôles magnétiques constitutifs et explicite une anisotropie magnétique dite « de forme ».

$$\begin{aligned}
F = & - M.H [\cos \theta \cos \theta_H + \sin \theta \sin \theta_H \cos (\varphi - \varphi_H)] - 2\pi M^2 \sin^2 \theta - K_{2\perp} \cos^2 \theta \\
& - \frac{K_{4\perp}}{2} \cos^4 \theta - \frac{K_{4\parallel}}{8} (3 + \cos 4\varphi) \sin^4 \theta - K_{2\parallel} \sin^2 \theta \sin^2 \left(\varphi - \frac{\pi}{4} \right)
\end{aligned} \tag{2.2}$$

Il y a donc trois contributions à l'énergie magnétique donnant des termes respectivement de la forme M.H, M.K et M². Tous ces termes permettent le calcul de l'énergie magnétique F en fonction de l'induction magnétique appliquée. L'expression analytique donnée dans l'équation (2.2) est prise de la référence [55]. Dans des conditions de température et de champ précises, la direction d'équilibre du vecteur aimantation se calcule en minimisant l'équation (2.2) en fonction des coordonnées sphériques θ et φ traduisant la direction de l'aimantation.

Malgré son apparente simplicité, la force de ce modèle est de pouvoir déterminer tous les cycles d'hystérésis magnétiques d'un échantillon dont les coefficients K et la norme de l'aimantation est déterminée. Ceci souligne l'utilité de déterminer les coefficients et leur dépendance en fonction de la température ce qui a été fait par Kh. Khazen en utilisant la FMR. Ces résultats sont récapitulés dans la figure 2.4.

Au-delà de l'aspect purement statique et de la détermination de l'état magnétique à l'équilibre, il est utile de donner un aperçu de comment le modèle de Stoner-Wohlfarth s'étend à l'étude du mouvement du vecteur aimantation.

Aimantation hors équilibre

Hors équilibre, l'aimantation pointe dans une direction qui ne minimise pas F et tend donc à retourner vers un état plus favorable énergétiquement. Cette relaxation se décrit habituellement par l'équation phénoménologique (2.3) dite « de Landau-Lifshiz-Gilbert ». L'aimantation \mathbf{M} évolue en fonction de l'interaction avec un champ magnétique effectif \mathbf{H}_{eff} quantifiée par le facteur gyromagnétique γ et d'un amortissement donné par le coefficient de Gilbert α .

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma \mathbf{M} \wedge \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha \mathbf{M} \wedge \frac{d\mathbf{M}}{dt} \tag{2.3}$$

Classiquement, pour une induction magnétique effective uniforme, l'aimantation précesse d'une part autour de \mathbf{H}_{eff} à la fréquence de Larmor $\frac{\omega_L}{2\pi}$. Cette dernière dépend des amplitudes de \mathbf{H}_{eff} et de \mathbf{M} et est issu du terme proportionnel à γ dans l'équation (2.3). D'autre part, \mathbf{M} effectue un mouvement pour s'aligner avec \mathbf{H}_{eff} . Ce mouvement traduit l'amortissement de Gilbert α .

Dans une expérience de FMR, l'induction magnétique externe incluse dans \mathbf{H}_{eff} prend la forme (2.4)

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_{\text{rf}} \cos(\omega t) \quad (2.4)$$

L'amplitude du terme constant \mathbf{H}_0 influe sur la valeur de ω_L et le terme proportionnel à \mathbf{H}_{rf} est un champ radiofréquence (rf) qui entretient la précession. Dans le cas discuté ici, \mathbf{H}_{eff} est la somme des inductions magnétiques externe, magnéto-cristalline et de forme (cette dernière traduit l'existence d'une non linéarité). Les inconnues dans \mathbf{H}_{eff} sont donc les coefficients d'anisotropie magnéto-cristalline.

L'expérience permet de déterminer les fréquences de Larmor pour différentes directions et amplitudes du champ magnétique externe. Cette fréquence s'exprime en fonction de l'énergie magnétique dans l'équation (2.5) ce qui permet de déterminer les constantes d'anisotropie magnéto cristalline, le module de l'aimantation et le coefficient dynamique γ .

$$\omega_L = \frac{\gamma}{M \sin \theta} \sqrt{\frac{\partial^2 F}{\partial^2 \theta} \frac{\partial^2 F}{\partial^2 \varphi} - \left(\frac{\partial^2 F}{\partial \theta \partial \varphi} \right)^2} \quad (2.5)$$

La figure 2.4 montre la dépendance à la température de quatre constantes pour les échantillons ferromagnétiques. Connaissant ces constantes, il est possible de déterminer la position d'équilibre de l'aimantation pour les différents échantillons ainsi que toutes leurs propriétés magnétiques macroscopiques.

Dynamiquement, la connaissance des constantes d'anisotropie permet de calculer exactement le trajet de retour à l'équilibre du vecteur aimantation en résolvant le système d'équations (2.3) sous réserve de connaître γ et α .

Pour conclure, les échantillons utilisés possèdent une forte concentration d'impuretés avec une densité de porteurs p variable mais toujours inférieure à la densité d'impuretés magnétiques. Les températures de Curie observées sont celles d'échantillons de bonne qualité laissant supposer une concentration d' As_{Ga} élevée mais raisonnable en comparaison d'autres échantillons de même type. Il n'y a cependant aucune information concernant les états d'impuretés au centre de la première zone de Brillouin au voisinage de la bande de conduction.

Ces échantillons se placent clairement dans un régime de fort recouvrement entre impuretés magnétiques laissant supposer l'absence d'états d'impuretés magnétiques localisés dans la bande interdite à proximité de la bande de conduction. Ce régime est métallique avec une bande de valence dont la symétrie des états occupant le centre de zone est mal déterminée. La masse effective des trous peut difficilement être estimée au sommet de la bande de valence même si elle est potentiellement toujours pertinente pour les valeurs de \mathbf{k} intermédiaires avec une approximation de la masse effective toujours valide et un faible recouvrement avec les bandes d'impuretés. L'originalité de ces échantillons est de posséder une structure de bande *a priori* identique avec des concentrations de porteurs variables. Bien que l'état magnétique du système puisse modifier la disposition relative des bandes, ceci est *a priori* le seul paramètre susceptible de faire varier la structure

quantique d'un échantillon à l'autre. La dynamique optique des impuretés sera en tout cas supposée identique d'un échantillon à l'autre.

La figure 1.7 a démontré l'influence de l'anisotropie magnéto-cristalline sur la structure de bande des échantillons. L'anisotropie magnéto-cristalline n'est donc pas identique d'un échantillon à l'autre. La figure 2.4 montre en effet une forte dépendance de l'anisotropie en fonction de la densité de porteurs et de la température.

Chapitre 3

Mesures de dynamique d'aimantation

Mesurer optiquement l'aimantation fait intervenir la biréfringence et le dichroïsme circulaire, sujets de la première partie du chapitre. Celle-ci définit les phénomènes circulaires, introduit les grandeurs physiques θ_K et η mesurées et discute la relation entre leur évolution dans le temps et la dynamique d'aimantation.

Une façon de mesurer la dynamique optique est d'appliquer une technique dite « pompe-sonde ». Dans une expérience de ce type, un échantillon est soumis à deux impulsions lumineuses courtes appelées respectivement « pompe » et « sonde ». L'amplitude de la pompe est assez élevée pour affecter transitoirement une propriété optique telle que l'indice de réfraction. L'amplitude de la sonde est insuffisante pour modifier efficacement le milieu et sa propagation est influencée par la pompe. La réflexion et/ou la transmission sont détectées par la sonde en fonction du retard contrôlé τ entre les impulsions. Le bon déroulement repose sur la capacité de façonnage/caractérisation des impulsions, sur la précision du contrôle de τ et sur la finesse de la détection. Ceci concerne le montage expérimental à proprement parler et fait l'objet de la seconde partie du chapitre.

La méthode de détection des grandeurs polarimétriques donne un signal électrique complexe. La dernière partie du chapitre concerne le traitement de celui-ci après acquisition et le lien entre grandeurs polarimétriques et signal électrique mesuré.

1 Effets polarimétriques circulaires dans les matériaux magnétiques

Un matériau en phase ferromagnétique est le siège de deux phénomènes optiques : la biréfringence et le dichroïsme circulaire, conséquences d'une différence de propagation des composantes circulaires σ^+ et σ^- de la lumière. Cette partie traite de ces phénomènes optiques, des moyens de les détecter et de leur relation avec la dynamique d'aimantation.

1.1 Origines et conséquences des phénomènes circulaires

La biréfringence et le dichroïsme sont la conséquence de l'existence de deux indices complexes n_+ et n_- reliés à un indice moyen \bar{n} et une différence d'indice Δn par l'équation (3.1).

$$\begin{cases} \bar{n} &= \frac{n_+ + n_-}{2} \\ \Delta n &= \frac{n_+ - n_-}{2} \end{cases} \iff n_{\pm} = \bar{n} \pm \Delta n \quad (3.1)$$

\bar{n} décrit la propagation symétrique et Δn la propagation asymétrique et donc les effets de biréfringence et de dichroïsme. Ces indices se décomposent eux-mêmes selon les équations (3.2).

$$\begin{cases} \bar{n} &= \bar{n}' + i\bar{n}'' \\ \Delta n &= \Delta n' + i\Delta n'' \\ n_{\pm} &= n'_{\pm} + in''_{\pm} \end{cases} \quad (3.2)$$

La biréfringence et le dichroïsme sont respectivement une différence de vitesse de propagation et d'absorption se traduisant par les parties réelle $\Delta n'$ et imaginaire $\Delta n''$ de Δn . L'équation (3.3) présente le déphasage φ , causé par la différence d'indice complexe, d'une onde $\phi(z) = \phi_0 \exp(i(\omega t - kz + \varphi))$ d'énergie $\hbar\omega$ après la traversée d'une épaisseur x d'un milieu biréfringent et d'activité optique non nulle. La partie imaginaire de cette phase est à l'origine d'une diminution de l'amplitude de l'onde au court de la propagation et traduit l'absorption.

$$2\varphi = i \frac{-2\omega x}{c} \Delta n = \beta = \beta' + i\beta'' \quad (3.3)$$

Lorsque cette propagation asymétrique concerne les composantes circulaires σ^+ et σ^- , il s'agit de dichroïsme et de biréfringence circulaire.

Biréfringence circulaire : rotation Kerr magnéto optique et rotation Faraday

La biréfringence circulaire modifie la polarisation d'une onde incidente polarisée linéairement après son passage dans un milieu. D'amplitudes égales, les composantes σ^+ et σ^- constitutives de l'onde polarisée linéairement ont des chemins optiques de longueurs différentes et se déphasent progressivement. Sur un échantillon d'épaisseur finie, ce processus se nomme « effet Faraday » lorsqu'il affecte la lumière transmise et « effet Kerr » lorsqu'il s'agit de la lumière réfléchi. Le déphasage est donné par l'équation (3.3) avec $x = l$ la profondeur de peau ou l'épaisseur de l'échantillon. La conséquence d'un déphasage réel fini est la rotation de la polarisation linéaire d'un angle $\theta_K = \frac{\beta''}{2} \bmod(2\pi)$.

Dichroïsme circulaire et ellipticité

Pour une onde incidente polarisée linéairement, le dichroïsme circulaire provoque une absorption asymétrique des composantes circulaires et, par conséquent, une évolution progressive de la polarisation linéaire vers elliptique et une atténuation d'intensité lumineuse. Après la traversée d'un échantillon d'épaisseur finie l , l'onde ressort elliptique. L'ellipticité de la polarisation est donnée par $\eta = \tan\left(\frac{|E_y|}{|E_x|}\right)$ pour des axes de l'ellipse selon (Ox) et (Oy) et avec les composantes E_x et E_y dans la base linéaire. L'ellipticité η est reliée au déphasage de l'équation (3.3) par $\eta = \operatorname{atan}\left(\operatorname{th}\left(\frac{\beta''}{2}\right)\right)$.

	BIRÉFRINGENCE	DICHOÏSME
LINÉAIRE	ellipticité - norme conservée	rotation - norme non conservée
CIRCULAIRE	rotation - norme conservée	ellipticité - norme non conservée

TABLE 3.1 – Tableaux des phénomènes de biréfringence et de dichroïsme et de leurs effets sur une onde polarisée linéairement à 45° des axes linéaires.

Les deux effets polarimétriques combinés font que toute polarisation linéaire, qui entre dans un milieu subissant l'action d'un champ magnétique, ressort elliptique avec un angle θ_k entre le grand axe et la direction de la polarisation entrante.

Aberration de mesure de θ_K et η

Ce chapitre ne traite pas de la relation entre η , θ_K et l'aimantation M du milieu. Il est cependant important de souligner que la biréfringence et le dichroïsme circulaire ne découlent généralement pas de l'existence d'un champ magnétique dans le milieu. *Il est donc possible d'obtenir θ_K et η non nul en l'absence de champ magnétique.* Expérimentalement, la vérification de l'origine magnétique des effets polarimétriques circulaires nécessite de varier l'amplitude du champ magnétique dans l'échantillon et de contrôler les variations de θ_k et ν .

Dans le tableau 3.1 sont récapitulés les effets de la biréfringence et du dichroïsme circulaire et linéaire. Ce tableau met en avant les similitudes entre biréfringence circulaire et dichroïsme linéaire ainsi qu'entre dichroïsme circulaire et biréfringence linéaire qui donnent le même signal polarimétrique. *Des valeurs de θ_k et de η non nulles n'attestent donc pas de l'existence d'un mécanisme affectant spécifiquement les composantes circulaires de la lumière.* Pour l'étude des effets polarimétriques associés à la base circulaire, il convient de s'affranchir des effets de biréfringence et dichroïsme linéaires en plaçant la polarisation linéaire incidente le long d'un des axes optiques de l'échantillon. Enfin, la variation de l'intensité lumineuse au cours de la mesure polarimétrique permet éventuellement de discriminer les phénomènes linéaires des circulaires.

1.2 Mesure dynamique de θ_K et η et relation avec M

Hors équilibre, les propriétés magnétiques sont transitoirement modifiées et affectent respectivement les mesures des angles θ_k et η de valeurs $\Delta\theta_k(t)$ et $\Delta\eta(t)$. Pendant la relaxation, les configurations électroniques et donc les susceptibilités électrique χ_e et magnétique χ_m évoluent. Ceci rend la relation entre les effets polarimétriques et le champ magnétique interne floue. En supposant cette relation linéaire, l'équation (3.4) décrit l'évolution des paramètres polarimétrique durant le régime transitoire.

$$\begin{cases} \theta_K = \alpha M \Leftrightarrow \Delta\theta_K = M\Delta\alpha + \alpha\Delta M \\ \eta = \beta M \Leftrightarrow \Delta\eta = M\Delta\beta + \beta\Delta M \\ \theta_K = \frac{\alpha}{\beta}\eta \Leftrightarrow \Delta\theta_K = \eta\Delta\left(\frac{\alpha}{\beta}\right) + \frac{\alpha}{\beta}\Delta\eta \end{cases} \quad (3.4)$$

L'évolution des coefficients α et β est donc une source d'erreur dans la mesure de la dynamique d'aimantation. La comparaison des biréfringence et dichroïsme circulaires

dynamiques permet néanmoins de quantifier le phénomène puisque $\Delta\theta_K = \frac{\alpha}{\beta}\Delta\eta$ quand $\alpha(t) \propto \beta(t)$.

2 Le montage expérimental

Cette section se consacre à la présentation du montage expérimental et des particularités des faisceaux dits de pompe et de sonde.

2.1 La préparation des impulsions

La figure 3.1 récapitule les chemins optiques des impulsions jusqu'à l'échantillon. Au début de la chaîne optique, un oscillateur émet des impulsions dont chacune est l'origine d'une paire pompe/sonde. Au niveau de l'échantillon, les impulsions ont des caractéristiques en commun et d'autres dépendant de leur traitement individuel après séparation du faisceau initial.

L'oscillateur

L'oscillateur commercial est un Tsunami[®] de marque Spectra Physics pompé par un laser continu (cw) à 532nm d'une puissance moyenne de 5W. Il génère une impulsion toutes les 12.5ns correspondant à un taux de répétition de 80MHz. Le faisceau a un profil d'intensité gaussien et est de polarisation linéaire. Ces caractéristiques sont communes à la pompe et la sonde.

Bien que la longueur d'onde soit accordable dans une certaine mesure, l'oscillateur génère des impulsions de longueur d'onde centrale 800nm (1.55eV). La diffusion sur M1, non représentée sur la figure 3.1, est redirigée dans un spectromètre permettant de s'assurer de la stabilité spectrale du faisceau. L'énergie moyenne est comprise entre 500mW et 1W. Q1 est une lame de 3mm de quartz séparant le faisceau en deux. Chaque faisceau est ensuite préparé séparément.

L'impulsion de pompe

L'impulsion de pompe est focalisée par L1 dans un cristal de BBO afin d'en doubler la fréquence. L2 recollimate la pompe de manière à être légèrement défocalisée dans le plan de l'échantillon. Le passage dans le BBO provoque un fort astigmatisme du faisceau avec un rapport d'aspect d'environ 1 :2 après PG. La direction de la polarisation du faisceau doublé est à 90° de celle du fondamental après L2 mais est corrigée par une lame demi-onde à 400nm d'angle 45° non représentée mais située entre M4 et M8.

Afin d'évacuer la radiation à 800nm non doublée, M3, M4 et M8 sont dichroïques. Avant le dernier miroir, le faisceau traverse une lame de densité variable D2 pour contrôler la puissance moyenne qui est stabilisée à 3.35mW.

Avant l'échantillon, le faisceau de pompe traverse un prisme de Glan-Taylor, noté PG, et une lentille convergente de focale 50mm non représentée. Une faible luminescence a été

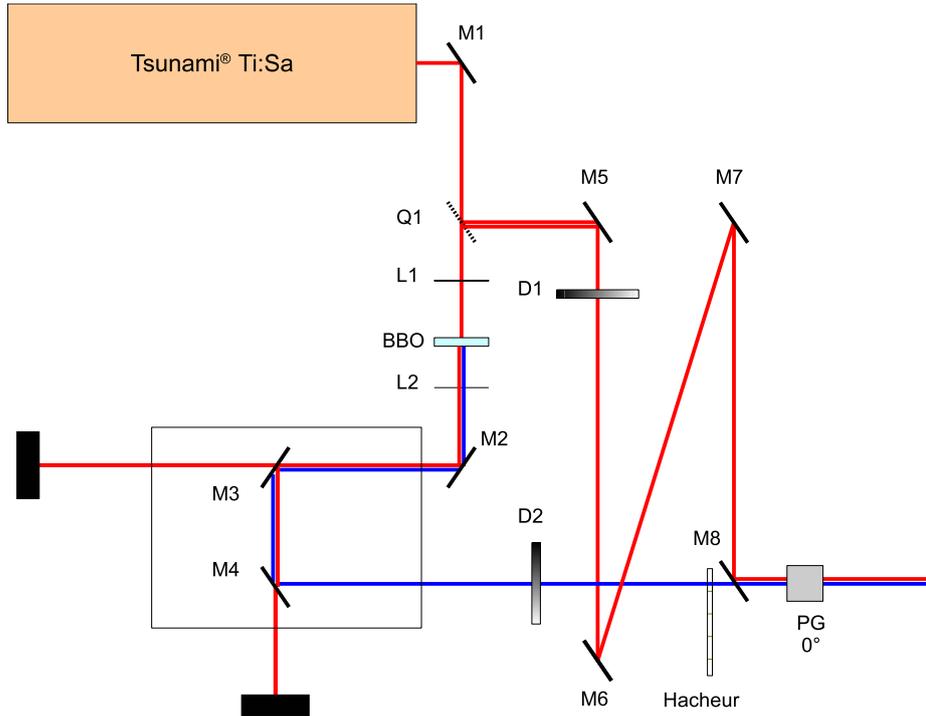


FIGURE 3.1 – Schéma expérimental de la préparation des faisceaux dans une expérience de pompe sonde. Les lignes rouges représente les impulsions de $\lambda_{sonde} = 800\text{nm}$ avec $FWHM_{sonde} = 40\text{nm}$. Les lignes bleues représentent le faisceau de pompe avec $\lambda_{pompe} = 400\text{nm}$ et $FWHM_{pompe} = 40\text{nm}$. Q1 est la séparatrice de quartz. Les miroirs sont notés M. M1, M2, M5, M6 et M7 sont des miroirs métalliques en argent. M3 et M4 sont des miroirs dichroïques à 400nm. M8 est un miroir dichroïque à 800nm. Les densités D1 et D2 sont des lames coulissantes de densité variable. Les lentilles L1 et L2 ont une distance focale de 5mm. Le hacheur est utilisé pour la détection synchrone. PG est un prisme de Glan-Taylor aligné à peu près dans la direction de polarisation du faisceau.

constatée sur cette dernière mais ne semble pas présenter de problème dans la détection. Enfin, le faisceau de pompe est modulé par un hacheur dont la fréquence peut être réglée entre 0Hz et 2kHz.

La taille du faisceau pompe passant après qu'il ait traversé un objectif de microscope de focale 10mm a été mesurée par la méthode de Foucault et présenté sur le figure 3.2. Une fonction $\text{erf}(x)$ sert pour l'ajustement et permet d'estimer le diamètre du spot à environ $5\ \mu\text{m}$. Un rapide calcul de la tache de focalisation avec une lentille de 50mm donne une taille de $25\ \mu\text{m}$. L'estimation de la densité d'énergie est d'environ $5\ \mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$ soit deux fois moins que J. Wang *et al.* [100].

L'impulsion de sonde

La figure 3.3 présente le spectre de l'impulsion de sonde. Celui-ci est gaussien centrée à 800nm et de largeur à mi-hauteur 15nm. M5, M6, et M7 sont des miroirs métalliques. M8 est un miroir dichroïque réfléchissant la sonde mais pas la pompe. D1 est une lame

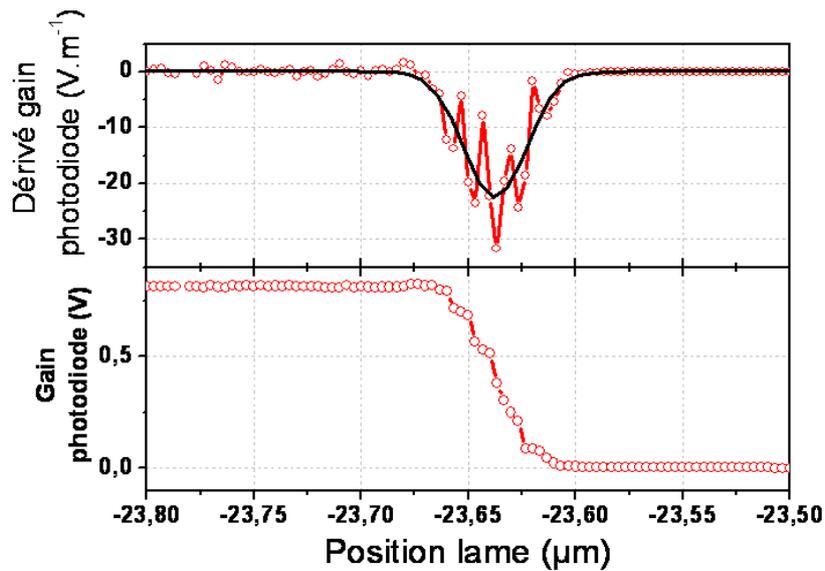


FIGURE 3.2 – *Mesure de la taille du faisceau de pompe. Le résultat estime la largeur à mi-hauteur du profil d'intensité du faisceau de pompe dans le plan de focalisation à environ $5 \mu\text{m}$.*

de densité optique variable fixant la puissance à $200\mu\text{W}$. L'axe ordinaire de PG à 0° est colinéaire à la polarisation du laser qu'il contribue à améliorer.

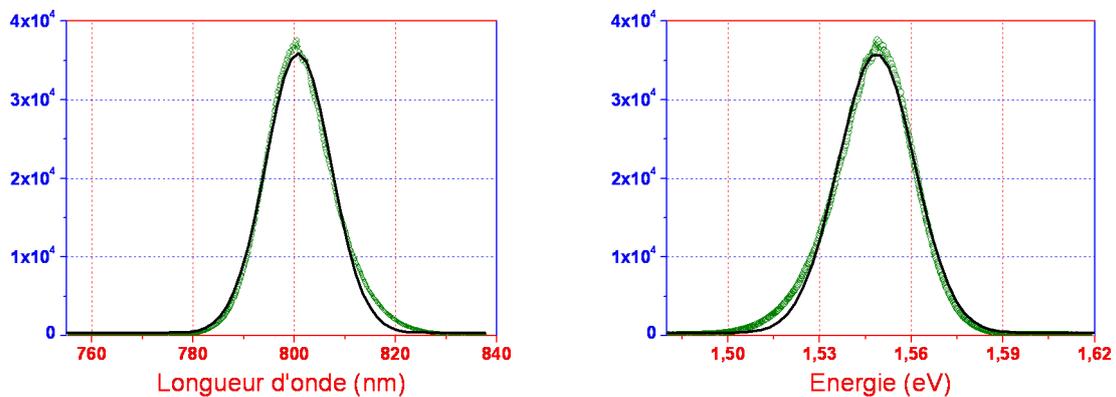


FIGURE 3.3 – *Profil spectral de la sonde en fonction de la longueur d'onde en nanomètre (à gauche) ou de l'énergie en eV (à droite). Les cercles verts sont les points expérimentaux et les traits noirs l'ajustement gaussien. L'ajustement donne une longueur d'onde centrale de 801nm ($1,55\text{eV}$) et une largeur à mi-hauteur de 15nm ($29,5\text{meV}$).*

Après M8, les faisceaux sont colinéaires. La figure 3.4 montre un signal d'absorption à deux photons réalisés dans du ZnS sans BBO. En négligeant la dispersion asymétrique des faisceaux sur les deux branches, ce signal correspond à la convolution d'une impulsion avec elle-même et constitue une estimation de la durée des impulsions à 240fs.

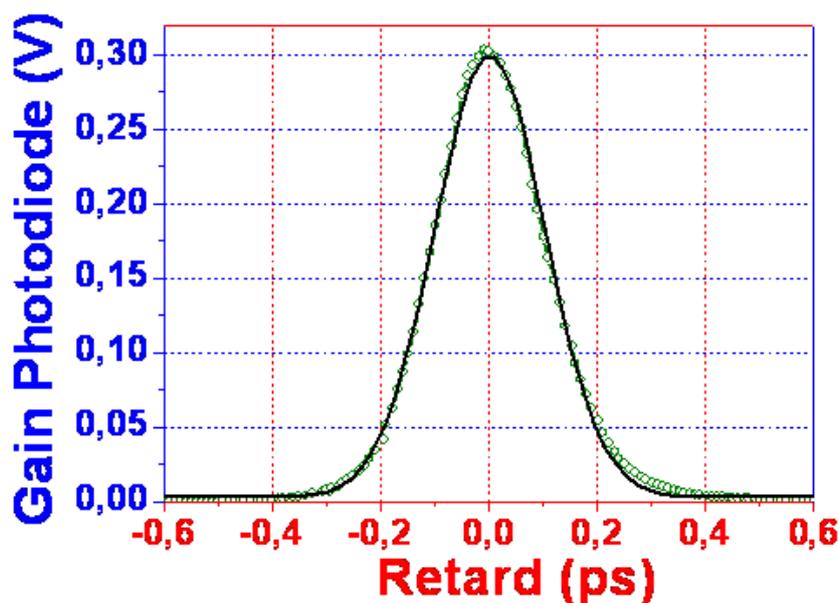


FIGURE 3.4 – *En cercles verts, la corrélation croisée entre le bras de la pompe et le bras de la sonde en fonction du retard entre les impulsions de pompe et sonde. Dans cette mesure, l'impulsion de pompe ne passe pas au travers d'un BBO. Le zéro est bien fixé. La largeur à mi-hauteur de 240fs est déterminée à l'aide de l'ajustement gaussien en noir.*

La colinéarité des faisceaux permet un recouvrement spatial parfait au niveau de l'échantillon. Pour obtenir un signal de pompe-sonde, il est nécessaire d'obtenir, en plus de la coïncidence spatiale, la coïncidence temporelle.

Le contrôle du retard

La pompe passe au travers une ligne à retard sur laquelle se situent M3 et M4. La ligne à retard est une platine de translation micrométrique M-ILS 250CC de marque Newport Corporation dont le pas minimal est de $1\mu\text{m} \pm 0.5\mu\text{m}$ et qui change la longueur du chemin optique. La ligne est pilotée par un contrôleur MM4006 de la même société interfacé à l'ordinateur par protocole GPIB. La variation minimale de retard est d'environ 7fs. La différence de chemin optique entre pompe et sonde est proportionnelle au retard τ lui-même défini par la position de la ligne. L'amplitude maximale de la ligne est de 250mm ce qui lui permet de couvrir théoriquement un retard maximal de 1.7ns. Pratiquement, le retard maximal que peut imposer cette ligne est inférieur à 1ns.

2.2 Au voisinage de l'échantillon

Le chapitre 2 montre que le magnétisme des échantillons de (Ga,Mn)As impose des conditions de champ magnétique externe et de températures stricte. Le champ magnétique doit orienter l'aimantation des échantillons identiquement de manière à permettre la comparaison des résultats. La température doit être inférieure à la température de

Curie pour être en phase ferromagnétique et identique pour tous les échantillons.

Enfin une mesure polarimétrique fine impose un dispositif plus sophistiqué qu'une simple configuration polariseur-analyseur.

Le refroidissement

Les températures de Curie présentées dans le chapitre 2 impose une température inférieure à 25K pour que l'ensemble soit en phase ferromagnétique. Le refroidissement est fait avec un cryostat MicroStatHe de l'entreprise Oxford représenté sur la figure 3.5. L'échantillon est placé sur un porte-échantillon de cuivre lui-même au bout d'une canne dont la base est en contact avec une chambre dans laquelle un flux continu d'hélium liquide évacue la chaleur par conduction thermique. L'hélium, vaporisé au contact de l'échangeur thermique, est pompé par une pompe à membrane isolée de la table optique pour éviter les vibrations. Le pompage est continu et assure la température minimale possible sur l'échantillon par souci de reproductibilité d'un échantillon à l'autre.

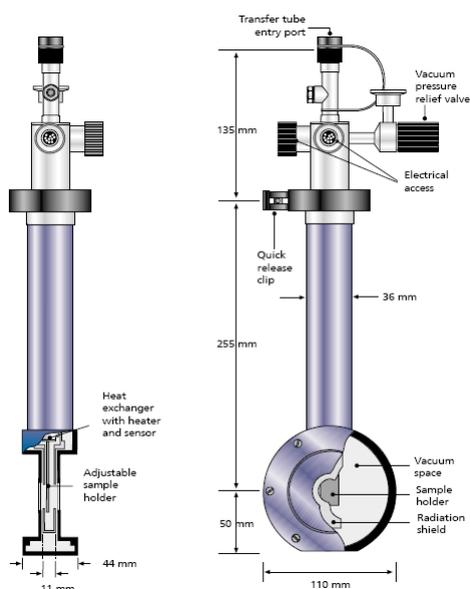


FIGURE 3.5 – Schéma représentatif du cryostat MicroStatHe de chez Oxford.

Le porte-échantillon se situe dans une chambre isolée dans laquelle la lumière pénètre au travers de hublots en silice. Le vide est fait dans cette chambre avant l'expérience par deux pompes à membrane et turbo-moléculaire en série. Le corps de la canne exposé dans la chambre est recouvert d'un bouclier thermique limitant le réchauffement par absorption de rayonnement.

Un contrôleur est connecté à une thermo résistance à la base de la canne. L'ensemble mesure la température en temps réel. La place disponible au niveau de l'échantillon impose un étalonnage indépendant de la température entre l'échantillon et la thermo résistance avec une estimation de la température minimale à 25K.

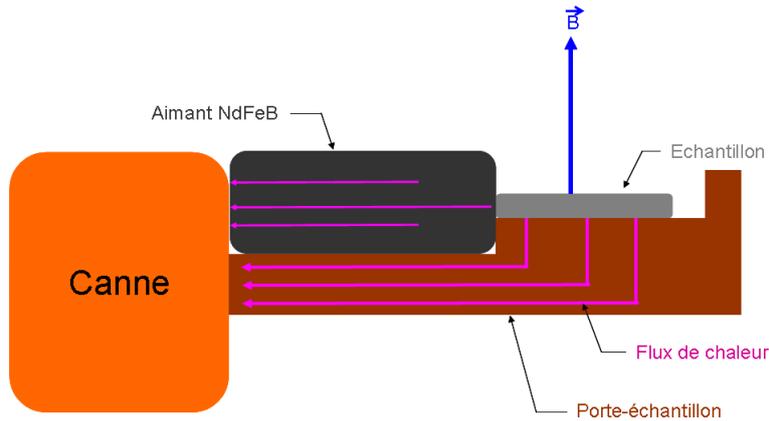


FIGURE 3.6 – Schéma du porte-échantillon avec aimant et échantillon.

Le champ magnétique

Un aimant de NdFeB applique de façon homogène un champ magnétique extérieur perpendiculaire au plan de l'échantillon d'amplitude $0.35 \pm 0.05\text{T}$ mesurée par une sonde de Hall. Le porte-échantillon représenté sur la figure 3.6 a été conçu pour accueillir l'aimant le plus grand dans l'espace limité du cryostat sans détériorer la mobilité de la chaleur vers la canne. L'aimant étant à proximité directe de l'échantillon, toute expérience a lieu au minimum une demi-heure après le refroidissement maximal pour laisser le temps de s'ajuster à la température de l'aimant.

L'optique

Avant et après l'échantillon, deux lentilles L3 et L4 de distance focale 50mm chacune assurent la focalisation et la recollimation de la pompe et de la sonde. La figure 3.7 montre le trajet des faisceaux au voisinage de l'échantillon.

L'expérience détecte optiquement l'aimantation par une approche polarimétrique pouvant se faire au moyen d'une simple configuration polariseur-échantillon-analyseur, d'un pont de photo-diodes ou d'une modulation différentielle de la phase des composantes linéaires de la lumière. Cette dernière configuration a l'avantage de pouvoir détecter simultanément le dichroïsme et la biréfringence circulaire.

Configuration polarimétrique.

L'expérience polarimétrique la plus simple mesure la rotation Kerr θ_K comme angle d'extinction dans une configuration polariseur-analyseur croisés. L'ellipticité η est obtenue en ajoutant une lame quart d'onde avant l'analyseur. Pour une détection à l'ordre du μrad , le principe est différent et un modulateur photo élastique ou PEM est inséré entre l'échantillon et l'analyseur. Celui-ci module acoustiquement l'indice optique à $f = 50\text{kHz}$ selon l'axe extraordinaire. La technique de détection synchrone est expliquée à la suite. La figure 3.7 présente la configuration expérimentale au voisinage de l'échantillon. Les éléments impliqués dans la détection polarimétrique sont le prisme de Glan-Taylor polarisant le faisceau à 0° , le PEM à 0° et l'analyseur à 45° . La polarisation du faisceau est dirigée selon P, perpendiculairement au plan d'incidence (polarisation transverse électrique TE). À la fin de la chaîne, F1 filtre spectralement la lumière de l'impulsion de pompe, L5 est

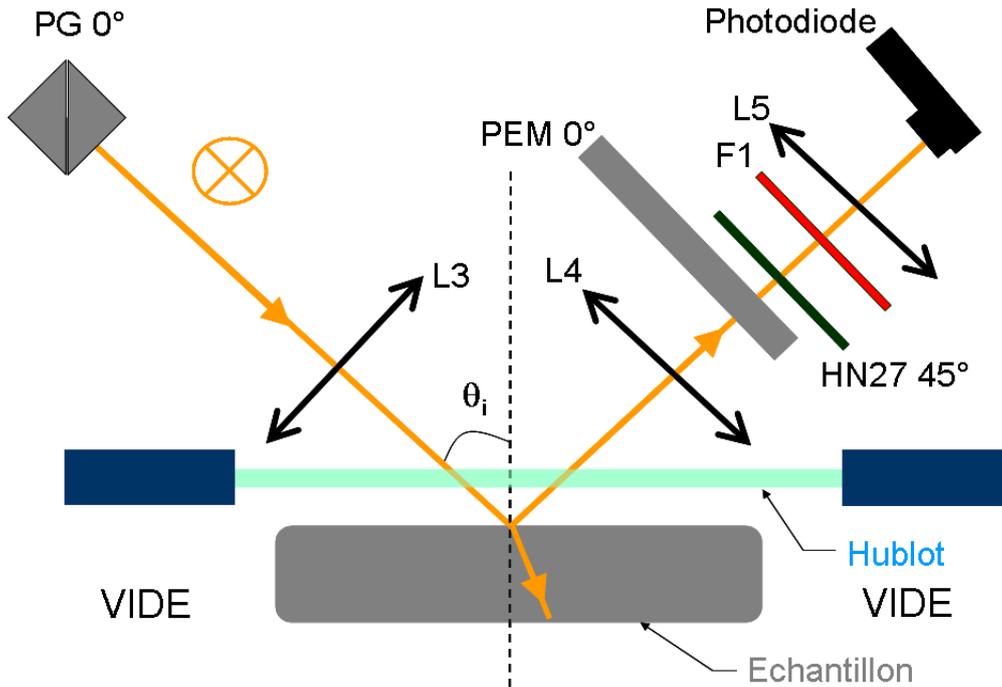


FIGURE 3.7 – Configuration expérimentale au voisinage de l'échantillon. En jaune, le trajet des faisceaux au voisinage de l'échantillon. $L3$, $L4$ et $L5$ sont des lentilles de focalisation et de collection. $HN27$ est un polariseur linéaire en polymères. Le PEM est représenté par un rectangle gris. $F1$ est un filtre rouge.

une lentille de collection et une photodiode Thorlab[®] (In,Ga)As enregistre le signal de la sonde.

3 Traitement du signal

La méthode de détection consiste à mesurer θ_K et η à partir de la configuration décrite dans la partie précédente. Cependant l'usage d'un PEM rend la relation entre le signal électrique de la photodiode et les angles recherchés compliquée.

3.1 Forme du signal polarimétrique

La polarisation linéaire de la pompe avant l'échantillon sert de référence. La biréfringence et le dichroïsme circulaire au cours de la réflexion du faisceau sur l'échantillon affecte la polarisation comme décrit dans la section 1 et créent une composante linéaire du champ électrique à 90° . Le passage dans le PEM module le retard à $f = \frac{\omega}{2\pi} = 50\text{kHz}$ entre les composantes linéaires à 0° et à 90° . Enfin, l'analyseur à 45° fait interférer les deux composantes perpendiculaires et transforme une modulation de phase en modulation d'intensité. La forme mathématique de l'intensité permet d'associer le signal démodulé aux grandeurs recherchées. Le comportement de la polarisation lumineuse est décrit par le formalisme de Jones ou de Mueller. Ce dernier a l'avantage supplémentaire de décrire des effets non polarimétriques comme la réflexion ou la transmission et la dépolarisation.

Le formalisme de Mueller sied donc bien à une expérience alliant mesures de réflectivité et de polarisation.

Formalisme de Mueller

Le formalisme de Mueller utilise des vecteurs, les vecteurs de Stokes, et les matrices de Mueller pour décrire respectivement l'état de polarisation lumineuse et les éléments optiques. Le produit ordonné des matrices des éléments optiques est une matrice de Mueller décrivant l'expérience. Une mesure complète de polarimétrie détermine la matrice de Mueller de l'échantillon. La polarisation incidente est connue et correspond à un vecteur de Stokes et la polarisation finale est déterminée au travers de mesures d'intensité.

L'équation (3.5) exprime les vecteurs de Stokes sortant \mathbf{S}^{OUT} en fonction du vecteur entrant \mathbf{S}^{IN} et de la matrice de Mueller M_{TOT} de l'ensemble {échantillon, PEM, analyseur}.

$$\mathbf{S}^{OUT} = M_{TOT}(\theta_K, \eta, t) \mathbf{S}^{IN} \quad (3.5)$$

Vecteur de Stokes entrant

Les composantes du vecteurs de Stokes se déterminent à partir du champ électrique et sont récapitulées dans l'expression (3.6). La lumière partiellement dépolarisée se décompose en la somme d'une intensité non polarisée et d'une intensité totalement polarisée. De manière générale I est l'intensité lumineuse totale et (Q, U, V) est la position sur une sphère de Poincaré dont le rayon est l'intensité lumineuse polarisée.

$$\left\{ \begin{array}{l} I = |E_x|^2 + |E_y|^2 \\ Q = |E_x|^2 - |E_y|^2 \\ U = 2\Re(E_x E_y^*) \\ V = 2\Im(E_x E_y^*) \end{array} \right. \Leftrightarrow \left\{ \begin{array}{l} E_x^2 = \frac{I+Q}{2} \\ E_y^2 = \frac{I-Q}{2} \\ E_x E_y^* = \frac{U+iV}{2} \\ E_x^* E_y = \frac{U-iV}{2} \end{array} \right. \quad (3.6)$$

La polarisation linéaire de l'onde incidente traduit un taux de polarisation de 1 avec $E_x = E$ et $E_y = 0$. Les composantes de \mathbf{S}^{IN} se calculent facilement et valent $I = e^2$, $Q = e^2$, $U = 0$ et $V = 0$.

Matrice de Mueller du système

Les matrices de Mueller de l'échantillon, du PEM et de l'analyseur HN27 sont récapitulées dans le tableau 3.2. La matrice de l'échantillon prend en compte la biréfringence circulaire β'' , le dichroïsme circulaire β' , la dépolarisation δ et la réflectivité traduite par α' . δ et α' sont des coefficients négatifs proportionnels à l avec $\alpha' = \frac{\omega l}{c} \bar{n}''$. D'autre part, le PEM est représenté par sa pulsation ω et l'amplitude de la modulation de phase φ . Cette dernière se règle sur le contrôleur du PEM et a été prise à $\frac{\pi}{4}$ en tenant compte de la longueur d'onde de la sonde $\lambda = 800\text{nm}$.

Intensité mesurée en fonction des paramètres de l'échantillon

L'intensité mesurée I par la photodiode est la première composante de \mathbf{S}^{OUT} donnée dans l'équation (3.7).

$$I(t) = \frac{E^2 e^{2\alpha'}}{2} \left\{ \text{ch}(2\beta') - \text{sh}(2\beta') \sin(\phi \cos(\omega t)) + e^\delta \sin(2\beta'') \cos(\phi \cos(\omega t)) \right\} \quad (3.7)$$

I se décompose en un terme constant et deux termes respectivement proportionnels à $\cos(\cos(\omega t))$ et $\sin(\cos(\omega t))$. Clairement, ces termes périodiques se décomposent en série de Fourier et donnent lieu à des harmoniques multiples de 50kHz. Ces dernières s'isolent par une démodulation de $I(t)$.

3.2 Traitement du signal : démodulation du signal statique

D'après Abramowitz (1971), les équations (3.8) présentent les développements en série de Fourier de $\cos(z \cos(\theta))$ et $\sin(z \cos(\theta))$. Les fonctions $J()$ sont des fonctions de Bessel.

$$\cos(z \cos(\theta)) = J_0(z) + \sum_{k=1}^{+\infty} (-1)^k J_{2k}(z) \cos(2k\theta) \quad (3.8a)$$

$$\sin(z \cos(\theta)) = \sum_{k=0}^{+\infty} (-1)^k J_{2k+1}(z) \cos((2k+1)\theta) \quad (3.8b)$$

Les coefficients de Fourier associés aux harmoniques ω et 2ω de l'équation (3.9) se trouvent en associant les équations (3.7) et (3.8) et en posant que $J_1\left(\frac{\pi}{4}\right) = 0,5160392$ et $J_2\left(\frac{\pi}{4}\right) = 0,1766164$.

$$\begin{cases} \tilde{I}_\omega = -0.2580196 E^2 e^{2\alpha'} \text{sh}(2\beta') \\ \tilde{I}_{2\omega} = -0.0883082 E^2 e^{2\alpha'+\delta} \sin(2\beta'') \end{cases} \quad (3.9)$$

Les deux composantes du développement s'expriment respectivement en fonction de la biréfringence et du dichroïsme circulaires.

3.3 Traitement du signal : démodulation du signal dynamique

Durant l'expérience de pompe-sonde, le faisceau de la pompe est modulé par un hacheur. La modulation de la pompe présente donc des créneaux de fréquence $F = \frac{\Omega}{2\pi} \approx 100\text{Hz}$ et sous-harmoniques. Pour une valeur du retard τ , les propriétés physiques sont modulées à la même fréquence et donne les paramètres définis dans l'équation (3.10) dans laquelle $H(t)$ est la fonction de Heaviside.

$$\begin{cases} \beta'(t) &= \beta'_1 H(\cos(\Omega t)) + \beta'_0 \\ \beta''(t) &= \beta''_1 H(\cos(\Omega t)) + \beta''_0 \\ \delta(t) &= \delta'_1 H(\cos(\Omega t)) + \delta_0 \\ \alpha'(t) &= \alpha'_1 H(\cos(\Omega t)) + \alpha'_0 \end{cases} \quad (3.10)$$

Ces nouveaux termes peuvent être introduits dans l'équation de l'intensité (3.7) ou des termes démodulés (3.9). Après un développement limité, cela donne au premier ordre les équations (3.11). Si la fréquence de hachage est très inférieure à la fréquence du PEM, une nouvelle démodulation à la fréquence du hacheur donne les signaux différentiels des effets circulaires.

$$\begin{cases} \tilde{I}_\omega \simeq -0.2580196e^2 e^{2\alpha'_0} \{ \text{sh}(2\beta'_0) + (2\alpha'_1 \text{sh}(2\beta'_0) + 2\beta'_1) H(\cos(\Omega t)) \} \\ \tilde{I}_{2\omega} \simeq -0.0883082e^2 e^{2\alpha'_0 + \delta_0} \{ \sin(2\beta''_0) + ((2\alpha'_1 + \delta_1) \sin(2\beta''_0) + 2\beta''_1) H(\cos(\Omega t)) \} \end{cases} \quad (3.11)$$

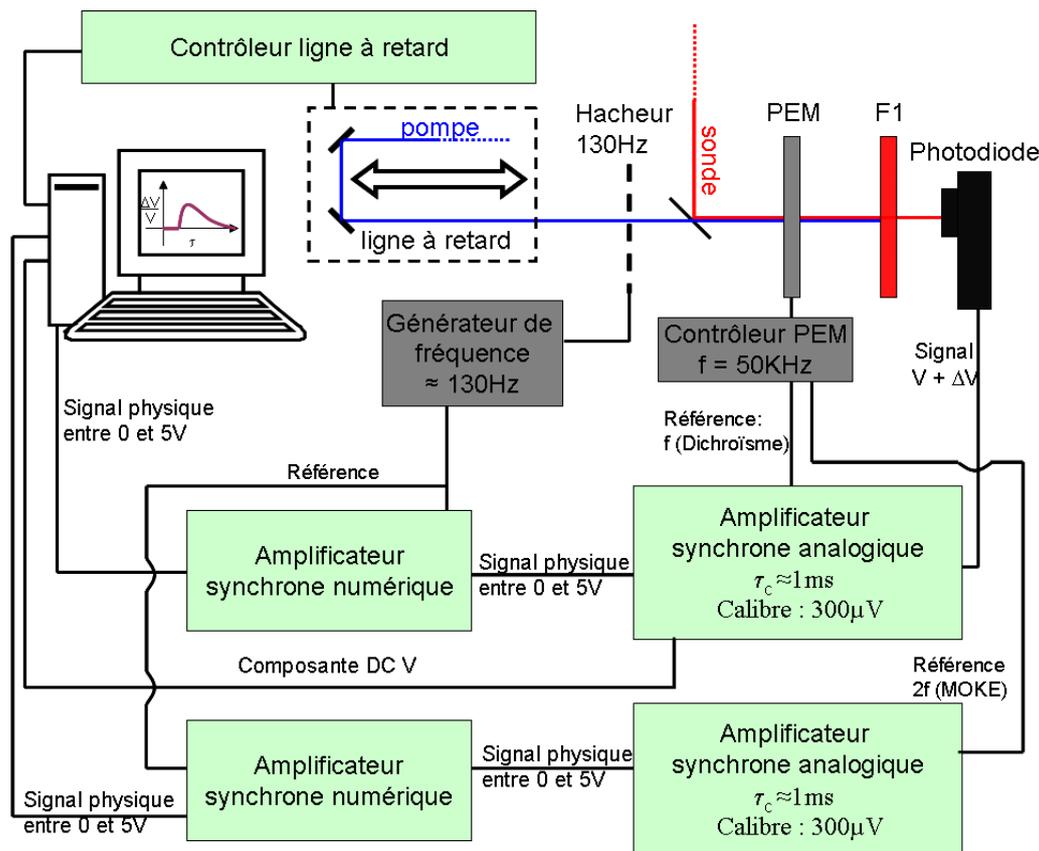


FIGURE 3.8 – Schéma représentatif de la chaîne d'acquisition des données.

La figure 3.8 présente un schéma de la chaîne d'acquisition des données. Quatre amplificateurs synchrones par série de deux en parallèles effectuent la démodulation du signal. En premier lieu, deux amplificateurs lock-in analogiques EG&G, modèle 5209[®], de chez Princeton Applied Research font l'acquisition, démodulent et amplifient les deux premières harmoniques du signal respectivement. Les constantes de temps de chacun des lock-in sont réglées à 1ms. De cette façon, la fréquence de coupure des lock-in est suffisamment élevée pour laisser passer la modulation du hacheur. L'amplitude du signal est de l'ordre de 300 μV. Enfin les deux lock-in numériques suivants de modèle EGG7250[®] démodulent à la fréquence du hacheur.

	Matrice de Mueller
Échantillon	$M_{circ} = e^{\alpha'} \begin{pmatrix} \text{ch}(\beta') & 0 & 0 & \text{sh}(\beta') \\ 0 & e^\delta \cos(\beta'') & -e^\delta \sin(\beta'') & 0 \\ 0 & e^\delta \sin(\beta'') & e^\delta \cos(\beta'') & 0 \\ \text{sh}(\beta') & 0 & 0 & e^\delta \text{ch}(\beta') \end{pmatrix}$
PEM	$M_{PEM} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos(\phi \cos(\omega t)) & -\sin(\phi \cos(\omega t)) \\ 0 & 0 & \sin(\phi \cos(\omega t)) & \cos(\phi \cos(\omega t)) \end{pmatrix}$
Analyseur à 45°	$M_{pol45} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
Matrice totale	$\begin{pmatrix} \text{ch}(2\beta') - \text{sh}(2\beta') \sin(\phi \cos(\omega t)) & e^\delta \sin(2\beta'') \cos(\phi \cos(\omega t)) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ \text{ch}(2\beta') - \text{sh}(2\beta') \sin(\phi \cos(\omega t)) & e^\delta \sin(2\beta'') \cos(\phi \cos(\omega t)) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ e^\delta \cos(2\beta'') \cos(\phi \cos(\omega t)) & \text{sh}(2\beta') - e^\delta \text{ch}(2\beta') \sin(\phi \cos(\omega t)) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ e^\delta \cos(2\beta'') \cos(\phi \cos(\omega t)) & \text{sh}(2\beta') - e^\delta \text{ch}(2\beta') \sin(\phi \cos(\omega t)) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$

TABLE 3.2 – Correspondance entre les matrices de Mueller et les composants optiques. α' est un paramètre lié à la réflectivité. β traduit les effets circulaires. δ est une dépolarisation. ϕ et ω sont respectivement l'amplitude de modulation de phase et la pulsation du PEM.

Chapitre 4

Dynamiques de charge et d'aimantation en fonction de la densité de trou dans l'état fondamental

Ce chapitre présente les résultats expérimentaux et leurs interprétations. Dans une première partie est abordée la relation entre réflectivité, structure de bande de l'échantillon et remplissage des états. Cette partie traite spécifiquement du lien entre dynamique des charges et variation de réflectivité après une excitation lumineuse à l'origine de paires électron-trou supplémentaires dans un semi-conducteur. Enfin, les règles de sélection optiques, liées au moment angulaire, sont utilisées pour discuter la relation entre dynamique des effets polarimétriques optiques et aimantation du système.

La seconde partie présente des résultats expérimentaux préliminaires sur la dynamique des charges entre 0.25ps à 1ns dans un échantillon (Recuit A) où la densité de porteurs est l'une des plus basses ($p \simeq 10^{19}\text{cm}^{-3}$). La configuration expérimentale, légèrement différente des autres cas présentés, consiste en l'application d'un champ magnétique perpendiculaire au plan de l'échantillon de 0.25T et une densité d'excitation optique supérieure à celle de la partie suivante. Les résultats de cette partie mettent en évidence les processus dynamiques sur cette gamme de temps. Cette partie montre la relation forte existant entre dynamique de réflectivité et dynamique des effets polarimétriques. Il est utile de les exploiter simultanément pour concevoir un schéma de la dynamique des électrons, des trous et de l'aimantation dans le système.

La troisième partie est une étude de la dynamique de réflectivité de l'ensemble des échantillons ($10^{17} < p < 7.9 \times 10^{20}\text{cm}^{-3}$) à l'ordre de la centaine de picosecondes. La densité de trous dans la bande de valence est alors variable alors que celle d'impuretés de tous types strictement identique. De plus, l'intensité d'excitation ne change pas d'un échantillon à l'autre. Deux constantes de temps, dépendantes de la densité de trous, sont alors résolues et expliquées.

La quatrième partie présente les résultats de rotation Kerr résolus en temps en fonction de la densité de trous. Cette partie démontre l'existence de plusieurs régimes d'évolution de l'aimantation. La relaxation de l'aimantation étant celle d'une part de sa norme et d'autre part de sa direction, ces deux aspects sont traités, discutés et interprétés.

Ce chapitre se conclut par une description quantitative de la dépendance des amplitudes caractéristiques des signaux de rotation Kerr résolus en temps en fonction de la densité de trous. Ces amplitudes sont intéressantes puisqu'elles présentent une dynamique dépendante de la température déjà étudiée par J. Wang *et al.* [100]. Comme il a été dit dans le chapitre 1.5.2 (p.41), les amplitudes au temps courts et longs sont respectivement liées au processus de désaimantation et de réaimantation. Il est donc normal de vouloir en établir la dépendance en fonction de la densité de porteurs. Cette partie présente l'intérêt de confronter des résultats expérimentaux et théoriques quantifiables tout en effectuant une transition avec le chapitre suivant.

1 Mesures de dynamiques de charges et d'aimantation

Cette section explique dans un premier temps le lien entre la dynamique de la variation de réflectivité $\Delta R(t)$ mesurée par l'expérimentateur et celle des charges, avec un lien fait avec leur température T et de leur potentiel chimique μ . Sur cette base, cette section se poursuit par une discussion sur la relation entre les dynamiques de remplissage des charges, de l'aimantation des ions de manganèse et des quantités mesurées en polarimétrie optique dépendant du temps à savoir les variations d'angle de rotation Kerr et de dichroïsme circulaire.

1.1 Dynamique de la réflectivité dans un semi-conducteur idéal en équilibre ou quasi-équilibre

Dans les expériences de pompe-sonde menées dans cette thèse, l'impulsion de pompe à $\lambda_p = 400\text{nm}$ modifie transitoirement la réflectivité alors que l'impulsion de sonde teste cette modification à $\lambda_s = 800\text{nm}$ au voisinage du bord de bande du GaAs, *i.e.* avec une énergie $\hbar\omega_s \sim 1.51\text{eV}$ comparable à celle de la bande interdite. Les variations dans le spectre de réflectivité proviennent d'une part d'une réorganisation des énergies des niveaux quantiques et d'autre part d'une redistribution des charges dans ces niveaux.

Cas général : relation entre réflectivité et susceptibilité électrique

La réflectivité R dépend de l'indice de réfraction selon la relation donnée dans l'équation (4.1) dans laquelle r est le coefficient de réflectivité agissant sur l'amplitude du champ électrique. Cette équation est valable pour une simple interface vide-diélectrique avec un angle d'incidence nul avec $n'' < n'$.

$$R = rr^* = \left| \frac{1-n}{1+n} \right|^2 = \frac{1-2n'+n'^2+n''^2}{1+2n'+n'^2+n''^2} = \left(\frac{1-n'}{1+n'} \right)^2 \left\{ 1 + 4 \frac{n''^2}{n'} \right\} + o \left(\left(\frac{n''}{n'} \right)^4 \right) \quad (4.1)$$

Dans cette équation, $n = n' + in''$ est l'indice de réfraction complexe du milieu, et R est le coefficient de réflectivité égal au rapport des intensités réfléchies et incidentes. n et R sont des fonctions de l'énergie $\hbar\omega$ des photons incidents. Les composantes réelle n' et imaginaire n'' sont associées respectivement à un ralentissement et une absorption de

l'onde électrique se propageant dans le milieu. L'équation (4.1) montre que la réflectivité est une grandeur physique difficile à analyser car elle dépend de manière non triviale des parties réelle n' et imaginaire n'' de l'indice de réfraction.

L'équation (4.2) relie une variation infinitésimale d'indice de réfraction avec la forme différentielle de la réflectivité. Dans la limite des faibles variations d'indice, cette équation approxime au premier ordre la grandeur mesurée au cours des expériences de pompe sonde. D'après cette équation, la connaissance des mécanismes en cours dans un échantillon dépend de la possibilité pour l'expérimentateur de relier l'indice de réfraction aux mécanismes physiques dans la couche.

$$\frac{dR}{R} = -\frac{4}{(1+n)^2}dn \simeq \frac{4n'(2n'-1)}{(n'^2-1)^2}dn' \quad (4.2)$$

L'indice de réfraction est une quantité complexe associée à la constante diélectrique ϵ selon la relation $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon'' = n^2 = (n' + in'')^2$ elle-même reliée à la susceptibilité diélectrique $\chi = \epsilon - 1$. La relation entre susceptibilité diélectrique $\chi = \chi' + i\chi''$ et indice de réfraction est donnée par les équations (4.3).

$$\begin{cases} \chi' = n'^2 - n''^2 - 1 \\ \chi'' = 2n'n'' \end{cases} \iff \begin{cases} n' = \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 + \chi' + \sqrt{(1 + \chi')^2 + \chi''^2} \right)} \\ n'' = \sqrt{\frac{1}{2} \left(-(1 + \chi') + \sqrt{(1 + \chi')^2 + \chi''^2} \right)} \end{cases} \quad (4.3)$$

Cette équation permet d'exprimer la forme différentielle de la partie réelle de l'indice donnée dans l'équation (4.4)

$$dn' = -\frac{1}{2\sqrt{(1 + \chi')^2 + \chi''^2}} \left(d\chi' + \sqrt{\frac{1}{2} \left(-(1 + \chi') + \sqrt{(1 + \chi')^2 + \chi''^2} \right)} d\chi'' \right) \quad (4.4)$$

La susceptibilité diélectrique quantifie la capacité d'un milieu à se polariser en présence d'un champ électrique. Elle est donc liée aux charges et à la manière dont elles s'organisent dans le matériau étudié. Dans le cas d'un semi-conducteur cristallin tel que le GaAs, les charges se délocalisent sur l'ensemble du cristal et remplissent entièrement la bande de valence. Le calcul de la susceptibilité peut alors se faire de manière semi-empirique en supposant cette répartition des charges dans les bandes et les règles de conservation déjà discutées dans le chapitre 1 à la section 3.1 (p.30).

Susceptibilité d'un semi-conducteur dans l'approximation de deux bandes paraboliques isotropes

La dernière étape pour la compréhension de la réflectivité est d'exprimer la relation entre susceptibilité diélectrique et propriétés élémentaires des semi-conducteurs. L'équation (4.5) exprime la susceptibilité d'un milieu semi-conducteur à gap direct parfaitement cristallin dans l'approximation de la masse effective pour un champ électrique incident

polarisé linéairement et dans l'approximation de l'onde tournante d'après la référence [28]. La structure de bande supposée est simplifiée avec deux bandes de valence et de conduction paraboliques et isotropes.

$$\chi(\omega) = \frac{1}{L^3} \sum_{\mathbf{k}} \frac{|d_{cv}|^2 (f_{v,k} - f_{c,k})}{(\epsilon_c - \epsilon_v - \hbar\omega - i\Gamma)} \quad (4.5)$$

Dans cette expression, $\epsilon_c(\mathbf{k})$ et $\epsilon_v(\mathbf{k})$ sont les énergies des états des bandes de conduction et de valence respectivement données dans l'équation (4.6) avec m_v^* et m_c^* les masses effectives des bande de conduction et valence respectivement et E_g l'énergie de la bande interdite.

$$\epsilon_c(\mathbf{k}) = \frac{\hbar k^2}{2m_c^*} + E_g \quad \epsilon_v(\mathbf{k}) = -\frac{\hbar k^2}{2m_v^*} \quad (4.6)$$

$\hbar\omega$ est l'énergie du photon incident. $f_{v,k}$ et $f_{c,k}$ sont des fonctions de Fermi-Dirac traduisant le remplissage de la bande de valence et de la bande de conduction. Γ est un terme traduisant l'amortissement. d_{cv} est l'amplitude de transition supposée indépendante de \mathbf{k} au voisinage du maximum. L'expression de la fonction de remplissage est donnée par l'équation (4.7) dans laquelle $\beta = \frac{1}{k_B T}$ et μ est le potentiel chimique.

$$f(\epsilon) = \frac{1}{1 + \exp(\beta(\epsilon - \mu))} \quad (4.7)$$

D'après l'expression de la susceptibilité diélectrique (4.5), l'état d'un semi-conducteur dépend de huit variables indépendantes qui sont les masses effectives des électrons et trous, leur potentiel chimique, leur température, l'énergie de la bande interdite E_{gap} et l'amortissement Γ . Toutes ces variables influencent la susceptibilité électrique χ et par extension le spectre de réflectivité du milieu. La forme différentielle de la réflectivité est donc donnée par l'expression (4.8) dans laquelle le nombre de paramètres est réduit par des considérations d'ordre physique. Ainsi, les électrons et trous des bandes de conduction et de valence adoptent une température commune ~ 200 fs après l'excitation. Les effets de renormalisation des masses effectives sont probables mais faibles et peu reportés dans la littérature pour GaAs. Enfin, la renormalisation du gap apparaît directement au cours de l'excitation et son évolution ultérieure dépend de la température T et des potentiels chimiques μ_{el} et μ_{trous} .

$$dR = \frac{\partial R}{\partial \mu_{el}} d\mu_{el} + \frac{\partial R}{\partial \mu_{trous}} d\mu_{trous} + \frac{\partial R}{\partial T} dT + \dots \quad (4.8)$$

Dans l'expression (4.5), la susceptibilité totale est une somme de contributions de couples de niveaux indexés par le quasi-moment \mathbf{k} . Chaque paire de niveaux partageant la même valeur de \mathbf{k} donne donc une contribution à l'ensemble du signal qu'il est possible d'étudier individuellement. Les parties réelle a) et imaginaire b) de l'une d'elle, pour $\Delta E = 1.5$ eV, sont représentées sur la figure 4.1. Le ralentissement de la vitesse de propagation de la lumière dans le milieu, représenté par la partie réelle, est non nul quel que soit l'énergie de l'onde incidente et participe au signal de réflectivité hors résonance. Ainsi, pour toute énergie de photon incident, chaque transition optique existante affecte de manière variable la réflectivité.

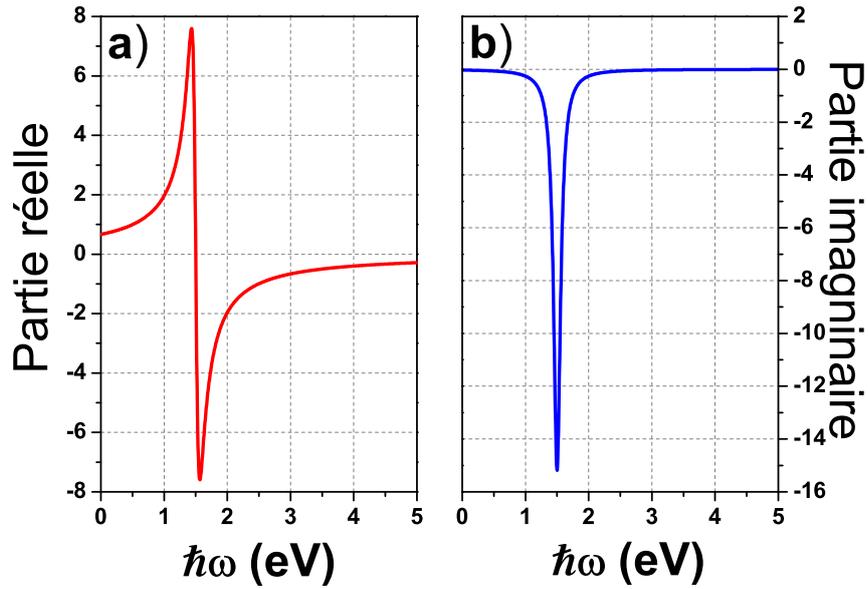


FIGURE 4.1 – Parties réelle a) et imaginaire b) de la contribution d'un niveau du centre de zone à la susceptibilité diélectrique d'un semi-conducteur. La différence d'énergie entre les niveaux fondamental et excité est $\Delta E = 1.5\text{eV}$, l'amortissement $\Gamma \simeq 0.07\text{eV}$. La valeur de l'amortissement est volontairement exagérée pour une meilleure lisibilité.

Interprétation de la dynamique de la réflectivité différentielle dans les régimes de porteurs chauds et isothermal

En toute généralité, l'action de l'impulsion de pompe est de modifier transitoirement les paramètres définissant l'état du semi-conducteur. La modification de E_g est un phénomène appelé renormalisation du gap qui ne sera pas discuté ici car suffisamment faible sur les échelles mesurées. La modification transitoire des masses effectives n'est pas reportée dans la littérature. Les températures des gaz de charges s'égalisent en moins de 1ps permettant d'attribuer une température unique à l'ensemble des gaz de charges. Enfin, les potentiels chimiques sont des fonctions de la température T et de l'occupation totale p et n des bandes de valence et de conduction respectivement.

Après l'excitation par l'impulsion de pompe et en équilibre quasi statique, la susceptibilité diélectrique, et donc la réflectivité, évoluent par conséquent avec trois variables dont les variations s'explicitent mathématiquement par les équations de taux (4.9). Dans celles-ci, T , n et p sont respectivement la température des charges et les densités d'électrons et de trous. t est le temps. τ_{ref} et τ_{rec} sont des constantes de temps de refroidissement et de recombinaison. T_{ini} , n_{ini} et p_{ini} sont respectivement les températures, et les densités d'électrons et de trous avant le passage de l'impulsion de pompe. T_{fin} , n_{fin} et p_{fin} correspondent aux mêmes quantités après le passage de l'impulsion de pompe et la ther-

malisation des charges. Les relaxations de ces entités sont ici supposées exponentielles.

$$\begin{cases} T(t) = (T_{fin} - T_{ini}) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{ref}}\right) + T_{ini} \\ n(t) = (n_{fin} - n_{ini}) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rec}}\right) + n_{ini} \\ p(t) = (p_{fin} - p_{ini}) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rec}}\right) + p_{ini} \end{cases} \quad (4.9)$$

Les potentiels chimiques sont des fonctions qui se calculent principalement numériquement en fonction du remplissage des bandes et de la température à chaque retard t . Dans ce cadre, l'équation (4.10) présente la variation différentielle de réflectivité en fonction des paramètres physiques desquels elle dépend dans le cas d'un semi-conducteur simple.

$$\frac{\Delta R(t)}{R} = \frac{R(n(t), p(t), T(t)) - R(n_{ini}, p_{ini}, T_{ini})}{R(n_{ini}, p_{ini}, T_{ini})} \quad (4.10)$$

En conclusion, il existe une relation univoque entre la dynamique des populations et de l'énergie des charges avec la réflectivité différentielle du signal. Ceci permet d'attribuer la dynamique des charges entre $t \sim 0$ ps et $t \sim 1$ ns à la dynamique de la température, représentée par τ_{ref} et à la dynamique du nombre de charges libres, représentée par τ_{rec} . Ces deux temps sont les paramètres qu'apporte une expérience pompe-sonde menée sur un semi-conducteur non dopé.

Les arguments développés ici sont de nature qualitative puisqu'ils ne tiennent pas compte de la structure réelle des bandes de conduction et de valence dont il a été question dans le chapitre 1. Cependant bien que le raffinement de la structure de la bande de valence avec des bandes de trous lourds et légers ainsi qu'une bande de split-off mène nécessairement à une évolution dans le spectre de réflectivité, l'allure de la dynamique de la variation différentielle de réflectivité donne toujours une information sur des temps de relaxation τ_{ref} et τ_{rec} .

1.2 Relation entre mesures polarimétriques et aimantation

Sous la température de Curie, l'interaction d'échange magnétique provoque une levée de dégénérescence de spin sur les trous de la bande de valence et les électrons de la bande de conduction. La prise en compte de l'anisotropie magnétique, de la position du niveau de Fermi et des contraintes biaxiales nécessite un raffinement de la modélisation de la structure de la bande de valence par rapport au paragraphe précédent. La figure 4.2 est une représentation schématique de la disposition des états des bandes de valence et de conduction pour lesquels la levée de dégénérescence de spin est quantifiée par les deux facteurs Δ_{sd} et Δ_{pd} .

D'après la figure 4.2, le nombre de possibilités de transitions d'un électron depuis la bande de valence vers la bande de conduction varient entre zéro et six selon l'énergie du photon incident. Le respect de la conservation du moment angulaire classe les possibilités de transitions en deux groupes, récapitulées dans le tableau 4.1, selon l'hélicité du photon susceptible de les provoquer.

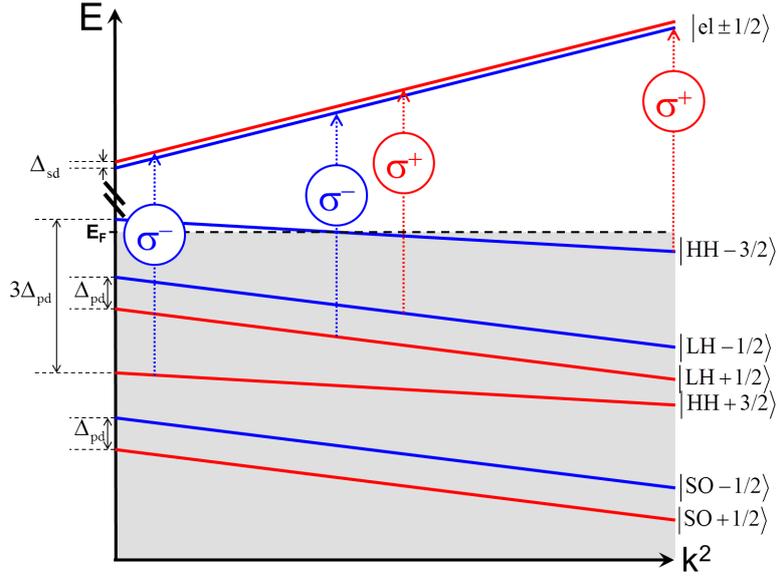


FIGURE 4.2 – *Dispersion des trous et des électrons pour les différentes projections de spins.* Δ_{pd} et Δ_{sd} sont des levées de dégénérescence dépendantes de l'état de spin. Les flèches rouges et bleues en pointillés représentent des transitions optiques possibles impliquant des photons de même énergie mais de polarisations circulaires différentes. En gris les états remplis jusqu'à l'énergie de Fermi E_F .

Les mesures polarimétriques des effets de rotation Kerr et de dichroïsme circulaire dépendront donc de plusieurs facteurs dont le premier est bien entendu l'amplitude de la levée de dégénérescence magnétique.

Approche quantitative des effets de l'aimantation sur le repositionnement des bandes du semi-conducteur

Les levées de dégénérescence des différentes bandes sont proportionnelles au taux de polarisation $M(H, T)$ des impuretés magnétiques selon les équations (4.11). Dans ces équations, H et T sont respectivement l'amplitude du champ magnétique extérieur et la température. J_{sd} et J_{pd} quantifient respectivement le couplage magnétique entre spins des

σ^+		σ^-	
$\left HH - \frac{3}{2} \right\rangle$	\rightarrow	$\left BC - \frac{1}{2} \right\rangle$	$\left HH + \frac{3}{2} \right\rangle \rightarrow \left BC + \frac{1}{2} \right\rangle$
$\left LH - \frac{1}{2} \right\rangle$	\rightarrow	$\left BC + \frac{1}{2} \right\rangle$	$\left LH + \frac{1}{2} \right\rangle \rightarrow \left BC - \frac{1}{2} \right\rangle$
$\left SO - \frac{1}{2} \right\rangle$	\rightarrow	$\left BC + \frac{1}{2} \right\rangle$	$\left SO + \frac{1}{2} \right\rangle \rightarrow \left BC - \frac{1}{2} \right\rangle$

TABLE 4.1 – *Transitions optiques permises pour les polarisations lumineuses σ^+ et σ^- .*

électrons et des trous des bandes de conduction et de valence avec le spin de la couche externe 3d des impuretés de manganèse. j est le nombre quantique associé aux projections de pseudo-spin des charges sur l'axe perpendiculaire au plan de l'échantillon (Oz) qui dans le cas de la configuration polaire s'identifie à l'axe de quantification. $A_F \sim 1.3$ est un facteur de renormalisation de la densité de spin dû aux fluctuations du liquide de Fermi [16] [34]. M est naturellement la norme de l'aimantation des impuretés magnétiques.

$$\begin{aligned}\Delta_c(j) &= j \cdot 2J_{sd} \frac{M(H,T)}{g\mu_B} \left(j = \pm \frac{1}{2} \right) \\ \Delta_v(j) &= j \cdot A_F \frac{2}{3} J_{pd} \frac{M(H,T)}{g\mu_B} \left(j = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2} \right) \\ \Delta_{SO}(j) &= j \cdot A_F \frac{2}{3} J_{pd} \frac{M(H,T)}{g\mu_B} \left(j = \pm \frac{1}{2} \right)\end{aligned}\quad (4.11)$$

La principale influence de la polarisation magnétique des atomes de manganèse sur la structure de bande est donc de lever la dégénérescence de pseudo-spin des charges proportionnellement à l'aimantation. Ceci change les propriétés optiques du semi-conducteur.

Aimantation des impuretés et propriétés optiques du système

La levée de dégénérescence due au champ d'aimantation et les règles de sélection optiques discutées au chapitre 1 3.1 (p. 30) permettent de décomposer la susceptibilité diélectrique en deux contributions, chacune agissant indépendamment sur l'une des composantes circulaires σ^+ et σ^- de l'onde lumineuse.

Tout comme précédemment, la susceptibilité est une somme dont chaque terme est associé à une transition permise. En présence d'un champ d'aimantation, chaque terme se dédouble pour agir sur l'une des composantes circulaires de la lumière. Les différences de susceptibilité provoquées par la levée de dégénérescence d'un niveau sont représentées sur la figure (4.3) dans les mêmes circonstances que précédemment avec une levée de dégénérescence magnétique de $\Delta_{pd} = 200\text{meV}$. La partie réelle est à l'origine de l'effet Kerr magnéto-optique alors que la partie imaginaire est source de dichroïsme circulaire.

Calcul des coefficients de réflectivité Les coefficients de réflectivité s'expriment en fonction des indices complexes qui dépendent cette fois de la polarisation de la lumière incidente. L'équation (4.12) donne une expression de la relation entre réflectivité et indice de réfraction selon la polarisation lumineuse de la lumière signalée par les exposants $+$ et $-$.

$$r^\pm = \frac{1 - n^\pm}{1 + n^\pm} \quad (4.12)$$

L'équation(4.13) donne une expression de la susceptibilité totale en fonction des susceptibilités des transitions permises du tableau 4.1.

$$\chi^\pm(\omega) = \chi_{HH}^\pm(\omega) + \chi_{LH}^\pm(\omega) + \chi_{SO}^\pm(\omega) \quad (4.13)$$

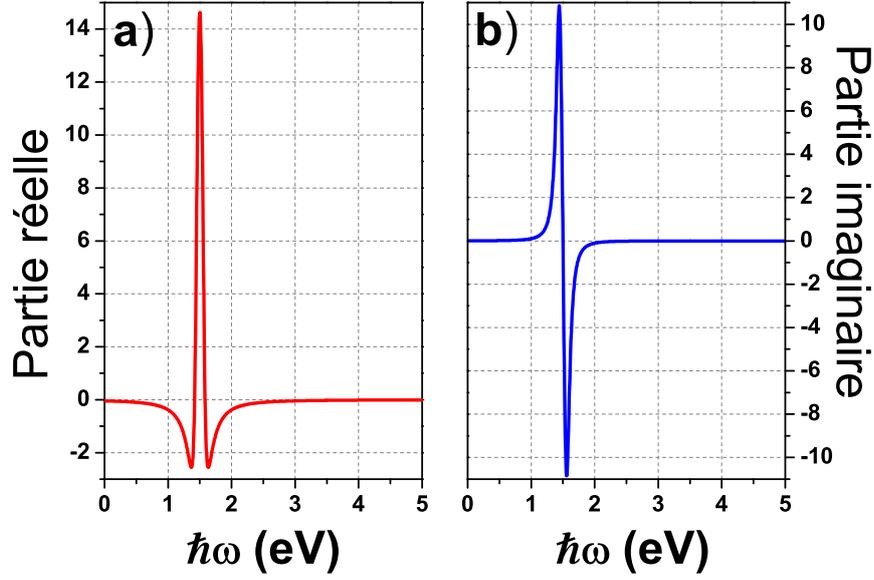


FIGURE 4.3 – Variations des parties réelle a) et imaginaire b) de la contribution d'une transition à la susceptibilité diélectrique. La différence d'énergie moyenne entre le niveau fondamental et les deux niveaux excités vaut $\Delta E = 1.5\text{eV}$, l'amortissement $\Gamma \simeq 0.07\text{eV}$ et la levée de dégénérescence magnétique $\Delta_{pd} = 200\text{meV}$.

Chaque terme de l'équation (4.13) mène à un couple de bande de valence et de conduction dont la contribution à la susceptibilité se détermine à l'aide du premier paragraphe. Les expressions des différents termes sont récapitulées dans l'équation (4.14)

$$\begin{aligned}
\chi_{HH}^{\pm}(\omega) &= \frac{1}{L^3} \sum_{\mathbf{k}} \frac{|d_{cv}|^2 (f_{v,k} - f_{ck})}{\hbar (\epsilon_c^{\mp} - \epsilon_{HH}^{\mp} - \omega - i\Gamma)} \\
\chi_{LH}^{\pm}(\omega) &= \frac{1}{L^3} \sum_{\mathbf{k}} \frac{|d_{cv}|^2 (f_{v,k} - f_{ck})}{\hbar (\epsilon_c^{\pm} - \epsilon_{LH}^{\pm} - \omega - i\Gamma)} \\
\chi_{SO}^{\pm}(\omega) &= \frac{1}{L^3} \sum_{\mathbf{k}} \frac{|d_{cv}|^2 (f_{v,k} - f_{ck})}{\hbar (\epsilon_c^{\pm} - \epsilon_{SO}^{\pm} - \omega - i\Gamma)}
\end{aligned} \tag{4.14}$$

Enfin, l'aimantation repositionne le centre de chaque bande de conduction et de valence en fonction des valeurs $\Delta_c(j)$ et $\Delta_{pd}(j)$.

$$\begin{aligned}
\epsilon_c^{\pm} &= E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c} + \Delta_c(j) & \epsilon_{HH}^{\pm} &= -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{HH}} + \Delta_{pd}(j) \\
\epsilon_{LH}^{\pm} &= -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{LH}} + \Delta_{pd}(j) & \epsilon_{SO}^{\pm} &= -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{SO}} - \Delta_{SO} + \Delta_{pd}(j)
\end{aligned} \tag{4.15}$$

Cette discussion montre que les coefficients de réflectivité r^+ et r^- dépendent tous deux de l'état d'aimantation du système au travers du positionnement des bandes. À l'équilibre et d'après l'équation (4.16), la réflectivité dépend donc de l'aimantation. Bien qu'en l'absence de point de comparaison la réflectivité seule ne permet pas de mesurer optiquement l'aimantation, toute variation de celle-ci au cours d'une expérience affecte la réflectivité. Premièrement, l'aimantation dépend de la température ce qui permet de

s'attendre à des variations de spectre de réflectivité au cours d'une étude en température. Deuxièmement, lors d'une étude sur plusieurs échantillons, comme c'est le cas ici, le spectre de réflectivité varie du fait des changements d'aimantation. Et troisièmement, dans le cas d'une expérience pompe-sonde, il est possible que la dynamique de la réflectivité différentielle reflète la dynamique de l'aimantation. Ces deux derniers points sont importants dans les matériaux étudiés ici.

Il s'agit maintenant de faire le lien entre les coefficients de réflectivité dépendant de la polarisation, la réflectivité totale et les effets magnéto-optiques dans un échantillon.

Expressions analytiques des amplitudes de réflectivité, de rotation Kerr et de dichroïsme circulaire La configuration expérimentale est dite « polaire » dans laquelle l'axe de propagation du champ électromagnétique et l'aimantation \mathbf{M} sont colinéaires tout en étant normaux au plan de l'échantillon. La réflectivité moyenne est donnée par l'équation (4.16) avec $R = rr^*$.

$$r = \frac{r^+ + r^-}{2} \quad (4.16)$$

L'angle de rotation Kerr θ_K est relié à l'asymétrie de la réflectivité des composantes circulaires de la lumière par l'équation (4.17).

$$\theta_K = -\frac{180}{\pi} \arctan \left(\operatorname{Re} \left[i \frac{r^+ - r^-}{r^+ + r^-} \right] \right) \quad (4.17)$$

Enfin, le dichroïsme circulaire s'obtient au travers de l'équation (4.18) dans laquelle $R^+ = r^+r^{*+}$ et $R^- = r^-r^{*-}$.

$$MCD(\omega) = \frac{90}{\pi} \frac{R^+ - R^-}{R^+ + R^-} \quad (4.18)$$

À ce stade, il est clair que les effets de rotation optiques et de dichroïsme circulaire à l'équilibre sont imputés à l'asymétrie de réflexion entre les deux composantes circulaires de la lumière. Cette asymétrie a ici pour seule origine l'aimantation M du système. Cependant, son amplitude est dépendante de la densité d'états.

2 Utilisation des signaux différentiels pour établir la relaxation des charges et de l'aimantation

Cette partie établit un schéma de relaxation des charges et de l'aimantation dans (Ga,Mn)As comme base d'interprétation pour la suite du chapitre. L'analyse utilise les résultats de réflectivité différentielle, de TR-MOKE et de dichroïsme résolu en temps à 800nm. Ces mesures ont été réalisées avec précision sur trois échelles de temps offrant l'opportunité d'une analyse complète de la dynamique sur des échelles de 100fs à 1ns. L'excitation optique initiale, de longueur d'onde 400nm, applique une densité surfacique estimée à $25\mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$ ou $\simeq 5.0 \times 10^{13}\text{photons}\cdot\text{cm}^{-2}$ par impulsion pour exciter l'échantillon. Celui-ci, nommé « recuit A », de densité de trous à l'équilibre $p \simeq 10^{19}\text{cm}^{-3}$, est soumis à une induction magnétique perpendiculaire au plan d'amplitude mesurée à 0.25T par une sonde de Hall. La température de l'expérience est fixe, valant environ 20K, en

dessous de la température de Curie présentée dans le chapitre 2. Recuit A est donc en phase ferromagnétique.

Dans un premier temps, l'ajustement de la réflectivité différentielle donne quantitativement les différents temps de relaxation composant la dynamique. Ces temps servent pour la comparaison avec des résultats équivalents dans la littérature réalisés sur GaAs et LT-GaAs. Dans un second temps, la réflectivité différentielle est comparée à la variation des effets polarimétriques. Il en résulte une identification plus systématique des relaxations étudiées qui donne un panorama de la dynamique des charges et de l'aimantation dans recuit A.

2.1 Étude de la réflectivité entre $\tau = 0\text{ps}$ et $\tau = 1\text{ns}$

La figure 4.4 (p. 80) montre la dynamique de la réflectivité différentielle entre $\tau = 0\text{ps}$ et $\tau = 600\text{ps}$. Après une diminution initiale sur 500fs vers un minimum du signal, la réflectivité augmente dépassant sa valeur initiale à $\tau = 2.5\text{ps}$. Cette augmentation se poursuit jusqu'à $\tau \simeq 50\text{ps}$ où le signal atteint un maximum. Enfin, la réflectivité retourne à son état d'équilibre sur une échelle de temps de 1ns. Trois temps caractéristiques sont visibles entre 0ps et 5ps 4.4 b) et deux sur 4.4 c) et d) entre 50ps et 600ps. Le signal de réflectivité présente un bon rapport signal sur bruit et les temps caractéristiques de la dynamique ont tous des ordres de grandeurs différents ce qui permet de les déterminer sans ambiguïté par ajustement d'exponentielles.

La figure 4.4 d) (p. 80) montre une variation mono exponentielle du signal après $\tau = 100\text{ps}$. La procédure débute donc avec la détermination du temps de décroissance caractéristique entre $\tau = 100\text{ps}$ et $\tau = 600\text{ps}$. Par souci de clarté, la relaxation finale est retirée du signal total en effectuant une division ce qui augmente la visibilité de la montée vers le maximum. De proche en proche et en utilisant les mesures aux différentes échelles de temps, la forme mathématique de la variation de réflectivité différentielle, présentée dans l'équation (4.19), est reconstituée en parallèle avec la détermination des temps caractéristiques.

$$\begin{aligned} \Delta R(t) = & - \left(A_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right) \frac{(\text{erf}(\alpha(t-t_0)) + 1)}{2} \\ & + A_3 \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_3}\right) \right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_4}\right) \end{aligned} \quad (4.19)$$

Dans l'équation (4.19) les constantes de temps valent dans l'ordre $\tau_1 \simeq 0.2\text{ps}$, $\tau_2 \simeq 1.2\text{ps}$, $\tau_3 \simeq 30\text{ps}$ et $\tau_4 \simeq 200\text{ps}$ avec des amplitudes valant $A_1 \simeq 0.18$, $A_2 \simeq 1.08$ et $A_3 \simeq 1.47$. Le temps de montée du signal τ_1 , comparable à la durée de l'impulsion excitatrice, justifie le choix de la fonction erf de paramètre $\alpha = 7.11$ dans l'équation d'ajustement (4.19). La variation de réflectivité se décompose en une somme de trois termes représentés sur la figure 4.5 chacun constitué d'une montée suivie d'une décroissance de durée variable.

Pour la résolution temporelle de l'expérience, deux échelles de temps sont impliquées pour $0\text{ps} < \tau < 5\text{ps}$ et $0\text{ps} < \tau < 600\text{ps}$. L'interprétation se fait sur la connaissance des énergies de niveaux et dynamiques du GaAs et LT-GaAs [89] [6] [25]. La figure 4.6 a) présente un schéma de niveaux simplifié avec deux bandes de valence et de conduction

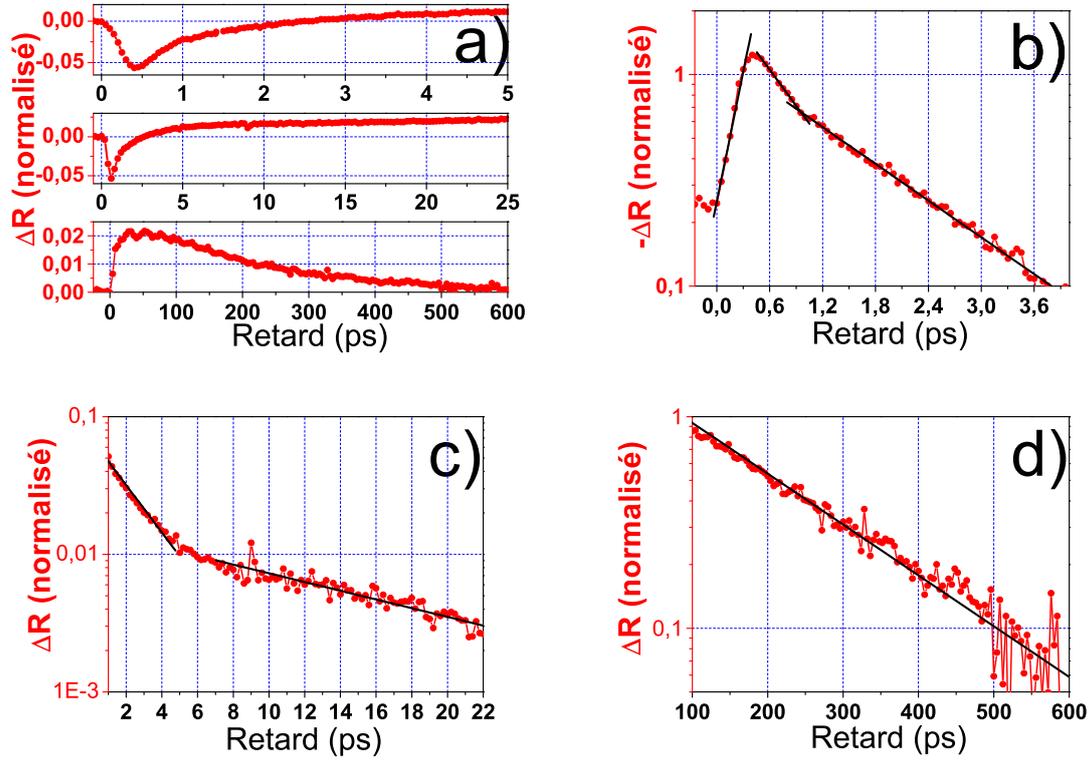


FIGURE 4.4 – Signaux différentiels sondés à 800nm après le passage d’une excitation de pompe à 400nm avec une densité surfacique de $\simeq 25\mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$ sur l’échantillon recuit A. La température est $T=25\text{K}$. Le signal est normalisé à son maximum. a) Compilation des données sur différentes échelles temporelle. Tracé du signal en échelle semi-logarithmique b) entre 0 et 4ps, c) entre 1ps et 22ps et d) entre 100ps et 600ps. Pour b), le signal à 5ps a été soustrait du signal original pour faciliter la procédure d’ajustement et la représentation en échelle semi-logarithmique. Les droites noires sont des ajustements exponentiels apparaissant linéaires en échelle semi-logarithmique.

paraboliques et des états pièges associés aux antisites d’As_{Ga}. Ces derniers, de densité $\sim 10^{19}\text{cm}^{-3}$, sont spatialement localisés avec une énergie de liaison de 300meV sous la bande de conduction. Pour simplifier la figure, la levée de dégénérescence magnétique de la bande de valence, n’est pas représentée. La figure 4.6 a) montre la répartition des charges pour $\sim 0\text{ps} < \tau < 500\text{fs}$. L’impulsion de pompe fait alors transiter des électrons entre les bandes de valence et de conduction formant une distribution non thermique de trous et d’électrons [76]; c’est la montée du signal qui peut se traduire par du hole burning spectral et une renormalisation rapide de la largeur énergétique de la bande interdite agissant sur la réflectivité. Cette échelle de temps se situe entre le régime cohérent et athermal et des effets cohérents pourraient aussi expliquer la dynamique sub-picoseconde. Directement après le passage de l’impulsion de pompe, représenté sur la figure 4.6 b), l’interaction coulombienne forte entre charges provoque la redistribution des charges dans leurs bandes respectives et dans les niveaux d’impuretés avec un temps caractéristique

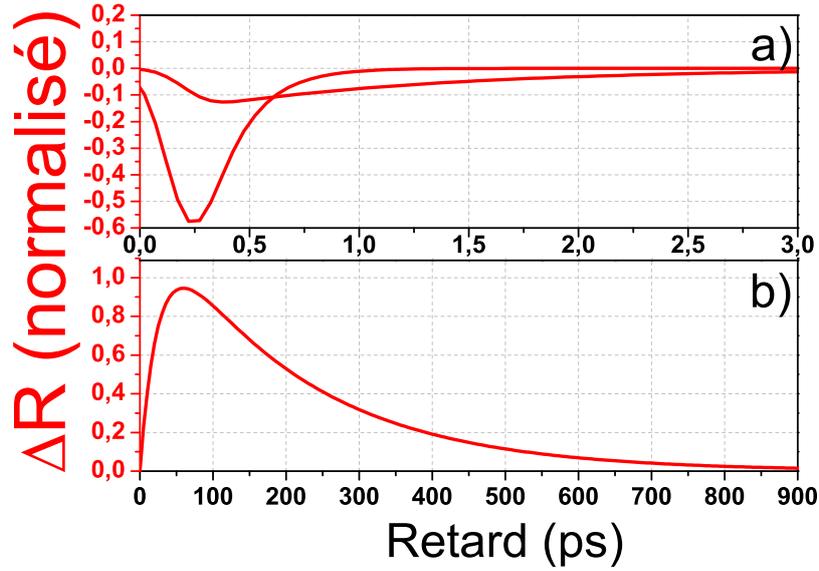


FIGURE 4.5 – Termes issus des ajustements des signaux de réflectivité différentielle en fonction du temps a) entre 0ps et 3ps et b) entre 0ps et 900ps. La forme mathématique des fonctions et les paramètres d’ajustement sont dans le texte.

pour GaAs de $\tau_1 \simeq 0.2\text{ps}$ [97]. Pour une énergie en excès de 1.5eV , une densité volumique de paires électron-trou photo-crées de 10^{19}cm^{-3} pour une couche de largeur $d \simeq 50\text{nm}$ et une densité de trous à l’équilibre de $\sim 2 \times 10^{19}\text{cm}^{-3}$, l’énergie moyenne par charge au terme de ce processus qui répartit l’énergie entre charges photo-crées et trous du dopage vaut $\sim 0.375\text{eV}$, donc supérieur à l’énergie de liaison des états pièges. Sur la figure 4.6 c) les électrons se distribuent donc entre les niveaux pièges et la bande de conduction.

Pour une telle énergie moyenne, chaque charge peut émettre ~ 10 phonons optiques à 36meV avec un temps moyen entre deux émissions dans GaAs de 165fs pour une durée moyenne totale de 1.65ps . Ce temps se compare bien avec le troisième temps caractéristique de relaxation $\tau_2 \simeq 1.2\text{ps}$ permettant d’identifier la dynamique correspondante à un refroidissement rapide des charges représenté sur la figure 4.6 c). Au terme de ce processus, les électrons occupent les niveaux pièges comme représenté sur la figure 4.6 d). Avec une énergie moyenne inférieure à 36meV , le refroidissement se poursuit pour les trous par émission de phonons acoustiques avec un temps caractéristique de 100ps comparable à $\tau_3 \simeq 30\text{ps}$ représenté sur la figure 4.6 d). Le refroidissement correspond à un transfert de chaleur entre le gaz de charges et le réseau. Naturellement, ce mécanisme chauffe le réseau dont la capacité calorifique, plus élevée que celle des charges, est d’environ $C \simeq 47.02\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ pour le GaAs à 300K [92]. Un rapide calcul donne une borne supérieure de la valeur de l’échauffement valant $\sim 1\text{K}$.

Enfin, la recombinaison des électrons depuis les niveaux d’impuretés vers la bande de valence met un terme à la réponse optique de l’échantillon en $\tau_4 \simeq 200\text{ps}$ comme représenté sur 4.6 e).

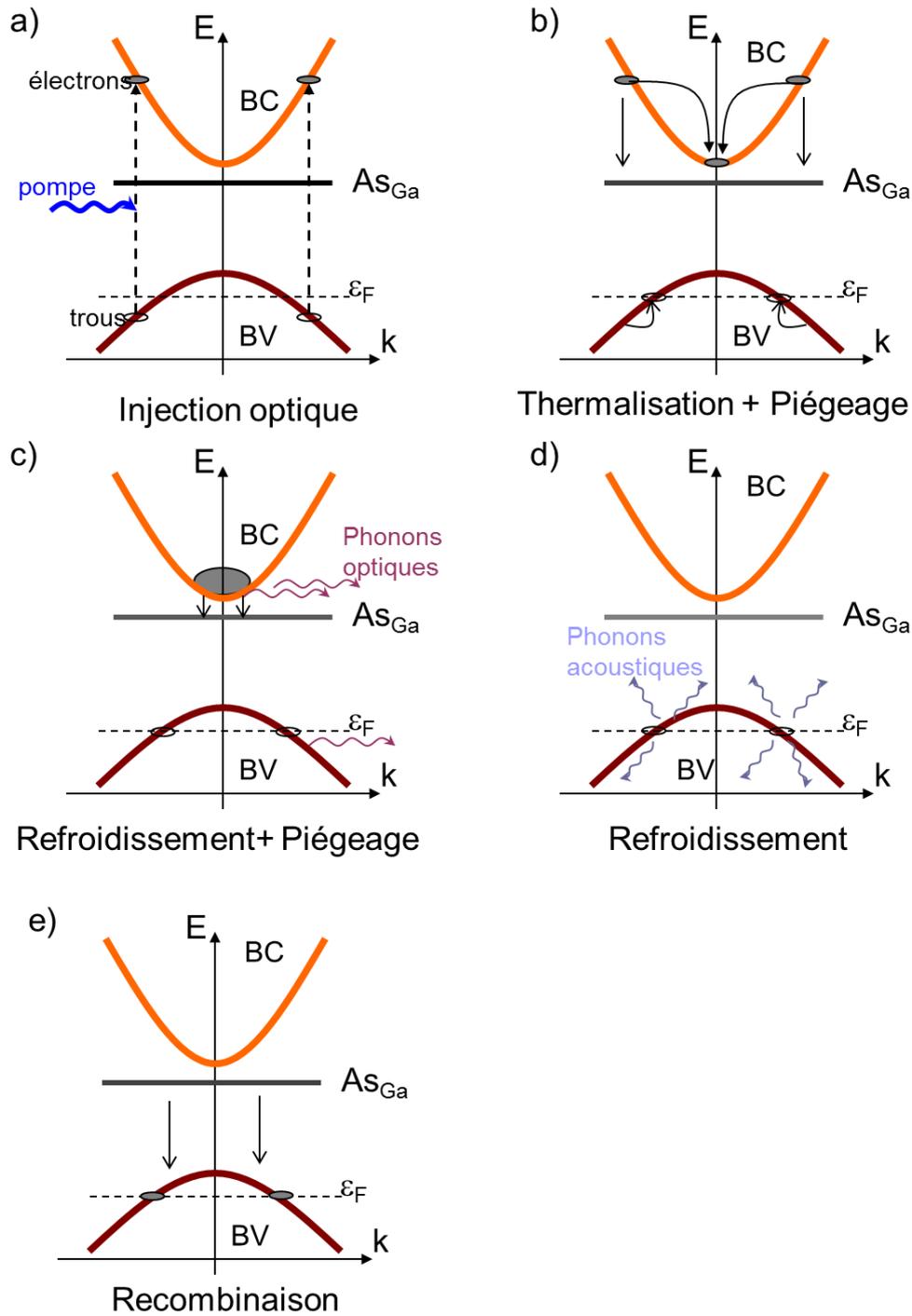


FIGURE 4.6 – Schéma de relaxation des charges après une excitation optique. Les explications et temps caractéristiques sont dans le texte.

Cette interprétation donne un schéma de la dynamique globale des électrons et trous. À ceci s'ajoute la dynamique d'aimantation, attribuée aux impuretés magnétiques, et influençant directement les effets polarimétriques circulaires. L'interaction d'échange magnétique associée à l'aimantation étant véhiculée au travers de la densité de trous, une analyse comparative de la dynamique de la réflectivité, associée aux électrons et aux trous,

et des effets circulaires, associés aux spins des trous et à l'aimantation, doit permettre de résoudre au moins partiellement, la dynamique de l'aimantation.

2.2 Interprétation de la dynamique d'aimantation par effet Kerr magnéto-optique et dichroïsme résolu en temps

Cette partie utilise les mesures différentielles de rotation Kerr et de dichroïsme circulaire pour élucider le comportement du vecteur aimantation \vec{M} en fonction du temps après une excitation optique. Ces résultats associés à la dynamique des charges, élucidée dans le paragraphe précédent, permettent de mettre en relation dynamique de charge et d'aimantation. Une étude optique du (Ga,Mn)As nécessite une analyse couplée des phénomènes liés à la variation de la polarisation lumineuse et de l'amplitude du champ électrique incident. De manière générale, l'étude d'un tel système doit débiter par une analyse de la dynamique du vecteur aimantation \mathbf{M} au travers de son influence sur l'effet Kerr magnéto-optique. En configuration polaire, celle-ci traduit la dynamique de la composante M_z perpendiculaire au plan et selon [001] donnée par l'équation (4.20) en situation d'équilibre ou de quasi équilibre.

$$M_z(t) = M \{ \cos \Theta \cos \Theta_{eq} - \sin \Theta \sin \Theta_{eq} \sin \omega t \} \quad (4.20)$$

Dans cette équation, Θ est l'angle entre le vecteur aimantation et sa position d'équilibre, dont la direction est donnée par l'angle Θ_{eq} par rapport à la direction (Oz), et autour de laquelle l'aimantation précesse à une fréquence de Larmor $\frac{\omega}{2\pi}$. À l'équilibre, l'angle θ est nul et l'aimantation alignée avec sa direction d'équilibre. La composante M_z est alors la projection $M \cos \Theta_{eq}$. En quasi équilibre, les directions relatives de la position d'équilibre et de l'aimantation peuvent être différentes et $\Theta \neq 0$. Il s'en suit une dynamique de l'aimantation traduite entièrement par l'équation (4.20). D'après celle-ci, les signaux mesurés dépendent de la norme M , de l'angle par rapport à la direction d'équilibre Θ , de la direction d'équilibre elle-même Θ_{eq} et de la fréquence de précession.

En négligeant la dynamique de l'axe d'équilibre, la précession reste dépendante de la position d'équilibre du vecteur aimantation d'angles Θ_{eq} et φ_H pour lesquels l'énergie libre F , rappelée dans l'expression (4.21), est minimale.

$$F = - M.H [\cos \Theta \cos \Theta_H + \sin \Theta \sin \Theta_H \cos(\varphi - \varphi_H)] - 2\pi M^2 \sin^2 \Theta - K_{2\perp} \cos^2 \Theta - \frac{K_{4\perp}}{2} \cos^4 \Theta - \frac{K_{4\parallel}}{8} (3 + \cos 4\varphi) \sin^4 \Theta - K_{2\parallel} \sin^2 \Theta \sin^2 \left(\varphi - \frac{\pi}{4} \right) \quad (4.21)$$

Dans l'expression (4.21), le premier terme explicite l'énergie d'interaction du champ magnétique appliqué \mathbf{H} avec le vecteur aimantation, le second terme est l'anisotropie de forme, négligeable dans le cadre de cette étude d'après les mesures de l'aimantation à saturation données dans le chapitre 2. Les termes restants traduisent l'existence d'axes de facile aimantation liés à la symétrie du système. La contrainte du substrat sur la couche de (Ga,Mn)As brise la symétrie cubique introduisant deux termes uniaxiaux du second et quatrième ordre proportionnels à $K_{2\perp}$ et $K_{4\perp}$. Une valeur positive ou négative de ces coefficients favorise respectivement l'axe perpendiculaire [001] ou le plan (001)

comme position d'équilibre du vecteur aimantation. $K_{4\perp}$ et $K_{4\parallel}$ s'égalisent pour une symétrie cubique en l'absence de contraintes de la part du substrat. Parmi ceux-ci, $K_{4\parallel}$ traduit l'orientation de l'aimantation dans le plan (001) favorisant les directions [100], [010], $[\bar{1}00]$ et $[0\bar{1}0]$ lorsqu'il est positif et les directions perpendiculaire à ces dernières dans le cas opposé. Enfin, le terme uniaxial proportionnel à $K_{2\parallel}$ explicite l'inéquivalence des directions [110] et $[1\bar{1}0]$ dans un cristal de type Blende orientant l'aimantation vers le premier axe lorsqu'il est positif et le second dans le cas contraire. Le champ \mathbf{H} , avec lequel l'aimantation tend à s'aligner, est orienté selon l'axe perpendiculaire [001] dans toutes les expériences présentées dans ce chapitre. Dans la suite, seule cette configuration est discutée.

Selon les valeurs de Θ et Θ_{eq} , plusieurs cas peuvent se présenter dont le plus simple, pour lequel M_z et M s'identifient, correspond à $\Theta = 0^\circ$ et $\Theta_{eq} = 0^\circ$. Celui-ci se produit toujours lorsque $K_{2\perp}, K_{4\perp} > 0$. Lorsque l'un de ses coefficients est négatifs, il est alors nécessaire de s'assurer que $H > \frac{K_{2\perp}}{M}, \frac{K_{4\perp}}{M}$. Cette orientation d'équilibre de l'aimantation empêche la mesure de précessions par effet Kerr magnéto optique en configuration polaire.

Une autre configuration particulière correspond à $\Theta = 0^\circ$ et $\Theta_{eq} = 90^\circ$ *i.e.* une aimantation dans le plan de l'échantillon avec, d'après l'équation (4.20), $M_z = 0$. Ceci se produit en présence d'une forte anisotropie planaire avec des coefficients $K_{2\perp}$ et $K_{4\perp}$ négatifs de valeurs absolues très inférieures à l'amplitude du champ magnétique H_z appliqué. Le rapport $\frac{K_{2\parallel}}{K_{4\parallel}}$ définit alors l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes [100] et [110]. Si l'angle entre la position d'équilibre dans le plan et l'aimantation est différent de zéro, cette dernière effectuera un mouvement de précession hors du plan autour de l'axe d'équilibre donnant lieu à un signal non nul. Cette configuration est la plus favorable pour étudier la réorganisation des axes d'anisotropie dans le plan.

Pour une direction de la position d'équilibre intermédiaire entre les deux cas précédents et $\Theta \neq 0$, l'aimantation effectue un mouvement de précession autour de l'axe d'équilibre dont la fréquence de Larmor dépend de l'amplitude du champ magnétique effectif dans la direction d'équilibre. La composante M_z est alors en fonction sinusoïdale du temps à laquelle se superpose un fond constant représenté par le premier terme de l'équation (4.20).

Présentation et comparaison des évolutions de la réflectivité, de la rotation Kerr et du dichroïsme

La figure 4.7 représente une position quelconque du vecteur aimantation \vec{M} par rapport aux axes cristallographiques de l'échantillon. En configuration polaire, comme c'est le cas ici, l'angle de rotation θ_k de la polarisation optique par effet Kerr est proportionnel à la projection $M_z = M \cos \Theta$ du vecteur aimantation. Dynamiquement, une variation du vecteur \vec{M} se traduit donc par une évolution de l'angle $\Delta\theta_k$ selon l'équation (4.22).

$$\Delta\theta_k \propto \Delta M_z = \Delta M \cos \Theta - M \sin \Theta \Delta\Theta \quad (4.22)$$

la variation d'effet Kerr magnéto optique est proportionnelle à ΔM_z et dépend ainsi de l'angle Θ de \vec{M} avec l'axe normal et de sa norme à l'équilibre. Les dynamiques de l'angle

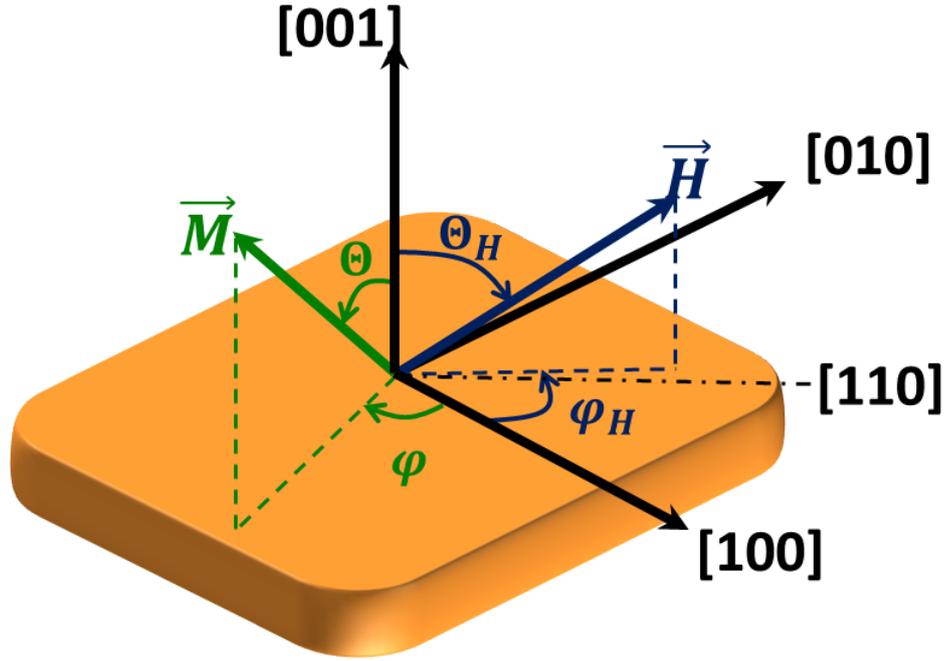


FIGURE 4.7 – Orientation des vecteurs aimantation \vec{M} et induction magnétique \vec{H} , respectivement en vert et bleu, selon les axes cristallographiques du $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$. Les angles θ et θ_H positionnent \vec{M} et \vec{H} hors du plan de l'échantillon. Les angles φ et φ_H positionnent ces mêmes vecteurs dans le plan.

de rotation Kerr et du dichroïsme circulaire sur l'ensemble des échelles de temps discutées dans le paragraphe précédent sont présentées sur la figure 4.8. Quelles que soient les mesures et à une renormalisation près, les variations de dichroïsme et de rotation Kerr sont identiques. Cet argument est utilisé pour attester de l'origine magnétique de la variation des effets circulaires. La figure 4.8 a) montre que la dynamique de l'aimantation débute par une variation sub-picoseconde de ΔM_z suivie d'un palier au cours duquel aucune variation de l'aimantation n'est mesurée pendant environ 40ps. Après ce délai, le signal entame des oscillations amorties dont l'ajustement $A \exp(-\frac{t}{\tau}) \cos\left(\frac{2\pi}{T}(x - x_0)\right)$, présenté en noir sur la figure 4.8, mène à une estimation de la période des oscillations de $T \simeq 220\text{ps}$ ($\frac{h}{T} \simeq 0.2\text{meV}$). Les temps de recombinaison $\tau \sim 200\text{ps}$, déterminé dans le paragraphe précédent, et d'amortissement des oscillations sont identiques. Sur la figure 4.8 d) le signal polarimétrique est divisé par $\exp\left(-\frac{t}{\tau_{rec}}\right)$. Ce traitement élimine l'influence de la recombinaison sur le signal magnétique et met en avant les oscillations et la présence d'un palier. Ceci révèle que l'amplitude des oscillations (hors retour à l'équilibre) et la variation d'aimantation initiale sont identiques. De plus, les oscillations sont centrées sur $\Delta\theta_k \sim 0$. Il reste maintenant à discuter l'origine de cette dynamique d'aimantation.

Les mécanismes de variation de l'aimantation impliquent de manière sous-jacente une dynamique sur le spin des charges. Au vu de l'interprétation donnée dans le premier paragraphe, la variation d'aimantation initiale s'effectue sur un temps comparable à l'injection

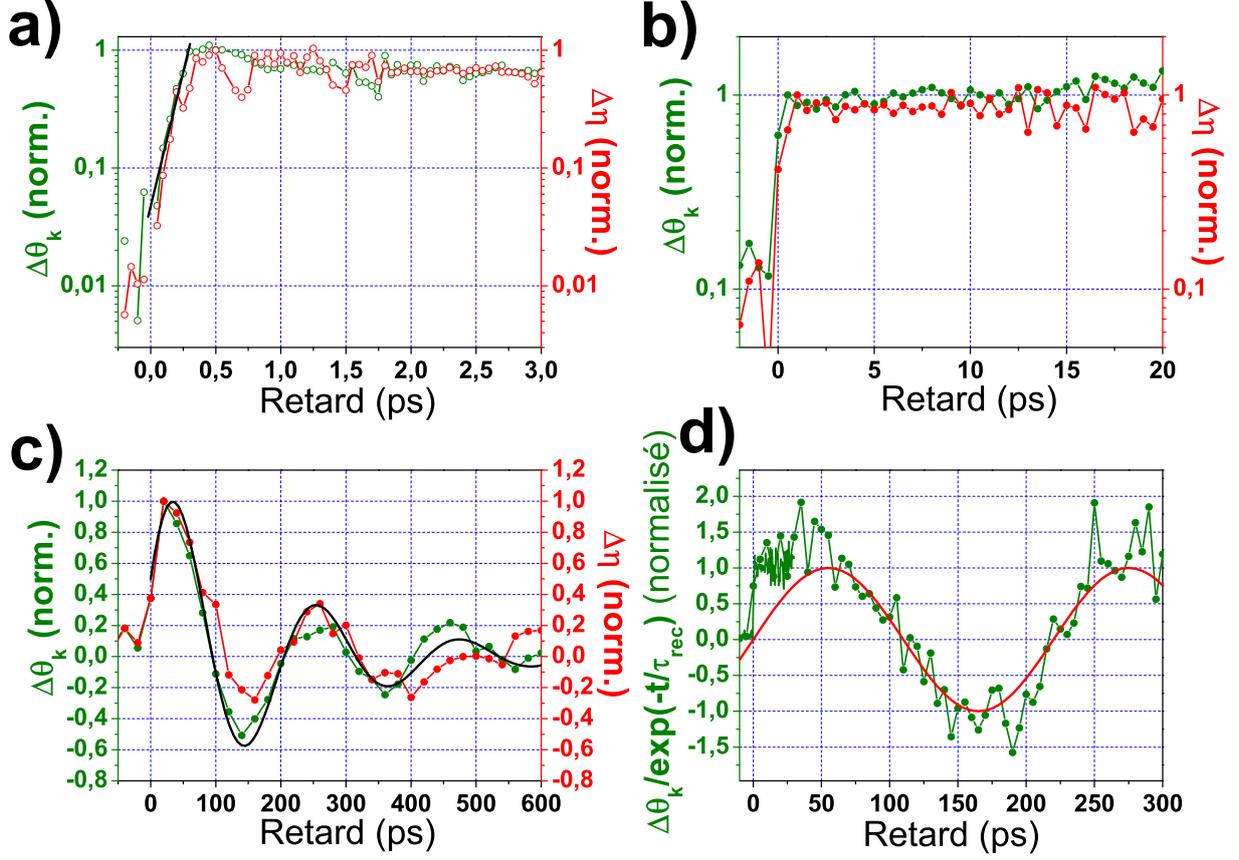


FIGURE 4.8 – Variation normalisée du dichroïsme circulaire en rouge et de la rotation Kerr en vert en fonction du retard après l'excitation optique à 400nm avec une densité surfacique de $\simeq 25\mu\text{J.cm}^{-2}$ et une température de 20K . a) Entre 0ps et 3ps. La droite noire guide l'œil b) entre 0ps et 20ps et c) entre 0ps et 600ps. La courbe noire est un ajustement d'équation $A\exp(-\frac{t}{\tau})\cos\left(\frac{2\pi}{T}(x-x_0)\right)$ avec $A = 1.2$, $\tau \sim 200\text{ps}$, $T = 217\text{ps}$ et $x_0 \simeq 40\text{ps}$ d) Données après division du signal magnétique par $\exp(-\frac{t}{\tau})$. La courbe rouge est l'ajustement précédent sans décroissance exponentielle.

optique de paires électron-trou $\tau_1 \simeq 0.2\text{ps}$ *i.e.* plus rapidement que tous les mécanismes de refroidissement des charges. La variation rapide de l'aimantation n'est donc pas un effet de température mais, par élimination, de thermalisation de spin entre l'ensemble des spins des impuretés de Mn_{Ga} et des trous via les termes $S_+s_- + S_-s_+$ de l'hamiltonien de Kondo avec S le spin des impuretés magnétiques et s celui des trous.

La rapidité du processus de thermalisation de spins des trous laisse supposer que celui-ci implique les trous photo-crées et les trous déjà présents. L'axe optique étant perpendiculaire à l'échantillon, cette thermalisation affecte majoritairement la composante M_z . De plus, les densités de trous injectée et à l'équilibre étant comparables, ce mécanisme peut mener à une dépolarisation très importante du gaz de trous. Ainsi, il est très vraisemblable que la composante M_z soit fortement diminuée plaçant l'aimantation dans le plan en interaction avec un gaz de trous fortement dépolarisé. Pour une telle densité d'injection, il est clair que la norme de l'aimantation est fortement affectée par

les processus de refroidissement. Cependant, le repositionnement de l'aimantation dans le plan diminue les possibilités de mesure de M_z . Lorsque la température de Curie est dépassée au cours du second processus de refroidissement, l'aimantation est rétablie et précède autour d'une position d'équilibre voisine de la position d'équilibre du vecteur aimantation.

3 Dynamique des trous en fonction de la densité de trous à l'équilibre

La figure 4.9 présente les évolutions de la réflectivité différentielle pour toute la série d'échantillons entre 0ps et 1ns présentant des concentrations de porteurs différentes. Par rapport au cas décrit dans la seconde partie, les conditions expérimentales changent avec une densité d'excitation fixe de $\simeq 10\mu\text{J.cm}^{-2}$ ou $\simeq 2 \times 10^{13}\text{photons.cm}^{-2}$ par impulsion, une induction magnétique $H = 0.35\text{T}$ d'amplitude plus élevée et une température de 25K. La densité de trous à l'équilibre p est le seul paramètre évoluant de la mesure d'un échantillon à l'autre à l'autre.

3.1 Tendances générale de la réflectivité différentielle en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental

D'après les résultats de la figure 4.9 et quel que soit l'échantillon, le signal présente deux augmentations successives, dont l'une est trop courte pour être résolue, suivies d'un retour vers l'équilibre traduit par un signal nul. Pour tout p , l'augmentation non résolue de la réflectivité est d'amplitude constante et s'effectue à $\tau \simeq 0\text{ps}$. La seconde augmentation est visible sur les trois échantillons de plus basses densités p et s'effectue sur quelques dizaines de picosecondes. Pour finir, un retour à l'équilibre se produit en une centaine de picosecondes.

$$\frac{\Delta R}{R} = \left(\frac{\Delta R}{R}\right)_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rec}}\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{ref}}\right)\right) \quad (4.23)$$

La fonction (4.23) est une hypothèse d'ajustement du signal avec τ_{ref} le temps caractéristique de l'augmentation résolue, τ_{rec} le temps du retour à l'équilibre et $\left(\frac{\Delta R}{R}\right)_0$ une amplitude maximale de montée. Le tableau 4.2 donne les résultats de l'ajustement des courbes expérimentales par la fonction (4.23). Ceux-ci sont de plus tracés en fonction de p sur les figures 4.10 et 4.11.

L'évolution de la réflectivité a été discutée et associée aux processus dynamiques affectant les charges dans le paragraphe précédent. Ces derniers sont synthétisés dans la figure 4.6 (p. 82). La montée initiale est due au piégeage des électrons, la seconde montée au refroidissement par émission de phonons acoustiques et le retour à l'équilibre à la recombinaison des charges. τ_{ref} et τ_{rec} sont les temps caractéristiques des deux derniers processus et dépendent de p .

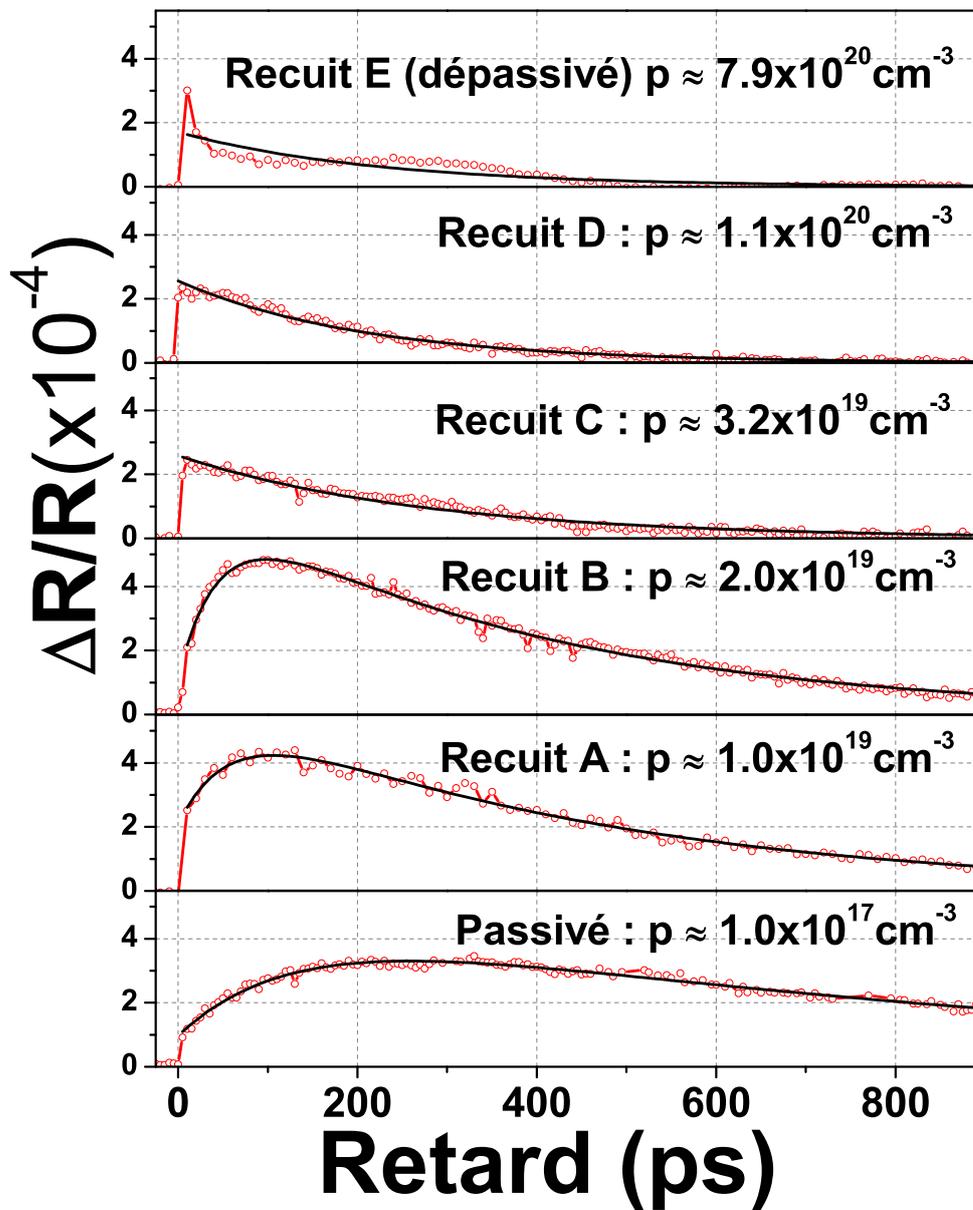


FIGURE 4.9 – Variation de réflectivité différentielle en fonction du retard pompe-sonde pour toute la série d'échantillons. Un retard négatif correspond à la sonde arrivant avant la pompe et à un signal différentiel nul. La variation de réflectivité est de l'ordre de 0.01%. Les paramètres d'excitation sont rappelés dans le texte.

3.2 Évolution des mécanismes de relaxation avec la densité de trous dans l'état fondamental

À partir du schéma de relaxation des charges établi dans la première partie, il s'agit maintenant de discuter l'origine de la dépendance des temps τ_{ref} et τ_{rec} avec p .

Échantillon	$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)_0 (\times 10^{-4})$	τ_{rec} (ps)	τ_{ref} (ps)
Passivé	$0,97 \pm 0,05$	831 ± 32	32 ± 159
A	$2,08 \pm 0,17$	425 ± 11	11 ± 66
B	$1,15 \pm 0,13$	370 ± 4	4 ± 51
C	$2,59 \pm 0,04$	278 ± 6	0
D	$2,56 \pm 0,03$	210 ± 4	0
E	$1,7 \pm 0,1$	224 ± 18	0

TABLE 4.2 – Paramètres solutions de l’ajustement des données expérimentales par la fonction (5.1) pour les différents échantillons analysés.

Mécanisme de refroidissement en fonction de la densité de trous dans l’état fondamental

La figure 4.10 représente le temps de thermalisation des porteurs τ_{ref} en fonction de la densité de trous à l’équilibre p . τ_{ref} décroît avec p depuis 32ps à ~ 4 ps en suivant une loi de puissance jusqu’à une densité p_{sat} au-delà de laquelle ce temps est nul. Il s’agit maintenant d’expliquer comment le signal associé au processus de refroidissement disparaît passé une certaine valeur de p . Après le passage de l’impulsion de pompe, la densité de trous totale p_{tot} est la somme de la densité de trous photo-crées p_{ph} et de celle associée au dopage accepteur initial p ; la densité d’électrons vaut p_{ph} . Pour une absorption complète de tous les photons incidents, la densité de paires photo-crées est estimée à $p_{ph} \simeq 4.0 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ pour une couche de $d = 50 \text{nm}$ d’épaisseur.

L’élévation de température des trous est estimée pour un gaz de trous non dégénéré par les équations (4.24) dans laquelle T_{ini} et T_{fin} sont les températures avant et après injection optique. E_{ini} est la densité d’énergie totale à l’équilibre et E_{ph} la densité volumique d’énergie apportée par la pompe. Pour une quantité d’énergie photo injectée égale entre échantillons, le comportement de T_{fin} dépend du rapport $p/(p + p_{ph})$. *La concentration relative de trous est donc un bon paramètre pour décrire l’élévation de la température du gaz de trous libres.*

Échantillon	$p(\times 10^{21} \text{cm}^{-3})$	$\frac{\Delta p}{p}$ (%)	T_{po} (K)	T_{pa} (K)
Passivé	0.0001	98	11322	272
Recuit A	0.01	29	3333	97
Recuit B	0.02	17	1955	67
Recuit C	0.032	11	1312	53
Recuit D	0.11	3.5	431	34
Recuit E	0.79	0.5	83	26

TABLE 4.3 – Température des charges pour les échantillons après excitation optique de porteurs avec une énergie en excès de 1.5eV. T_{po} est la température directement après l’excitation et T_{pa} après la relaxation par émission de phonons optiques environ 10ps après l’excitation. L’énergie maximale en excès est alors de 36meV par charge photo générée.

$$\left\{ \begin{array}{l} E_{ini} \simeq \frac{3}{2} p k_B T_{ini} \\ E_{ini} + E_{ph} \simeq \frac{3}{2} (p + p_{ph}) k_B T_{fin} \end{array} \right. \iff T_{fin} \simeq \frac{p T_{ini} + \frac{2E_{ph}}{3k_B}}{p + p_{ph}} \quad (4.24)$$

Dans le tableau 4.3, T_{po} et T_{pa} sont des estimations des températures réalisées à partir de l'équation(4.24) respectivement après thermalisation des charges et après la première phase de refroidissement par émission de phonons optiques. La comparaison de p_{ph} et p mène donc à deux cas limites de l'équation (4.24) :

- $p \gg p_{ph}$: Forte densité de trous à l'équilibre ; $T_{fin} \simeq T_{ini}$ peu de changement dans la température des trous ; le gaz de trous chaud reste dégénéré
- $p \simeq p_{ph}$: Faible densité de trous à l'équilibre ; $T_{fin} \simeq \frac{2E_{ph}}{3k_B p_{ph}}$ forte augmentation de la température des trous si E_{ph} est suffisamment important ; le gaz de trous chaud devient non dégénéré.

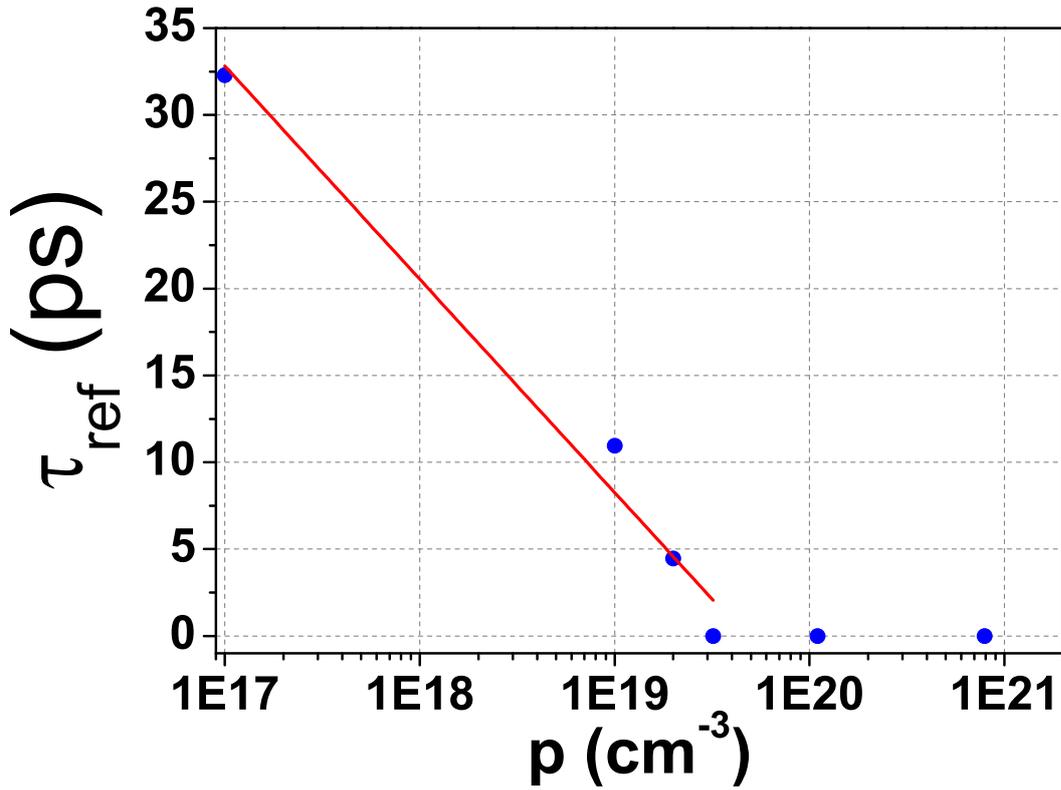


FIGURE 4.10 – Temps de thermalisation des porteurs τ_{ref} en fonction de la densité de trous en échelle semi-log. Chaque cercle plein bleu représente le résultat pour un échantillon. Les densités de porteurs p sont récapitulées dans le tableau 2.2.

Avec $p \gg p_{ph}$, l'élévation de température est négligeable. Il y a alors peu de redistribution des charges dans la bande de valence et les phases de refroidissement des trous par émission de phonons optiques et acoustiques ne sont pas visibles. La constante de

temps associée au refroidissement des trous par émission de phonons acoustiques τ_{ref} semble alors tendre vers 0ps ; c'est le régime de saturation observé pour $p \gg p_{sat} \simeq 0.07 \pm 0.032 \text{nm}^{-3}$. Pour $p \leq p_{ph}$, l'élévation de température est forte ce qui modifie énormément la distribution des trous dans la bande de valence en dépeuplant tout d'abord le centre de zone. Au fur et à mesure du refroidissement, les trous condensent au centre de zone en modifiant grandement les transitions résonantes à cet endroit et, particulièrement, la réflectivité au voisinage de 800nm. Le refroidissement est donc perçu au travers d'une dynamique de peuplement au voisinage du centre de zone.

Mécanisme de recombinaison/diffusion en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental

La figure 4.11 présente le temps de retour à l'équilibre τ_{rec} de la réflectivité en fonction de p . L'allure est décroissante et passe d'une valeur non nulle à une valeur qui tend vers 200ps lorsque p augmente. τ_{rec} traduit l'annihilation de trous délocalisés de la bande

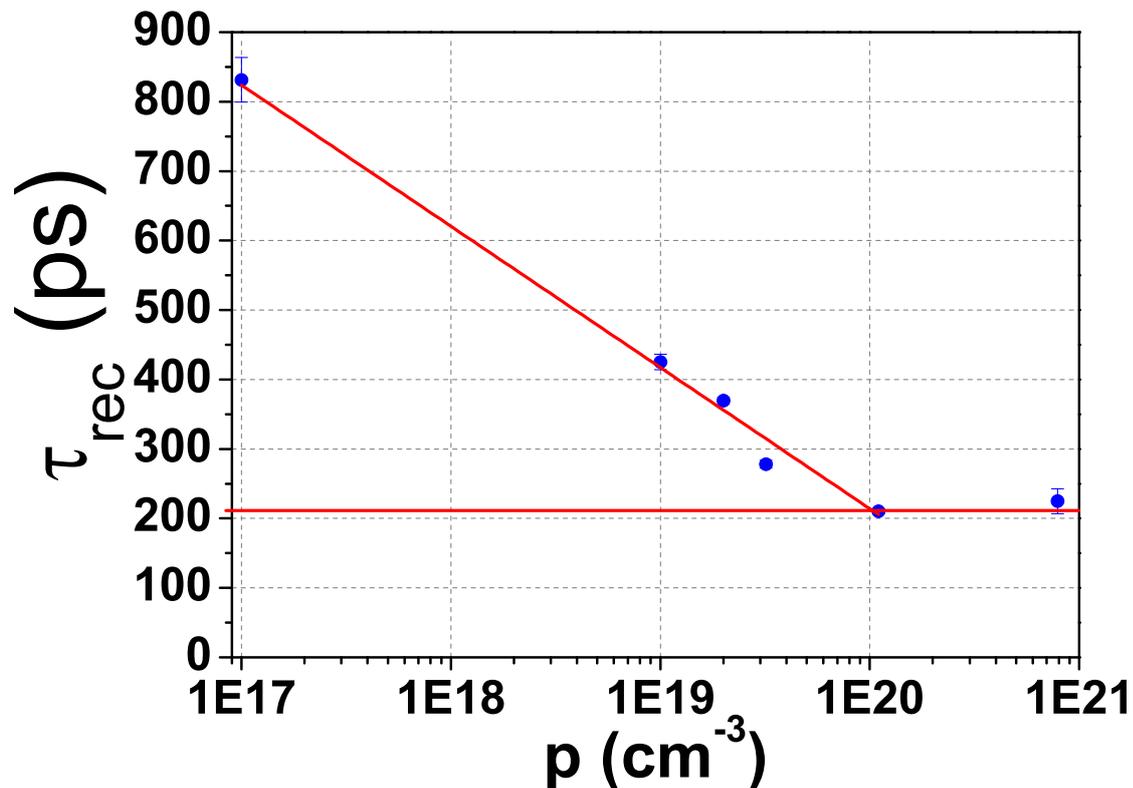


FIGURE 4.11 – Temps de recombinaison des porteurs τ_{rec} en fonction de la densité de trous en échelle semi-log. Chaque cercle rouge correspond à un échantillon. Les densités de porteurs p sont récapitulées dans le tableau 2.2. La ligne rouge est un ajustement de type $\tau_{ref} = a \log(p) + b$ avec $a = (-5.56 \pm 0.42) \times 10^2$.

de valence avec des électrons piégés. Spatialement, un piège d'électrons isolé dans une matrice cristalline possède des orbitales localisées dont l'extension dépend d'une énergie de liaison E_l . Dans ce cas, celle-ci est donnée par la différence d'énergie entre le minimum

de la bande de conduction, environ 1.5eV à 25K, et l'énergie des niveaux d'impuretés d'environ 1.2eV. L'énergie de liaison d'un électron piégé sur une impureté de As_{Ga} est donc estimée à $E_l \simeq 300\text{meV}$ ce qui impose un rayon de Bohr a_B faible. Les pièges étant spatialement figés, les orbitales d'extension $\frac{1}{a_B}$ dans l'espace réciproque se décomposent symétriquement sur une base de fonctions de Bloch de la bande de conduction avec un maximum au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. La probabilité de transition optique d'un électron depuis la bande de valence vers un niveau piège est diminuée par la basse densité d'impuretés mais aussi par le recouvrement plus faible dans l'espace réciproque entre orbitales pièges et fonctions de Bloch de la bande de valence pour lesquelles \mathbf{k} est bien déterminé. De plus, les orbitales pièges recouvrent un ensemble de fonctions de Bloch de la bande de valence et la valeur maximale de k pour laquelle le recouvrement est non nul est estimé par $\frac{1}{a_B}$. Lorsque p est bas, le niveau de Fermi ϵ_F est plus haut assurant un k_F peu

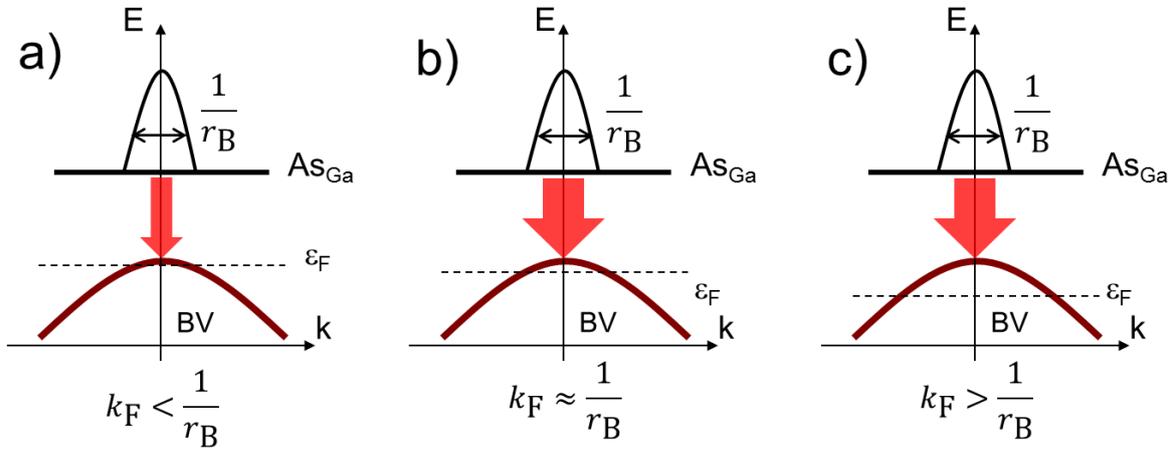


FIGURE 4.12 – Représentation schématique du recouvrement entre une orbitale piège et les fonctions de Bloch non occupées de la bande de valence selon la position du niveau de Fermi. La courbe noire est une représentation de l'extension des niveaux pièges. La largeur de la flèche rouge représente les possibilités de recombinaison.

important. Pour $k_F \leq \frac{1}{a_B}$ i.e. pour des densités p plus faibles, l'accessibilité à la bande de valence est, pour un électron piégé, diminuée par la présence d'électrons au centre de zone et τ_{rec} est fortement dépendant du remplissage de la bande de valence. Ce cas est schématiquement représenté sur 4.12 a). À l'inverse, si $k_F > \frac{1}{a_B}$, représenté par 4.12 c), le centre de la bande de valence est rempli de trous et le recouvrement des orbitales pièges avec les fonctions de Bloch de la bande de valence, vides d'électrons, est idéal. Le mécanisme de recombinaison est alors plus rapide et τ_{rec} minimal. Ceci explique l'allure du temps de recombinaison en fonction de la densité de trous et la saturation du temps de recombinaison vers une valeurs minimale lorsque le moment de Fermi dépasse la valeur de l'extension spectrale de la fonction d'onde des états pièges. Cette dernière situation maximise en effet le recouvrement des état pièges avec les orbitales vides de la bande de valence.

4 Dynamique d'aimantation en fonction de la densité de trous à l'équilibre

Les résultats expérimentaux discutés dans cette partie sont les dynamiques de variation de l'angle de rotation Kerr $\Delta\theta_k(\tau) = \theta_k(\tau) - \theta_k^{eq}$ en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental. θ_k^{eq} et $\theta_k(\tau)$ sont les angles de rotation sans excitation et après le passage de l'impulsion de pompe respectivement. Ces mesures ont été réalisées conjointement avec les mesures de réflectivité différentielle $\Delta R(\tau)$ à $T \sim 25\text{K}$ sous un champ magnétique perpendiculaire au plan de $H = 0.35\text{T}$. Ces conditions sont différentes de celles de la seconde partie. La figure 4.13 représente la dynamique de l'angle de rotation Kerr qui, sur ces échelles de temps, est attribuée au signal magnétique ΔM_z pour tous les échantillons étudiés. L'échelle verticale est arbitraire et proportionnelle à la variation ΔM_z de la composante M_z de l'aimantation selon l'axe de croissance de l'échantillon après excitation par la pompe. L'analyse de la figure 4.13 montre l'existence de quatre comportements plus au moins présents selon les échantillons :

- une variation sur l'échelle de la picoseconde sur les échantillons recuit C, recuit D et recuit E
- une montée du signal d'une centaine de picoseconde sur les échantillons passivé, recuit A et recuit B,
- un retour à l'équilibre à l'échelle de la nanoseconde dans tous les cas,
- des oscillations de l'aimantation sur les échantillons recuit C et recuit E.

Ces comportements ont déjà été reportés à plusieurs reprises dans la littérature. La variation sub-picoseconde de l'aimantation peut être attribuée à une désaimantation *i.e.* une diminution de l'aimantation qui se traduit par une diminution de l'angle de rotation Kerr et une valeur $\Delta\theta_k(\tau \sim 0\text{ps}) < 0$ ou un brusque changement d'orientation du vecteur aimantation. Ce signal sub-picoseconde ultra rapide est donc une signature caractéristique de la phase ferromagnétique [12]. Ces signaux sont caractéristiques et facilement identifiables. La montée du signal sur la centaine de femtoseconde est typique d'un processus de refroidissement d'après la référence [12]. Le retour à l'équilibre provient de la diminution du nombre de trous dans la zone irradiée par recombinaison avec les électrons ou diffusion spatiale. Enfin, les oscillations traduisent une précession du vecteur aimantation [66]. Ces quatre comportements évoluent en fonction de la densité de trous à l'équilibre et nécessitent des analyses indépendantes qui seront faites dans cette partie. Le signal magnétique différentiel provient de changements du vecteur aimantation. Le signal mesuré dépend donc à la fois des variations de la norme et de la direction de l'aimantation. Bien que ces composantes soient couplées, cette partie traite indépendamment des effets de la pompe sur la norme de l'aimantation et sur sa direction.

4.1 Dynamique de la norme de l'aimantation en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental

Ces expériences sont faites dans des conditions similaires à l'étude de J. Wang *et al.* [12] décrite au chapitre 1. Celle-ci sert donc de base pour l'analyse de l'évolution de la norme du vecteur aimantation. Le module de celle-ci s'ajuste par l'équation (4.25) donnée par la référence [12]. Dans cette équation, $\Delta\theta$ est la variation absolue d'angle Kerr en fonction du temps, $\Delta\theta_d$ est la variation initiale de l'angle Kerr et $\Delta\theta_r$ est l'amplitude de la

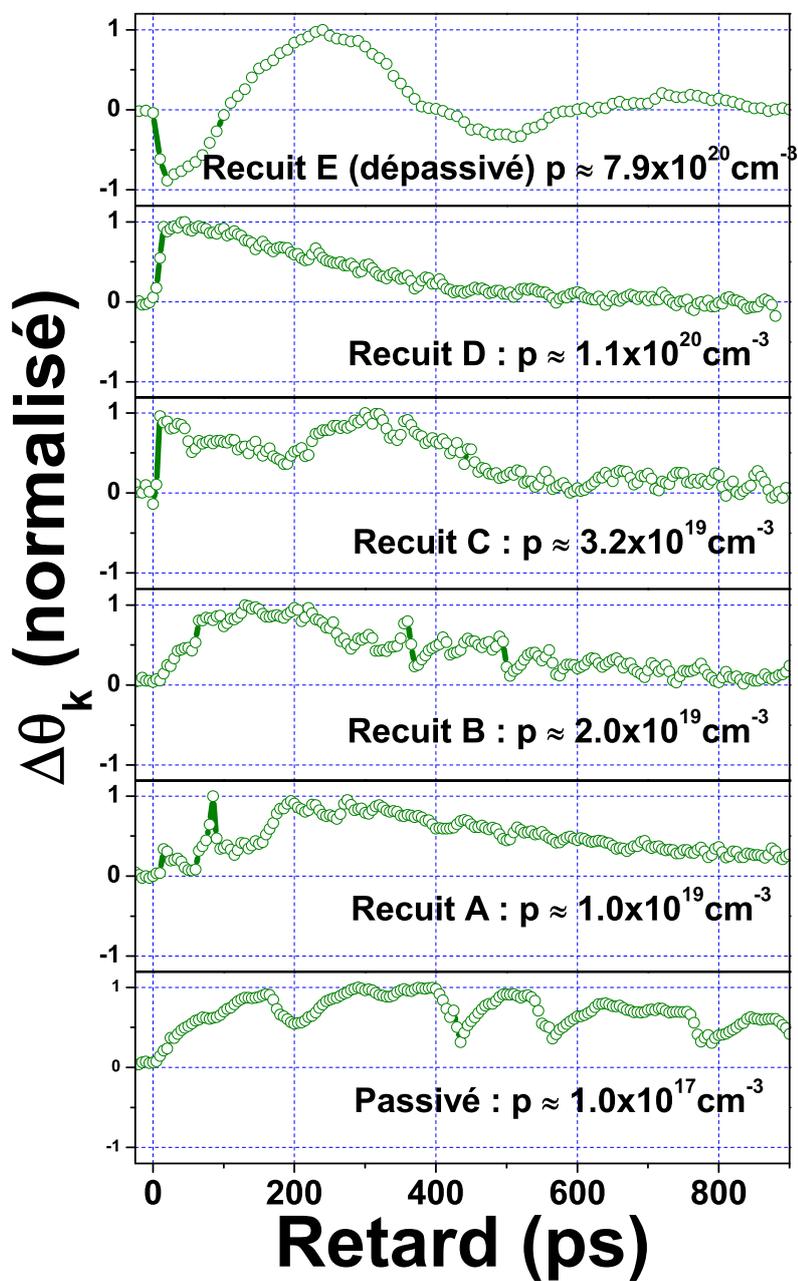


FIGURE 4.13 – Différence entre l'angle de rotation Kerr avec et sans excitation par la pompe en fonction du temps. La valeur de $\Delta\theta_K$ est de l'ordre de 10^{-6} radians. Chaque courbe est normalisée par sa valeur absolue maximale pour faciliter la lisibilité. La densité volumique de charges à l'équilibre p est indiquée à côté de chaque courbe.

réaimantation. Les temps τ_d , τ_{rec} et τ_{ref} sont les temps de désaimantation, recombinaison et de thermalisation des charges respectivement.

$$\Delta\theta(t) = \Delta\theta_d \exp\left(-\frac{t}{\tau_d}\right) + \Delta\theta_r \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rec}}\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{ref}}\right)\right) \quad (4.25)$$

La dynamique de l'aimantation traduite par l'équation (4.25) est reprise dans le schéma 4.14 représentant deux diagrammes d'aimantation selon la densité de porteurs avant et après injection optique; après une première phase de désaimantation et de refroidissement, représentée par les étapes 1 et 2 respectivement, le refroidissement permettant la polarisation du gaz de trous et le couplage de Kondo augmente l'aimantation (étape 3), enfin le système retourne dans son état initial avec la diminution du nombre de trous par recombinaison (étape 4). Dans cette dernière phase, l'aimantation rejoint sa valeur initiale. L'analyse de la forme du signal de rotation Kerr selon J. Wang *et al.* suggère donc l'existence de deux termes dont l'un traduit purement la désaimantation et l'autre la réaimantation. Mis en perspective avec cette équation, les résultats expérimentaux sont de deux types selon que $\Delta\theta_d \sim 0$ ou $\Delta\theta_d \neq 0$. Dans le premier cas, les échantillons sont en phase paramagnétique dans l'état fondamental à $T \sim 25\text{K}$ car il n'y a pas de désaimantation sub-picoseconde à la différence du second cas. Ceci constitue le premier résultat de la série de mesure : la désaimantation dépend de la densité de porteurs. Les résultats expérimentaux de J. Wang *et al.* avaient déjà démontré une proportionnalité entre désaimantation et aimantation du système à l'équilibre dans un régime d'excitation faible. Cela sera discuté plus en détail dans la prochaine section. L'inexistence d'une phase

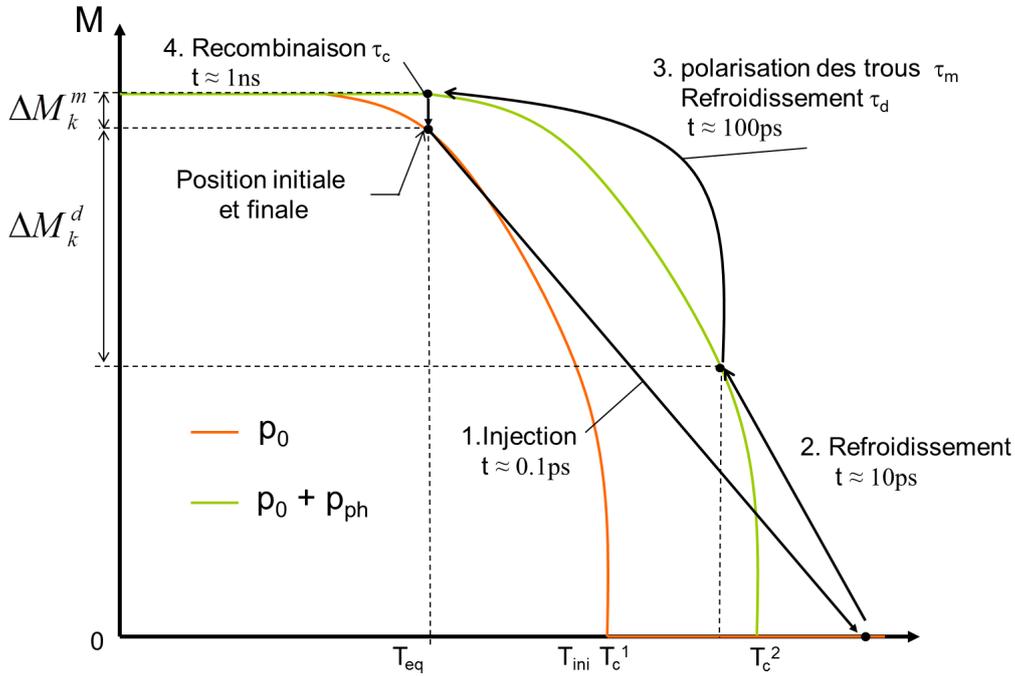


FIGURE 4.14 – Représentation schématique des diagrammes de phase $M(T)$ avant injection optique de porteurs (en orange) et après (en vert). Les flèches noires retracent le chemin que prend l'amplitude d'aimantation au cours de la relaxation.

de désaimantation et d'une dynamique du vecteur aimantation simplifie l'analyse et est

donc traitée en premier. La première partie décrit donc la dynamique des échantillons de basse densité de porteurs en phase paramagnétique. La seconde étend cette étude au cas des échantillons en phase ferromagnétique.

Dynamique d'aimantation en phase paramagnétique pour les densités de trous à l'équilibre basses - Cas où $\Delta\theta_d = 0$ - Relation avec la relaxation du gaz de trous

La figure 4.15 reprend les signaux magnétiques des échantillons entièrement passivé, recuit A et recuit B pour lesquels les densités de trous sont basses. La première particularité de ces mesures est l'inexistence d'une phase de désaimantation sub-picoseconde. Celle-ci s'explique par une aimantation à l'équilibre trop basse à $T \sim 25\text{K}$ pour ces échantillons. Alors que l'échantillon passivé est toujours paramagnétique, recuit A et recuit B ont des températures de Curie respectives situées entre $0\text{K} < T_C < 25\text{K}$ et $25\text{K} < T_C < 42\text{K}$ comparables avec la température de l'expérience. Les conditions expérimentales sont favorables à la phase paramagnétique pour ces échantillons. Ces résultats prouvent de plus l'absence de détérioration de la passivation à l'hydrogène car celle-ci augmenterait T_C . Dans ces cas, $\Delta\theta_r \ll \Delta\theta_d$ et l'ajustement (4.25), réduit à son second membre, tend vers l'équation (4.23) qui est la forme mathématique de l'ajustement du signal de réflectivité différentielle. L'analyse développée dans la première partie du chapitre et les ressemblances dans l'aspect général des courbes présentées sur les figures 4.9 et 4.13 poussent à prolonger la comparaison. Les tracés rouges de la figure 4.15 représentent l'évolution de la réflectivité différentielle en fonction du temps d'après les données d'ajustement du tableau 4.2. La comparaison révèle une bonne concordance entre les temps de refroidissement et de recombinaison des signaux de réflectivité et d'aimantation différentiels. En phase paramagnétique, les signaux de réflectivité différentielle et de variation d'angle de rotation Kerr sont similaires. D'après le chapitre 1 2.2 (p.19), l'interaction d'échange entre les spins des impuretés magnétiques repose sur l'existence de trous délocalisés dans (Ga,Mn)As. Les densité et température du gaz de trous agissent donc directement sur l'amplitude de l'interaction magnétique entre les atomes de manganèse et, par conséquent, sur l'aimantation.

Le passage de l'excitation de pompe crée transitoirement un supplément de trous dans la bande de valence et d'électrons dans la bande de conduction. Ces trous thermalisent rapidement en un gaz de trous chauds dont la température et la densité influencent l'amplitude de l'aimantation. Deux effets, dont les conséquences sont opposées, sont donc à mettre en balance : si le gaz est trop chaud, il se dépolarise ce qui provoque la désaimantation des impuretés. Si la densité de trous devient très élevée, le nombre de trous véhiculant l'interaction magnétique entre impuretés magnétiques augmente et l'aimantation est renforcée. Dans ce régime, cette dynamique d'aimantation s'explique bien par des considérations de remplissage *i.e.* par l'évolution du potentiel chimique μ et la température T du gaz de trous et plus spécifiquement par la façon dont ces quantités influencent la polarisation du gaz de trous. Cette dernière, quand elle est diminuée, réduit la polarisation des impuretés magnétiques ce qui modifie la levée de dégénérescence de spin des trous comme le spécifient les équations (4.11). En phase paramagnétique, les relaxations de réflectivité et d'aimantation différentielles trouvent toutes deux la même origine dans la dynamique du gaz de trous. Les variations d'aimantation mesurées sur les échantillons

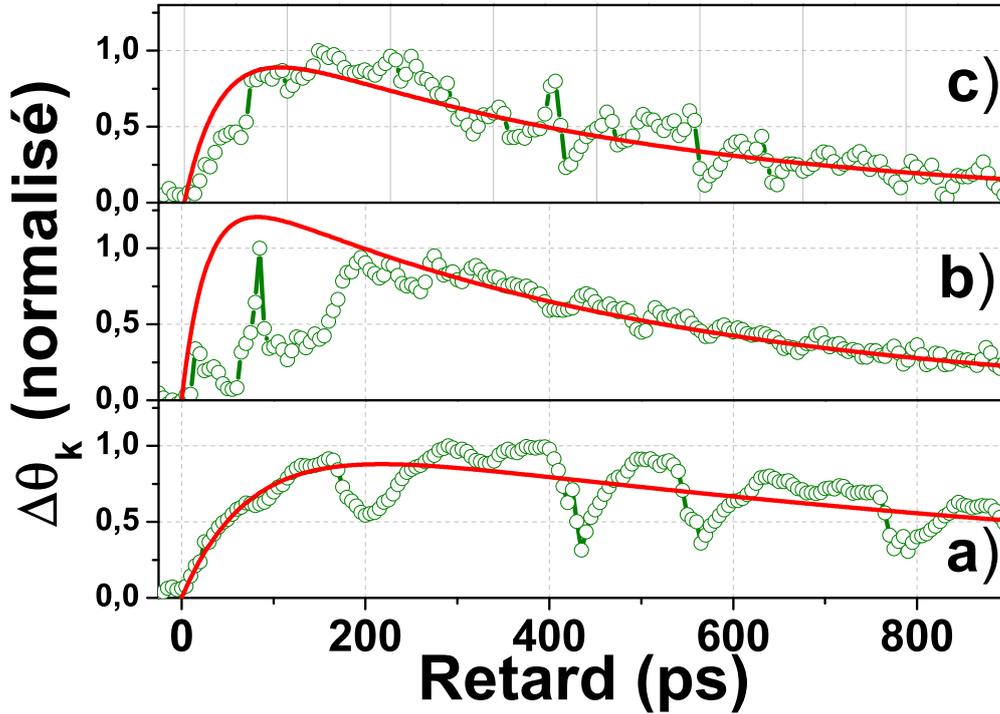


FIGURE 4.15 – Ajustement en rouge des données expérimentales en vert correspondant aux échantillons passivé $p \simeq 10^{17} \text{cm}^{-3}$ a) , recuit A $p \simeq 1.0 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ b) et recuit B c) $p \simeq 2.0 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$.

passivé, recuit A et recuit B se produisent alors que le gaz de trous est à la température du substrat et sont donc interprétées comme une augmentation transitoire de l'aimantation. Celle-ci est consécutive à l'augmentation de la polarisation de spin du gaz de trous froid qui, plongé dans le champ magnétique effectif des impuretés magnétiques, se polarise au cours du refroidissement. La diminution du nombre de trous par recombinaison ou diffusion hors de la zone irradiée provoque ensuite la diminution de l'amplitude du couplage magnétique. La norme de l'aimantation reprend alors progressivement sa valeur à l'équilibre. Ce régime de densité de porteurs présente deux avantages. Le premier est la possibilité de contrôler de manière extrêmement précise l'état d'aimantation à l'aide de l'intensité du champ électromagnétique incident, par le nombre de porteurs photo-crées, et le second est la grande lisibilité du processus sur la dynamique de la réflectivité.

Dynamique de la norme de l'aimantation en phase ferromagnétique pour les densités de trous à l'équilibre élevées - Cas où $\Delta\theta_d \neq 0$

La figure 4.16 présente la dynamique d'aimantation pour les échantillons dont la densité de trous est la plus élevée *i.e.* recuit C, recuit D et recuit E. Pour tous ces échantillons, l'expérience ne résout pas la montée du signal d'aimantation qui se caractérise par un temps inférieur à 5ps. La figure 4.16 montre une réponse oscillante du signal d'aimanta-

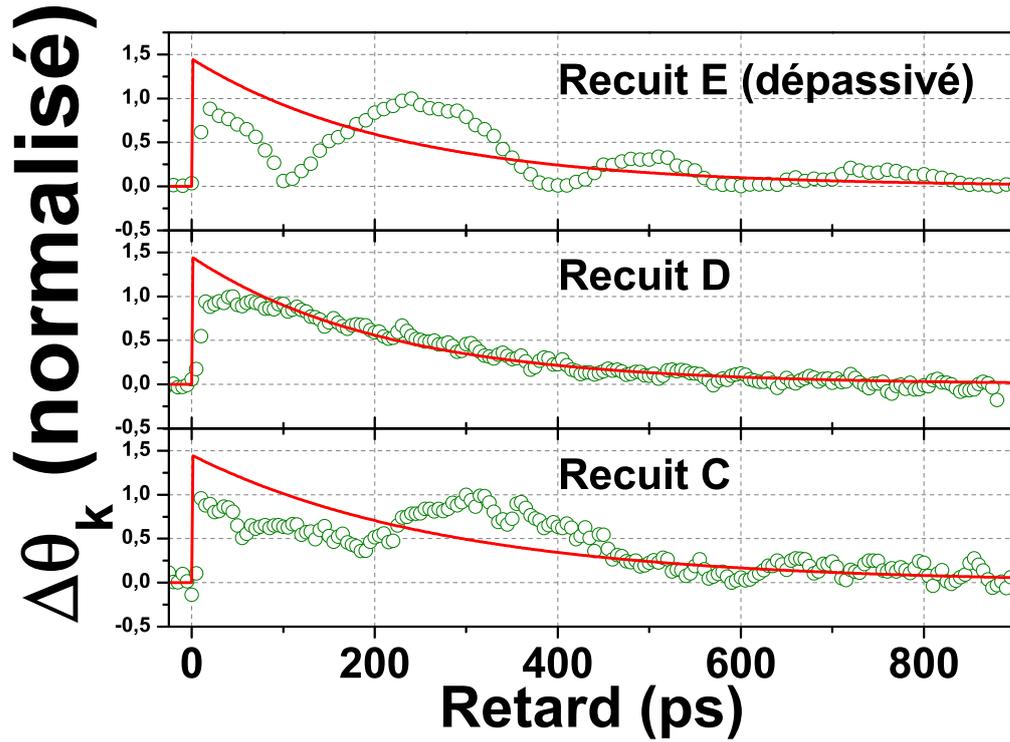


FIGURE 4.16 – Comparaison entre les ajustements des courbes de réflectivité et la dynamique de la rotation Kerr pour recuit C ($p \simeq 3.2 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$), recuit D ($p \simeq 1.0 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$) et l'échantillon entièrement dépassivé ($p \simeq 7.9 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$).

tion pour les échantillons recuit E et recuit C avec une période T d'une demi nanoseconde environ. Ces oscillations sont attribuées à une précession de l'aimantation du système. Cette partie s'intéressant à la dynamique de la norme du vecteur aimantation, les oscillations, associées à la précession de l'aimantation, sont discutées plus loin. Le paragraphe précédent met en avant le lien entre dynamique d'aimantation et de réflectivité. Dans la même idée, la dynamique du terme de réaimantation de droite de l'équation (4.25) peut être étudié d'après le signal de réflectivité. Les courbes rouges sont ainsi des ajustements réalisés d'après les mesures de réflectivité différentielle qui mettent en avant la dynamique de retour à l'équilibre par recombinaison. Ainsi, le retour à l'équilibre de l'aimantation est provoqué par la recombinaison des porteurs et ce quelle que soit la densité de trous dans l'état fondamental. L'absence d'oscillations sur le signal de recuit D, présenté sur la figure 4.16 b), améliore la lisibilité. Cette figure montre clairement un écart entre la dynamique de réflectivité et d'aimantation entre 0 et 100ps à 200ps. Au-delà de 200ps, les signaux de réflectivité et d'aimantation adoptent la même décroissance exponentielle. Sur la figure 4.17, un traitement du signal de l'échantillon recuit D permet d'isoler le signal attribué au terme de gauche de l'équation (4.25) mettant en avant l'existence d'une dynamique dont la constante de temps est intermédiaire entre 0 et 100ps qui est absente du signal de réflectivité. L'équation (4.25) suffit à rendre compte de ce phénomène en supposant l'existence d'une réaimantation faible qui compense la désaimantation entre 0 et 100ps.

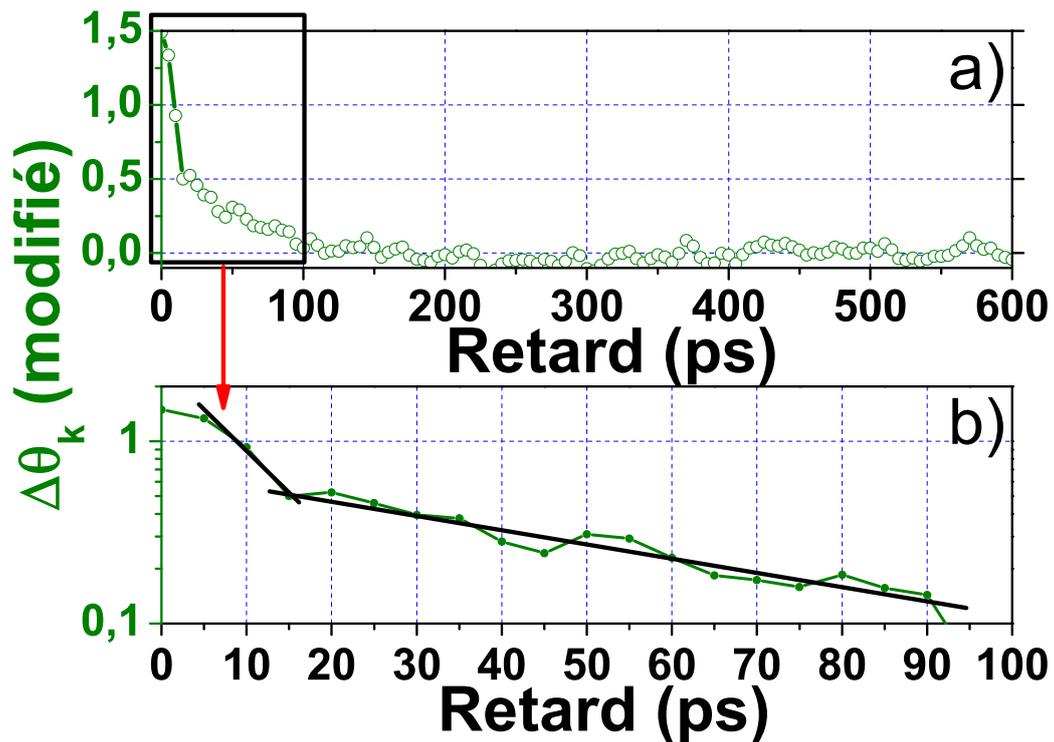


FIGURE 4.17 – a) Variation du pouvoir rotatoire de l'échantillon recuit D entre 0ps et 600ps après une excitation optique à 400nm. La procédure pour obtenir ce signal a été la suivante : I) ajustement exponentiel entre 400ps et 600ps en fonction de l'amplitude du signal non modifié en utilisant le temps de recombinaison issu de l'ajustement du signal de réflectivité, II) soustraction de l'ajustement au signal non modifié $1.55\exp(-\frac{t}{204})$. b) Agrandissement et tracé en échelle semi logarithmique entre 0 et 100ps.

4.2 Dynamique de la direction de l'aimantation en phase ferromagnétique - Précession de l'aimantation

L'évolution de la direction de l'aimantation est une réponse *a priori* strictement magnétique. Elle concerne les réponses transitoires présentées sur la figure 4.16 a) et c) des échantillons recuit C et recuit E en phase ferromagnétique. En plus des caractéristiques déjà discutées, les signaux de rotation Kerr résolus en temps mesurés sur les échantillons recuit C et recuit E montrent des oscillations. Ces oscillations sont caractéristiques d'un signal associé à la précession de l'aimantation en fonction du temps. Dans l'état fondamental, l'aimantation adopte une direction qui minimise l'énergie libre magnétique du système. Le vecteur aimantation pointe dans une direction d'équilibre qui dépend des champs magnétiques effectifs d'anisotropie magnéto-cristalline, de forme ainsi que du champ magnétique appliqué. Les champs magnétiques effectifs associés à l'anisotropie dépendent à leur tour de la température et du nombre de trous dans le système comme cela a été rappelé au chapitre 2, section 3.3 (p.50). Après une excitation lumineuse, la thermalisation des spins entre trous et Mn_{Ga} change la position du vecteur aimantation.

L'aimantation peut alors entamer un mouvement de précession autour de son axe d'équilibre pour retourner dans son état initial.

Le signal associé à ce mouvement de précession dépend de la configuration d'équilibre de l'aimantation. La minimisation de l'énergie libre F en fonction des angles d'aimantation et en utilisant les valeurs des constantes d'anisotropie magnéto-cristalline présentées dans le chapitre 2 permet d'estimer la direction du vecteur aimantation.

Echantillon	$\varphi_{eq} (^{\circ})$	Θ_{eq}
Recuit B	180	0
Recuit C	180	0
Recuit D	-45	16
Recuit E	-45	36

TABLE 4.4 – *Positions d'équilibre du vecteur aimantation des différents échantillons pour un champ magnétique appliqué perpendiculaire d'intensité $H_z = 0.35T$ à une température de 25K.*

Les résultats de ce calcul pour la configuration expérimentale utilisée sont présentés dans le tableau 4.2. Les valeurs de l'angle Θ_{eq} démontre une anisotropie planaire suffisamment importante dans le cas des densités p les plus élevées pour empêcher l'alignement perpendiculaire de l'aimantation et permettre une dynamique de précession.

L'équation (4.26) présente une nouvelle équation d'ajustement pour le signal après le temps de montée ($t > 100ps$) basée sur la variation de la composante de la projection d'un vecteur en cours de précession.

$$\Delta\theta(t) = (\Delta\theta_0 + \Delta\theta_{osc} \cos(\omega(t - t_0))) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rec}}\right) \quad (4.26)$$

Dans (4.26), ω est la pulsation et t_0 donne la phase des oscillations. $\Delta\theta_{osc}$ est l'amplitude des oscillations. L'amplitude $\Delta\theta_0$ représente la dynamique d'aimantation sans oscillation qui apparaît constante sur cette échelle de temps. Comme discuté dans le paragraphe précédent, les données de réflectivité permettent à cette échelle d'extraire le temps de recombinaison et de l'utiliser dans l'équation (4.26). Pour augmenter la lisibilité du signal, les oscillations sont présentées sur la figure 4.18 sans le signal de recombinaison par lequel le signal a été divisé et en utilisant l'équation (4.26) pour l'ajustement. La figure 4.18 récapitule donc les signaux avec oscillations pour les échantillons recuit C et recuit E. Dans les deux cas, les oscillations, d'une fréquence de l'ordre de 2GHz, se superposent au signal d'aimantation. Elle montre deux signaux assez propres et en cohérence avec l'hypothèse de l'équation (4.26). D'une part, malgré le peu d'oscillations mesurées dans les deux cas, l'amplitude des oscillations apparaît globalement assez stable avec le temps ce qui signifie que le temps caractéristique d'amortissement de Gilbert est nécessairement supérieur ou égal au temps de recombinaison. D'autre part, les deux signaux présentent des retards différents dans l'établissement des oscillations. En effet, dans les deux cas, les signaux montrent une variation sub-picoseconde de l'aimantation avec le temps, suivi d'un palier jusqu'à un démarrage brutal de la précession. Ce démarrage à lieu à deux instants différents. Selon les cas, la précession débute à $t \sim 200ps$ et $t \sim 80ps$ pour

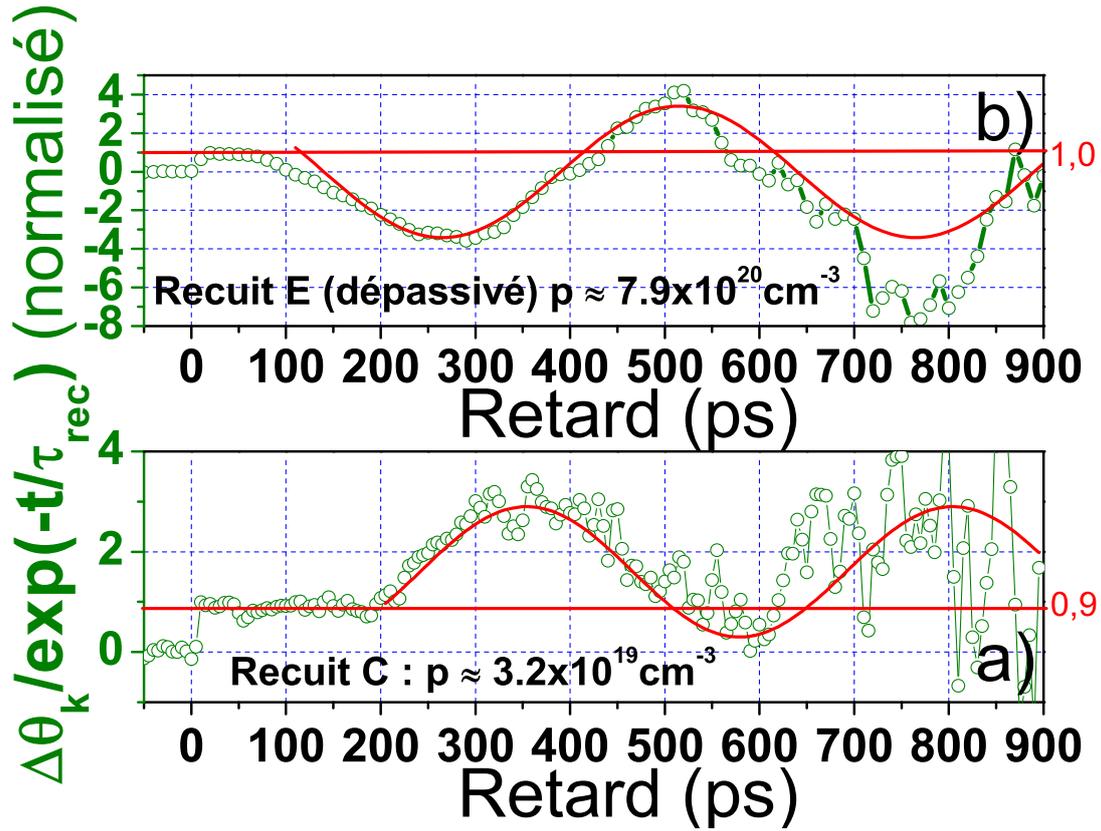


FIGURE 4.18 – Signal de rotation Kerr divisé par l'exponentielle associée à la recombinaison. τ_{rec} est déterminé à l'aide de l'ajustement du signal de réflectivité différentielle aux temps longs. Les traits rouges horizontaux placent le niveau du signal entre 0ps et 100ps. a) Échantillon dé passivé - $p \simeq 7.9 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ - La courbe rouge est un cosinus de période $T = 450 \text{ps}$ avec $\Delta\theta_{osc} = 1.3$ et $t_0 = 354 \text{ps}$ auquel est additionné un fond de 1.6 b) Échantillon recuit C - $p \simeq 3.2 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ - La courbe rouge est un cosinus de période $T = 500 \text{ps}$ avec $\Delta\theta_{osc} = 1.7$ et $t_0 = 265 \text{ps}$ auquel un fond de 0.9 est additionné.

$p \sim 3.2 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ et $p \sim 7.9 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ respectivement. Ce comportement n'a pas été reporté jusqu'ici dans la littérature. Il est attribué d'une part au repositionnement de l'aimantation dans le plan, cette configuration menant à l'impossibilité de mesurer la dynamique de la norme de l'aimantation. D'autre part, le retard des oscillations semble augmenter avec la diminution du nombre de trous dans l'état fondamental. L'augmentation initiale de la température des trous, de 28K pour recuit C d'après le tableau 4.3 (p.89), peut être suffisante pour dépasser sa température de Curie, d'après le tableau 2.3 (p.49) du chapitre 2. Le palier correspond donc simplement à une période de temps durant laquelle le système a dépassé sa température de Curie et son existence sur l'échantillon Recuit A dans la première configuration expérimentale et Recuit C ici est justifiée par la faible densité de trous dans l'état fondamental. La validité de cette explication est appuyée par la brutalité du démarrage du régime oscillatoire. Ceci est une manifestation inédite de la dynamique d'aimantation qui se produit pour des densités de trous à l'équilibre faibles.

5 Discussion et conclusion du chapitre

5.1 Évolution de M après une excitation optique

Dans une expérience pompe-sonde et après thermalisation des charges et des spins, la situation est celle d'un quasi-équilibre avec une évolution non triviale des paramètres caractéristiques M , θ , θ_{eq} et ω . La forme caractéristique de l'évolution de M pour une excitation optique linéairement polarisée en configuration polaire est déduite de la référence [101] et présentée dans l'équation (4.27).

$$M(t) = H(t) \left\{ \Delta M_d + \Delta M_r \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{ref}}\right) \right) \right\} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{rec}}\right) + M_0 \quad (4.27)$$

Dans cette équation, $H(t)$ est la distribution de Heaviside. τ_{ref} et τ_{rec} sont respectivement les temps de repolarisation du gaz de trous, faisant suite au refroidissement par émission de phonons acoustiques, et de recombinaison des porteurs introduits dans le corps de ce chapitre. ΔM_d et ΔM_r sont respectivement la désaimantation et la réaimantation.

Contrôle temporel de $\Delta M(t)$

Cette thèse démontre une dépendance des temps caractéristiques de refroidissement et de recombinaison des charges avec la densité de trous dans l'état fondamental. Le temps de thermalisation dépend de l'élévation de température du système de charges. Celui-ci est directement associé au rapport $\frac{p_{ph}}{p}$ et donc à l'intensité de l'onde incidente.

Le temps de recombinaison des porteurs dépend de la densité d'impuretés de type [As_{Ga}]. Si celle-ci est suffisante pour piéger l'ensemble des électrons, le temps de recombinaison varie avec la position du niveau de Fermi dans la bande de valence. Le contrôle du temps de recombinaison nécessite de faire varier le niveau de Fermi des trous.

Le phénomène de réaimantation

La réaimantation ΔM_r est la conséquence de la variation de polarisation du gaz de trous suite à une augmentation transitoire de sa densité changeant l'amplitude du couplage entre les spins des atomes de manganèse [12]. Ce phénomène de réaimantation apparaît quand les trous sont assez froids pour se polariser efficacement. Durant cette partie de la relaxation, l'interaction d'échange magnétique entre les atomes de manganèse est renforcée. La température de Curie et l'aimantation pour une température donnée sont donc transitoirement plus élevée. La relaxation de la température des trous est donc connectée à leur polarisation. ΔM_r dépend ainsi de la densité de trous photo-crées, de la densité de trous dans l'état fondamental et de la température du substrat à l'équilibre et est indépendante de la température du gaz de trous directement après le passage de l'impulsion de pompe. L'amplitude de ΔM_r est l'augmentation d'aimantation à température fixe entre l'état fondamental et l'état de quasi équilibre pendant la relaxation. Qualitativement, celle-ci peut être connectée à la variation des températures de Curie entre les deux diagrammes, représentée par les équations (4.28). Celles-ci expriment la divergence de la variation de la température de Curie au voisinage de $p = 0$ lorsque un changement Δp est effectué, où α est un coefficient de proportionnalité, p la densité de trous et T_C la

température de Curie.

$$T_C = \alpha p^{\frac{1}{3}} \Rightarrow \frac{\Delta T_C}{T_C} = \frac{1}{3} \frac{\Delta p}{p} \quad (4.28)$$

Les variations les plus importantes de température de Curie ont lieu pour des densités de

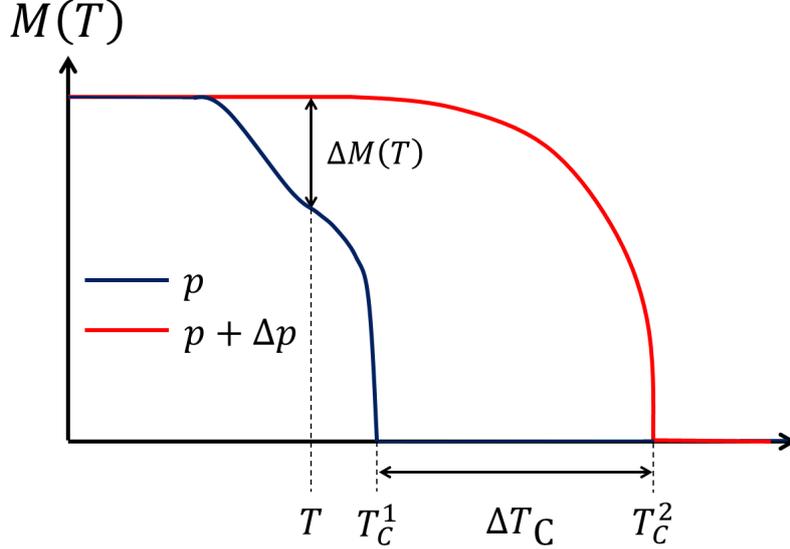


FIGURE 4.19 – Schéma de la différence entre les températures de Curie ΔT_C et des aimantations ΔM en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental.

trous photo-crées comparables à celles de l'état fondamental et sont donc favorisées pour des échantillons de plus basses densités de trous à l'équilibre. Un nombre de porteurs photo-crées élevé augmente l'interaction d'échange magnétique et donc la température de Curie ce qui favorise le processus de réaimantation. Celle-ci est donc plus importante dans un système froid avec un rapport $\frac{p_{ph}}{p}$ élevé. Par extrapolation au diagramme de

phase, la valeur de $\Delta M_r(T)$ est fortement dépendante de $\frac{\Delta p}{p}$ et la densité de trous est un bon moyen de contrôler le phénomène de réaimantation. En complément des expériences, des simulations numériques de l'état d'équilibre des échantillons, basées sur un code de DFT-LSDA ont été réalisées. Celles-ci feront l'objet du chapitre 5. La méthodologie consiste à calculer les différences d'aimantations à 30K pour des densités de trous p et $p + p_{ph}$ correspondant aux valeurs théoriques de ΔM_d entre le système à l'équilibre et hors équilibre après refroidissement. Cette démarche revient à supposer qu'une évolution du système hors équilibre quasi-statique avec une aimantation s'adaptant à la température instantanée du système plus rapidement que l'évolution de température. Les résultats numériques sont présentés sur la figure 4.20 en fonction du pourcentage de porteurs injectés et vont en faveur d'une augmentation de l'amplitude du signal de désaimantation avec la diminution de la concentration de porteurs. La figure 4.21 représente la réaimantation en fonction de la densité de trous en échelle log-log. Sur cette figure, ΔM_d s'étend sur quatre ordres de grandeurs pour la gamme de densités de trous discutées et obéit à une loi de puissance. Pour les petites valeurs de densité de trous, toute injection optique aura des effets plus importants sur la renormalisation de la température de Curie que pour les plus grandes valeurs. Lorsque la densité de trous est faible, l'injection d'une

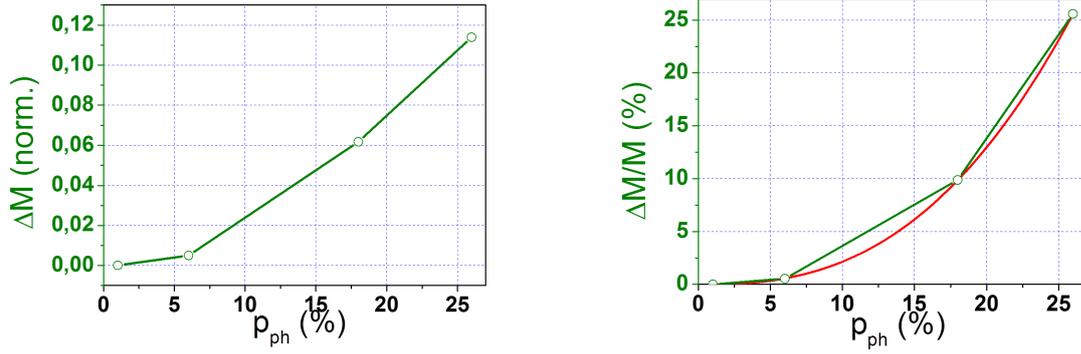


FIGURE 4.20 – Variation théorique d'aimantation à 30K entre les systèmes à p et $p + p_{ph}$ avec $p_{ph} \simeq 4,2 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$. L'axe des abscisses est exprimé en fonction du pourcentage de variation de porteurs $100 \times \frac{p_{ph}}{p}$. Les points correspondent aux valeurs expérimentales des densités de porteurs p : $p = 7,9.10^{20} \text{cm}^{-3}$, $p = 1,1.10^{20} \text{cm}^{-3}$, $p = 3,2.10^{19} \text{cm}^{-3}$ et $p = 2,0.10^{19} \text{cm}^{-3}$.

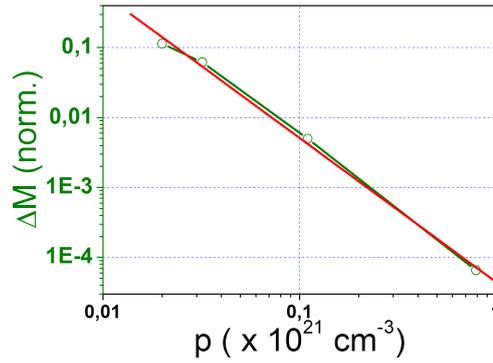


FIGURE 4.21 – Variation théorique d'aimantation à 25K entre les systèmes à p et $p + p_{ph}$ avec $p_{ph} \simeq 4,2 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$. L'axe des abscisses est exprimé en fonction de la densité de trous à l'équilibre p . Les points correspondent aux valeurs expérimentales des densités de porteurs p . De gauche à droite : $p = 7,9.10^{20} \text{cm}^{-3}$, $p = 1,1.10^{20} \text{cm}^{-3}$, $p = 3,2.10^{19} \text{cm}^{-3}$ et $p = 2,0.10^{19} \text{cm}^{-3}$. La courbe en rouge est un ajustement en loi de puissance $y = Ax^B$ avec $A = 0.0129 \pm 0.0013$ et $B = -2.06 \pm 0.08$.

quantité comparable de trous mène à un changement important de la température de Curie et donc de l'aimantation sur une échelle de la centaine de picosecondes. L'analyse du comportement théorique de l'amplitude de réaimantation en fonction de la densité de porteurs présente un comportement en loi de puissance pour lequel le coefficient est de -2.06 et différent de celui ($-\frac{1}{3}$) liant la température de Curie à la densité de porteurs. La figure 4.19 schématise les diagrammes de phase pour deux densités de trous p et $p + \Delta p$. Cette même variation peut se constater expérimentalement d'un échantillon à l'autre sur la figure (2.3). La désaimantation s'explique donc à la fois par un changement de la température de Curie selon l'équation (4.28) et d'allure du diagramme de phase au voisinage de la température du substrat. La loi de puissance déterminée ici rend compte

de ces deux effets couplés.

Le phénomène de désaimantation

ΔM_d est une variation ultra rapide de la norme de l'aimantation. Celle-ci a deux origines, d'une part l'augmentation de température des charges thermalisées dépolarise les trous sur une échelle de temps d'une centaine de picoseconde. D'autre part, la thermalisation des composantes selon (Oz) des spins des trous photo-crés et des impuretés dépolarise ces dernières sur une échelle de temps estimée à 20fs selon la valeur de la constante de couplage magnétique. Ces deux aspects peuvent être discutés indépendamment. Pour l'aspect thermique du phénomène, le réchauffement des trous se traduit par

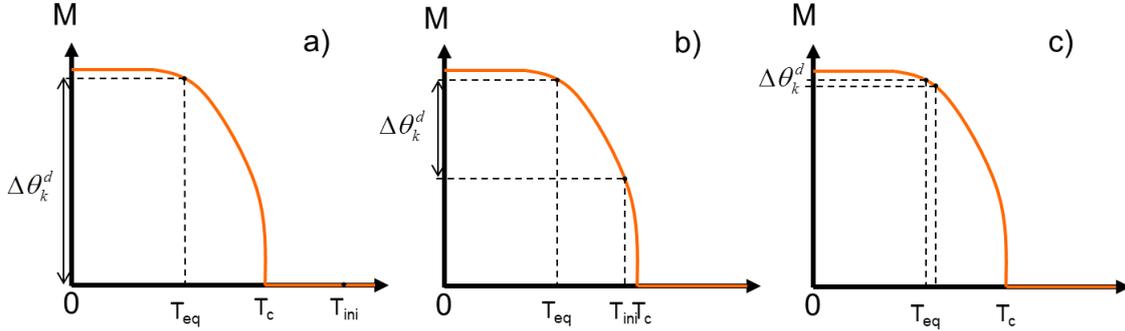


FIGURE 4.22 – Schéma de la désaimantation en fonction de la variation de température initiale selon les cas a) $T_{eq} - T_{ini} \gg T_{eq} - T_c$, b) $T_{eq} - T_{ini} \simeq T_{eq} - T_c$ et c) $T_{eq} - T_{ini} \ll T_{eq} - T_c$. L'ordonnée représente l'aimantation et l'abscisse la température.

une diminution de la norme de l'aimantation. La figure (4.22) permet de représenter schématiquement la diminution de l'amplitude de l'aimantation après un échauffement comme un déplacement sur le diagramme de phase. D'après cette figure (4.22), trois cas peuvent se présenter selon l'intensité du réchauffement. Pour un échantillon en phase ferromagnétique à l'équilibre, une variation de température ΔT supérieure à la différence entre la température de Curie T_c et la température à l'équilibre T_{eq} provoque une transition ferro-para et une désaimantation totale du système. L'amplitude de désaimantation en fonction de T_{eq} reproduit alors exactement le diagramme de phase. Cela correspond au cas a) de la figure 4.22. Si la différence de température est inférieure à l'écart avec la température de Curie, la désaimantation traduit la différence d'aimantation entre la température d'équilibre et la température après injection comme sur le cas b) de la figure (4.22). Enfin, d'après le cas c) représenté sur la figure (4.22), pour une augmentation de température négligeable devant $T_c - T_{substrat}$, l'amplitude de désaimantation est la courbure du diagramme de phase au voisinage de la température du substrat. Pour un échantillon en phase paramagnétique à l'équilibre, l'aimantation est nulle et aucune désaimantation n'est observable. Des simulations numériques de l'état fondamental du système ont été réalisées. Celles-ci font l'objet du prochain chapitre et ne sont pas décrites en détail dans cette partie. Elles permettent d'estimer les variations ΔM_d consécutives à une élévation de température en accord avec les arguments développés dans ce paragraphe. Les résultats théoriques de ces simulations sont présentés sur la figure (4.23) en fonction de la densité de porteurs à l'équilibre pour une température de substrat et une densité de

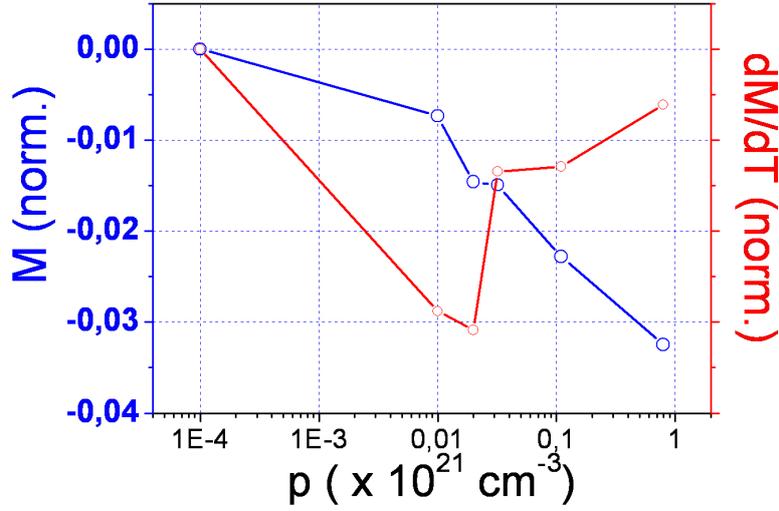


FIGURE 4.23 – Résultats des calculs numériques pour l'aimantation (en bleu) et dérivée de l'aimantation (en rouge) normalisées au voisinage de 30K en fonction de la densité de trous p .

trous photo-crées fixe. Ces résultats sont les aimantations, pour le cas a), et les dérivés des aimantations, pour le cas c), en fonction de la température au voisinage de $T = 30\text{K}$. Pour les plus faibles densités, il a été vu que la variation de température est importante correspondant au cas a). Pour les densités de trous plus importantes, la désaimantation d'origine thermique est plus faible et correspond au cas c). La part thermique de l'amplitude de la désaimantation est donc plus faible dans un régime où le rapport entre densité de trous photo-crées et dans l'état fondamental est faible.

L'autre origine de la désaimantation est la thermalisation ultra-rapide entre les spins des trous et des Mn_{Ga} . Celle-ci influence directement la composante M_z de l'aimantation de la manière décrite dans l'équation (4.29) avec ΔM_z la variation de la composante M_z , $[\text{Mn}_{\text{Ga}}]$ la densité d'impuretés magnétiques supposée sans compensation, et P_{ph} le taux de polarisation circulaire de l'onde lumineuse incidente nul dans le cas présenté ici.

$$\Delta M_z = \frac{p_{ph}P_{ph} + [\text{Mn}_{\text{Ga}}] M}{p_{ph} + [\text{Mn}_{\text{Ga}}]} - M \Rightarrow \Delta M_z = -\frac{p_{ph}}{p_{ph} + [\text{Mn}_{\text{Ga}}]} M \text{ si } P_{ph} = 0 \quad (4.29)$$

En accord avec les résultats de J. Wang *et al.*, la désaimantation initiale est proportionnelle à l'aimantation du système dans l'état fondamental et sa dépendance avec la température est, pour une intensité lumineuse incidente constante, un moyen dynamique de reproduire le diagramme de phase statique. Naturellement, dans le cas général où M n'est pas alignée avec l'axe (Oz), ΔM_z induit un changement de norme ΔM_d traduit dans l'équation (4.30).

$$\Delta M_d = M \left(1 - \sqrt{1 + \frac{2M \cos(\theta + \theta_{eq}) \Delta M_z + \Delta M_z^2}{M^2 \cos^2(\theta + \theta_{eq}) + \Delta M_z^2}} \right) \quad (4.30)$$

5.2 Effet de thermalisation de spin sur la rotation initiale d'aimantation - Transfert optique de spin

À la variation initiale de M_z se superpose un changement directionnel du vecteur aimantation. Pour θ_{eq} non nul avant l'excitation optique, une variation de M_z provoque une rotation simultanée du vecteur aimantation avec un changement d'angle donné dans l'équation (4.31). Une excitation lumineuse polarisée linéairement produit donc un rapprochement de la direction de \mathbf{M} et du plan (xOy).

$$\Delta\theta = \text{atan} \frac{M \sin(\theta + \theta_{eq})}{M \cos(\theta + \theta_{eq}) + \Delta M_z} - \theta \quad (4.31)$$

Le choix de l'intensité et de la polarisation de l'onde lumineuse incidente est donc un moyen de contrôler à la fois l'amplitude de désaimantation et la rotation initiale de l'aimantation vers le plan. La relaxation de \mathbf{M} depuis sa position après la passage de la pompe vers la direction d'équilibre invariante s'effectue alors selon un mouvement de précession amorti induisant une remontée du vecteur aimantation, traduite par une dynamique de θ , vers sa direction d'équilibre. L'amplitude de la précession diminue alors avec un temps caractéristique τ_G . En supposant un amortissement exponentiel, l'équation (4.32) rend compte de la relaxation de θ .

$$\theta(t) = \Delta\theta \exp\left(-\frac{t}{\tau_G}\right) + \theta_0 \quad (4.32)$$

Cette interprétation est en adéquation avec des résultats expérimentaux récents obtenus par P. Némec *et al.* [67] pour lesquels la variation initiale de l'aimantation dépend de la polarisation circulaire de l'onde incidente. Cette référence démontre en effet la possibilité d'augmenter ou de diminuer la composante M_z de l'aimantation en fonction de la polarisation lumineuse circulaire de l'onde incidente. Deux signaux contra-polarisés induisent ainsi des oscillations en opposition de phase en accord avec les positions relative initiales de l'aimantation et de la direction d'équilibre dans chacun des cas. Cependant une variation de la direction initiale du vecteur aimantation est aussi susceptible de produire une précession de l'aimantation comme reporté par Qi *et al.* dans la référence [78].

5.3 Variation des axes d'anisotropie magnéto-cristalline

Il est possible que, durant la relaxation des charges, les variations de densités de trous et de température influencent les constantes d'anisotropies magnéto-cristallines $K_{2\perp}$, $K_{2\parallel}$, $K_{4\perp}$ et $K_{4\parallel}$ et donc le champ magnétique effectif s'appliquant à l'aimantation avec des conséquences sur la dynamique de précession. Directement après l'excitation, les charges thermalisées sont suffisamment chaudes pour que l'axe d'équilibre soit fortement modifié. L'émission de phonons optiques refroidit rapidement le système de charge et cesse après 10ps laissant le système à une température maximale de $T \leq 420\text{K}$. L'influence principale de l'injection optique sur le champ magnétique effectif est donc de type thermal avant 10ps. Entre 10ps et 100ps, l'axe d'équilibre peut être modifié suffisamment longtemps par le surplus de charge et d'énergie pour amener l'aimantation hors de sa position d'équilibre. Pendant ce temps, le gaz de trous émet des phonons acoustiques refroidissant d'une température maximale de $T = 420\text{K}$ à la température d'équilibre impliquant une dynamique d'origine thermique de la position d'équilibre. Entre 100ps et 1ns, la diminution

du nombre de trous photo-cr es finaliserait le retour de l'axe d' quilibre vers sa position statique.

Dans un r gime o  le rapport $\frac{p_{ph}}{p}$ est faible, les modifications de l'axe d' quilibre sont   exclure. De plus, pour des  chantillons ou la densit  de trous dans l' tat fondamental est suffisamment  lev e pour contenir l' nergie apport es par l'onde incidente sans une  levation de temp rature trop brutale la variation d'axe sera   la fois trop br ve et insuffisante pour induire une variation de direction cons quente de l'aimantation. Dans le cadre de cette th se, les modifications de la direction de l'aimantation par variation de l'axe d' quilibre sont donc rejet es pour expliquer l'origine des oscillations.

Chapitre 5

Étude numérique de l'état fondamental d'une couche de (Ga,Mn)As en fonction de la densité de trous

L'objectif théorique est de décrire les états fondamentaux de plusieurs couches de (Ga,Mn)As de 50nm d'épaisseur dont les densités de trous sont différentes. La motivation est de construire un aperçu quantitatif de la dépendance des grandeurs physiques en fonction de la température et de la densité de trous. Cette étude s'inscrit de plus comme première étape d'une description théorique de la dynamique des charges et de l'aimantation après une excitation optique en fonction de la densité de trous dans le système.

Le moyen théorique utilisé pour répondre à l'objectif est un programme de simulation conçu en Matlab[®] par O. Morandi *et al.*. Ce programme a été écrit en s'inspirant des modèles développés par Kim *et al.* [41] et Lee *et al.* [50]. Celui-ci a déjà montré sa fiabilité car il est utilisé dans les références [61] [60] [62].

La première partie du chapitre décrit en détail le modèle de couche de (Ga,Mn)As utilisé dans la modélisation. L'idée de cette partie est d'introduire la structure géométrique de la couche, ses constituants ainsi que les interactions couplant ces derniers.

Le programme de calcul implémente une approche auto-cohérente dans le cadre d'une théorie dite de la fonctionnelle de la densité ou DFT, acronyme anglo-saxon pour Density Functional Theory. Cette méthode de calcul numérique est appliquée au modèle de la première partie et sa présentation est le sujet de la seconde partie du chapitre.

La troisième partie de ce chapitre donne et interprète les résultats théoriques. Dans un premier temps, elle discute des résultats obtenus dans un régime où le confinement est élevé, ceci dans le but de comparer avec des résultats déjà obtenu par l'équipe de Kim *et al.* [41]. Dans un second temps, elle traite de la détermination de la constante de couplage des échantillons utilisés dans les expériences. Dans un troisième temps, elle s'intéresse à la répartition des états dans l'espace des énergies. Enfin la dernière section traite de l'aspect magnétique et de la comparaison des diagrammes de phase expérimentaux et théoriques.

1 Description de la couche ferromagnétique

La couche utilisée doit être suffisamment simple pour être modélisée par un ordinateur. Ceci implique des simplifications par rapport au cas réel qui se traduisent par des hypothèses sur la géométrie, les constituants et la forme des interactions dans le système. Cette partie donne une description de la géométrie, des constituants et des interactions au sein du système virtuel.

1.1 Forme géométrique et constituants de la couche semi-conductrice

Le système, schématisé sur la figure 5.1, est une couche de 50nm d'épaisseur. Le schéma 5.1 place le système d'axe utilisé dans tout ce chapitre. Dans le plan (xOy), la couche est illimitée et selon (Oz) forme un puits de potentiel rectangulaire infini pour les charges positives les empêchant de se propager hors du plan. Par continuité, ceci mène à l'annulation de la fonction d'onde aux bords de la couche. Bien entendu, cette couche modélise ici un semi-conducteur cristallin comme une boîte contenant des charges libres ce qui est une *approximation de masse effective* comme déjà discuté dans le chapitre 1, section 2.3 (p.25).

Une couche possède une symétrie par rotation autour de l'axe (Oz) et une symétrie par translation dans le plan (xOy). Les fonctions décrivant les énergies potentielles ainsi que les résultats physiques doivent avoir la même symétrie. Ceci implique que tous les résultats dépendront seulement de la variable z .

Charges et propagation des charges Les charges mises en cause sont les trous qui sont des vacances d'électrons dans le remplissage de la bande de valence d'un semi-conducteur. Ces trous sont issus du dopage. Leur charge se note $+e$ avec $e > 0$ et e est la charge élémentaire. Leur pseudo spin $\frac{1}{2}\hbar$ est issu de la composition entre le moment cinétique intrinsèque de spin d'électrons dans le vide et du moment cinétique orbital. D'après le chapitre 1, deux type de trous, les trous lourds et légers, existent. Le modèle simplifie ici la structure de la bande de valence en lui attribuant une symétrie de type s et donc un moment cinétique orbital nul.

La symétrie planaire de la couche impose une propagation différente des trous dans le plan (xOy) et selon (Oz). Deux masses effectives sont alors utilisées selon la direction dans laquelle la propagation a lieu. Dans le plan (xOy), les trous se propagent librement. Cela donne lieu à une dispersion parabolique bidimensionnelle, propre aux particules libres, avec comme nombre quantique le quasi moment $k_{||}$ et comme masse effective $m_{||}^*$ en unité de masse électronique. Selon (Oz), la couche limite la propagation des trous entre deux bornes. Sans interaction autre que le terme cinétique, les solutions du problème selon (Oz) seraient des états stationnaires d'énergies dépendant d'une masse effective m_z^* et de la largeur de confinement [2]. Bien entendu, dans le cas présent où d'autres interactions sont utilisées, les solutions ne sont pas triviales et justifient une approche numérique.

Impuretés magnétiques Des impuretés de manganèse jouent le double rôle de doper le système en trous et d'apporter des moments magnétiques comme discuté dans

le chapitre 1 à la section 2.2 (p.19). D'une part, les impuretés de manganèse ionisées donnent lieu à une distribution uniforme de charges négatives. Pour respecter la neutralité électrique du système, la charge totale est nulle et les sommes des charges négatives et positives des trous lourds sont égales. En plus de son caractère uniforme, la distribution de charges négatives est stationnaire traduisant l'immobilité des atomes de manganèse.

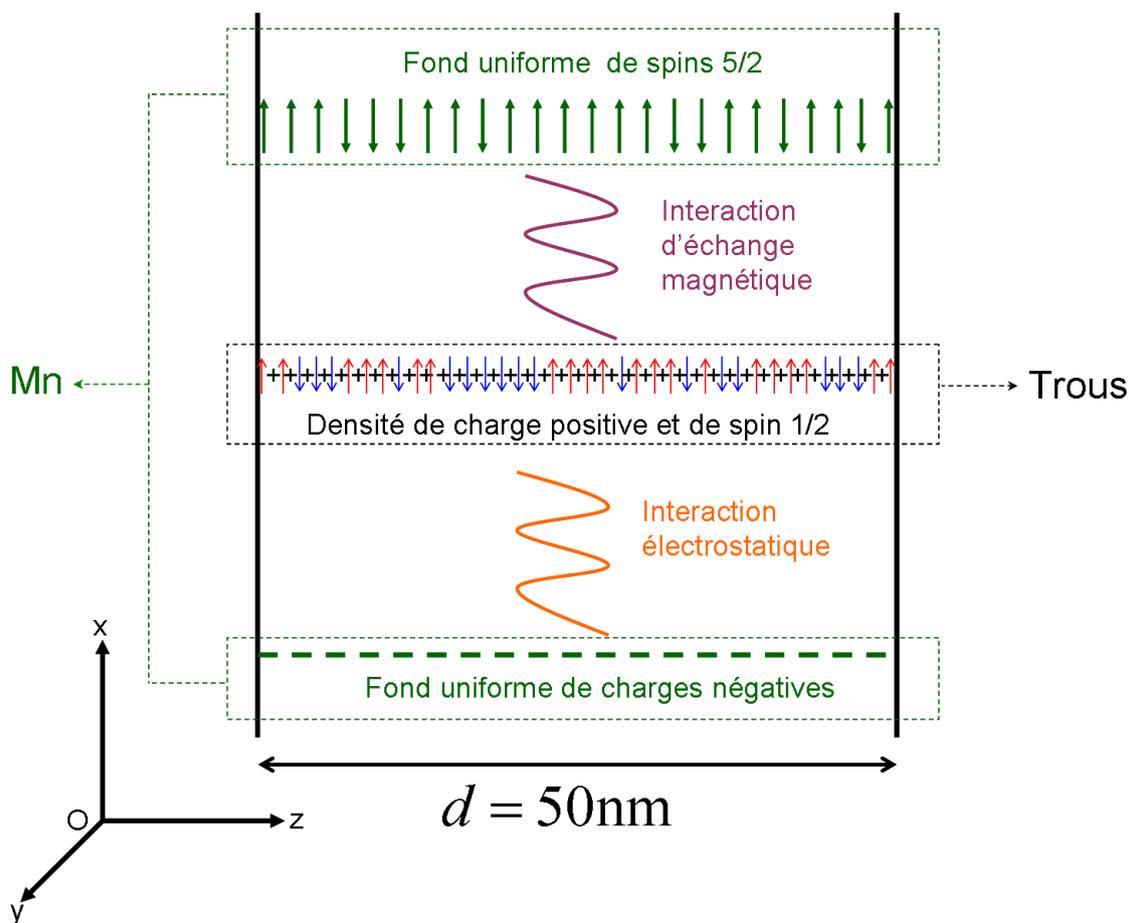


FIGURE 5.1 – *Forme schématique de la structure simulée. Les grandeurs physiques représentées en vert sont attribuées aux impuretés de manganèse. Les « - » représentent les charges négatives. Les flèches représentent les spins. Les charges des trous sont représentées par les « + » noirs. Les spins des trous par les flèches rouges et bleues explicitant les deux projections possibles. Les courbes de couleurs bordeaux et orange sont les interactions magnétique et électrostatique respectivement.*

D'autre part, le remplissage électronique des orbitales d'un atome de manganèse est représenté sur la figure 5.2. Les impuretés de manganèse ont des moments magnétiques localisés de valeur $\frac{5}{2}\hbar$ due au remplissage électronique des orbitales 3d du manganèse. À la différence de leur densité de charges, la polarisation des impuretés magnétiques peut varier avec la position selon (Oz) et ceci malgré la distribution homogène des atomes de manganèse dans la couche.

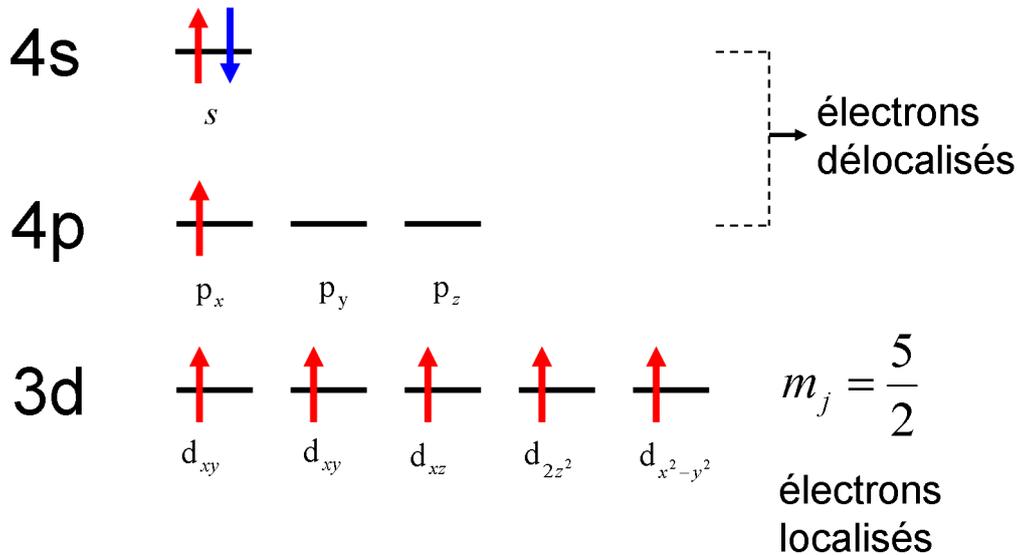


FIGURE 5.2 – Représentation schématique des niveaux atomiques de l'atome de manganèse. Alors que les électrons 4s et 4p se délocalisent pour assurer la cohésion du cristal et le dopage, les électrons 3d restent localisés autour de l'atome. Pour ces derniers, les spins sont alignés entre eux selon la règle de Hund et donnent un moment magnétique total de $\frac{5}{2}\hbar$ à l'atome de manganèse.

1.2 Interactions dans la couche

Comme vu dans le paragraphe précédent, les constituants du système possèdent à la fois une charge et un spin. Les interactions les plus simples sont donc naturellement électrostatiques, *i.e.* impliquant des charges, et magnétiques, *i.e.* impliquant des moments magnétiques.

Les interactions électrostatiques mettent en jeu les trous libres chargés positivement et les impuretés magnétiques immobiles chargées négativement. Elles influencent donc la répartition des trous selon (Oz) sans changer celle des impuretés magnétiques. Ces interactions sont répulsives entre trous et attractives entre trous et atomes de manganèse. Par hypothèse le système total de charge est supposé créer un champ électrostatique moyen agissant sur chaque trou du système. *Cette approximation est du type champ moyen et ne tient pas compte des fluctuations de la densité de trous.*

L'interaction d'échange magnétique couple les spins des trous avec celui des atomes de manganèse. Cette interaction est de type Kondo comme expliqué dans le chapitre 1 section 2.3 (p.22). Elle est donc locale et dépend, pour un couple trou-atome de manganèse, de l'alignement relatif des spins des trous et des impuretés. Ce modèle simplifie cette interaction. D'une part, en chaque point du profil la polarisation locale du gaz de trous ξ , *i.e.* le rapport d'asymétrie entre les densités locales de trous associées aux deux projections de spins possibles, agit sur les impuretés magnétiques situées au même point. Les impuretés perçoivent donc un champ magnétique effectif moyen auquel elles répondent en alignant leur spin. D'autre part, la polarisation des impuretés est aussi un champ magnétique effectif pour les trous dont les spins s'alignent. *Ainsi, à ce niveau,*

l'interaction entre spins des trous et des impuretés magnétiques est traitée à l'aide d'une nouvelle approximation de champ moyen ne tenant pas compte de l'influence des fluctuations temporelles des spins des trous et des impuretés sur le magnétisme du système.

Dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité, le modèle inclut une d'interaction supplémentaire V_{xc} dite d'échange et de corrélation [31] [44]. Celle-ci s'applique aux spins des trous et dépend de leur polarisation magnétique ξ . Il est essentiel de souligner que la prise en considération d'un terme d'échange et de corrélation est une manière de traiter les fluctuations de spin et de charges et dépasse ainsi l'approximation du champ moyen. *C'est l'approximation des densités de spin locales ou LSDA pour "Local spin density approximation".*

2 Structure du programme de calcul

Après une courte introduction sur le schéma d'application d'un calcul auto-cohérent, cette partie s'intéresse à la description de la structure du programme de calcul utilisé.

2.1 Approche auto cohérente pour l'état magnétique d'une couche de (Ga,Mn)As

Le programme de calcul résout numériquement une équation de Schrödinger stationnaire sur la fonction enveloppe dont les termes d'énergie potentielles dépendent de la répartition des trous dans le profil. Les solutions sont des états propres et des valeurs propres qui sont des fonctions d'onde stationnaires et des énergies.

Cependant, la densité de trous est nécessaire au calcul des termes d'énergie potentielle et donc à la détermination de l'équation de Schrödinger. Les solutions sont nécessaires à l'établissement du problème ce qui souligne le caractère fortement non linéaire de l'équation de Schrödinger à résoudre.

La méthode de résolution utilisée dans cette thèse est dite « auto-cohérente ». Cette méthode est itérative et consiste tout d'abord à faire le choix d'une hypothèse initiale pour les fonctions d'énergie potentielle. L'équation est ensuite résolue numériquement une première fois afin d'estimer une densité de trous. Cette densité permet alors de trouver de nouvelles fonctions d'énergie potentielle. L'itération de ce schéma converge vers une valeur exacte des fonctions d'énergie potentielle et des densités de charges.

Selon la description effectuée jusqu'ici, les résultats sont des énergies propres, des fonctions d'onde, une densité de trous et des fonctions d'énergie potentielle. Cependant la description du magnétisme nécessite de scinder la densité de trous initiale en deux. Chacune des densités étant associée à une projection de spin des trous. De même, l'équation de Schrödinger devient un système de deux équations couplées par des termes d'énergie potentielle dépendant des spins. Enfin, la polarisation magnétique des atomes de manganèse est une grandeur physique supplémentaire qui est à la fois nécessaire au calcul et qui constitue une partie du résultat.

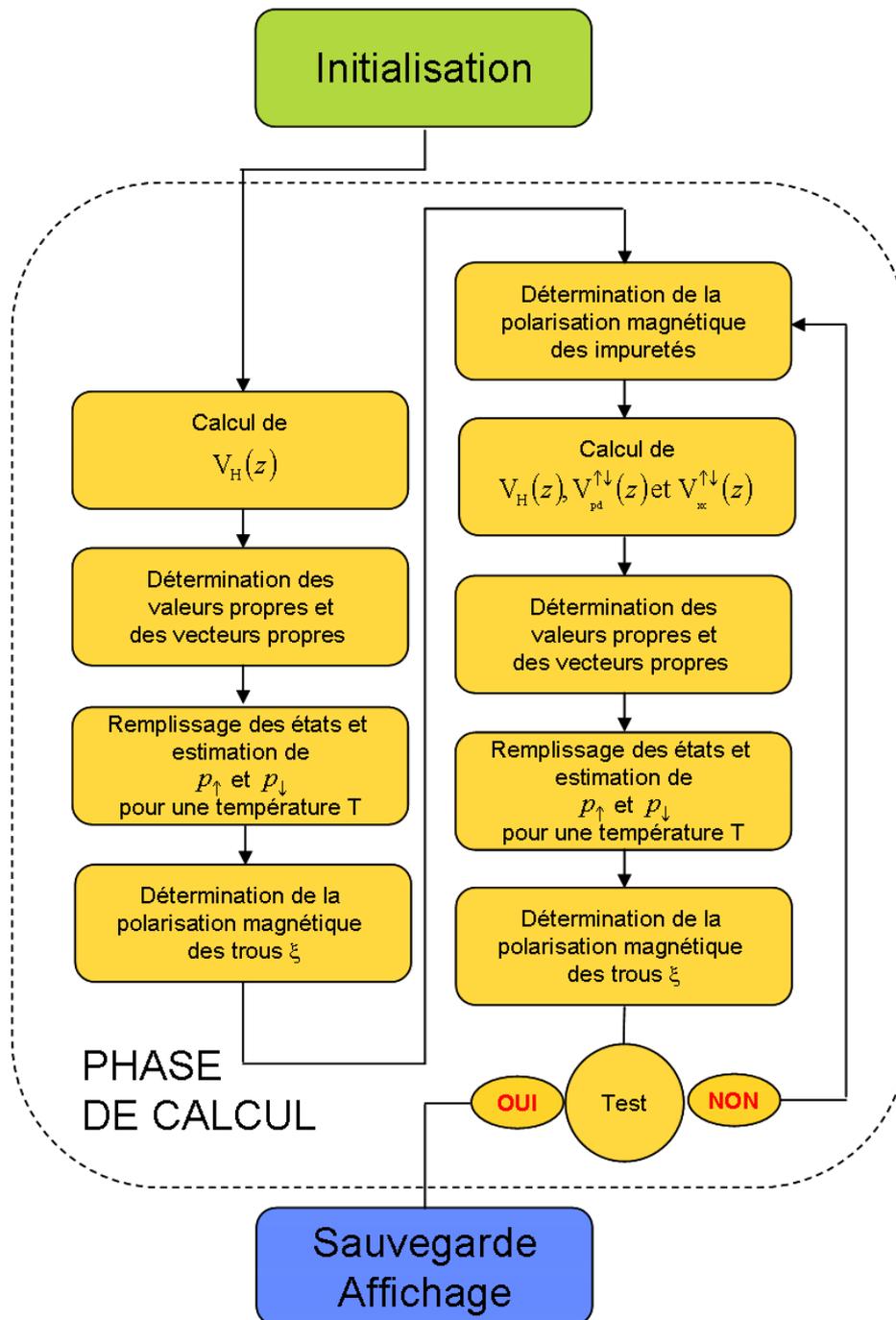


FIGURE 5.3 – Représentation diagrammatique du fonctionnement du programme de calcul de l'état fondamental. En vert, l'initialisation. En jaune, la phase de calcul. En bleu, la phase où les résultats sont affichés.

Le diagramme 5.3 décrit l'organisation du programme de calcul. Premièrement, le programme initialise les variables. Dans un second temps le programme entre dans une phase de calcul dans laquelle l'itération associée au processus de résolution auto cohérent s'effectue. Enfin, un test de convergence s'effectue et décide de la sortie de la boucle. Les résultats sont alors conservés et éventuellement affichés à l'écran. La partie suivante décrit plus en détails ces différentes phases.

2.2 L'initialisation des variables de calcul

Dans la phase initiale, le programme de calcul construit les grandeurs nécessaires au calcul à partir de paramètres définis par l'utilisateur. Ces paramètres sont des grandeurs physiques telles que les masses effectives ou les spins, ou non physiques comme par exemple le nombre de valeurs propres calculées. Les paramètres fondamentaux pour le (Ga,Mn)As, définis par l'utilisateur, sont récapitulés dans le tableau 5.1.

GRANDEURS PHYSIQUES		
d	Taille de la couche	50 nm
S_z	Spin des impuretés	$5/2\hbar$
σ_z	Spin des trous	$1/2\hbar$
m_z^*	masse effective selon (Oz)	0.38
m_{\parallel}^*	masse effective selon (xOy)	0.11
ϵ	Constante diélectrique relative	12.2
J_{pd}	Constante de couplage magnétique	$0.1095\text{eV}\cdot\text{nm}^3$
x	Concentration de Mn	0.07%
N_0	Densité de Ga et de As	22.1776nm^{-3}
p	Densité moyenne de trous lourds	-
T	Température	-

GRANDEURS NUMÉRIQUES		
n_{max}	Nombre de valeurs propres	90
N	Nombre de points de profils	200
$prec$	Précision du calcul	10^{-8}

TABLE 5.1 – Paramètres utilisés dans la phase d'initialisation du calcul pour le (Ga,Mn)As. La colonne de gauche donne un nom aux variables utilisées dans les équations. La colonne du centre décrit les variables et la colonne de droite donne les valeurs des variables. Les masses effectives sont en unité de masse électronique dans le vide. La permittivité est relative à la celle du vide. Les grandeurs non définies ont pu changer d'une simulation à l'autre.

Les grandeurs numériques

Les valeurs de spin sont choisies d'après les considérations développées dans la section 1.1 (p.110) de ce chapitre concernant le spin des trous de la bande de valence et des électrons localisés sur les atomes de manganèse. Le spin des trous est celui de trous lourds au centre de la zone de Brillouin.

m_z^* , m_{\parallel}^* , ϵ sont des grandeurs physiques tabulées dans la littérature. Elles sont propres au GaAs et ont été reprises de la référence [41]. En connaissant le paramètre de maille de la structure blende du GaAs, N_0 se calcule aisément.

J_{pd} a été déterminé théoriquement d'après des données expérimentales. Ceci est décrit dans une prochaine partie.

x et p sont des données propres aux échantillons étudiés. Ils ont été déterminés expérimentalement. À la différence de x , p varie en fonction des échantillons.

Enfin T est la température choisie par l'utilisateur.

Les grandeurs non physiques

Le choix des valeurs des grandeurs non physiques revient à trouver un compromis entre vitesse de calcul et précision des résultats. n_{max} , N , les nombres de valeurs propres et de point de profil respectivement, et $prec$, variable de test sur la précision du calcul, ont été choisis en utilisant la valeur maximale de la densité de trous moyenne $p = 1.00\text{nm}^{-3}$ d'après les échantillons avec pour température $T = 300\text{K}$. Ce sont les valeurs les plus petites pour lesquelles les résultats ne présentent pas de différences significatives avec des résultats obtenus à l'aide de valeurs plus élevées. Pour n_{max} , cette décision est faite en supposant que le nombre de valeurs propres minimal pour une description physique diminue avec la densité de trous moyenne p . De la même façon, toutes les températures utilisées sont inférieures à 300K et impliquent l'occupation d'états d'énergies propres plus petites que l'énergie propre maximale à 300K.

Initialisation des profils

L'initialisation fabrique des vecteurs de potentiel et densité, avec une extension spatiale selon (Oz) et en fonction du choix des grandeurs physiques. Ces vecteurs sont de taille N . Trois vecteurs sont des densités linéiques de trous p_{\uparrow} , p_{\downarrow} et d'anions N_A^- . Les densités p_{\uparrow} et p_{\downarrow} de trous sont des vecteurs initialisés à zéro. La densité d'anions est un vecteur constant caractérisant le fond uniforme d'anions et calculé à partir de la densité de dopage pour assurer la neutralité du système.

Deux vecteurs de polarisation magnétique de trous ξ et des impuretés M sont créés et initialisés à zéro. Trois vecteurs d'énergie potentielle V_H , V_{pd} et V_{xc}^{σ} sont créés pour représenter l'énergie potentielle de Hartree, l'énergie potentielle magnétique et l'énergie potentielle d'échange et de corrélation respectivement.

2.3 Structure de la boucle de calcul

La figure 5.3 (p.114) montre en orange une représentation de la phase de calcul qui succède à l'initialisation. Au court de chaque itération sont effectués successivement une détermination de la polarisation magnétique des atomes de manganèse, un calcul de l'hamiltonien, une résolution du problème aux valeurs propres dans la direction (Oz), un remplissage des états calculés en fonction de la température et de la densité de trous, et une estimation de la polarisation magnétique des trous.

Le calcul de l'hamiltonien

L'équation (5.1) présente l'hamiltonien des trous comme la somme d'un terme d'énergie cinétique, et de termes d'énergie potentielle. Dans celle-ci, σ vaut ± 1 selon la projection de spin des trous. m_z^* est la masse effective selon (Oz). L'énergie potentielle de Hartree V_H est le traitement de l'énergie potentielle d'interaction électrostatique en champ moyen. Le potentiel d'échange et de corrélation V_{xc}^{σ} est spécifique de la théorie de la fonctionnelle de la densité. Le potentiel d'interaction magnétique V_{pd}^{σ} entre les spins des impuretés et des trous se détermine à partir de l'hamiltonien de Kondo décrit dans le chapitre 1 section 2.3 (p.22).

$$H_{trous}^{\sigma} = -\frac{\hbar^2}{2m_z^*} \frac{d^2}{dz^2} + V_H(z) + V_{xc}^{\sigma}(z) + V_{pd}^{\sigma}(z) \quad (5.1)$$

La détermination de l'hamiltonien nécessite donc le calcul de la dépendance en fonction de z de chaque énergie potentielle.

Le potentiel de Hartree V_H La fonction d'énergie potentielle de Hartree dépend de la répartition spatiale des charges et est la solution de l'équation de Poisson (5.2). La densité de charges est la somme des densités d'anions N_A^- et des densités de charges de spins majoritaire p_{\uparrow} et minoritaire p_{\downarrow} du problème auto-cohérent. Les trous étant mobiles, leur répartition selon (Oz) est non triviale.

$$\Delta V_H(z) = \frac{e^2}{\epsilon} (N_A^- - p_{\uparrow}(z) - p_{\downarrow}(z)) \quad (5.2)$$

Chaque charge perçoit donc une énergie potentielle $V_H(z)$ créée par la distribution moyenne de charge $(N_A^- - p_{\uparrow} - p_{\downarrow})$ avec $N_A^- = \frac{1}{d} \int_0^d (p_{\uparrow} + p_{\downarrow}) dz$ pour assurer la conservation de la charge.

Le potentiel de corrélation V_{xc}^{σ} La prise en compte d'un terme d'échange et de corrélation dans l'énergie potentielle permet de dépasser l'approximation du champ moyen. Théoriquement, la performance d'un programme de calcul implémentant la théorie de la fonctionnelle de la densité repose en partie sur un choix adapté d'une approximation du terme d'énergie potentielle de corrélation. L'équation (5.3) présente une approximation proposée par Gunnarson et Lundqvist [26] en 1976.

$$V_{xc}^{\sigma} = \mu_{P_{2D}}^x(r_s) \left(\beta(r_s) \pm \frac{1}{3} \frac{\delta(\vec{r}_s) \xi}{1 \pm \gamma \xi} \right) \quad (5.3)$$

Dans l'équation (5.3), $P_{2D} = p_{\uparrow} + p_{\downarrow}$ est la densité de porteurs à deux dimensions et r_s le rayon de Wigner-Seitz $r_s = \left(\frac{3}{4\pi P_{2D}} \right)^{\frac{1}{3}}$. A partir de cela, les termes $\beta(r_s)$, $\delta(r_s)$ et $\mu_{P_{2D}}^x(r_s)$ valent respectivement $\beta(r_s) = 1 + 0.0545r_s \ln \left(1 + \frac{11.4}{r_s} \right)$, $\delta(r_s) = 1 - 0.036r_s + 1.36 \frac{r_s}{1 + 10r_s}$ et $\mu_{P_{2D}}^x(r_s) = -\frac{1}{\pi \alpha r_s}$ avec les constantes $\alpha = \left(\frac{4}{9\pi} \right)^{\frac{1}{3}}$ et $\gamma = 0.297$.

Le potentiel d'échange magnétique V_{pd}^{σ} L'équation (5.4) rappelle l'hamiltonien de Kondo dans un cristal semi-conducteur avec \vec{R}_l le vecteur position de l'impureté l . A partir de celui-ci, l'approximation du champ moyen consiste à remplacer \vec{S}_l par sa valeur moyenne $\langle \vec{S} \rangle$ prise sur l'ensemble des positions l .

$$H_{pd} = - \sum_l J_{pd} \left(\vec{r} - \vec{R}_l \right) \vec{S}_l \cdot \vec{\sigma} \quad (5.4)$$

Le processus de moyennage appliqué à $J_{pd}(\vec{r} - \vec{R}_l)$ nivelle sa dépendance spatiale en un terme $J_{pd}xN_0$ où J_{pd} est constant et N_0 est la densité de cations du semi-conducteur (Ga pour GaAs).

L'équation (5.5) donne le terme d'énergie potentielle magnétique perçut par les trous issu du traitement en champ moyen de l'hamiltonien donné par l'équation (5.4).

$$V_{pd}^\sigma(z) = -J_{pd}xN_0 \langle \vec{S} \rangle \frac{\sigma}{2} \quad (5.5)$$

Ce terme d'énergie potentielle nécessite la connaissance de $\langle \vec{S} \rangle$ qui est la polarisation magnétique moyenne des impuretés magnétiques.

Résolution de l'équation de Schrödinger

La résolution de l'équation de Schrödinger se fait par diagonalisation du hamiltonien de l'équation (5.1) au moyen de Matlab ©. De cette manière sont obtenus à la fois les vecteurs propres $\phi_n^\sigma(z)$ sous la forme de fonctions d'onde et les énergies propres ϵ_n^σ avec n un entier qui est l'indice de sous bande.

Le remplissage des sous bandes et la détermination des densités p_\uparrow et p_\downarrow

Pour une température non nulle, la connaissance des énergies propres ne suffit pas à elle seule pour savoir comment les trous occupent ces états. Par des considérations de physique statistique, les fonctions d'onde propres et les valeurs propres sont liées aux densités de trous par l'équation (5.6). Cette équation fait intervenir la température T qui est fixée par l'utilisateur mais aussi le potentiel chimique μ qui est inconnu.

$$p_\sigma = \frac{m_{||}^* k_B T}{\pi \hbar^2} \sum_n^{n_{max}} |\phi_n^\sigma(z)|^2 \ln \left(1 + \exp \left(\frac{\mu - \epsilon_n}{k_B T} \right) \right) \quad (5.6)$$

La détermination de μ se fait par la résolution numérique de l'équation (5.7), qui est l'intégration de l'équation (5.6) selon (Oz) et dans laquelle μ est la seule inconnue par conservation de la charge. Dans cette équation, $p = \frac{1}{d} \int_{-\frac{d}{2}}^{\frac{d}{2}} (p_\uparrow(z) + p_\downarrow(z)) dz$

$$dp = \frac{m_{||}^* k_B T}{\pi \hbar^2} \sum_n^{n_{max}} \ln \left(1 + \exp \left(\frac{\mu - \epsilon_n}{k_B T} \right) \right) \quad (5.7)$$

Après cette étape, les densités de trous de spin majoritaire p_\uparrow et minoritaire p_\downarrow sont déterminées par l'utilisation de l'équation (5.6).

Les détails du calcul menant aux équations (5.6) et (5.7) sont donnés dans l'appendice A (p.141).

État de polarisation magnétique des impuretés

De la même manière que pour les trous, les impuretés magnétiques sont soumises à un champ moyen qui est la polarisation moyenne du gaz de trous. Cette polarisation $\langle S \rangle$ se calcule à partir de l'équation (5.8) et de la polarisation magnétique ξ des trous comme décrit dans le chapitre 1 à la section 2.3 (p.23).

$$\langle S \rangle = sB_s \left(\frac{sJ_{pd}pd}{2k_B T} \xi \right) \quad (5.8)$$

Dans l'équation (5.8), s est le nombre quantique magnétique associé au spin des trous et B_s est la fonction de Brillouin dont l'expression est donnée dans la formule (5.9).

$$B_s(x) = \frac{2s+1}{2s} \coth \left(\frac{2s+1}{2s} x \right) - \frac{1}{2s} \coth \left(\frac{1}{2s} x \right) \quad (5.9)$$

Le critère de convergence

La sortie de la boucle de calcul s'effectue en considérant un critère de convergence estimé comme la somme des évolutions relatives des énergies propres d'une itération à l'autre. Lorsque l'évolution des positions des valeurs propres devient inférieure à la valeur de la variable de précision *prec*, la boucle s'arrête. Le nombre d'itération avant convergence est particulièrement long et fortement dépendant de la position du système par rapport à la température de Curie.

3 Les résultats

Les résultats numériques se réduisent à l'ensemble des valeurs propres, les fonctionnelles de densité, l'ensemble des énergies potentielles décrit dans la partie précédente en fonction de la position. Au niveau magnétique, les résultats correspondent à la polarisation magnétique des porteurs et le profil de polarisation des impuretés magnétiques. Enfin, les valeurs du potentiel chimique sont calculées et enregistrées de même. Les aimantations et polarisations moyenne sur la taille du profil en fonction de la température peuvent être calculées et permettent d'obtenir les diagrammes de phase en fonction de la température.

La première utilisation du code a été de reproduire les résultats de Kim *et al.* [41] pour comparaison.

3.1 Simulations des états fondamentaux de plusieurs semi-conducteurs pour $d = 2\text{nm}$

Les paramètres de simulations décrits dans l'article [41] sont récapitulés dans le tableau 5.2. Chaque ensemble de paramètres définit un semi-conducteur dans l'approximation de la masse effective.

À la différence des échantillons étudiés, les simulations de Kim *et al.* concernent une couches avec $d = 2\text{nm}$ avec de forts effets du confinement sur la répartition des sous-bandes dans le puits quantique. Ceci affecte très fortement la densité d'état en éloignant les sous bandes entre elles. Les simulations effectuées par Kim *et al* sont essentiellement de deux types. Le premier concerne un ensemble de simulations réalisées sur plusieurs semi-conducteurs différents pour des densités de porteurs identiques et les secondes concernent des simulations sur (Zn,Mn)O avec différents couples de constante d'échange magnétique-densité de Mn. Les résultats présentés sont la polarisation des trous en fonction de la température.

Paramètres physiques	GaN	InP	GaAs	ZnO
m_{\parallel}	0.27	0.15	0.11	0.47
m_z	0.89	0.61	0.38	2.33
ϵ_0	10.4	13.6	12.2	8.1
a_0	3.19	5.87	5.65	3.25
c	5.19	-	-	5.20
ρ	43.73nm^{-3}	19.78nm^{-3}	22.18nm^{-3}	42.05nm^{-3}

TABLE 5.2 – *Masses effectives, permittivités et paramètres de mailles de différents semi-conducteurs. GaN et ZnO sont de structure wurtzite ce qui explique le paramètre de maille supplémentaire.*

Polarisation des trous en fonction de la température de (Ga,Mn)As, (In,Mn)P, (Zn,Mn)O et (Ga,Mn)N

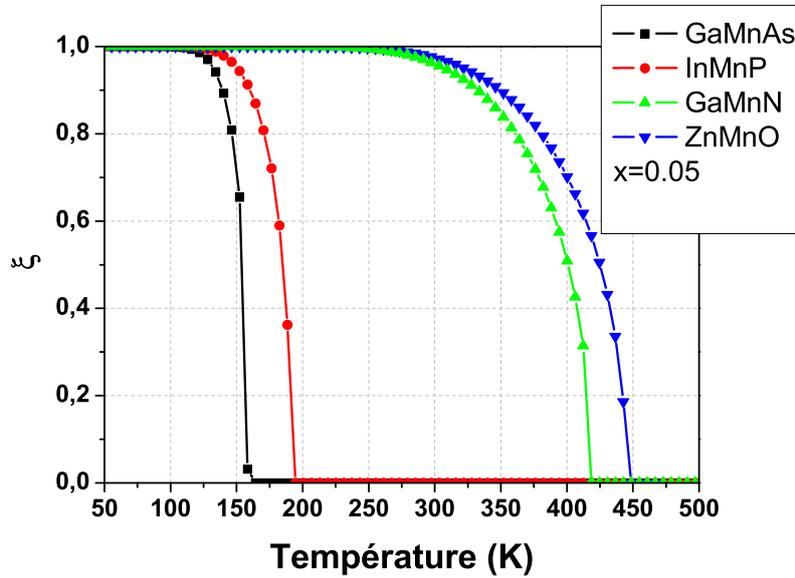


FIGURE 5.4 – *Polarisation des trous en fonction de la température pour (Ga,Mn)As, (In,Mn)P (Zn,Mn)O et (Ga,Mn)N. La concentration de manganèse est $x = 0.05$ et la taille de la couche est $d = 2\text{nm}$. Les paramètres des semi-conducteurs sont récapitulés dans le tableau 5.2.*

La figure 5.4 présente la polarisation des trous en fonction de la température calculée à partir du programme de calcul décrit dans les premières parties de ce chapitre. Toutes les courbes ont la même allure, *i.e.* concaves et décroissantes. L'intersection avec l'axe des abscisses est la température de Curie T_C au-delà de laquelle ξ est nulle. Les températures de Curie sont approximativement $T_C \sim 160\text{K}$, $T_C \sim 190\text{K}$ pour (Ga,Mn)As et (In,Mn)P respectivement et $T_C \sim 420\text{K}$, $T_C \sim 450\text{K}$ pour (Ga,Mn)N et (Zn,Mn)O. Dans les mêmes conditions, les températures de Curie de (Ga,Mn)As et (In,Mn)P sont proches tout comme celles de (Ga,Mn)N et (Zn,Mn)O. La comparaison des températures entre ces deux groupes montrent cependant presque 300K de différence ce qui est beaucoup

pour des systèmes possédant des températures de Curie aussi basses. Ces comparaisons s'expliquent par le fait que (Ga,Mn)As et (In,Mn)P sont de structure cristalline blende alors que (Ga,Mn)N et (Zn,Mn)O sont de type wurtzite. La différence de compacité entre ces deux systèmes est assez importante. Ainsi, malgré des concentrations relatives de manganèse incorporés similaires, une structure wurtzite mène à une densité absolue de manganèse plus élevée dans le cas wurtzite que dans le cas blende et le magnétisme de la couche augmente.

Polarisation des trous en fonction de la température de (Zn,Mn)O avec des densités de trous et une amplitude de couplage magnétique variable

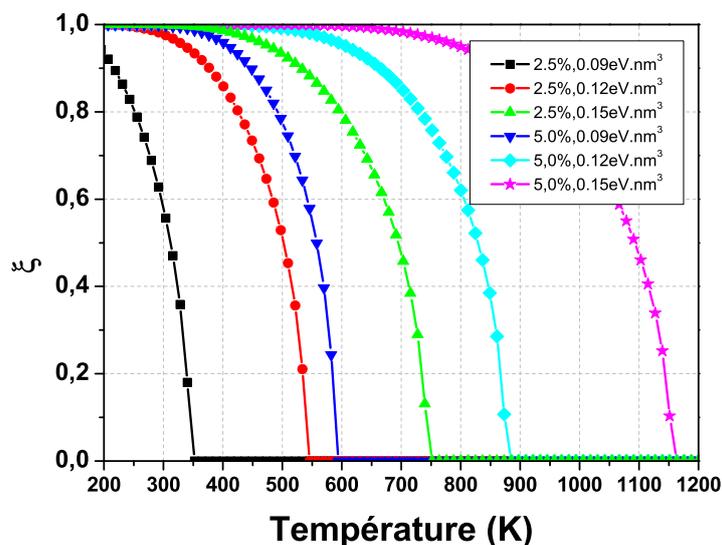


FIGURE 5.5 – Polarisation des trous en fonction de la température pour (Zn,Mn)O pour différentes valeurs de la constante de couplage $J_{pd} \in \{0.09, 0.12, 0.15\} \text{ eV.nm}^3$ et de la concentration en manganèse $x \in \{0.025, 0.05\}$. La concentration de manganèse est $x = 0.05$ et la taille de la couche est $d = 2\text{nm}$. Les paramètres des semi-conducteurs sont récapitulés dans le tableau 5.2.

La figure 5.5 présente la polarisation des trous en fonction de la température pour un puits de 2nm de (Zn,Mn)O. L'allure des courbes reste toujours identique au cas discuté dans le paragraphe précédent. Les températures de Curie s'espacent régulièrement entre $T_C \sim 350\text{K}$ et $\sim 1150\text{K}$.

L'allure des courbes ne changeant pas, la comparaison peut se faire sur la base des températures de Curie. D'une part, pour une concentration de manganèse x constante, la température de Curie augmente avec la constante de couplage J_{pd} . D'autre part, pour J_{pd} constante, T_C augmente avec la concentration de manganèse. La valeur de la température de Curie peut aussi être discutée puisque celle-ci est très élevée loin au delà de la température ambiante.

Dans les deux cas, les résultats se comparent bien avec ceux présentés par Kim *et al.* et démontre la fiabilité du programme de calcul. Bien entendu, ces résultats sont à modérer dans le cas de ZnO et GaN pour lesquels le modèle en champ moyen surestime les températures de Curie.

4 Estimation de la constante d'échange magnétique

Pour les échantillons de la partie expérimentale, la seule grandeur physique non mesurée est la constante d'échange magnétique J_{pd} dont il est essentiel d'avoir une estimation. La première étape dans la simulation de l'état fondamental des échantillons est donc la détermination de la constante d'échange magnétique J_{pd} .

Cette estimation se fait à partir du programme de simulation et des expériences. L'idée est de reproduire théoriquement la dépendance entre les densités de trous et les températures de Curie des échantillons.

À ces fins, les densités de porteurs et les températures de Curie utilisées sont reprises depuis la référence [38]. Bien que différentes des grandeurs reportées dans les tableaux (2.2) (p.48) et (2.3) (p.49), les densités de porteurs utilisées sont comparables à celles reportées par L. Thevenard *et al.*. Les variables d'entrée utilisées sont récapitulées dans le tableau 5.3. Bien que la valeur de la densité de porteurs de l'échantillon Recuit A ne soit pas informée dans la littérature de part son caractère isolant, une valeur intermédiaire $p = 0.01\text{nm}^{-1}$ entre Recuit A et l'échantillon passivé est supposée.

Échantillons	Recuit A	Recuit B	Recuit C	Recuit D	Recuit E
p (nm^{-1})	0.01	0.020	0.032	0.110	0.790
T_C (K)	25	42	72	86	137

TABLE 5.3 – Valeurs des densités de porteurs p et températures de Curie utilisées dans les simulations pour déterminer la constante d'échange magnétique J_{pd} . Chaque couple de valeurs est attribué à un échantillon. Ces valeurs sont extraites de la référence [38].

La constante d'échange magnétique J_{pd} est tout d'abord estimée pour chaque échantillon. Dans cette étape, la densité de porteurs est une grandeur physique fixée par l'utilisateur. Un algorithme implémentant une méthode de dichotomie est utilisé avec le programme de calcul décrit dans le chapitre 2 pour déterminer les valeurs des constantes d'échange magnétique. Cette méthode est mise en place pour trouver les constantes d'échange magnétiques permettant aux couples (p, T_C) expérimentaux et théoriques de concorder. Cette étape dure quelques jours, la convergence du programme de calcul au voisinage de la température de Curie étant très lente, voire impossible pour des encadrements trop restreints de la température de Curie. En répétant cette démarche pour les cinq échantillons, cinq constantes d'échange magnétiques sont déterminées. Enfin la constante d'échange magnétique utilisée dans le code est la moyenne de celles estimées pour chaque échantillon. Le résultat est une valeur de la constante de couplage magnétique de $J_{pd} \sim 0.1075\text{eV}\cdot\text{nm}^3$.

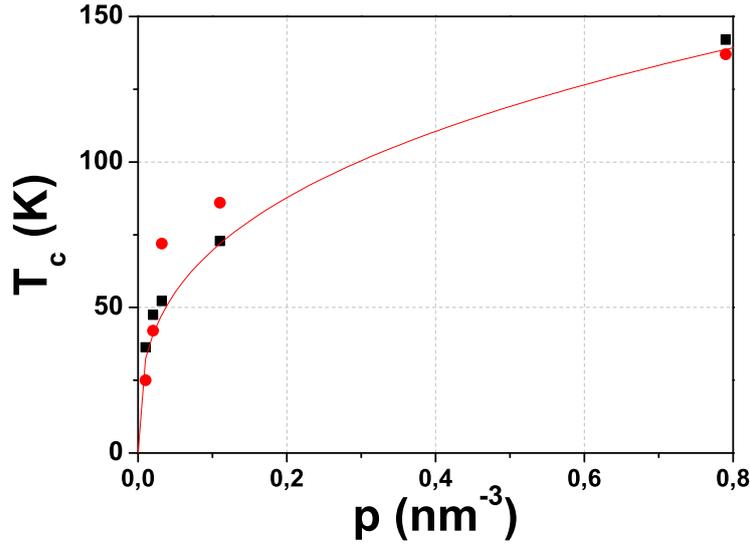


FIGURE 5.6 – Température de Curie en fonction de la densité de porteurs. Les cercles pleins rouges et les carrés noirs sont les points expérimentaux et théoriques avec $J_{pd} \sim 0.1075 \text{ eV} \cdot \text{nm}^3$ respectivement. La courbe rouge est la fonction d'équation $T_C = 150 \times p^{\frac{1}{3}}$.

Après la détermination de la constante de couplage magnétique, de nouvelles simulations sont faites pour estimer les températures de Curie en fonction de la densité de porteurs pour la valeur moyenne de la constante d'échange magnétique. Les résultats sont présentés sur la figure 5.6.

La figure 5.6 montre l'évolution de la température de Curie en fonction de la densité de porteurs dans les cas expérimental et théorique avec la constante d'échange magnétique déterminée plus haut. Pour les basses densités de porteurs, le comportement attendu est une dépendance en loi de puissance du type $T_C \propto p^{\frac{1}{3}}$. Celle-ci est tracée à titre de comparaison et montre que les valeurs théoriques reproduisent bien ce comportement.

La comparaison entre les valeurs théoriques et expérimentales est suffisamment concluante pour que la valeur $J_{pd} \sim 0.1075 \text{ eV} \cdot \text{nm}^3$ soit adoptée pour la suite des simulations.

5 Simulations des états fondamentaux à $T \sim 30\text{K}$ en fonction de la densité de porteurs

Le chapitre 4 concernant les résultats expérimentaux conclut à une connection entre la structure du diagramme de phase avant et après injection des porteurs par une impulsion lumineuse. Sans rediscuter les résultats des simulations effectuées au chapitre 5 à la section 5 (p.102), cette section simule l'état fondamental de chaque échantillon dans les conditions expérimentales décrites dans les chapitres 3 et 4.

Ces simulations utilisent la constante d'échange magnétique déterminée dans le para-

graphe précédent (p.122), les densités de trous du tableau 5.3 (p.122) ainsi que les masses effectives du GaAs. Les paramètres de simulations sont donnés dans le tableau 5.1 (p.115).

Cette partie s'intéresse aux propriétés du système lorsqu'il se trouve à l'équilibre avant excitation à $T = 30\text{K}$. Au-delà des taux de polarisation, le programme de calcul permet de reproduire la densité d'états des trous pour les deux valeurs de spin ainsi que le remplissage de celles-ci.

5.1 La densité d'état à trois dimensions en fonction de la densité de porteurs

A partir de l'équation (A.10), l'utilisation des masses effectives et des énergies propres permet de reconstituer les densités d'états tridimensionnelles. L'appendice 1 (p.141) donne un aperçu plus clair de la façon de procéder.

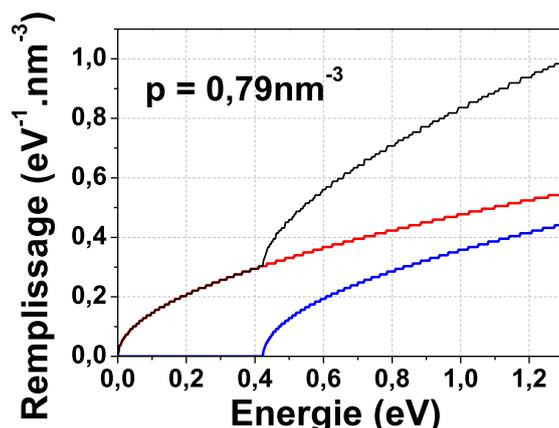


FIGURE 5.7 – Densités d'états pour $T = 30\text{K}$ issues des énergies propres de la simulation pour laquelle $p = 0,79\text{nm}^{-3}$. En rouge, la densité d'états pour les trous de spin majoritaire. En bleu, la densité d'états pour les trous de spin minoritaire. En noir, la densité d'état totale des trous.

La figure 5.7 présente la reconstruction des densités d'états pour lesquelles $T = 30\text{K}$ et $p = 0,79\text{nm}^{-3}$. Quelque soit le spin, les densités d'états individuelles des trous majoritaires et minoritaires ont toutes les deux une allure parabolique.

Les deux densités d'états se différencient par une translation d'une valeur $\Delta E \sim 420\text{meV}$ le long de l'axe des abscisses. Cette différence d'énergie traduit la levée de dégénérescence entre les trous de projections de spin opposées. Cette grandeur est très largement surestimée alors que les levées de dégénérescence réelles attendues se situent en 0eV et $0,1\text{eV}$. Ceci s'explique par le fait que trous lourds et légers de la bande de valence participent à l'interaction d'échange magnétique dans le cas réel. La simplification du modèle est donc à l'origine d'un déficit du nombre d'état entre la bande de valence

théorique et réelle. Une même densité de trous mène donc à un niveau de Fermi plus bas dans la bande de valence. Alors qu'en réalité une telle levée de dégénérescence mène à un recouvrement entre les bandes de trous lourds et légers et de split-off, il n'en est rien dans un modèle où cette dernière est absente. La conclusion est que la levée de dégénérescence magnétique, même surestimée, n'influence pas de manière importante la fiabilité des résultats.

Les densités d'états ont donc une allure parabolique et manifestent une levée de dégénérescence. Ces deux caractéristiques peuvent être étudiées en fonction de la densité de trous à l'équilibre.

Allure des densités d'états en fonction de la densité de trous p dans l'état fondamental

Dans le cas de la densité de trous la plus élevée, les densités d'états ont une allure parabolique. Cela s'explique par la largeur de la couche qui est d'une part suffisamment élevée pour diminuer significativement le confinement et permettre ainsi une propagation dans la direction (Oz). D'autre part, la délocalisation des trous diminue les effets des corrélations entre trous. Ces deux effets ont pour conséquence de rapprocher le résultat de celui d'une particule libre.

Il s'agit maintenant de vérifier l'évolution de cette allure en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental pour les densités d'états des trous majoritaires et minoritaires.

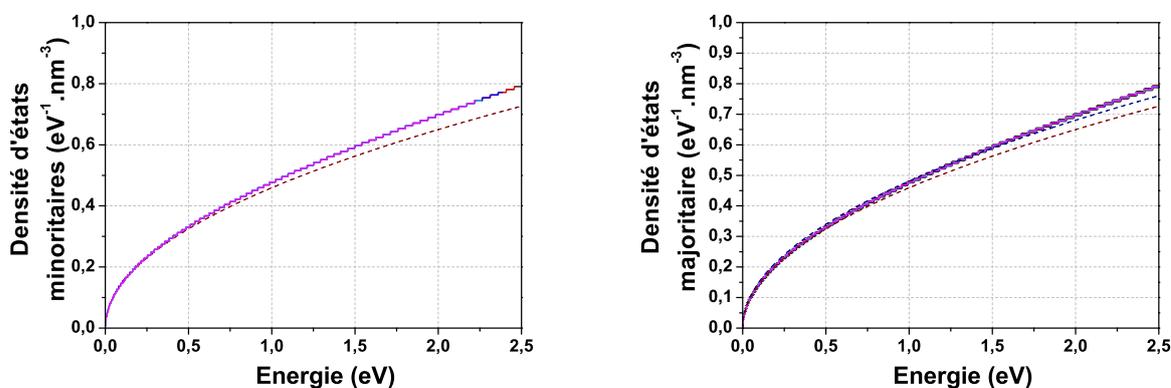


FIGURE 5.8 – Densités d'états en fonction de l'énergie pour différentes concentrations de trous à l'équilibre et pour une température de $T = 30K$. En haut sont présentées les densités de porteurs majoritaires et en bas les minoritaires. Dans les deux cas, la densité d'états minimale a été translatée à $0eV$ de manière à rendre la comparaison plus aisée. Les lignes pointillées correspondent à un ajustement en $\alpha\sqrt{\epsilon}$ dans le cas bleu et au tracé de la densité d'état calculée analytiquement dans le cas marron.

La figure 5.8 présente les densités d'états en fonction de l'énergie pour différentes concentrations de trous à une température identique de $T = 30K$. La distinction est faite entre les densités d'états associées aux trous d'une projection de spin et de l'autre. Dans

les deux cas, les densités d'états se superposent exactement. Il n'y a donc aucun effet du nombre de trous sur la dispersion de ceux-ci dans le régime de densité de trous étudié.

Afin d'effectuer une comparaison, la figure 5.8 présente, en plus des densités d'états calculées numériquement, la densité d'état analytique. Cette dernière est calculée dans l'appendice 1 et correspond au cas d'une particule libre de masses effective celle du GaAs dans une boîte 3D. La comparaison ne montre aucune différence significative entre les densités d'états calculées analytiquement et numériquement pour les énergies inférieures à 1.0eV. Au-delà, un léger écart apparaît.

L'ajustement parabolique montre un léger écart pour les énergies supérieures à 1.5eV. Il semblerait donc que le modèle de la particule libre soit adapté à la description de ce problème tant que le dopage de trous reste suffisamment faible. Le terme associé à l'énergie potentielle d'échange et de corrélation n'a donc que peu d'influence sur la parabolicité des densités d'états. Pour les basses densités de trous, celles-ci ne perdent pas leur caractère parabolique. Pour les densités d'états plus élevées, une non-parabolicité apparaît.

Influence de l'échange corrélation sur la levée de dégénérescence des niveaux.

Alors qu'il a été vu dans le paragraphe précédent que la prise en compte d'un terme d'énergie potentielle d'échange et de corrélation n'a que peu d'effet sur l'allure des densités d'états, ce paragraphe s'intéresse à son influence sur la levée de dégénérescence magnétique.

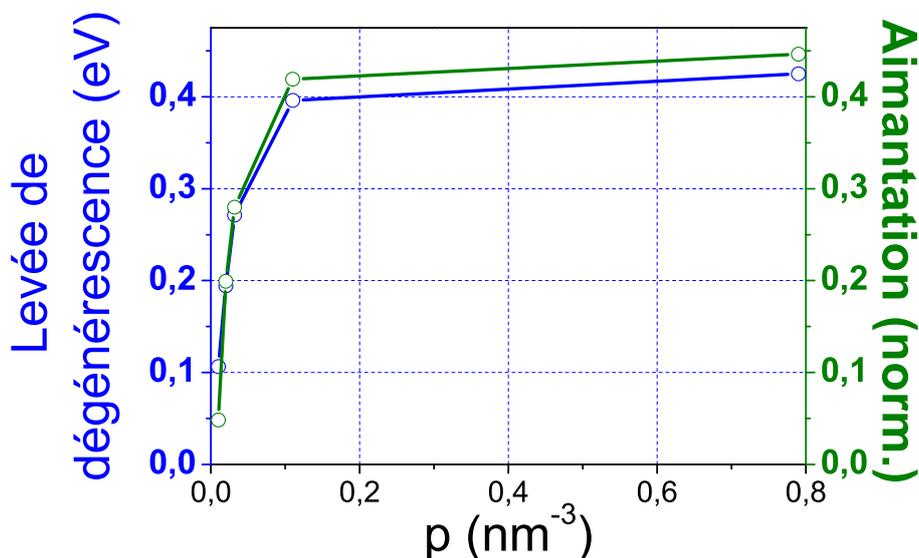


FIGURE 5.9 – Levée de dégénérescence en bleue et aimantation en vert en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental.

La levée de dégénérescence magnétique est la différence de position énergétique ob-

servée par exemple sur la densité d'état de la figure 5.7 (p.124) entre les deux densités d'états associées aux deux projections de spin des trous.

La levée de dégénérescence magnétique entre les états de spins minoritaires et les états de spins majoritaires dépend de la température et de la densité de trous. La figure 5.9 montre cette levée de dégénérescence en fonction de la densité de trous. Sur celle-ci, la levée de dégénérescence augmente avec la densité de porteurs. Cette augmentation s'explique naturellement par le renforcement de l'interaction magnétique entre atomes de manganèse avec l'augmentation du nombre de trous.

D'une part, l'analyse de l'hamiltonien présenté dans l'équation (5.1) montre une dépendance dans la valeur de la projection de spin des trous dans les termes de couplage magnétique entre spins des impuretés et des trous mais aussi dans le terme d'échange et de corrélation. D'autre part, la relation de linéarité entre la polarisation moyenne des impuretés magnétiques et les termes d'énergie potentielles V_{pd}^σ agissant sur les trous 5.5 (p.118) impose une levée de dégénérescence proportionnelle à l'aimantation moyenne.

Ceci amène à supposer que l'aimantation soit influencée par les corrélations. En plus de la levée de dégénérescence, la figure 5.9 représente la valeur de l'aimantation en fonction de la densité de trous normalisée pour la comparaison. L'allure entre aimantation et levée de dégénérescence de spin des trous en fonction de la densité de porteurs est globalement identique avec un léger désaccord attribué aux corrélations. En conclusion, bien que le potentiel de corrélation influence fortement la température de Curie, cette tendance disparaît avec la diminution du confinement et le changement de densité de charges qui en découle.

5.2 Polarisation des trous en fonction de la densité de porteurs dans l'état fondamental

Les états propres que peuvent prendre les trous sont des solutions du problème à une particule. La répartition des trous dans les états se fait en fonction de la température et du nombre total de trous. Dans l'état fondamental, les deux gaz de trous dont les projections de spin sont opposées ont le même potentiel chimique. Les densités d'états se remplissent donc jusqu'à un niveau maximum identique dans les deux cas.

La distribution des trous dans les densités d'états de la figure 5.8 est influencée par la densité de trous totale, la température et l'amplitude de la levée de dégénérescence entre les sous bandes de spins opposés. L'asymétrie dans la distribution des états est la polarisation magnétique du système et dépend de l'énergie des trous considérés. Le facteur d'asymétrie $\xi(\epsilon)$ est défini mathématiquement par l'équation (5.10) dans laquelle $N_\uparrow(\epsilon)$ et $N_\downarrow(\epsilon)$ sont les nombres d'occupation des trous de projection spin majoritaire et minoritaire.

$$\xi(\epsilon) = \frac{N_\uparrow - N_\downarrow}{N_\uparrow + N_\downarrow} \quad (5.10)$$

La figure 5.10 a) présente la densité de polarisation ξ des trous en fonction de l'énergie à $T = 30K$. Chaque courbe est issue d'une simulation dont la densité de trous dans l'état fondamental est différente. Chaque courbe débute par un palier plus ou moins important sur lequel la polarisation magnétique des trous est totale. Après le palier, une décroissance vers zéro selon une loi de puissance a lieu pour les énergies les plus hautes.

Cette courbe donne la polarisation magnétique de trous en fonction de leur énergie indépendamment du nombre total d'états disponibles à chaque énergie comme montré par l'équation (5.10). La polarisation ne tient pas compte du nombre d'occupation totale en fonction de l'énergie. Le palier s'explique donc par la possibilité d'occuper des niveaux associé à une seule projection de spin pour les trous. La taille du palier est donc la levée de dégénérescence entre bandes de trous de projection de spin opposées. La 5.10 b) permet de comprendre la décroissance consécutive au palier.

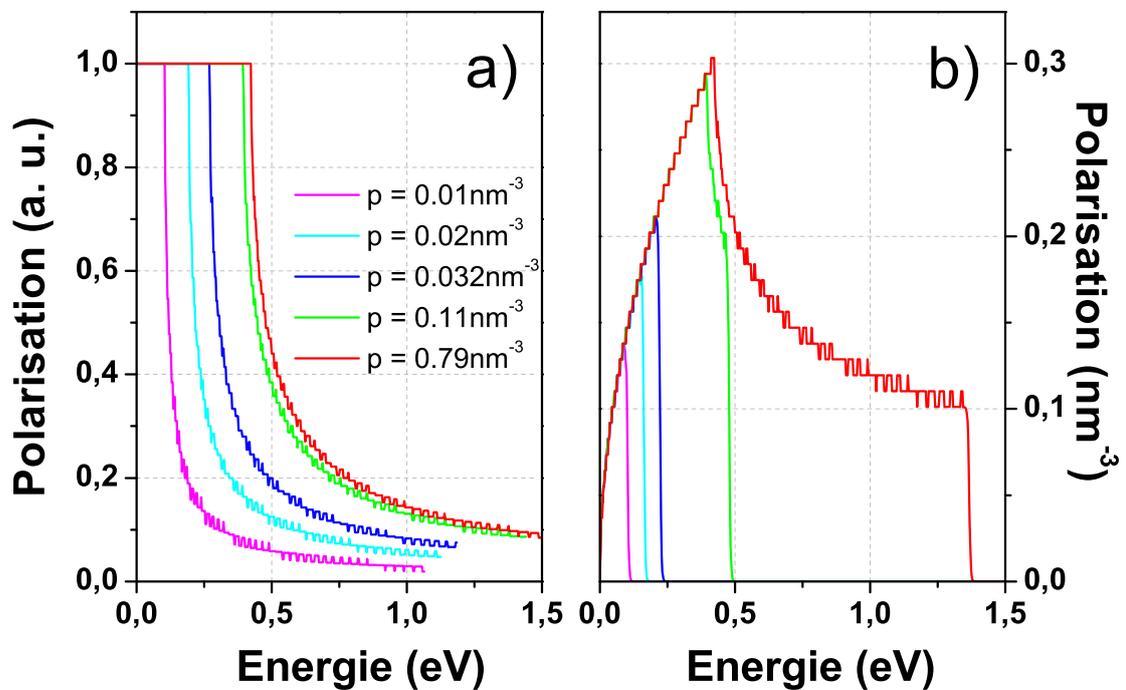


FIGURE 5.10 – Polarisation des trous en fonction de l'énergie pour $p = 0.01 \text{ nm}^{-3}$ (magenta), $p = 0.02 \text{ nm}^{-3}$ (cyan), $p = 0.032 \text{ nm}^{-3}$ (bleu), $p = 0.11 \text{ nm}^{-3}$ (vert) et $p = 0.79 \text{ nm}^{-3}$ (rouge) pour $T = 30K$. a) Densité de trous polarisés normalisée par la densité de population à chaque énergie. b) Densité de trous polarisés en fonction de l'énergie.

La figure 5.10 b) présentent la différence d'occupation entre les trous de projection de spin en nombre majoritaire et minoritaire. Cette différence est le numérateur de l'expression (5.10) et la polarisation magnétique non normalisée des trous.

Sur la figure 5.10 b), la polarisation magnétique augmente paraboliquement de 0 eV jusqu'à une maximum dépendant de la densité de trous totale dans l'état fondamental.

Selon les densités de trous, deux comportements se distinguent alors.

Polarisation des trous en fonction de leur énergie dans un régime de densité totale de trous faible

D'après la figure 5.10 b), dans le cas des basses densités, *i.e.* $p = 0.01\text{nm}^{-3}$, $p = 0.02\text{nm}^{-3}$ et $p = 0.032\text{nm}^{-3}$, les courbes perdent leur comportement croissant parabolique et, après avoir atteint un maximum, décroissent vers zéro en moins de 10meV selon une loi de puissance.

Les trous d'énergie plus basse commencent par occuper les énergies des états de projection de spin dont le nombre est majoritaire. La bande associée à ces trous est en effet moins énergétique à cause de la levée de dégénérescence magnétique. Cette bande se remplit alors jusqu'au niveau de Fermi à partir duquel le taux d'occupation chute vers zéro. La faible température place le système dans un cas dégénéré et la bande de spin opposée n'est absolument pas peuplée. Les états contribuant le plus à la polarisation magnétique du système sont au voisinage du niveau de Fermi.

Polarisation des trous en fonction de leur énergie dans un régime de densité de trous élevée.

Dans les cas des plus hautes densités où $p = 0.11\text{nm}^{-3}$ et $p = 0.79\text{nm}^{-3}$, la polarisation augmente paraboliquement jusqu'à un maximum atteint pour des valeurs de la densité de trou totale variable. L'énergie du maximum dépassée, les courbes décroissent sur une échelle de 100meV en suivant une première loi de puissance. La décroissance se poursuit ensuite jusqu'à un seuil variable au-delà duquel une seconde loi de puissance amène la polarisation à 0 en moins de 10meV.

A l'instar du cas des basses densités, la polarisation commence par augmenter paraboliquement de 0eV vers une valeur maximale. Cependant, à la différence du premier cas, la valeur du maximum est donnée par l'énergie de la levée de dégénérescence. La densité d'état de trous de spin majoritaire commence alors pour ces énergies à compenser celles des spins minoritaires. Ensuite, de la même façon que précédemment, la polarisation chute pour les énergies supérieures au niveau de Fermi.

L'analyse de la polarisation magnétique en fonction de l'énergie dans la bande identifie deux comportements dépendant de la densité de porteurs ou plus spécifiquement du niveau de Fermi. Ces comportements se distinguent selon la position du niveau de Fermi par rapport à la levée de dégénérescence magnétique ΔE dans le système.

Si $\Delta E > \epsilon_F$, le nombre de trous est insuffisant pour remplir les deux bandes des états de spins de projection opposés. La polarisation magnétique en fonction de l'énergie est alors maximale et les états contribuant le plus à l'aimantation sont situés au voisinage du niveau de Fermi.

Si $\Delta E < \epsilon_F$, les deux bandes de projections de spin opposées se remplissent également. La polarisation des trous en fonction de l'énergie est optimale. Les niveaux contribuant le plus à la polarisation magnétique se situent alors au voisinage de la levée de dégénérescence. Alors que l'énergie devient plus grande, la polarisation magnétique absolue des trous évolue comme $\sqrt{\epsilon} - \sqrt{\epsilon - \Delta\epsilon}$. Les polarisations des deux bandes de spin tendent donc à se compenser de plus en plus jusqu'à ce que le niveau de Fermi soit dépassé. Pour des énergies supérieures au niveau de Fermi, le taux d'occupation des états diminue très rapidement.

6 Diagrammes de phase et comparaison avec l'expérience

D'après le chapitre 4 à la section 5 (p.102), l'allure du diagramme de phase est susceptible de donner des informations sur la réponse du système après une excitation optique femtoseconde. De plus, les diagrammes de phase des échantillons ont été mesurés par de la magnétométrie SQUID et sont présentés dans le chapitre 2 sur la figure 2.3 (p.49).

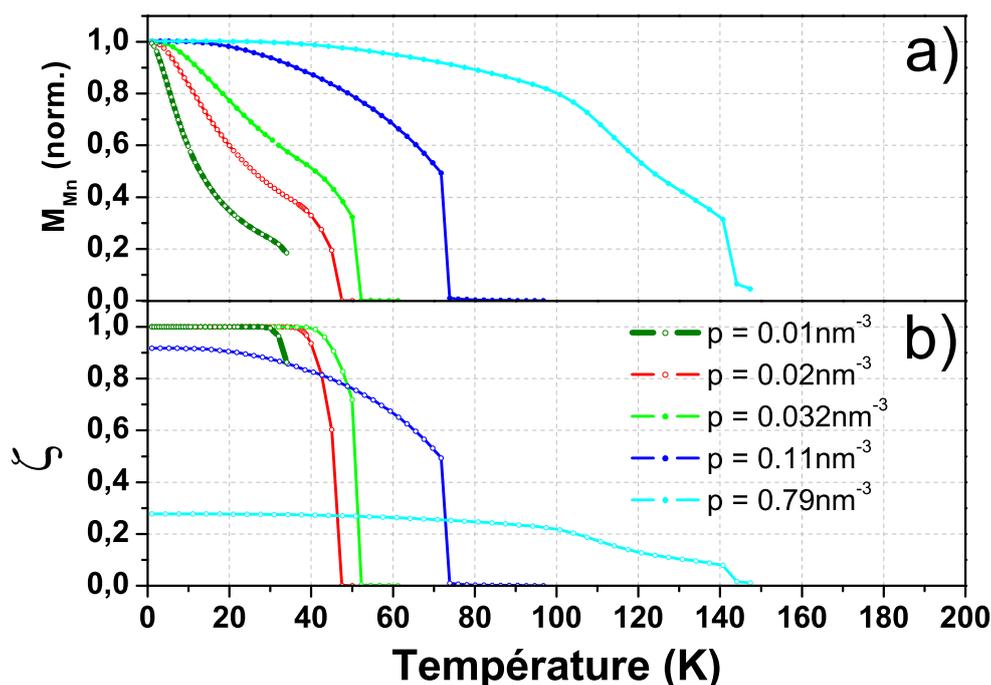


FIGURE 5.11 – Diagrammes de phase calculés numériquement pour différentes densités de trous dans l'état fondamental. a) Polarisation magnétique des impuretés de manganèse en fonction de la température. b) Polarisation magnétique des trous en fonction de la température.

La connaissance des diagrammes de phase présente donc un intérêt sur les plans dynamique et statique. Cette section présente donc les diagrammes de phase en fonction

de la densité de porteurs dans l'état fondamental obtenus en utilisant le programme de calcul de la première partie du chapitre.

La figure 5.11 présente les polarisations des impuretés magnétiques M_{Mn} et des trous ξ en fonction de la température pour les densités de trous $p = 0.01nm^{-3}$, $p = 0.02nm^{-3}$, $p = 0.032nm^{-3}$, $p = 0.11nm^{-3}$ et $p = 0.79nm^{-3}$.

La polarisation magnétique des impuretés est à l'origine de l'aimantation du système car la densité d'impuretés est supérieure à la densité de trous libres. Les densités d'atomes de manganèse et de trous sont en effet reprises depuis les données expérimentales du chapitre 2. Expérimentalement, le phénomène de surcompensation du dopage accepteur diminue drastiquement la densité de trous. L'aimantation est donc attribuée à la polarisation magnétique des atomes de manganèse.

Cette polarisation magnétique est présentée sur la figure 5.11 a). La température de Curie augmente avec la densité de trous comme il a déjà été discuté en 4 (p.122). Au voisinage de $T \sim 0K$, les impuretés magnétiques sont entièrement polarisées quel que soit la densité de trous dans l'état fondamental. Dans tous les cas, la polarisation magnétique des impuretés est une fonction croissante de la densité de trous.

Pour les basses densités de trous, *i.e.* $p = 0.01nm^{-3}$, $p = 0.02nm^{-3}$ et $p = 0.032nm^{-3}$ et avec l'augmentation de la température, la polarisation magnétique est tout d'abord concave puis devient convexe avant de rejoindre le zéro une fois la température de Curie dépassée.

Pour les densités de trous $p = 0.11nm^{-3}$ et $p = 0.79nm^{-3}$, les polarisations magnétiques sont des fonctions toujours concaves.

La densité de trous est une quantité déterminante qui est limitée par le phénomène de surcompensation. Ce phénomène mène à l'augmentation du nombre de niveaux donneurs lorsque le niveau de Fermi devient trop bas. La conséquence est une densité de trous toujours plus faible que la densité de Mn_{Ga} . Il y a donc plus de Mn_{Ga} agissant sur les trous que le contraire. Les trous sont donc soumis à un champ magnétique moyen effectif plus élevé que les impuretés magnétiques et se dépolarisent moins facilement lorsque la température augmente.

Première régime de désaimantation À basse température et basse concentration de trous, le gaz de trous est entièrement polarisé mais n'influence que faiblement les spins des atomes de manganèse. L'augmentation de la température dépolarise les impuretés de manganèse qui réagissent alors comme un gaz paramagnétique plongé dans un champ magnétique constant. Sur la figure 5.11 et pour les courbes vertes et rouge, ceci correspond au palier à basse température vue sur ξ et à l'allure décroissante et convexe initiale de $M(T)$. Alors que M est suffisant pour saturer la polarisation magnétique des trous, l'allure convexe de la courbe ne change pas.

Second régime de désaimantation Au-delà d'une température critique, M diminue suffisamment pour ne plus assurer la saturation de l'aimantation des trous qui entament à leur tour une dépolarisation magnétique. Ainsi, la situation n'est plus celle du gaz paramagnétique d'impuretés magnétiques dans un champ magnétique effectif constant. Rétroactivement, la dépolarisation magnétique du gaz de trous diminue M causant une dépolarisation supplémentaire des trous. La dépolarisation des atomes de manganèse se fait alors plus rapidement que dans la première phase et l'allure de la courbe d'aimantation change de convexité. Alors que la polarisation magnétique des trous ne dépend que faiblement de la température pour les basses températures, elle chute très rapidement vers zéro pour les températures intermédiaires.

Troisième régime de désaimantation Quand la densité de trous se compare à la densité de manganèse, les effets de saturation de polarisation des Mn_{Ga} par les trous se superposent à la saturation d'aimantation des trous par les Mn_{Ga} . Dans ce contexte, les deux gaz magnétiques subissent l'action de la température de manière symétrique et réagissent avec la température par une dépolarisation symétrique des deux gaz quand la température augmente.

La dernière chose à discuter concerne la valeur de la polarisation des trous en fonction de la densité de trous pour les températures voisines de zéro. Pour les basses concentrations de trous, ξ est alors proche de l'unité. Avec l'augmentation de la densité de trous, la polarisation magnétique des trous à basse température diminue. La polarisation des trous est une grandeur moyenne normalisée sur le nombre total de trous. Ainsi, bien que l'aimantation des trous, qui est la densité de dipôles magnétiques, augmente, le taux de polarisation diminue. Ceci a déjà été discuté en 5.2 (p.127) et correspond au cas où le niveau de Fermi des trous se compare avec la levée de dégénérescence des bandes de valence. Ce cas fixe une limite pour le changement de régime qui pousse à vouloir corrélérer la comparaison entre niveau de Fermi et levée de dégénérescence avec le changement de régime observé dans l'allure des diagrammes de phase des aimantations de M .

La comparaison entre le modèle sur lequel se base le programme de calcul et les discussions des chapitres précédents incitent à bien cadrer la portée des résultats théoriques. En effet, le modèle théorique met en jeu une bande de valence de spin 1/2 plutôt qu'un ensemble de trois bandes. De plus, le modèle théorique n'implémente pas l'anisotropie magnéto-cristalline qui s'est révélée essentielle dans la compréhension de la physique du (Ga,Mn)As.

Cependant plusieurs contre-arguments sont en faveur du modèle utilisé. Les échantillons étudiés dans le chapitre 4 ont été parfaitement caractérisés ce qui fait l'objet du chapitre 2. Ces derniers présentent des diagrammes de phase mesurés par magnétométrie SQUID qu'il est naturel de comparer avec les résultats théoriques. La figure 5.12 effectue une telle comparaison et met en relation les différents diagrammes de phase expérimentaux et théoriques. La comparaison se fait bien malgré quelques différences. Cela signifie que le programme de calcul est capable de reproduire l'allure des diagrammes de phases sur une vaste étendue de densités de trous. Il est important de souligner ici que l'ajustement ne repose que sur la détermination d'une constante de couplage et sur une estimation de la densité de trous de chaque échantillon.

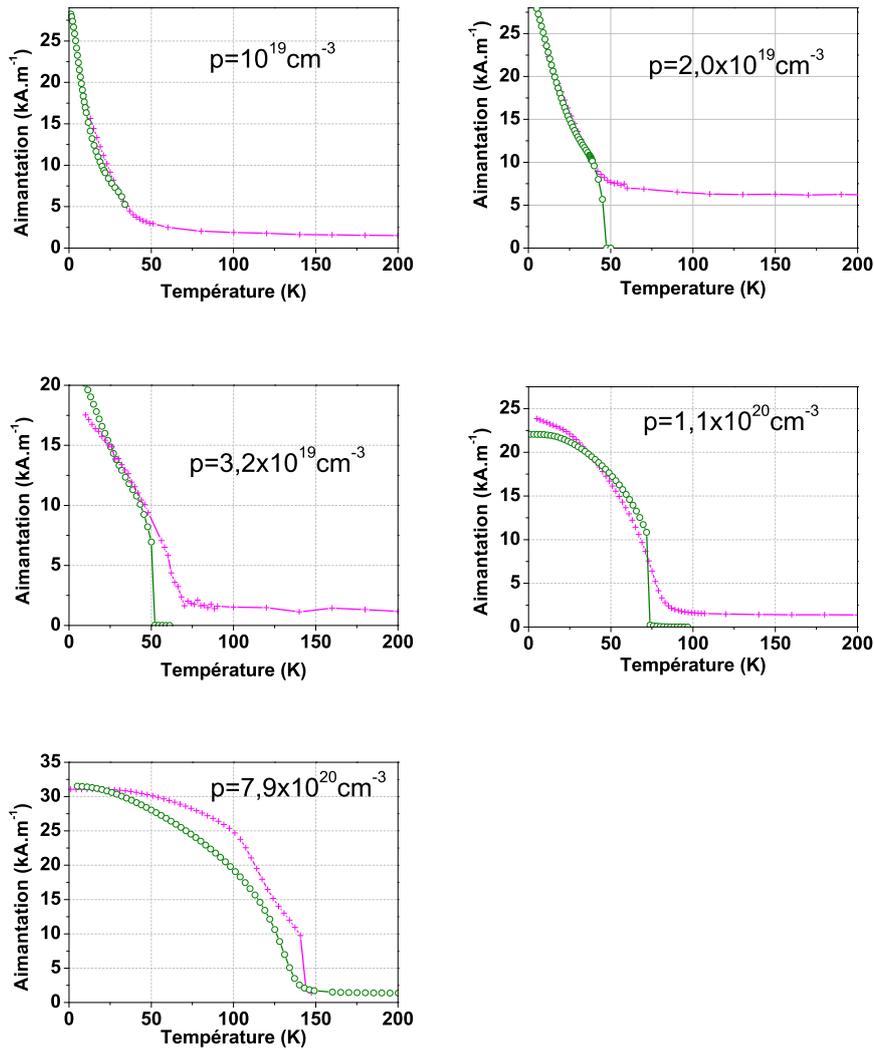


FIGURE 5.12 – Comparaison des diagrammes de phase obtenus à l’aide du programme de calcul et expérimentalement sur les échantillons par magnéto­métrie SQUID.

7 Conclusion du chapitre

Ce chapitre présente des résultats numériques concernant la simulation de couches de $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ en fonction de la densité de trous par la théorie de la fonctionnelle de la densité dépendante du spin.

La reconstruction des densités d’états démontre que la dispersion dans la couche est tridimensionnelle ce qui rejette toute influence du confinement sur la dynamique des trous dans des couches de 50nm. La comparaison des densités d’états théoriques tridimensionnelles obtenues numériquement et analytiquement dans le cadre d’un modèle à une particule dans une boîte montrent peu de différences laissant supposer la faible influence des interactions électrostatiques entre trous.

Au travers de la connaissance de la relation entre température de Curie et densité de porteurs, ce programme de calcul permet l'estimation de la constante de couplage $J_{pd} \sim 0.1075\text{eV}\cdot\text{nm}^3$ supposée commune à tous les échantillons et restée indéterminée dans les échantillons utilisés.

Le premier effet de la densité de trous sur la physique du (Ga,Mn)As concerne le remplissage et montre deux régimes de polarisation magnétiques des trous selon leur densité. Ces régimes se différencient selon que ϵ_F est inférieure ou supérieure à la levée de dégénérescence de spin des trous.

Le second effet concerne l'allure des diagrammes de phase en fonction de la densité de porteurs. Deux comportements de l'aimantation en fonction de la densité de trous à l'équilibre sont mis en évidence. Ces comportements dépendent de la température et de la densité de trous relative à la densité d'atomes de manganèse actifs dans le magnétisme.

Conclusions et perspectives

Cette thèse évalue les effets de la densité de porteurs dans l'état fondamental sur la dynamique des charges et de l'aimantation de couches de (Ga,Mn)As d'épaisseur 50nm. Deux approches, expérimentale et théorique, sont utilisées. La dynamique du système hors équilibre après une excitation optique est étudiée expérimentalement. La physique du niveau fondamental est quant à elle explorée au travers d'une approche numérique implémentant la théorie de la fonctionnelle de la densité dépendante du spin. Les résultats couvrent différents aspects de la physique du (Ga,Mn)As. Cette variété reflète l'importance de la densité des trous à l'équilibre sur le comportement du (Ga,Mn)As dans les phases ferromagnétique et paramagnétique. D'une part les expériences démontrent des variations des dynamiques des charges et de l'aimantation avec comme critère le plus significatif le rapport $\frac{\Delta p}{p}$ de la densité de trous optiquement injectée sur la densité à l'équilibre. D'autre part, les simulations numériques de l'état fondamental, confrontés aux expériences statiques, permettent d'estimer la valeur de couplage magnétique J_{pd} entre les spins des trous et des Mn_{Ga} . Ils mettent de plus en avant l'absence de corrélation forte dans le gaz de Fermi de trous et reproduisent quantitativement très bien les diagrammes de phase expérimentaux.

1 Approche expérimentale : dynamiques des trous en fonction du niveau de Fermi à l'équilibre

Les expériences réalisées, de type pompe-sonde, mettent en évidence la dynamique des charges, *i.e.* électrons de la bande de conduction et trous de la bande de valence, et de l'aimantation après une excitation optique. Celles-ci démontrent plusieurs effets dépendants de la densité de trous dans l'état fondamental. Qualitativement, la dynamique dans le (Ga,Mn)As après excitation optique se décompose en dynamiques corrélées des charges, de la norme et de la direction du vecteur aimantation.

1.1 Piégeage électronique et contrôle de la recombinaison

La réflectivité traduit spécifiquement la dynamique couplée des électrons et des trous des bandes de conduction et de valence respectivement. En première approximation, la structure de bande du (Ga,Mn)As se rapproche de celle du LT-GaAs avec une importante quantité d'impuretés de type As_{Ga} 300meV en dessous du bas de bande de conduction. Celles-ci sont en nombre supérieur à la densité de charges photo-crées et représentent environ 1% des cations du système. Elles agissent comme des pièges en nombre suffisant pour localiser rapidement tous les électrons photo-crées après les premières phases de

relaxation. Les électrons recombinent depuis ces états avec les trous de la bande de valence en un temps variable dépendant de la densité de trous à l'équilibre. La dynamique de recombinaison s'explique alors par la valeur du recouvrement de la fonction d'onde spectral des états pièges de As_{Ga} avec les états libres de la bande de valence. Le temps de recombinaison est plus court pour un recouvrement optimal qui se produit en présence d'une énergie de Fermi basse pour une densité de trous élevée. Pour un rapport entre les densités de pièges et de paires photo-crées grand, le mécanisme de piégeage domine la réponse du système à l'excitation et le temps de recombinaison est d'autant plus long que la densité de trous dans l'état fondamental est basse. Pratiquement ceci offre l'opportunité de contrôler la vitesse de recombinaison des porteurs et de la diminuer grandement. La densité de trous est de plus fortement couplée à l'amplitude de l'aimantation. En ce sens, la recombinaison contrôle aussi la dynamique d'aimantation. Les impuretés de As_{Ga} rendent donc le contrôle de la vitesse de décroissance du nombre de trous possible et ouvre une perspective originale pour la manipulation temporelle de l'aimantation. Spécifiquement les échantillons de densité de trous élevées soumis à une faible excitation optique présentent une aimantation importante associée à un temps de recombinaison inférieur à la nanoseconde. Ceci favorise une réponse rapide du transport et de l'aimantation à la lumière. Alors qu'habituellement les impuretés de type As_{Ga} , doublement donneur, constituent un inconvénient pour leur rôle surcompensateur de la densité de trous, ces résultats révèlent donc un de leur points technologiquement positifs.

1.2 Dynamique du vecteur aimantation

La dynamique d'aimantation reflète de nombreux processus alors même que les densités d'impuretés de tous types ne varient pas. Cette diversité s'explique par l'importance de la densité de trous à l'équilibre sur tous les aspects du magnétisme statique et dynamique. En effet, tout en étant médiateurs de l'interaction entre spins d'impuretés voisines, les trous participent aux amplitude et direction des axes d'anisotropie magnéto-cristalline. Ces derniers fixent la direction d'équilibre de l'aimantation dans le cas statique et la forme du mouvement de précession dans le cas dynamique. Cette complexité est une difficulté pour isoler de manière certaine les différents mécanismes en jeu et pour élaborer une image générale de la dynamique dans $(\text{Ga,Mn})\text{As}$. La solution apportée ici a été de décomposer le vecteur aimantation en une norme et une direction pour étudier indépendamment les relaxations de ces quantités. Ce découplage est total sur les phases ultimes de la relaxation alors que l'augmentation de densité des charges est faible et les trous froids, avec donc peu d'influence sur les axes d'anisotropie. Dans ce cadre, les dynamiques des charges, mesurées sur la réflectivité, et de l'amplitude d'aimantation, mesurée par rotation Kerr, se comparent extrêmement bien. Plus particulièrement, les mesures de réflectivité sont un moyen extrêmement efficace d'accéder à la dynamique de la réaimantation quand celle-ci a lieu en permettant la détermination simultanée de la vitesse de refroidissement, et donc de polarisation, des trous et de recombinaison des paires. Le découplage s'effectue alors par analyse conjointe de la dynamique de réflectivité et d'aimantation et isole de façon fiable la dynamique directionnelle du vecteur aimantation. La dynamique du changement de norme se présente alors de la manière suivante, avec une désaimantation sub-picoseconde dépendante de la densité de trous photo-crées et de l'élévation de température, un refroidissement des charges menant à une repolarisation dépendante de l'énergie moyenne par trou en excès et pouvant mener à une réaimanta-

tion et enfin une diminution de l'interaction d'échange magnétique alors que le nombre de trous en excès disparaît. Cette dynamique est particulièrement intéressante du point de vue de la réaimantation. Typiquement, celle-ci est une mesure de l'augmentation transitoire de la température de Curie attribuée à l'élévation de la densité de trous. Cette variation est particulièrement frappante alors que la densité de trous de l'état fondamental est inférieure à celle de trous photo-crées. Ainsi, en phase paramagnétique dans un régime de dopage faible, la densité de trous photo-crées domine l'état magnétique du système et permet une transition optiquement induite de l'ordre paramagnétique à l'ordre ferromagnétique. Cet effet présente un intérêt technologique assuré puisque l'état d'aimantation du système est alors entièrement contrôlé par le flux lumineux incident. La dynamique directionnelle montre une désaimantation sub-picoseconde issue du transfert de moment cinétique entre la lumière, les charges et les impuretés. Il s'en suit une immobilisation plus ou moins longue de la direction de l'aimantation et une précession autour de l'axe d'équilibre visible si celui-ci est différent de l'axe perpendiculaire. Dans ce cadre, la dynamique d'aimantation est fortement dépendante de la variation initiale de la composante M_z ainsi que du positionnement de l'aimantation à l'équilibre. Le point important est l'existence d'un transfert de moment cinétique sub-picoseconde entre la lumière incidente et le vecteur aimantation qui est l'origine de sa précession ultérieure. L'origine de la précession du vecteur aimantation dans (Ga,Mn)As est donc double en considérant de plus les possibles variations initiales de la direction d'équilibre, vraisemblables en cas d'excitation optique d'intensité suffisamment forte, *i.e.* avec une création de densité de paires électron-trou comparable à celle de l'état fondamental. Dans le cas d'excitations optiques faibles, cela donne un moyen direct de contrôler optiquement la direction du vecteur aimantation par la polarisation lumineuse incidente.

2 Étude de l'état fondamental par DFT

Des simulations ont été effectuées sur des couches minces de 50nm de (Ga,Mn)As pour différentes concentrations de trous dans l'état fondamental. Ces simulations utilisent une approche auto-consistante implémentant la théorie de la fonctionnelle de la densité dépendante du spin sur une bande de trous parabolique confinée dans le plan et en présence d'impuretés magnétiques.

2.1 Conclusions sur les simulations des couches dans l'état fondamental

Ces simulations sont appliquées à des densités de porteurs équivalentes à celles préalablement testées expérimentalement, elles permettent de déterminer une amplitude de couplage entre les moments magnétiques et les trous d'une valeur de $J_{pd} \sim 0.1075\text{eV}\cdot\text{nm}^{-3}$ en cohérence avec les valeurs préalablement reportées dans la littérature. La reconstruction des densités d'états à trois dimensions des bandes associées aux deux projections de spin des trous montre une allure parabolique caractéristique des répartitions des charges libres tridimensionnelles. Ceci va en faveur d'une faible influence du confinement et de l'échange corrélation sur la répartition des états dans la couche. La répartition tridimensionnelle est en effet très proche de la densité d'états analytique calculée pour les charges libres. De plus, la densité d'états évolue peu d'une densité de trous à l'autre. D'une part,

ceci permet de conclure quant à la possibilité de simplifier le programme de calcul de manière à obtenir des résultats de qualité identique plus rapidement. D'autre part, ceci permet d'attribuer l'évolution des résultats en fonction de la densité de porteurs au changement dans le niveau de Fermi, celui-ci déterminant entièrement le diagramme de phase pour une concentration de Mn déterminée. Au niveau des polarisations magnétiques des trous et des impuretés magnétiques, celles-ci présentent une évolution en fonction de la densité de trous dans l'état fondamental mettant en avant l'existence de plusieurs régimes de fonctionnement dépendant du niveau de Fermi. Pour une concentration de trous faible et à température fixe, le niveau de Fermi sera plus faible que la levée de dégénérescence entre trous de projections de spin opposées. Ceci mène à une polarisation totale du gaz de trous. Les trous contribuant le plus à l'aimantation se situent alors au voisinage du niveau de Fermi. Dans un régime de concentration de trous plus élevée, les trous contribuant le plus à l'aimantation se situent au voisinage de la valeur de la levée de dégénérescence. Le niveau de Fermi est alors plus haut que la levée de dégénérescence, la valeur de la polarisation magnétique des trous en fonction de leur énergie diminue avec l'énergie. Enfin les comparaisons des diagrammes de phase expérimentaux, réalisés hors du cadre de cette thèse, et théorique montrent une forte corrélation et ceci indépendamment de tout paramètre d'ajustement. Ceci atteste de la justesse du programme de calcul et par extension des interprétations théoriques.

2.2 Perspectives théoriques

Ce projet se place dans le cadre d'une étude plus vaste dans laquelle des simulations dynamiques complèteraient les résultats expérimentaux. Cette thèse a donc aussi été le cadre de simulation dynamique dont les premiers résultats sont présentés sur la figure 5.13. Le modèle utilisé se base sur un formalisme dans lequel deux gaz de fermions, les trous et les atomes de manganèse interagissent magnétiquement au travers d'un couplage de type Kondo. La localisation du second gaz de fermions s'obtient dans la limite où leurs énergies propres sont infinies. Les atomes de manganèse sont alors des pseudo fermions. L'évolution des polarisations de deux gaz magnétiques s'obtient au travers de deux équations maîtresses couplées traduisant l'évolution des opérateurs de champ correspondant. La relaxation de la température du gaz de charges vers le réseau se traite phénoménologiquement tout comme le processus de recombinaison des charges. Enfin, le système est supposé à chaque instant en équilibre quasi statique et la relation entre aimantation des impuretés magnétiques et polarisation magnétique des trous s'obtient à chaque instant à l'aide de simulations statiques. La figure 5.13 présente les résultats obtenus pour $p = 0.02 \times 10^{-21} \text{cm}^{-3}$ avec un programme de calcul dans lequel l'état fondamental est estimé dans le cadre de l'approximation de Hartree. Ces résultats sont des dynamiques d'aimantation et de polarisations magnétiques des trous. Qualitativement, ces résultats ne traduisent pas exactement la dynamique mesurée expérimentalement mais rendent cependant compte de la désaimantation sub-picoseconde suivie du retour à l'équilibre.

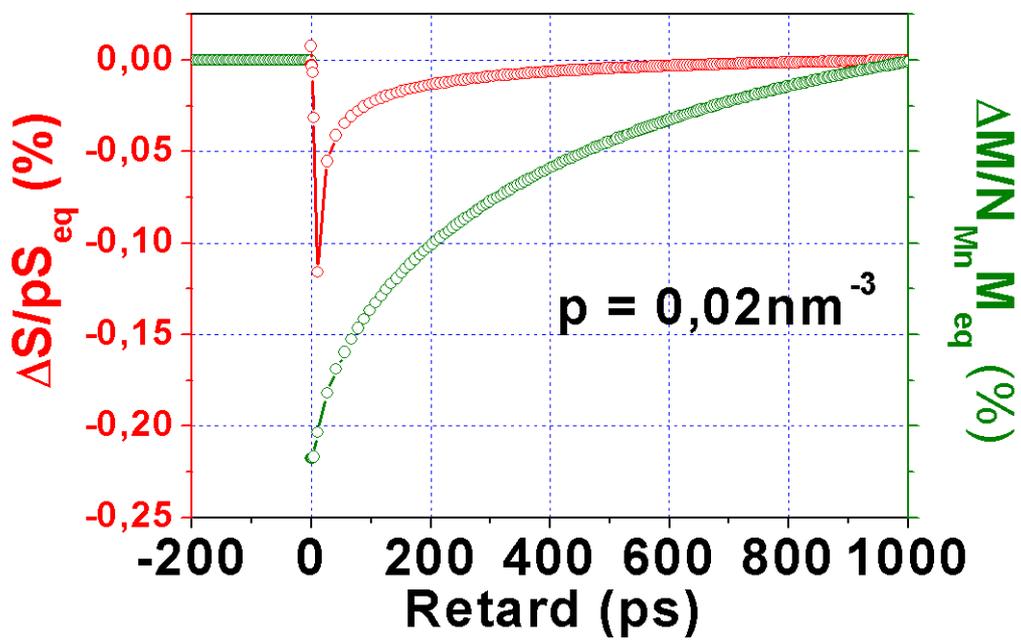


FIGURE 5.13 – *Polarisations magnétiques des trous et des impuretés magnétiques en fonction du temps après une injection optique de trous avec $p = 0.02 \times 10^{-21} cm^{-3}$.*

Annexe A

Remplissage des états quantiques du système.

Un puits quantique est un potentiel carré permettant le confinement des particules dans une direction de l'espace. Les particules peuvent se propager et possèdent une dispersion parabolique continue à deux dimensions dans le plan perpendiculaire au confinement alors que, dans la direction du confinement, les ondes stationnaires ont des énergies discrètes. Ce caractère mi discret, mi continu, donne à la densité d'état d'un puits quantique une structure continue entrecoupée de singularités.

Pour les considérations de remplissage, la répartition des états va influencer très fortement les relations liant le nombre de porteurs et l'énergie totale au potentiel chimique et à la température. L'objectif de cet appendice est de calculer ces deux relations. Ceci va se faire en trois étapes. La première servant à déterminer la densité d'états et les deux suivantes associées au calcul respectivement de la densité de porteurs et de l'énergie en fonction de la température T et du potentiel chimique μ .

1 Densité d'états dans le plan de la couche

Par la suite, \mathbf{k} se réfère au quasi-moment dans la direction perpendiculaire à l'axe de croissance et les calculs s'effectuent dans l'espace réciproque.

La densité d'états d'un système bidimensionnel se calcule comme le rapport entre la surface d'un anneau correspondant à une valeur du module k et la surface élémentaire d'un état.

Chaque état occupe une surface élémentaire donnée par l'équation (A.1) dans laquelle L est la taille du système dans les directions perpendiculaires à l'axe de confinement.

$$v = \left(\frac{2\pi}{L}\right)^2 \quad (\text{A.1})$$

La surface de l'anneau compris entre les cercles de rayons k et $k + \delta k$ est donnée par l'équation (A.2).

$$V = 2\pi k \delta k \quad (\text{A.2})$$

Le nombre d'états (A.3) lié est le rapport entre la surface de l'anneau et la surface élémentaire d'un état.

$$\delta n(\mathbf{k}) = \rho_{2D}(k) \delta k = \frac{V}{v} = \frac{L^2 k \delta k}{2\pi} \quad (\text{A.3})$$

Il s'agit maintenant d'exprimer la densité d'état en fonction de l'énergie. Pour cela, le quasi-moment doit être remplacé par l'énergie. L'équation (A.4) donne la relation de dispersion d'une particule dans l'approximation de la masse effective m_{\parallel} .

$$\epsilon = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\parallel}} \iff k = \frac{\sqrt{2m_{\parallel}\epsilon}}{\hbar} \quad (\text{A.4})$$

La conservation du nombre d'état dans l'anneau impose la condition $\rho(k) \delta k = \rho(\epsilon) \delta \epsilon$ et permet d'exprimer la densité d'état dans l'équation (A.5).

$$\rho_{2D}(\epsilon) = \rho_{2D}(k) \frac{\partial k}{\partial \epsilon} \quad (\text{A.5})$$

La dérivée du quasi-moment est donnée par l'équation (A.6).

$$\frac{\partial k}{\partial \epsilon} = \frac{\sqrt{m_{\parallel}}}{\hbar} \frac{1}{\sqrt{2\epsilon}} \quad (\text{A.6})$$

L'expression finale de la densité d'états à 2D est finalement l'équation (A.7).

$$\frac{\rho_{2D}(\epsilon)}{L^2} = \frac{m_{\parallel}}{2\pi\hbar^2} \quad (\text{A.7})$$

La densité d'états du système complet se déduit en utilisant les valeurs propres ϵ_i issues du confinement dans la direction de croissance. La fonction $H(x)$ est la fonction de Heavyside.

$$\rho_{3D}(\epsilon) = \frac{m_{\parallel} L^2}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} H(\epsilon - \epsilon_i) \quad (\text{A.8})$$

Si les valeurs propres de l'énergie sont ordonnées telles que $\epsilon_i < \epsilon_{i+1}$ alors la somme dans l'équation (A.8) se réécrit de la manière décrite dans l'équation (A.9).

$$\sum_{i=1}^{\infty} H(\epsilon - \epsilon_i) = \sum_{i=1}^{\infty} i H(\epsilon - \epsilon_i) H(\epsilon_{i+1} - \epsilon) \quad (\text{A.9})$$

L'équation (A.9) donne lieu à une nouvelle expression de (A.8) explicitée dans l'équation (A.10).

$$\rho_{3D}(\epsilon) = \frac{m_{\parallel} L^2}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} i H(\epsilon - \epsilon_i) H(\epsilon_{i+1} - \epsilon) \quad (\text{A.10})$$

2 Le remplissage des états

La distribution de Fermi-Dirac est le taux de remplissage des états en fonction de leur énergie. Elle dépend du potentiel chimique μ et de la température T et est donnée par l'équation (A.11). Les facteurs $\beta = \frac{1}{kT}$, où k et T sont respectivement le facteur de Boltzmann et la température du système, et μ est le potentiel chimique, sont les grandeurs thermodynamiques associées au système.

$$f(\epsilon) = \frac{1}{1 + \exp((\epsilon - \mu)\beta)} \quad (\text{A.11})$$

Dans le remplissage des états, il faut considérer les expressions de la densité d'états (A.8) et la distribution de Fermi-Dirac (A.11). L'expression de conservation de la charge dans le système impose que la somme de tous les états quantiques du système multipliée par leur taux de remplissage soit le nombre total de charges dans le système (A.12).

$$p = \int_{-\infty}^{+\infty} \rho_{3D}(\epsilon) f(\epsilon) d\epsilon \quad (\text{A.12})$$

Le calcul développé donne l'expression (A.13).

$$p = \frac{mL^2}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} \int_{\epsilon_i}^{+\infty} \frac{1}{1 + \exp((\epsilon - \mu)\beta)} d\epsilon \quad (\text{A.13})$$

L'équation (A.13) fait apparaître une intégrale dont la solution est donnée par (A.14).

$$F(x) = \int_x^{+\infty} \frac{1}{1 + \alpha \exp(u\beta)} du = \frac{1}{\beta} \ln \left(1 + \frac{1}{\alpha} \exp(-x\beta) \right) \quad (\text{A.14})$$

La densité de porteurs en deux dimensions se calcule en calculant l'équation (A.13) à l'aide de l'expression (A.14). Le résultat est la densité de porteurs totale qui s'exprime comme l'équation (A.15).

$$\frac{p}{L^2} = \frac{m_{\parallel} k_B T}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{+\infty} \ln \left(1 + e^{\frac{\mu - \epsilon_i}{k_B T}} \right) \quad (\text{A.15})$$

La calcul du potentiel chimique et de la température après injection va nécessiter un système de deux équations mettant en jeu à la fois la densité de porteurs totale de l'équation (A.15) mais aussi l'énergie totale du système.

3 L'énergie totale du système

Le calcul de l'énergie totale du système revient à dénombrer le nombre d'états pour chaque énergie et à en faire la somme comme dans l'équation (A.16).

$$E = \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon \rho(\epsilon) f(\epsilon) d\epsilon \quad (\text{A.16})$$

3.1 Expression de l'énergie totale pour le calcul numérique

L'équation (A.10) simplifie l'expression de l'énergie totale en considérant une densité d'état dans laquelle les énergie propres sont classées par ordre croissant.

$$E = \frac{m_{\parallel} L^2}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} i \int_{\epsilon_i}^{\epsilon_{i+1}} \frac{\epsilon}{1 + \exp((\epsilon - \mu)\beta)} d\epsilon \quad (\text{A.17})$$

Démonstration :

$$\begin{aligned}
E &= \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon \rho(\epsilon) f(\epsilon) d\epsilon \\
E &= \frac{m_{\parallel} L^2}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} i \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\epsilon H(\epsilon - \epsilon_i) H(\epsilon_{i+1} - \epsilon)}{1 + \exp((\epsilon - \mu)\beta)} d\epsilon \\
E &= \frac{m_{\parallel} L^2}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} i \int_{\epsilon_i}^{\epsilon_{i+1}} \frac{\epsilon}{1 + \exp((\epsilon - \mu)\beta)} d\epsilon
\end{aligned} \tag{A.18}$$

3.2 Expression de l'énergie totale du système pour une détermination analytique

L'expression (A.11) peut aussi s'exprimer sous une forme analytique un peu plus explicite. Pour cela, il est d'abord nécessaire de résoudre les intégrales du type donné dans l'équation (A.19).

$$\int_a^{+\infty} \frac{X}{1 + \beta \exp(\alpha X)} dX = \frac{1}{\alpha} \left(\left[X \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha X) \right) \right]_b^a + \frac{1}{\alpha} \int_{\frac{1}{\beta} \exp(-\alpha b)}^{\frac{1}{\beta} \exp(-\alpha a)} \frac{\ln(1+u)}{u} du \right) \tag{A.19}$$

Démonstration :

$$\begin{aligned}
F(a, b) &= \int_a^b \frac{X}{1 + \beta \exp(\alpha X)} dX \\
F(a, b) &= \frac{1}{\beta} \int_a^b \frac{X \exp(-\alpha X)}{1 + \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha X)} dX \\
F(a, b) &= \frac{1}{\alpha} \left(\left[X \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha X) \right) \right]_b^a - \int_b^a \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha X) \right) dX \right)
\end{aligned}$$

On propose le changement de variable $u = \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha X)$ correspondant à $X = -\frac{1}{\alpha} \ln(\beta u)$ avec $dX = \frac{\partial X}{\partial u} du = -\frac{1}{\alpha u} du$.

Finalement, le second terme de l'équation devient :

$$\int_b^a \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha X) \right) dX = -\frac{1}{\alpha} \int_{\frac{1}{\beta} \exp(-\alpha b)}^{\frac{1}{\beta} \exp(-\alpha a)} \frac{\ln(1+u)}{u} du$$

L'expression devient :

$$F(a, b) = \frac{1}{\alpha} \left(\left[X \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha X) \right) \right]_b^a + \frac{1}{\alpha} \int_{\frac{1}{\beta} \exp(-\alpha b)}^{\frac{1}{\beta} \exp(-\alpha a)} \frac{\ln(1+u)}{u} du \right)$$

Dans la limite où $b \rightarrow +\infty$, l'expression devient :

$$F(a) = \frac{1}{\alpha} \left(a \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha a) \right) + \frac{1}{\alpha} \int_0^{\frac{1}{\beta} \exp(-\alpha a)} \frac{\ln(1+u)}{u} du \right)$$

Et en introduisant l'expression de la fonction Dilog :

$$Li_2(x) = -\int_0^x \frac{\ln(1+u)}{u} du$$

$$F(a) = \frac{1}{\alpha} \left(a \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \exp(-\alpha a) \right) - \frac{1}{\alpha} Li_2 \left(\frac{1}{\beta} \exp(-\alpha a) \right) \right)$$

La solution (3.2) peut être utilisée pour résoudre le problème associé au calcul de l'énergie totale (A.16).

$$E = \frac{m_{\parallel} L^2 k_B T}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} \left[\epsilon_i \ln \left(1 + \frac{1}{\beta} \exp \left(\frac{\mu - \epsilon_i}{k_B T} \right) \right) - k_B T \text{Li}_2 \left(\exp \left(\frac{\mu - \epsilon_i}{k_B T} \right) \right) \right] \quad (\text{A.20})$$

Démonstration :

$$\begin{aligned} E &= \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon \rho(\epsilon) f(\epsilon) d\epsilon \\ E &= \frac{m_{\parallel} L^2}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\epsilon}{1 + \exp((\epsilon - \mu) \beta)} H(\epsilon - \epsilon_i) d\epsilon \\ E &= \frac{m_{\parallel} L^2}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} \int_{\epsilon_i}^{+\infty} \frac{\epsilon}{1 + \exp((\epsilon - \mu) \beta)} d\epsilon \\ E &= \frac{m_{\parallel} L^2 k_B T}{2\pi\hbar^2} \sum_{i=1}^{\infty} \left[\epsilon_i \ln \left(1 + \exp \left(\frac{\mu - \epsilon_i}{k_B T} \right) \right) - k_B T \text{Li}_2 \left(\exp \left(\frac{\mu - \epsilon_i}{k_B T} \right) \right) \right] \end{aligned}$$

Bibliographie

- [1] More than just room temperature. *Nat Mater*, 9(12) :951, dec 2010.
- [2] M. Altarelli, U. Ekenberg, and A. Fasolino. Calculations of hole subbands in semiconductor quantum wells and superlattices. *Physical Review B*, 32(8) :5138–5143, oct 1985.
- [3] P. W. Anderson. Antiferromagnetism. theory of superexchange interaction. *Physical Review*, 79(2) :350–356, jul 1950.
- [4] Neil William Ashcroft and N. David Mermin. *Physique des solides - EDP Sciences : Edition Sciences*. EDP science edition, 1976.
- [5] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel. *Physical Review Letters*, 76(22) :4250–4253, may 1996.
- [6] S. D. Benjamin, H. S. Loka, A. Othonos, and P. W. E. Smith. Ultrafast dynamics of nonlinear absorption in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 68 :2544, 1996.
- [7] R. Braunstein and E.O. Kane. The valence band structure of the III–V compounds. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 23(10) :1423–1431, oct 1962.
- [8] James R. Chelikowsky and Marvin L. Cohen. Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zinc-blende semiconductors. *Physical Review B*, 14(2) :556–582, jul 1976.
- [9] K. Cho. Unified theory of symmetry-breaking effects on excitons in cubic and wurtzite structures. *Physical Review B*, 14(10) :4463–4482, nov 1976.
- [10] K. Cho, P.J. Dean, D.C. Herbert, B. Fisher, J. Lagois, and P.Y. Yu. *Excitons*, volume 14 of *Topics in Current Physics*. Springer edition.
- [11] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Laloë Franck. *Physique Mécanique quantique (2 vol.)*, volume 1 of *Enseignement des sciences*. Hermann edition.
- [12] Ingrid Cotoros, Jigang Wang, K. M Dani, X. Liu, J. K Furdyna, and Daniel Chemla. Ultrafast photo-induced ferromagnetism in III-Mn-V semiconductors. *Bulletin of the American Physical Society*, Volume 52, Number 1.
- [13] D. Blimberg, R. Blachnik, M. Cardona, P.J. Dean, T. Grave, G. Harbeke, K. Huebner, U. Kaufmann, W. Kress, O. Madelung, W. Von Muench, U. Roessler, J. Schneider, and M. Schulz. *Landolt-Börnstein : Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology - New Series*, volume 17 of *Landolt-Börnstein, New Series, Group III*. O. Madelun, M. Schulz and W. Weiss, Berlin, springer edition, 1982.

- [14] J. De Boeck, R. Oesterholt, H. Bender, A. Van Esch, C. Bruynseraede, C. Van Hoof, and G. Borghs. Controlled formation of nanoscale MnAs magnetic clusters in GaAs. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 156(1-3) :148–150, 1996.
- [15] J. De Boeck, R. Oesterholt, A. Van Esch, H. Bender, C. Bruynseraede, C. Van Hoof, and G. Borghs. Nanometer-scale magnetic MnAs particles in GaAs grown by molecular beam epitaxy. *Applied Physics Letters*, 68(19) :2744–2746, may 1996.
- [16] T. Dietl, H. Ohno, and F. Matsukura. Hole-mediated ferromagnetism in tetrahedrally coordinated semiconductors. *Physical Review B*, 63(19) :195205, apr 2001.
- [17] T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, and D. Ferrand. Zener model description of ferromagnetism in zinc-blende magnetic semiconductors. *Science*, 287(5455) :1019 –1022, feb 2000.
- [18] K. W. Edmonds, P. Bogusławski, K. Y. Wang, R. P. Campion, S. N. Novikov, N. R. S. Farley, B. L. Gallagher, C. T. Foxon, M. Sawicki, T. Dietl, M. Buongiorno Nardelli, and J. Bernholc. Mn interstitial diffusion in (Ga,Mn)As. *Physical Review Letters*, 92(3) :037201, jan 2004.
- [19] Kane Evan O. The semi-empirical approach to band structure. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 8(0) :38–44, jan 1959.
- [20] A. Fert and H. Jaffrès. Conditions for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor. *Physical Review B*, 64(18) :184420, oct 2001.
- [21] 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(6763) :787–790, dec 1999.
- [22] J. K. Furdyna. Diluted magnetic semiconductors. *Journal of Applied Physics*, 64 :R29, 1988.
- [23] J. A Gaj, J. Ginter, and R. R Gałazka. Exchange interaction of manganese 3d5 states with band electrons in $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$. *physica status solidi (b)*, 89(2) :655–662, oct 1978.
- [24] F. Glas, G. Patriarche, L. Largeau, and A. Lemaître. Determination of the local concentrations of mn interstitials and antisite defects in GaMnAs. *Physical Review Letters*, 93(8) :086107, 2004.
- [25] P. Grenier and J. F. Whitaker. Subband gap carrier dynamics in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 70 :1998, 1997.
- [26] O. Gunnarsson and B. I. Lundqvist. Exchange and correlation in atoms, molecules, and solids by the spin-density-functional formalism. *Physical Review B*, 13(10) :4274–4298, may 1976.
- [27] K. C Hall, J. P Zahn, A. Gamouras, S. March, J. L Robb, X. Liu, and J. K Furdyna. Ultrafast optical control of coercivity in GaMnAs. *Applied Physics Letters*, 93(3) :032504–032504–3, jul 2008.
- [28] Hartmut Haug and Stephan W. Koch. *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors*. World Scientific Publishing, 1990.
- [29] Ohno Hideo. Properties of ferromagnetic III–V semiconductors. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 200(1-3) :110–129, oct 1999.

- [30] Shingo Hirose, Masaaki Yamaura, Shigeru Haneda, Kazuhiko Hara, and Hiro Munekata. GaFeAs : a diluted magnetic semiconductor grown by molecular beam epitaxy. *Thin Solid Films*, 371(1-2) :272–277, aug 2000.
- [31] P. Hohenberg and W. Kohn. Inhomogeneous electron gas. *Physical Review*, 136(3B) :B864–B871, nov 1964.
- [32] B. Hönerlage, R. Lévy, J.B. Grun, C. Klingshirn, and K. Bohnert. The dispersion of excitons, polaritons and biexcitons in direct-gap semiconductors. *Physics Reports*, 124(3) :161–253, jul 1985.
- [33] H. Jaffrès and A. Fert. Spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor. *Journal of Applied Physics*, 91(10) :8111–8113, may 2002.
- [34] T. Jungwirth, W. A. Atkinson, B. H. Lee, and A. H. MacDonald. Interlayer coupling in ferromagnetic semiconductor superlattices. *Physical Review B*, 59(15) :9818–9821, apr 1999.
- [35] T. Jungwirth, Jairo Sinova, A. H. MacDonald, B. L. Gallagher, V. Novák, K. W. Edmonds, A. W. Rushforth, R. P. Campion, C. T. Foxon, L. Eaves, E. Olejník, J. Mašek, S.-R. Eric Yang, J. Wunderlich, C. Gould, L. W. Molenkamp, T. Dietl, and H. Ohno. Character of states near the fermi level in (Ga,Mn)As : impurity to valence band crossover. *Physical Review B*, 76(12) :125206, 2007.
- [36] Y. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom. Coherent spin manipulation without magnetic fields in strained semiconductors. *Nature*, 427(6969) :50–53, jan 2004.
- [37] R. K. Kawakami, Y. Kato, M. Hanson, I. Malajovich, J. M. Stephens, E. Johnston-Halperin, G. Salis, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom. Ferromagnetic imprinting of nuclear spins in semiconductors. *Science*, 294(5540) :131–134, oct 2001.
- [38] Kh. Khazen, H. J. von Bardeleben, J. L. Cantin, L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, and A. Lemaître. Ferromagnetic resonance of Ga_{0.93}Mn_{0.07}As thin films with constant Mn and variable free-hole concentrations. *Physical Review B*, 77(16) :165204, apr 2008.
- [39] Kh. Khazen, H. J. von Bardeleben, M. Cubukcu, J. L. Cantin, V. Novak, K. Olejnik, M. Cukr, L. Thevenard, and A. Lemaître. Anisotropic magnetization relaxation in ferromagnetic Ga_{1-x}Mn_xAs thin films. *Physical Review B*, 78(19) :195210, nov 2008.
- [40] Khashayar Khazen. *Etude des couches Nanométriques de GaMnAs par Résonance Ferromagnétique*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), Institut des nanosciences de Paris, jul 2008.
- [41] Nammee Kim, H. Kim, J. W. Kim, S. J. Lee, and T. W. Kang. Numerical self-consistent field calculation of a ferromagnetic ZnMnO quantum well. *Physical Review B*, 74(15) :155327, oct 2006.
- [42] A. V. Kimel, G. V. Astakhov, G. M. Schott, A. Kirilyuk, D. R. Yakovlev, G. Karczewski, W. Ossau, G. Schmidt, L. W. Molenkamp, and Th. Rasing. Picosecond dynamics of the photoinduced spin polarization in epitaxial (Ga,Mn)As films. *Physical Review Letters*, 92(23) :237203, jun 2004.
- [43] Charles Kittel. *Wiley : Introduction to Solid State Physics, 8th Edition*. Wiley edition, 2004.

- [44] W. Kohn and L. J. Sham. Self-consistent equations including exchange and correlation effects. *Physical Review*, 140(4A) :A1133–A1138, nov 1965.
- [45] E. Kojima, R. Shimano, Y. Hashimoto, S. Katsumoto, Y. Iye, and M. Kuwata-Gonokami. Observation of the spin-charge thermal isolation of ferromagnetic $\text{Ga}_{0.94}\text{Mn}_{0.06}\text{As}$ by time-resolved magneto-optical measurements. *Physical Review B*, 68(19) :193203, nov 2003.
- [46] T. Komori, T. Ishikawa, T. Kuroda, J. Yoshino, F. Minami, and S. Koshihara. Carrier-density dependence of magnetic and magneto-optical properties of $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$. *Physical Review B*, 67(11) :115203, mar 2003.
- [47] Jun Kondo. Resistance minimum in dilute magnetic alloys. *Progress of Theoretical Physics*, 32(1) :37–49, jul 1964.
- [48] 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 $(\text{In},\text{Mn})\text{As}/\text{GaSb}$. *Physical Review Letters*, 78(24) :4617–4620, jun 1997.
- [49] K. C. Ku, S. J. Potashnik, R. F. Wang, S. H. Chun, P. Schiffer, N. Samarth, M. J. Seong, A. Mascarenhas, E. Johnston-Halperin, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom. Highly enhanced curie temperature in low-temperature annealed $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ epilayers. *Applied Physics Letters*, 82(14) :2302–2304, apr 2003.
- [50] Byounghak Lee, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald. Theory of ferromagnetism in diluted magnetic semiconductor quantum wells. *Physical Review B*, 61(23) :15606–15609, jun 2000.
- [51] W. Z. Lin, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, and R. A. Logan. Femtosecond dynamics of highly excited carriers in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. *Applied Physics Letters*, 51(3) :161–163, jul 1987.
- [52] W. Z. Lin, L. G. Fujimoto, E. P. Ippen, and R. A. Logan. Femtosecond carrier dynamics in GaAs. *Applied Physics Letters*, 50(3) :124–126, jan 1987.
- [53] M. Linnarsson, E. Janzén, B. Monemar, M. Kleverman, and A. Thilderkvist. Electronic structure of the GaAs : Mn_{Ga} scenter. *Physical Review B*, 55(11) :6938–6944, mar 1997.
- [54] X. Liu, A. Prasad, J. Nishio, E. R. Weber, Z. Liliental-Weber, and W. Walukiewicz. Native point defects in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 67 :279, 1995.
- [55] X. Liu, Y. Sasaki, and J. K. Furdyna. *Physical Review B*, (20) :205204, may.
- [56] Lok C. Lew Yan Voon and Morten Willatzen. *The $k p$ Method*. Electronic Properties of Semiconductors. Springer edition, 2009.
- [57] J. M. Luttinger and W. Kohn. Motion of electrons and holes in perturbed periodic fields. *Physical Review*, 97(4) :869–883, feb 1955.
- [58] F. Matsukura, H. Ohno, A. Shen, and Y. Sugawara. Transport properties and origin of ferromagnetism in $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$. *Physical Review B*, 57(4) :R2037–R2040, jan 1998.
- [59] Y. Mitsumori, A. Oiwa, T. Słupinski, H. Maruki, Y. Kashimura, F. Minami, and H. Munekata. Dynamics of photoinduced magnetization rotation in ferromagnetic semiconductor p- $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$. *Physical Review B*, 69(3) :033203, jan 2004.

- [60] O. Morandi, P.-A. Hervieux, and G. Manfredi. Laser induced ultrafast demagnetization in diluted magnetic semiconductor nanostructures. *The European Physical Journal D*, 52(1-3) :4, 2009.
- [61] O Morandi, P-A Hervieux, and G Manfredi. Ultrafast magnetization dynamics in diluted magnetic semiconductors. *New Journal of Physics*, 11 :073010, jul 2009.
- [62] O. Morandi, P.-A. Hervieux, and G. Manfredi. Time-dependent model for diluted magnetic semiconductors including band structure and confinement effects. *Physical Review B*, 81(15) :155309, apr 2010.
- [63] H. Munekata, H. Ohno, R.R. Ruf, R.J. Gambino, and L.L. Chang. P-type diluted magnetic III–V semiconductors. *Journal of Crystal Growth*, 111(1-4) :1011–1015, may 1991.
- [64] H. Munekata, H. Ohno, S. von Molnar, Armin Segmüller, L. L. Chang, and L. Esaki. Diluted magnetic III-V semiconductors. *Physical Review Letters*, 63(17) :1849, oct 1989.
- [65] R. C. Myers, M. Poggio, N. P. Stern, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom. Antiferromagnetic s-d exchange coupling in GaMnAs. *Physical Review Letters*, 95(1) :017204, jun 2005.
- [66] P. Nemeč, E. Rozkotová, N. Tesarova, F. Trojaneč, K. Olejník, J. Zemen, V. Novak, M. Cukr, P. Malý, and T. Jungwirth. Non-thermal laser induced precession of magnetization in ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As. *arXiv :1101.1049*, jan 2011.
- [67] P. Němec, E. Rozkotová, N. Tesařová, F. Trojaneč, E. De Ranieri, K. Olejník, J. Zemen, V. Novák, M. Cukr, P. Malý, and T. Jungwirth. Experimental observation of the optical spin transfer torque. *Nature Physics*, 8(5) :411–415, 2012.
- [68] H. Ohno. Making nonmagnetic semiconductors ferromagnetic. *Science*, 281(5379) :951–956, 1998.
- [69] H. Ohno, D. Chiba, F. Matsukura, T. Omiya, E. Abe, T. Dietl, Y. Ohno, and K. Ohtani. Electric-field control of ferromagnetism. *Nature*, 408(6815) :944–946, dec 2000.
- [70] H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto, and Y. Iye. (Ga,Mn)As : a new diluted magnetic semiconductor based on GaAs. *Applied Physics Letters*, 69(3) :363–365, jul 1996.
- [71] 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(6763) :790–792, dec 1999.
- [72] A. Oiwa, Y. Mitsumori, R. Moriya, T. Ślupinski, and H. Munekata. Effect of optical spin injection on ferromagnetically coupled mn spins in the III-V magnetic alloy semiconductor (Ga,Mn)As. *Physical Review Letters*, 88(13) :137202, mar 2002.
- [73] A. Oiwa, R. Moriya, Y. Mitsumori, T. Ślupinski, and H. Munekata. Manifestation of local magnetic domain reversal by spin-polarized carrier injection in (Ga, Mn) As thin films. *Journal of superconductivity*, 16(2) :439–442, 2003.
- [74] A. Oiwa, H. Takechi, and H. Munekata. Photoinduced magnetization rotation and precessional motion of magnetization in ferromagnetic (Ga, Mn) As. *Journal of superconductivity*, 18(1) :9–13, 2005.

- [75] J. Okabayashi, A. Kimura, O. Rader, T. Mizokawa, A. Fujimori, T. Hayashi, and M. Tanaka. Core-level photoemission study of $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$. *Physical Review B*, 58(8) :R4211–R4214, 1998.
- [76] J. L. Oudar, D. Hulin, A. Migus, A. Antonetti, and F. Alexandre. Subpicosecond spectral hole burning due to nonthermalized photoexcited carriers in GaAs. *Physical Review Letters*, 55(19) :2074–2077, nov 1985.
- [77] Peter Y. Yu and Manuel Cardona. *Fundamentals of Semiconductors*. Physics and Materials Properties. Springer edition.
- [78] J. Qi, Y. Xu, X. Liu, J. K Furdyna, I. E Perakis, and N. H Tolk. Control of coherent magnetization precession in GaMnAs by ultrafast optical excitation. *physica status solidi (c)*, 5(8) :2637–2640, jun 2008.
- [79] J. Qi, Y. Xu, A. Steigerwald, X. Liu, J. K. Furdyna, I. E. Perakis, and N. H. Tolk. Ultrafast laser-induced coherent spin dynamics in ferromagnetic $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$ structures. *Physical Review B*, 79(8) :085304, feb 2009.
- [80] Jean-François Roux, Jean-Louis Coutaz, and Arunas Krotkus. Time-resolved reflectivity characterization of polycrystalline low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 74(17) :2462–2464, apr 1999.
- [81] L. M. Sandratskii and P. Bruno. Electronic structure, exchange interactions, and curie temperature in diluted III-V magnetic semiconductors : $(\text{GaCr})\text{As}$, $(\text{GaMn})\text{As}$, $(\text{GaFe})\text{As}$. *Physical Review B*, 67(21) :214402, jun 2003.
- [82] A Sarem, B J Kowalski, and B A Orłowski. Optical properties of fe-based semimagnetic semiconductors. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 2(41) :8173–8187, oct 1990.
- [83] M. Sawicki, F. Matsukura, A. Idziaszek, T. Dietl, G. M. Schott, C. Ruester, C. Gould, G. Karczewski, G. Schmidt, and L. W. Molenkamp. Temperature dependent magnetic anisotropy in $(\text{Ga,Mn})\text{As}$ layers. *Physical Review B*, 70(24) :245325, dec 2004.
- [84] G. Segsneider, T. Dekorsy, H. Kurz, R. Hey, and K. Ploog. Energy resolved ultrafast relaxation dynamics close to the band edge of low-temperature grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 71 :2779, 1997.
- [85] Jagdeep Shah. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*. Solid-State Science. Springer edition, 1999.
- [86] Jagdeep Shah and R. C. C. Leite. Radiative recombination from photoexcited hot carriers in GaAs. *Physical Review Letters*, 22(24) :1304–1307, jun 1969.
- [87] C. V. Shank, R. L. Fork, R. F. Leheny, and Jagdeep Shah. Dynamics of photoexcited GaAs band-edge absorption with subpicosecond resolution. *Physical Review Letters*, 42(2) :112–115, jan 1979.
- [88] P. W. E Smith, S. D Benjamin, and H. S Loka. Tailoring of trap-related carrier dynamics in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 71(9) :1156–1158, sep 1997.
- [89] T. S. Sosnowski, T. B. Norris, H. H. Wang, P. Grenier, J. F. Whitaker, and C. Y. Sung. High-carrier-density electron dynamics in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 70 :3245, 1997.

- [90] J. Szczytko, W. Mac, A. Twardowski, F. Matsukura, and H. Ohno. Antiferromagnetic p-d exchange in ferromagnetic $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ epilayers. *Physical Review B*, 59(20) :12935–12939, may 1999.
- [91] J. Szczytko, A. Twardowski, K. Świątek, M. Palczewska, M. Tanaka, T. Hayaishi, and K. Ando. Mn impurity in $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ epilayers. *Physical Review B*, 60(11) :8304–8308, 1999.
- [92] Simon M. Sze. *Wiley : Semiconductor Sensors*. Wiley.
- [93] H. Takechi, A. Oiwa, K. Nomura, T. Kondo, and H. Munekata. Light-induced precession of ferromagnetically coupled Mn spins in ferromagnetic (Ga,Mn)As. *physica status solidi (c)*, 3(12) :4267–4270, dec 2006.
- [94] L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, A. Lemaître, and B. Theys. Tuning the ferromagnetic properties of hydrogenated GaMnAs. *Applied Physics Letters*, 87 :182506, 2005.
- [95] L. Thevenard, A. Miard, L. Vila, G. Faini, A. Lemaître, N. Vernier, J. Ferré, and S. Fusil. Magnetic patterning of (Ga,Mn)As by hydrogen passivation. *Applied Physics Letters*, 91(14) :142511–142511–3, oct 2007.
- [96] Laura Thevenard. *Etude des propriétés ferromagnétiques de (Ga,Mn)As par le biais de l'hydrogène*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), Paris, jul 2007.
- [97] R. Tommasi, P. Langot, and F. Vallée. Femtosecond hole thermalization in bulk GaAs. *Applied Physics Letters*, 66(11) :1361–1363, mar 1995.
- [98] P. Van Dorpe, Z. Liu, W. Van Roy, V. F Motsnyi, M. Sawicki, G. Borghs, and J. De Boeck. Very high spin polarization in GaAs by injection from a (Ga,Mn)As zener diode. *Applied Physics Letters*, 84(18) :3495–3497, apr 2004.
- [99] H. M. van Driel. Influence of hot phonons on energy relaxation of high-density carriers in germanium. *Physical Review B*, 19(11) :5928–5932, jun 1979.
- [100] J. Wang, I. Cotoros, K. M. Dani, X. Liu, J. K. Furdyna, and D. S. Chemla. Ultrafast enhancement of ferromagnetism via photoexcited holes in GaMnAs. *Physical Review Letters*, 98(21) :217401, may 2007.
- [101] J. Wang, Ł. Cywiński, C. Sun, J. Kono, H. Munekata, and L. J. Sham. Femtosecond demagnetization and hot-hole relaxation in ferromagnetic $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$. *Physical Review B*, 77(23) :235308, jun 2008.
- [102] J. Wang, C. Sun, J. Kono, A. Oiwa, H. Munekata, Ł. Cywiński, and L. J. Sham. Ultrafast quenching of ferromagnetism in InMnAs induced by intense laser irradiation. *Physical Review Letters*, 95(16) :167401, oct 2005.
- [103] Jigang Wang, Chanjuan Sun, Yusuke Hashimoto, Junichiro Kono, Giti A Khodaparast, Łukasz Cywiński, L J Sham, Gary D Sanders, Christopher J Stanton, and Hiro Munekata. Ultrafast magneto-optics in ferromagnetic III–V semiconductors. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 18(31) :R501–R530, aug 2006.
- [104] J. L. T. Waugh and G. Dolling. Crystal dynamics of gallium arsenide. *Physical Review*, 132(6) :2410–2412, dec 1963.
- [105] Pierre Weiss. L'hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique. *Journal de Physique Théorique et Appliquée*, 6(1) :661–690, 1907.

- [106] Roland Winkler. *Spin-orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems*, volume 191 of *Springer Tracts in Modern Physics*. Springer edition, 2003.
- [107] C. Zener. Interaction between the d shells in the transition metals. *Physical Review*, 81(3) :440, feb 1951.
- [108] Clarence Zener. Interaction between the d-shells in the transition metals. II. ferromagnetic compounds of manganese with perovskite structure. *Physical Review*, 82(3) :403–405, may 1951.
- [109] Clarence Zener. Interaction between the d-shells in the transition metals. III. calculation of the weiss factors in fe, co, and ni. *Physical Review*, 83(2) :299–301, jul 1951.