



**HAL**  
open science

# Transport polarisé en spin dans des nanostructures semiconductrices

Richard Mattana

► **To cite this version:**

Richard Mattana. Transport polarisé en spin dans des nanostructures semiconductrices. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Sud - Paris XI, 2003. Français. NNT : . tel-00004917

**HAL Id: tel-00004917**

**<https://theses.hal.science/tel-00004917>**

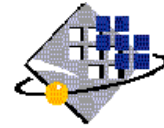
Submitted on 23 Feb 2004

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

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



UNIVERSITE PARIS XI  
UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY



N° D'ORDRE :

**THESE**

**présentée  
pour obtenir le grade de**

**DOCTEUR EN SCIENCES DE  
L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY**

**Discipline : Sciences des matériaux**

PAR

**Richard Mattana**

sujet : **Transport dépendant du spin dans des  
nanostructures semiconductrices**

Soutenue le 29 octobre 2003 devant la Commission d'examen

Mr Patrick Bruno	rapporteur
Mr Claude Chappert	président
Mr Joël Cibert	rapporteur
Mr Albert Fert	directeur de thèse
Mr Jean-Marie George	
Mr Georges Lampel	

Thèse préparée au sein du laboratoire de  
l'Unité Mixte de Physique CNRS-Thales (UMR 137)



*à Nathalie et Willy  
à ma mère et  
à la mémoire de mon père*



# Merci !

Je voudrais d'abord m'excuser auprès de Patrick Bruno et de Joël Cibert d'avoir envoyé ce manuscrit au cours de ce mois d'août caniculaire. Je les remercie d'avoir accepté d'être rapporteurs de ma thèse. Je remercie Georges Lampel pour avoir participé à ce Jury et Claude Chappert pour en avoir assuré la présidence.

Je remercie Alain Friederich de m'avoir accepté au sein de l'Unité Mixte de Physique CNRS-Thales.

Enfin je remercie la DGA d'avoir soutenu financièrement ce travail de thèse.

Mon arrivée à l'UMR résulte d'un cours d'Albert Fert en maîtrise sur l'enregistrement magnétique. Enthousiaste j'envoie un CV. Merci Frédéric de m'avoir accueilli. Un an plus tard je reviens, Merci Agnès et Javier ! Puis c'est au tour de Jean-Marie de me supporter, mais cette fois ci pour trois ans !

Albert, de l'enseignement des fondements du magnétisme à l'université jusqu'à l'écriture d'un article, j'ai énormément appris à tes côtés. Je te remercie mille et une fois.

Cette thèse a été co-encadrée par Jean-Marie George. Travailler avec toi, Jean-Marie, n'a vraiment pas été le baigne ! Les discussions du matin à la salle café étaient toujours les bienvenues et ont contribué à faire avancer ce travail. Merci pour ta disponibilité quotidienne et sans faille. Enfin merci pour les apéros et les plats de pâtes. Saches Jean-Marie, tu as été pour moi bien plus qu'un "codirecteur" de thèse. MERCI POUR TOUT.

Je tiens à saluer mon camarade de la vallée de l'Yvette, désormais parisien. Henri, je te remercie pour ton aide indispensable dans ce travail de thèse, pour ton dynamisme, ta bonne humeur et tes jeux de mots, je l'avoue. Et surtout merci d'avoir été là dans les moments plus difficiles. Saches Henri, malgré toute l'amitié que j'ai pour toi, je partirai désormais de chez toi toujours en claquant la porte !

## *Histoire d'un échantillon*

Sans remonter au mineurs de fond, cet échantillon voit le jour grâce à la maîtrise épitaxiale de Bruno Lépine (PALMS *d'or*). Saches Bruno que ce travail de thèse n'aurait pas pu voir le jour sans toi. Cher Bruno, je te remercie mille et une fois ! Le GaMnAs n'étant pas une spécialité purement bretonne, je remercie

grandement Aristide Lemaitre pour les échantillons GMR ou plutôt TMR. Je tiens aussi à saluer Victor Etgens, Mahmoud Eddrief, Max Marangolo (pour le MnAs, CrAs, Fe/ZnSe) et Xavier Marcadet (pour les diodes électroluminescentes) dont le travail n'apparaît pas dans ce manuscrit.

Puis l'échantillon est analysé et torturé par Pierre Galtier, Jean Olivier et Frédéric Wyczisk. Merci à vous ! Jacques Ferré l'a éclairé. Merci pour la magnéto-optique ! Les visites d'Amir Hamzic à l'UMR m'ont permis de glisser cet échantillon dans ses valises et de lui faire subir des recuits et des passages sous 9 teslas. Hvala Hamir. Il est temps maintenant de le lithographier. Merci Josette pour ton aide précieuse et indispensable. Désormais, on le cajole, on le chérie et on le place dans mi-champ. Il nous donne 38%. On fête ça au Guichet. Puis un maladroit s'appuie sur le rack ... il est mort (l'échantillon !). Il reste plus qu'à téléphoner à Bruno.

"Chers camarades de l'UMP"<sup>1</sup>, ce fut un réel plaisir de passer ces trois années à vos côtés. Je tiens à remercier grandement Frédéric pour les discussions, instructives et constructives, au fond du couloir, pour son sens critique et aussi pour m'avoir fait subir une réunion de contrat "Computational Magneto-electronic" (sorte de bizutage pour les jeunes doctorants de l'UMR)<sup>2</sup>. Cher lecteur de Charlie et fidèle de République-Bastille-Nation, Vincent je te salue (No PAsA-RaN !). Merci à toi Pierre, collègue de bureau qui a dû supporter ma musique. Je te remercie pour tes explications pédagogiques et enthousiastes. Merci Madjid pour tes conseils et ta franchise. Camarades thésards et post-docs, je vous salue. D'Orsay à Dourdan, en passant par Gérardmer, Marseille, Oléron, Brighton, Dublin, Cargèse<sup>3</sup>, Tampa et de la porte d'Orléans à la porte de Clignancourt, ce fut toujours festif, surprenant, enrichissant, enchantant, enivrant, mais aussi épuisant de partager ces instants. Cette fine équipe c'est dans le désordre : Julie, Martin et Martin, Manu, Pierre, Henri, Madjid, Laurent, Daniel, Julian, Karsten, Guillemin, Rozenn, Fredrik, Michaël, et tous ceux qui ont croisé nos routes.

Je tiens aussi à saluer Jean-Pierre, Agnès, Frédéric, Annie, Karim, Denis, Jean-Luc, Javier, Renato (merci pour les conseils et les articles) dont les discussions au détours d'un couloir ou à la salle café furent dépaysantes et enrichissantes.

Enfin, Merci Nelly pour ton aide précieuse qui facilite les démarches administratives et pour toutes les festivités.

Je tiens à remercier André Guivarc'h et Guy Jézéquel deux rennais tombés dans la turbulence du GaMnAs. Que Giancarlo Faini, Carlo Sirtori, Xavier Marie soient aussi remerciés.

---

<sup>1</sup>Alain Juppé, 2003.

<sup>2</sup>Par la même occasion je remercie le CAES de l'île d'Oléron pour les ballades cyclistes nocturnes ! Martin et Manu, je vous salue.

<sup>3</sup>Après cette rencontre corsée, merci Yan de m'avoir hébergé deux mois à Grenoble.

De la traversée des Cévennes au p'tit tour d'Europe et en passant par Fontainebleau, amitiés nées sur les bancs de la Fac d'Orsay, je vous salue.

Merci à Marco de la MJC de Palaiseau pour les "Jeudi musique" et à tous les patrons de bars qui préfèrent programmer des p'tits groupes plutôt que de placer un CD dans une chaîne Hi-Fi.

Merci à Charlie Hebdo pour les mercredis ensoleillés !

Merci au cercle familial, pour sa chaleur et son soutien. Merci Nathalie et Willy. Merci Elisabeth et Magaly pour votre innocence pas encore perdue.

Enfin maman, merci de m'avoir soutenu et de m'avoir laisser voguer librement au cours de toutes ces années sans savoir où tout ça va nous mener.

Où que tu sois, salut papa.

La vie, c'est comme une dent  
D'abord on y a pas pensé  
On s'est contenté de mâcher  
Et puis ça se gâte soudain  
Ça vous fait mal, et on y tient  
Et on la soigne et les soucis  
Et pour qu'on soit vraiment guéri  
Il vous faut l'arracher, la vie

*Boris Vian*  
*Je voudrais pas crever*





Il ne suffit pas que  
la pensée recherche sa réalisation,  
il faut que la réalité recherche la pensée

De la misère en milieu étudiant.  
*par des membres de*  
*l'Internationale Situationniste,*  
1966



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction à l'électronique de spin à base de semiconducteurs : motivations et problématiques</b>	<b>1</b>
<b>I</b>	<b>Semiconducteurs ferromagnétiques (III,Mn)V : étude de l'arséniure de Gallium dopé au manganèse.</b>	<b>9</b>
<b>2</b>	<b>Introduction aux semiconducteurs ferromagnétiques</b>	<b>11</b>
2.1	Semiconducteurs magnétiques dilués et semiconducteurs ferromagnétiques . . . . .	13
2.1.1	Différentes familles de semiconducteurs magnétiques . . . . .	13
2.1.2	Semiconducteurs et impuretés magnétiques . . . . .	16
2.1.2.1	Positions des niveaux d'énergie des métaux de transition . . . . .	16
2.1.2.2	Incorporation de métaux de transition : résultats expérimentaux . . . . .	18
2.2	Semiconducteurs ferromagnétiques (III,Mn)V . . . . .	22
2.2.1	Structure électronique . . . . .	22
2.2.1.1	Configuration électronique du manganèse . . . . .	22
2.2.1.2	Structure de bandes et densité d'états . . . . .	25
2.2.2	Origine du ferromagnétisme . . . . .	30
2.2.2.1	Interactions magnétiques mises en jeu . . . . .	31
2.2.2.2	Modèle de Zener et polarons magnétiques . . . . .	32
2.3	Semiconducteurs ferromagnétiques à hautes températures de Curie	35
2.4	Conclusion . . . . .	37
<b>3</b>	<b>Etude du semiconducteur ferromagnétique <math>\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}</math></b>	<b>39</b>
3.1	Croissance et structure du composé . . . . .	41
3.1.1	Conditions de croissance . . . . .	41
3.1.2	Analyses structurales . . . . .	43
3.2	Propriétés magnétiques . . . . .	45

3.2.1	Comportement en température . . . . .	45
3.2.2	Comportement en champ . . . . .	48
3.2.2.1	Moment magnétique et aimantation rémanente . . . . .	48
3.2.2.2	Anisotropie . . . . .	50
3.3	Propriétés de transport et de magnéto-transport . . . . .	56
3.3.1	Evolution en température . . . . .	56
3.3.2	Magnétorésistance . . . . .	60
3.3.2.1	Champ magnétique dans le plan des couches et courant électrique parallèle au champ magnétique . . . . .	60
3.3.2.2	Effet Hall . . . . .	65
3.3.2.3	Anisotropie de magnétorésistance . . . . .	67
3.4	Recuits : mise en évidence de l'influence des défauts . . . . .	71
3.5	Conclusion . . . . .	75
 <b>II Hétérostructures à base du semiconducteur ferromagnétique</b>		
<b>Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As</b>		<b>79</b>
 <b>4 Jonctions tunnel magnétiques</b>		<b>81</b>
4.1	Etat de l'art . . . . .	83
4.2	Diffusion du manganèse . . . . .	84
4.3	Propriétés de jonctions tunnel simple Ga <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> As/AlAs/Ga <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> As . . . . .	86
4.3.1	Magnétorésistance tunnel . . . . .	87
4.3.2	Dépendance en température de la polarisation des porteurs . . . . .	92
4.3.3	Dépendance en angle . . . . .	94
4.3.4	Dépendance en tension . . . . .	98
4.4	Influence de la hauteur de la barrière tunnel sur la magnéto- résistance tunnel . . . . .	102
4.4.1	Magnétorésistance . . . . .	103
4.4.2	Mécanismes de transport . . . . .	104
4.5	Conclusion . . . . .	108
4.6	Annexe A : expression de la variation angulaire de la magnéto- résistance tunnel . . . . .	110
4.7	Annexe B : transport tunnel et transport thermiquement activé : expression de la magnétorésistance . . . . .	111
 <b>5 Détection électrique d'un courant polarisé en spin injecté dans un puits quantique d'arséniure de gallium</b>		<b>113</b>
5.1	Propriétés de doubles jonctions tunnel magnétiques Ga <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> As/AlAs/GaAs/AlAs/Ga <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> As . . . . .	115
5.1.1	Structure des échantillons étudiés . . . . .	115

---

5.1.2	Magnétorésistance tunnel à 4K . . . . .	115
5.1.3	Mécanismes de transport : transport tunnel cohérent et transport tunnel séquentiel . . . . .	117
5.2	Détection électrique d'une accumulation de spins dans un puits quantique de GaAs . . . . .	122
5.3	Conditions de détection électrique d'un courant polarisé en spin injecté dans un puits quantique . . . . .	125
5.3.1	Temps de vie du spin des trous dans un puits quantique de type p : action de la température . . . . .	125
5.3.2	Influence de la résistance des barrières tunnel sur la magnétorésistance tunnel . . . . .	130
5.3.3	Discussion sur les mécanismes de relaxation de spin des trous dans les puits . . . . .	131
5.4	Conclusion . . . . .	133
5.5	Annexe A : canaux de conduction dans les puits de GaAs . . . . .	137
5.6	Annexe B : conditions d'injection et de détection - état de l'art expérimental . . . . .	141
5.7	Annexe C : jonctions tunnel F/I/N/I/F : expression de la magnétorésistance tunnel . . . . .	143
<b>6</b>	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>147</b>



# Chapitre 1

## **Introduction à l'électronique de spin à base de semiconducteurs : motivations et problématiques**

L'art est fait pour troubler.  
La science rassure.

*Georges Braque*



La mise en évidence expérimentale en 1988 d'un transport électrique dépendant du spin dans des multicouches Fe/Cr [8] constitue le point de départ d'une nouvelle discipline de la physique de l'état solide : l'électronique de spin<sup>1</sup>.

Les deux effets principaux étudiés jusqu'à présent sont la magnétorésistance géante (GMR) et la magnétorésistance tunnel (TMR)<sup>2</sup>. La structure caractéristique, associée à ces deux effets, est composée de deux matériaux ferromagnétiques séparés par un matériau non magnétique (couche métallique pour la GMR ou isolante pour la TMR). Une modification de la configuration magnétique des matériaux ferromagnétiques par un champ appliqué amène une variation de résistance électrique. Ce type d'effets est appliqué à la détection d'enregistrement magnétique (têtes de lecture) et à la réalisation de mémoires de type MRAM [18].

La croissance et l'étude d'hétérostructures semiconductrices intégrant des matériaux magnétiques représentent actuellement un axe de recherche plus exploratoire qui amènera probablement une nouvelle génération de composants électroniques [50]. Un des intérêts des semiconducteurs est un temps de vie du spin plus long que dans les métaux, et donc l'avantage d'une propagation de l'information du spin sur de plus grandes distances [5, 7]. Par ailleurs, associer matériaux magnétiques et semiconducteurs, doit permettre d'intégrer dans un même dispositif les fonctions mémoires, détection et traitement du signal.

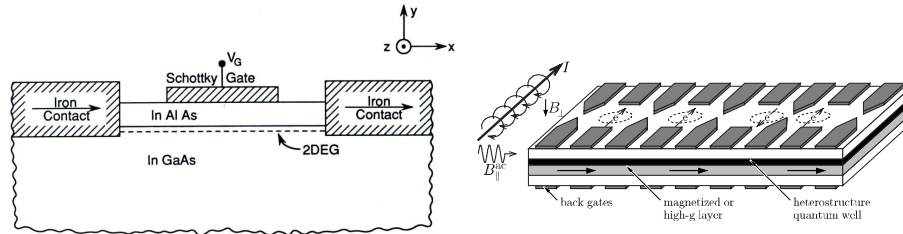


FIG. 1.1 – Transistor à spin proposé par Datta et Das [51]. Réseau de boîtes quantiques où les électrons sont confinés et peuvent être manipulés individuellement. D'après V. N. Golovach and D. Loss [82, 27].

Au delà de la réalisation de ces nouveaux mais relativement classiques concepts, l'utilisation du spin dans des semiconducteurs, et plus précisément de la nature quantique du spin, pourrait constituer une des voies pour la réalisation de calculs ou de cryptographie quantiques. La figure 1.1 représente deux propositions d'utilisation du spin dans des structures semiconductrices (gaz bidimensionnels et boîtes quantiques) pour l'électronique classique et quantique<sup>3</sup>.

<sup>1</sup>Plusieurs articles de revue sont consacrés à l'électronique de spin, voir par exemple l'article de Prinz [197], Wolf [263] ou Fert [71, 72]

<sup>2</sup>Voir les articles de revue de Barthélémy [9] et de Tsymbal [247] pour la GMR et la TMR

<sup>3</sup>Pour plus d'informations, se référer par exemple aux ouvrages [25, 6] et à l'article de D'yako-

L'étape préalable à la réalisation de tels dispositifs est l'injection d'un courant polarisé en spin dans un semiconducteur et la conservation de l'information de spins dans ce semiconducteur. L'injection, la manipulation et la détection de spins dans des semiconducteurs ne constituent pas un domaine récent de la physique. Dès les années 60, les études des propriétés du spin des porteurs dans des semiconducteurs ont été effectuées par des moyens optiques<sup>4</sup>. Toutefois, depuis un peu plus d'une décennie, l'injection électrique de porteurs polarisés en spin, nécessaire à la réalisation de dispositifs purement électroniques, constitue un nouveau défi.

L'injection électrique de spins à partir de métaux de transition a été l'objet de nombreuses études dont les résultats sont restés longtemps décevants. Ce n'est qu'assez récemment, en 1999, qu'une injection de spins efficace dans un semiconducteur a pu être réalisée à partir d'un semiconducteur magnétique [74]. Actuellement deux voies sont explorées : l'injection à partir de métaux de transition et de semiconducteurs ferromagnétiques. L'injection électrique dans des semiconducteurs à partir de métaux de transition s'est heurtée à deux obstacles majeurs : la réactivité chimique à l'interface métal ferromagnétique/semiconducteur (F/SC) et la différence de conductivité ou de densité d'états entre les deux types de matériaux.

La croissance de métaux de transition (Co, Fe par exemple) sur des semiconducteurs (GaAs, Si par exemple) pose le problème de la formation d'alliage à l'interface métal ferromagnétique / semiconducteur. La formation de ce composé, généralement non magnétique semble rédhibitoire pour injecter un courant polarisé en spin dans des semiconducteurs. Ces problèmes de croissance sont étudiés depuis les années 80 et notamment pour les semiconducteurs III-V<sup>5</sup>.

Ce n'est que depuis peu que l'obstacle fondamental a été soulevé. En 2000 Schmidt *et al.* [214, 215] ont montré que la polarisation des spins injectés dans un semiconducteur ne pouvait pas excéder 0.1% dans un régime de transport diffusif. Cette limitation, liée à la différence de conductivité (ou de densité d'états) entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur associée à une relaxation de spin conséquente dans le métal, induit une dépolarisation du courant électrique à l'interface F/SC.

Une des solutions possibles, proposée par Rashba [199] et par Fert *et al.* [73], consiste à insérer une résistance dépendante du spin à l'interface F/SC (jonction tunnel ou Schottky mais également un contact ohmique suffisamment résistif). L'insertion de cette résistance d'interface, si elle conserve le spin, à pour effet de

---

nov [61].

<sup>4</sup>Voir par exemple l'ouvrage "Optical Orientation" [152].

<sup>5</sup>Pour le système Fe/GaAs, on peut se référer aux travaux du "Naval Research Laboratory", et aux thèses de A. Filipe [76] et de T. Wirth [262] et C. Lallaizon [133].

conserver la polarisation du courant à l'interface par l'intermédiaire d'une forte accumulation de spins dans le semiconducteur.

En plus de cette condition d'injection, il existe une condition supplémentaire pour une détection électrique du courant de spins injecté. Celle-ci traduit le temps de vie fini du spin dans le semiconducteur. Les limites inférieures et supérieures dépendent donc de la nature du métal ferromagnétique, du semiconducteur et de la géométrie de la structure<sup>6</sup> [73, 103]. En ce sens, comme nous aurons l'occasion de l'évoquer dans la suite du manuscrit, une détection électrique du spin par des mesures de magnétorésistance nécessite une adaptation parfaite des interfaces F/SC. L'ensemble de ces arguments montre l'importance du choix d'une combinaison de matériaux (magnétiques, semiconducteurs non magnétiques et barrières)

A l'heure actuelle, les métaux de transition, les pnictides de manganèse (MnAs par exemple) et les semiconducteurs magnétiques sont utilisés comme injecteurs. La majorité des expériences publiées consiste à injecter un courant électrique polarisé en spin dans une diode électroluminescente (LED) à travers le semiconducteur et à mesurer la polarisation de la lumière émise. Nous en établissons ici une brève revue.

*Semiconducteurs ferromagnétiques* : les premiers résultats marquants d'injection de spins ont été publiés dans la revue *Nature* en décembre 1999 par Fiederling *et al.* [74] et Ohno *et al.* [178]. Les deux articles présentaient des expériences d'injection de spins dans une LED à partir de semiconducteurs magnétiques.

Fiederling *et al.* ont utilisé le semiconducteur  $\text{Be}_{0.07}\text{Mn}_{0.03}\text{Zn}_{0.9}\text{Se}$  qui présente l'avantage de pouvoir être 100% polarisé en spin par un fort champ magnétique et à basse température. Ils ont montré, pour des champs magnétiques suffisamment élevés ( $\sim 5\text{T}$ ) que l'efficacité d'injection était de 90% (figure 1.2). Ohno *et al.* ont utilisé le semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  afin de polariser les porteurs<sup>7</sup>. Les taux d'injection de spins publiés par les groupes de Ohno et d'Awschalom à partir du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  restent faibles (environ 8%). Dernièrement le groupe de l'IMEC a mesuré une polarisation de spins injectés de 50% à partir du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  [252]. Ils ont utilisé une diode Zener ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs } n^+$ ) afin de convertir des trous en électrons polarisés qui présentent l'avantage d'avoir un temps de vie de spin beaucoup plus long et donc plus facilement détectables. Les semiconducteurs  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  [113, 112] et  $\text{CdCrSe}_4$  [111] ont été aussi utilisés (groupe de Jonker). On peut citer également les résultats concernant l'injection de spins dans des boîtes quantiques d'InAs à partir du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  [81, 44].

<sup>6</sup>Dans le cas d'un régime balistique, la présence de résistances d'interface n'est plus nécessaire.

<sup>7</sup>Ces résultats sont soumis à débat puisque la mesure de la polarisation de la lumière n'a pas été effectuée dans la géométrie Faraday. Plus récemment cette même équipe a réalisé une injection de spins dans une LED dans la bonne configuration géométrique et ont obtenu 7% de lumière polarisée [268].

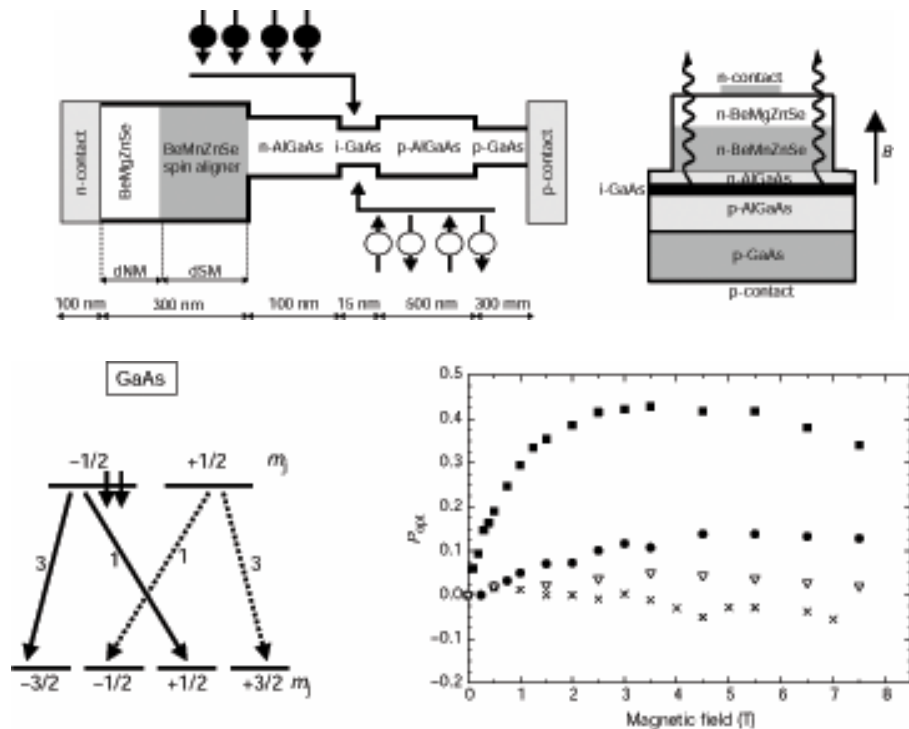


FIG. 1.2 – Structure d’une diode électroluminescente. Les porteurs polarisés sont injectés dans la LED à partir d’un matériau magnétique. Les électrons polarisés se recombinent dans le puits quantique avec les trous pour former des photons polarisés. D’après Fiederling *et al.* [74].

*Métaux de transition* : ces matériaux présentent des températures de Curie élevées ( $>1000\text{K}$ ) et une polarisation de spin relativement importante à la température ambiante ( $\sim 40\%$ ). Cependant l’utilisation des métaux de transition nécessite d’une part un contrôle précis de la croissance et d’autre part soit l’insertion d’une barrière tunnel à matériau isolant, soit un dopage sélectif du semiconducteur pour accommoder très finement le profil de la barrière Schottky afin d’injecter par effet tunnel [92]. Les travaux des groupes de Ploog (Paul Drude Institute for Solid State Electronics, Berlin) et de Jonker (Naval Research Laboratory, Washington) ont concerné l’injection de spins dans GaAs et  $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  à partir du fer. Ils ont obtenu respectivement 2% de polarisation optique à température ambiante [279] et 30% à basse température [91, 92]. On peut aussi citer les résultats du groupe de Toulouse (LPMC et LAAS) qui ont obtenu 4% de lumière polarisée à basse température à partir du cobalt (déposé sur  $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ ) [139].

Une alternative possible afin de contourner les problèmes de réactivités chimiques et de désaccord d’impédance est l’insertion d’une barrière tunnel. Deux

groupes ont reporté des résultats probants à partir de métaux de transition et en insérant une barrière tunnel d' $\text{Al}_2\text{O}_3$ <sup>8</sup>.

*Autres métaux* : l'utilisation de métaux à base d'arsenic ou d'antimoine (MnAs, MnSb, CrAs ou CrSb par exemple) présentent l'avantage d'une intégration plus facile dans les structures semiconductrices III-V et permet ainsi de s'affranchir de la réactivité chimique. Pour l'instant les résultats d'injection de spins à partir de ces métaux restent marginaux. On peut noter toutefois les résultats du groupe de Ploog qui ont réussi à injecter un courant polarisé dans une LED à partir du MnAs [198].

A ce jour, nous devons noter que seules des expériences en détection optique ont été réalisées lorsque l'injection de spin est effectuée à partir d'un matériau magnétique. Un des problèmes majeurs reste la détermination de la polarisation du courant à partir de la polarisation optique même en supposant que les règles de sélections et de conversions optiques soient bien établies. La raison en est principalement la durée de vie finie des excitations électrons-trous qui a pour effet de perturber la mesure [105, 90].

Les expériences de détection électrique du spin (c'est à dire la transformation de la polarisation de spin dans le semiconducteur en signal électrique et non optique) est actuellement un des défis importants. Le deuxième défi est d'injecter et de détecter à température ambiante et à partir d'un état rémanent d'aimantation. C'est dans ce cadre que s'inscrit ce travail de thèse.

Bien que la température de Curie du semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  soit très inférieure à la température ambiante, ce matériau présente l'avantage de s'intégrer relativement facilement dans des hétérostructures semiconductrices, puits quantiques AlAs/GaAs/AlAs dans le cas présent, et permet ainsi d'étudier les propriétés physiques d'injection et de détection de spins. Les études effectuées sur ces puits représente, je pense, un exemple assez concret des conditions requises pour détecter électriquement un courant polarisé en spin. En ce sens ils constituent un premier résultat dans le domaine.

La première partie du manuscrit est dédiée à l'étude du semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Le chapitre 2 constitue une introduction aux semiconducteurs ferromagnétiques III-V substitués manganèse. Le chapitre 3 est consacré à l'étude du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  élaboré en couches minces. L'étude de l'influence de la concentration de manganèse sur les propriétés magnétiques et électriques constitue le cœur de ce chapitre. L'anisotropie magnétique et de magnétorésistance, le rôle des défauts seront aussi discutés.

---

<sup>8</sup>Manago *et al.* [145] ont utilisé les métaux Co, Fe et NiFe et ont obtenu 1% de lumière polarisée à température ambiante. Motsnyi *et al.* [159, 160, 253] ont utilisé le CoFe et ont analysé la polarisation de la lumière (9% à 80K) en utilisant l'effet Hanle.

La deuxième partie du manuscrit est consacrée à l'étude du transport dépendant du spin dans des hétérostructures à base de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Le chapitre 4 présente les études effectuées sur des jonctions tunnel  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et sur l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$ . Enfin le chapitre 5 présente les résultats d'une détection électrique de spins injectés dans un puits quantique d'arséniure de gallium. Cette étude montre, de façon corollaire, que la magnétorésistance obtenue peut être utilisée comme sonde du temps de vie du spin dans des nanostructures semiconductrices.



**Première partie**

**Semiconducteurs  
ferromagnétiques (III,Mn)V :  
étude de l'arséniure de Gallium  
dopé au manganèse.**





## Chapitre 2

# Introduction aux semiconducteurs ferromagnétiques

...

Mais les vrais voyageurs sont ceux-là seuls qui partent  
Pour partir ; cœur légers, semblables aux ballons,  
De leur fatalité jamais ils ne s'écartent,  
Et, sans savoir pourquoi, disent toujours : Allons !

Ceux là dont les désirs ont la forme des nues  
Et qui rêvent, ainsi qu'un conscrit le canon,  
De vastes voluptés, changeantes, inconnues,  
Et dont l'esprit humain n'a jamais su le nom !

*Baudelaire,  
Le Voyage*

**Sommaire**

---

<b>2.1 Semiconducteurs magnétiques dilués et semiconducteurs ferromagnétiques</b> . . . . .	<b>13</b>
2.1.1 Différentes familles de semiconducteurs magnétiques	13
2.1.2 Semiconducteurs et impuretés magnétiques . . . . .	16
2.1.2.1 Positions des niveaux d'énergie des métaux de transition . . . . .	16
2.1.2.2 Incorporation de métaux de transition : résultats expérimentaux . . . . .	18
<b>2.2 Semiconducteurs ferromagnétiques (III,Mn)V</b> . . . . .	<b>22</b>
2.2.1 Structure électronique . . . . .	22
2.2.1.1 Configuration électronique du manganèse	22
2.2.1.2 Structure de bandes et densité d'états . . . . .	25
2.2.2 Origine du ferromagnétisme . . . . .	30
2.2.2.1 Interactions magnétiques mises en jeu . . . . .	31
2.2.2.2 Modèle de Zener et polarons magnétiques	32
<b>2.3 Semiconducteurs ferromagnétiques à hautes températures de Curie</b> . . . . .	<b>35</b>
<b>2.4 Conclusion</b> . . . . .	<b>37</b>

---

Après avoir présenté les différentes familles de semiconducteurs présentant une phase magnétique, ce chapitre sera entièrement consacré aux semiconducteurs où sont incorporées aléatoirement des impuretés magnétiques. Je discuterai dans un premier temps de l'influence de la nature de l'impureté magnétique et du semiconducteur hôte sur la présence d'une phase ferromagnétique puis je donnerai un aperçu des différents systèmes explorés actuellement. La deuxième partie de ce chapitre est consacrée aux semiconducteurs III-V dopés au manganèse, j'exposerai les propriétés électroniques et l'origine du ferromagnétisme de ces composés.

## 2.1 Semiconducteurs magnétiques dilués et semiconducteurs ferromagnétiques

La terminologie désignant les semiconducteurs présentant une phase magnétique (ferromagnétisme, antiferromagnétisme, état verre de spin, ...) a évolué au cours du temps. Les termes de semiconducteur magnétique dilué (DMS pour Diluted Magnetic Semiconductor) ou de semiconducteur semimagnétique ont été employés à partir des années soixante lorsque ces semiconducteurs présentaient une phase magnétique verre de spin. L'appellation "semiconducteur ferromagnétique" est apparue au début des années 90 lorsque les progrès des techniques d'élaboration ont permis d'incorporer une quantité plus importante d'éléments magnétiques dans les semiconducteurs III-V et à partir du moment où ces semiconducteurs présentaient une phase ferromagnétique clairement définie.

### 2.1.1 Différentes familles de semiconducteurs magnétiques

Les semiconducteurs "magnétiques" peuvent être divisés en deux familles distinctes :

- semiconducteurs où les éléments magnétiques forment un réseau périodique (Fig. 2.1A), EuS,  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$  par exemple,
- semiconducteurs où les éléments magnétiques substituent aléatoirement les cations (Fig. 2.1B)  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ ,  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  par exemple.

Les différentes familles de semiconducteurs où les éléments magnétiques forment un réseau périodique (Fig. 2.1A) sont par exemple les chalcogénures à base de chrome ou d'euporium et les manganites. Les chalcogénures à base de chrome<sup>1</sup> ( $\text{ACr}_2\text{X}_4$ , A=Zn, Cd et X=S ou Se par exemple) de structure spinelle ont été étudiés au début des années 50 et plus récemment en couches minces (par exemple le composé ferromagnétique  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$  [187] ou le  $\text{FeCr}_2\text{S}_4$  ferri-magnétique [164]). Dans ces composés, il existe une compétition entre l'interac-

<sup>1</sup>voir par exemple le chapitre *Ferromagnetic and antiferromagnetic semiconductors* de la revue *Sulphospinels* de Van Stapele [230].

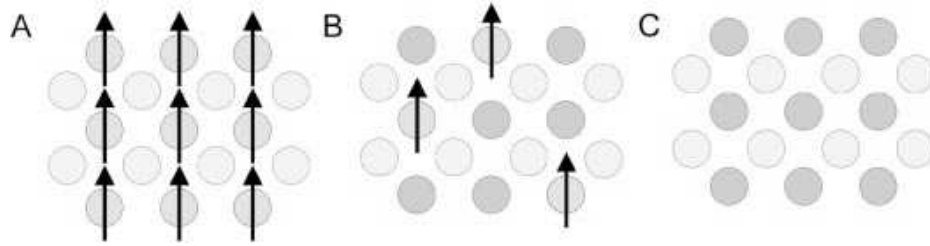


FIG. 2.1 – Semiconducteurs où les éléments magnétiques forment un réseau périodique (Fig. 2.1A) ou sont répartis de manière aléatoire (Fig. 2.1B). Semiconducteurs "traditionnels" sans éléments magnétiques (Fig. 2.1C) (d'après H. Ohno [168]).

tion ferromagnétique entre les ions  $\text{Cr}^{3+}$  et le super-échange antiferromagnétique Cr-X-X-Cr à plus grande distance. Les chalcogénures à base d'euprium ( $\text{EuO}$ ,  $\text{EuS}$ ) ont été étudiés dès les années 60<sup>2</sup>. Il existe, pour ces composés, une compétition entre les interactions antiferromagnétiques (cation-anion-cation) et ferromagnétiques (cation-cation). Actuellement, plusieurs groupes élaborent le sulfure d'euprium en couches minces (quelques nanomètres) pour notamment les utiliser comme barrières tunnel magnétiques afin de réaliser, par exemple, des filtres à spin [135, 75]. Les manganites peuvent être aussi présentées comme des semiconducteurs magnétiques. L'ordre ferromagnétique de ces composés réside dans la compétition entre l'interaction ferromagnétique de double échange et l'interaction antiferromagnétique de superéchange<sup>3</sup>.

Les semiconducteurs II-VI, IV-VI dopés par des impuretés magnétiques furent les premiers étudiés alors que l'étude des semiconducteurs magnétiques III-V, IV et II-IV-VI<sub>2</sub> est plus récente.

Les semiconducteurs II-VI, essentiellement tellurure et sélénure, dopés au manganèse, au fer ou au cobalt ont été intensivement étudiés au cours des années 70-80<sup>4</sup>. Les propriétés magnétiques de ces semiconducteurs II-VI sont dominées par les interactions de super-échange antiferromagnétiques entre les spins localisés. Ceci induit un caractère paramagnétique, antiferromagnétique ou verre de spin selon la concentration d'ions magnétiques incorporés. Les progrès des techniques de croissance et notamment le meilleur contrôle du dopage de ces semiconducteurs ont permis de mettre en évidence une phase ferromagnétique induite par les porteurs (trous) itinérants [94, 67]. Actuellement les études se concentrent préférentiellement sur les propriétés magnétiques, électriques et optiques d'hétéro-

<sup>2</sup>Voir par exemple l'article de revue de P. Wachter [256].

<sup>3</sup>Voir par exemple les articles de revue de M. Ziese [280] et de Coey *et al.* [46].

<sup>4</sup>Plusieurs articles de revues ont été publiés au cours des années 80, on pourra par exemple se référer à l'article de K. Kossut *et al.* [126].

structures (par exemple puits quantiques, diodes p-i-n) et sur les semiconducteurs ferromagnétiques à température ambiante ( $Zn_{1-x}Co_xO$ ,  $Zn_{1-x}Cr_xTe$ ).

Les semiconducteurs IV (semiconducteurs de base de l'électronique) faisaient jusqu'à présent l'objet de peu d'études. Depuis quelques années, plusieurs groupes ont reporté la présence de phases ferromagnétiques. On peut noter les résultats obtenus sur le Ge dopé Mn [186, 278, 40, 188] ou Cr [120, 42], ou sur le SiC dopé Fe, Ni ou Mn [242].

Les semiconducteurs III-V (essentiellement dopés au manganèse) font aujourd'hui l'objet de nombreuses publications. Le premier composé étudié en couche mince fût l'arséniure d'indium dopé au Mn. Le groupe de H. Ohno a reporté en 1989 l'existence d'une phase homogène d' $In_{1-x}Mn_xAs$  ferromagnétique [162] puis ils ont montré en 1992 que le ferromagnétisme était induit par les trous [174]. Ces deux publications ont encouragé de nombreux groupes à étudier les semiconducteurs III-V dopés au Mn et notamment le composé  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  qui est l'objet, depuis 1996 [175], de nombreuses publications expérimentales et théoriques. Quelques revues relatent les propriétés de ces semiconducteurs ferromagnétiques III-V, notamment les articles de F. Matsukura *et al.* [147, 170] et des revues plus théoriques de König *et al.* [123] et Sanvito *et al.* [211].

Une autre famille de semiconducteurs magnétiques, plus "exotiques", sont les chalcopyrites. A ce jour, uniquement des résultats pour les matériaux massifs ( $Zn_{1-x}Mn_xGeP_2$  et  $Cd_{1-x}Mn_xGeP_2$ ) ont été reportés ( $T_c \sim 310K$ ) [39, 212, 143, 277, 151].

Parmi ces différentes familles de semiconducteurs magnétiques, les chalcogénures ne semblent pas être pour le moment des bons candidats pour la réalisation de dispositifs en raison notamment de la difficulté d'élaborer ces matériaux et aux faibles températures de Curie. Les chalcopyrites présentent l'avantage d'avoir des températures de Curie supérieures à 300K mais ces composés sont difficilement incorporables dans les structures IV ou III-V. Cependant, ces chalcopyrites ont la particularité de posséder une phase ferromagnétique pour des composés de type p ou n<sup>5</sup>. Les semiconducteurs où l'on incorpore des impuretés magnétiques semblent plus attrayants pour leurs intégrations dans des hétérostructures semiconductrices. En effet, les semiconducteurs magnétiques IV et III-V présentent l'avantage d'une meilleure compatibilité avec les structures semiconductrices traditionnelles IV (matériaux de base de l'électronique actuelle) et III-V (matériaux utilisés pour les technologies de pointes et notamment les dispositifs à hautes fréquences)<sup>6</sup>.

<sup>5</sup>Par exemple le composé  $MnGeP_2$  est de type p et le composé  $MnGeAs_2$  de type n [38].

<sup>6</sup>L'utilisation de semiconducteurs II-VI reste marginale dans la microélectronique.

## 2.1.2 Semiconducteurs et impuretés magnétiques

La suite de ce chapitre est désormais entièrement consacrée aux semiconducteurs où sont incorporées des impuretés magnétiques.

### 2.1.2.1 Positions des niveaux d'énergie des métaux de transition

Que ce soit pour les semiconducteurs II-VI, III-V ou IV plusieurs éléments magnétiques (3d) ont été incorporés avec plus ou moins de facilité. T. Dietl *et al.* [56] ont montré que des semiconducteurs, dopés au manganèse, pouvaient présenter une phase ferromagnétique si ils sont de type p. En utilisant un modèle de Zener, ils montrent que l'ordre magnétique tire son origine de l'interaction d'échange p-d entre les ions magnétiques et les porteurs itinérants<sup>7</sup>. La valeur de l'énergie d'échange p-d étant fortement liée au nombre d'électrons dans la bande d et à la configuration de ces électrons (configuration haut spin ou bas spin), l'état magnétique et la valeur de la température de Curie dépendent de l'impureté magnétique incorporée et du semiconducteur hôte. Ainsi selon que le niveau d'énergie du métal de transition se situe dans la bande de valence ou au milieu du gap du semiconducteur, on pourra obtenir une phase ferromagnétique ou non.

La figure 2.2 représente la position des niveaux d'énergie des états donneurs et accepteurs des métaux de transition par rapport au haut (bas) de la bande de valence (conduction) pour des semiconducteurs II-VI et III-V [134,53]. Les carrés et les triangles représentent les niveaux d'énergie des états donneurs et accepteurs correspondant aux bandes de Hubbard inférieures et supérieures.

#### Semiconducteurs II-VI

Dans le cas des semiconducteurs II-VI, les niveaux donneurs correspondent à la transition d'un ion magnétique doublement ionisé  $M^{2+}$  en ion  $M^{3+}$  et pour les niveaux accepteurs à une transition de  $M^{2+}$  à  $M^+$ . La position des niveaux accepteurs se trouvant très au dessus de la bande de valence (figure 2.2 gauche), il est alors nécessaire de co-doper (azote ou phosphore) pour obtenir un semiconducteur de type p et ainsi observer une phase ferromagnétique.

Expérimentalement, une phase ferromagnétique a été observée pour les composés  $Cd_{1-x}Mn_xTe$  [94] et  $Zn_{1-x}Mn_xTe$  [67] dopés à l'azote et au phosphore. Cependant, il a été montré qu'on pouvait obtenir une phase ferromagnétique pour le semiconducteur ZnO de type n dopé au cobalt [248] et au vanadium [204]. L'origine du ferromagnétisme de ces derniers composés reste encore à élucider.

<sup>7</sup>J'exposerai, au cours du paragraphe 2.2.2, plus amplement l'origine du ferromagnétisme de ces composés.

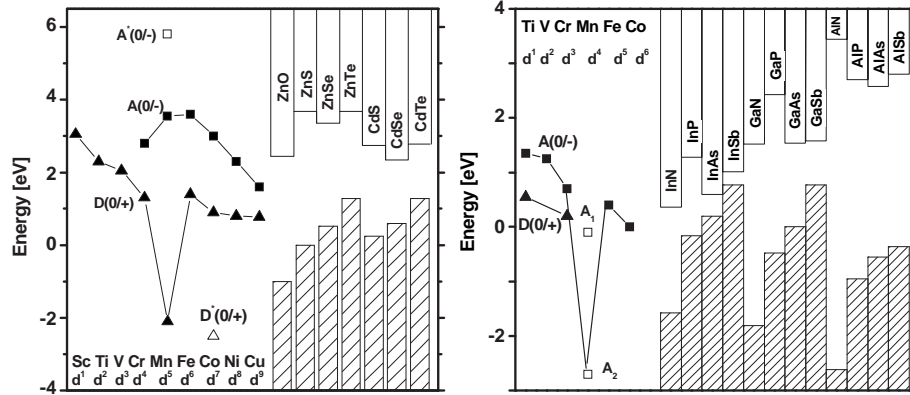


FIG. 2.2 – Positions des niveaux des métaux de transition par rapport aux bandes de conduction et de valence de semiconducteurs II-VI et III-V. Les triangles représentent les états donneurs et les carrés les états accepteurs (d’après Dietl *et al.* [53, 16]).

### Semiconducteurs III-V

Pour les semiconducteurs III-V, les états donneurs correspondent à la transition d’un ion triplement ionisé  $M^{3+}$  en un ion  $M^{4+}$  et les états accepteurs à la transition  $M^{3+}$  en  $M^{2+}$ . Les états  $A_1$  et  $A_2$  (Fig. 2.2) correspondent aux états accepteurs déterminés expérimentalement pour les composés (Ga,Mn)P [127] et (Ga,Mn)As [181]. Si le niveau accepteur du Mn était situé en  $A_2$ , tous les semiconducteurs III-V seraient de type p. Les conditions requises pour l’apparition d’une phase ferromagnétique selon le modèle de Zener [56] sont alors satisfaites. Les semiconducteurs GaAs et InSb seraient ferromagnétiques et de type p pour le Mn (en position  $A_2$  ou  $A_1$ ) et le Co dont le niveau d’énergie est dans le gap. Pour le fer dans GaSb et InSb et pour le Co et le Mn (en position  $A_1$ ) dans GaAs et InAs, les niveaux accepteurs étant à proximité du haut de la bande de valence, on s’attend à avoir un semiconducteur de type p et par conséquent une phase ferromagnétique pourrait être obtenue.

Ce diagramme reflète l’influence de la nature du métal et du semiconducteur sur la position des états donneurs et accepteurs mais ne peut pas être utilisé afin d’extraire des énergies d’ionisation précises. La forte interaction d’échange p-d peut donner lieu à la formation d’un complexe ion+trou (un trou reste localisé autour de l’impureté magnétique) qui induit des niveaux dans la bande interdite. L’état fondamental est alors  $d^{n+1}$  plus un trou ( $3d^5+h$  pour le Mn dans les semiconducteurs III-V par exemple<sup>8</sup>) et non pas  $d^n$  ( $d^4$ ). La position des niveaux

<sup>8</sup>La configuration électronique des ions Mn dans les semiconducteurs III-V sera détaillée au cours du paragraphe 2.2.1.1 (page 22).



d'énergie du système  $3d^{n+1}+h$  est alors située en haut de la bande de valence des semiconducteurs hôtes (figure 2.3).

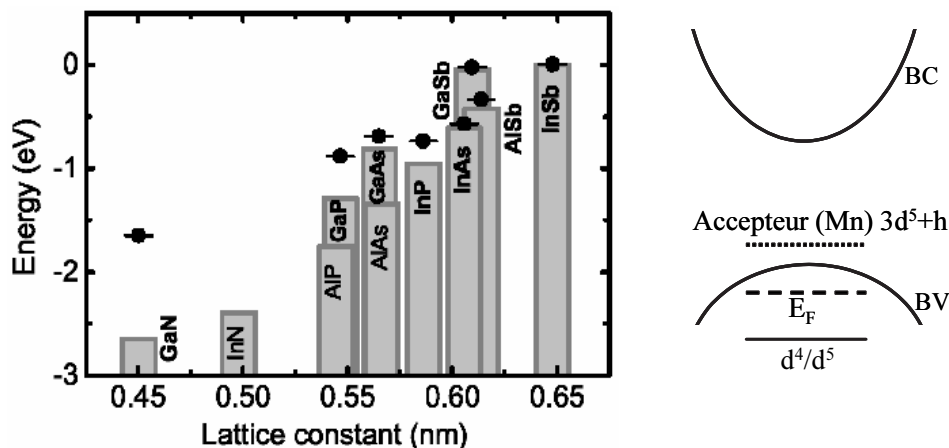


FIG. 2.3 – Positions des niveaux d'énergie du Mn, déterminées expérimentalement, par rapport au haut de la bande de valence (d'après Dietl *et al.* [53]). Positions schématique des états accepteurs  $d^4/d^5$ , du niveau de Fermi et du niveau  $3d^5+h$  dans le cas des semiconducteurs  $\text{III}_{1-x}\text{Mn}_x\text{V}$ .

### 2.1.2.2 Incorporation de métaux de transition : résultats expérimentaux

Au cours de ces dernières années, pratiquement tous les éléments 3d ont été incorporés dans les semiconducteurs IV, II-VI et III-V. Le but de ce paragraphe n'est pas de faire une revue exhaustive des semiconducteurs dopés par des impuretés magnétiques mais d'évoquer les différents systèmes explorés actuellement. Le tableau 2.1 (page 21) donne un aperçu des semiconducteurs ferromagnétiques présentant une  $T_c$  proche ou supérieure à la température ambiante.

#### Semiconducteurs à base de chrome

Le chrome est sans doute l'élément le plus utilisé après le Mn. Il a été incorporé dans les semiconducteurs IV, II-VI et III-V. Parmi les semiconducteurs IV, on peut se référer aux travaux de Choi *et al.* [42]. Ils ont élaboré des monocristaux de germanium dopé au Cr (1%) et ont reporté des températures de Curie de l'ordre de 125K. Cependant la présence d'une phase secondaire ferromagnétique,  $\text{Cr}_{11}\text{Ge}_{19}$ , dont la température de Curie est de l'ordre de 90K n'est pas à exclure. Par ailleurs le groupe de Jonker [120] a élaboré des couches minces de  $\text{Cr}_y\text{Ge}_{1-y}$  avec des concentrations de Cr de 1% à 4%. Ces couches étaient toutes paramagnétiques. Ils ont aussi montré que l'augmentation de la concentration de Cr dans des

couches minces de  $\text{Cr}_y\text{Mn}_x\text{Ge}_{1-x-y}$  induisait une diminution de la température de Curie [186]. L'incorporation du chrome provoque une augmentation de la densité de trous mais en contre partie une phase secondaire paramagnétique ( $\text{Ge}_3\text{Cr}_5$ ) se forme.

Parmi les semiconducteurs II-VI, H. Saito *et al.* [206, 205] ont reporté la présence d'une phase ferromagnétique dans le composé ZnTe. La température de Curie est de l'ordre de 15K (pour 3.5% de chrome) et ce composé a une densité de trous de  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Cette température de Curie reste faible mais est tout de même supérieure aux semiconducteurs II-VI dopés au Mn où les Tc sont fréquemment inférieures à 4K. Plus récemment, pour des concentrations de Cr élevées (20%), ils ont obtenu une phase ferromagnétique à température ambiante et ont montré qu'il existait une forte interaction entre les spins des porteurs localisés (d) et des porteurs délocalisés (sp) [207].

Le chrome a été incorporé dans les semiconducteurs III-V GaN, AlN et GaAs. M. Yamada *et al.* [266] ont élaboré le composé (Ga,Cr)As avec des concentrations de chrome de 3% à 26%. La température de Curie de ces composés reste inférieure à la température ambiante. A. Dakhama *et al.* [49] ont reporté des températures de Curie de 10K, la densité de porteurs des couches minces étant de l'ordre  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$ . Plusieurs groupes ont réussi à incorporer du chrome dans des nitrures<sup>9</sup> (monocristaux [185] et couches minces [264, 267]) et ont observé une phase ferromagnétique à température ambiante.

### Semiconducteurs à base de fer

L'incorporation de fer dans des semiconducteurs fait l'objet pour l'instant de peu de publications. On peut noter cependant les résultats concernant les semiconducteurs SiC, GaN et ZnO. Theodoropoulou *et al.* [242, 243] ont implanté des atomes de fer (5%) dans le semiconducteur IV-IV SiC et ont mesuré une phase ferromagnétique jusqu'à 270K. Akinaga *et al.* [3] ont élaboré par épitaxie par jets moléculaires des couches de GaN dopées au fer. La température de Curie de ces couches n'excédait pas 100K (pour une concentration de fer de  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ). Han *et al.* [89] ont reporté une température de Curie de l'ordre de 550K pour le semiconducteur ZnO dopé au Fe et ont montré que l'introduction de cuivre comme dopant électrique (1%) augmentait considérablement le moment magnétique.

### Semiconducteurs à base de cobalt

Le cobalt a été essentiellement intégré dans des oxydes dont notamment le ZnO et le  $\text{TiO}_2$ . Quelles que soient les méthodes d'élaboration (épitaxie par jets

<sup>9</sup>Park *et al.* [185] ont élaboré des monocristaux de GaN dopé Cr et ont obtenu une Tc de 280K. Wu *et al.* [264] ont élaboré des couches minces d'AlN par MBE dopés au Cr (de 5% à 15%). La Tc de ces couches est supérieure à 350K. Yang *et al.* [267] ont élaboré les couches minces d'AlN par pulvérisation et les concentrations de Cr varient de 1% à 3.5%. La température de curie est supérieure 340K. Récemment Frazier *et al.* ont obtenu une phase FM à température ambiante pour des couches d'AlN dopées au Cr (3%) et élaborées par MOCVD [78].

moléculaires, pulvérisation cathodique ou ablation laser), l'incorporation du cobalt, sans former d'agrégats métalliques, semble beaucoup plus délicate que pour les autres métaux [118, 30, 119, 229]. Cependant plusieurs groupes ont reporté la présence d'une phase homogène de ZnO dopé au cobalt avec des  $T_c$  supérieures à la température ambiante [248, 201]. Des températures de Curie supérieures à 300K ont été mesurées pour des couches de  $TiO_2$  dopés au cobalt élaborées par ablation laser, par épitaxie par jets moléculaires (EJM) [31] ou par des techniques combinatoires laser - EJM [149]. L'origine du ferromagnétisme des composés ZnO ou  $TiO_2$  dopés Co reste encore à éclaircir<sup>10</sup>.

#### **Semiconducteurs à base de vanadium ou de nickel**

Ces métaux de transition ont été peu utilisés. On peut noter l'incorporation du nickel dans le semiconducteur SiC où la température de Curie est de l'ordre de 50K [242] et dans le GaN où la  $T_c$  est de 185K [192]. Le ZnO dopé au vanadium, élaboré par ablation laser, possède une  $T_c$  supérieure à 350K [204].

#### **Semiconducteurs à base de manganèse**

Le manganèse est le métal de transition le plus utilisé, il a été incorporé dans les semiconducteurs IV, II-VI, III-V et dans les chalcopyrites. Je me restreindrai dans ce paragraphe aux semiconducteurs présentant une  $T_c$  proche ou supérieure à la température ambiante. Parmi les semiconducteurs IV, on peut noter les résultats obtenus pour le Ge dont les  $T_c$  sont de 285K pour des monocristaux [40] (115K pour des couches minces [186]). Le SiC a une  $T_c$  de 250K [242].

Les semiconducteurs III-V dopés au Mn ont été intensivement étudiés. Pour le moment les nitrures et les phosphures sont les plus prometteurs. Les températures de Curie pour le GaN sont bien au-dessus de 300K [227, 241, 200] tandis que pour le GaP, elles sont proches de 300K [244, 183, 184].

Enfin les chalcopyrites ont aussi des  $T_c$  proches de 300K mais pour l'instant uniquement pour des monocristaux [39, 143, 191].

Différents éléments de transition (Cr, Mn, Fe, Co, Ti, V) ont été incorporés dans des semiconducteurs (IV, II-VI, III-V, chalcopyrites). Les semiconducteurs ferromagnétiques présentant une température de Curie supérieure ou proche de la température ambiante sont donnés dans le tableau 2.1.

---

<sup>10</sup>Une revue récente est consacrée aux semiconducteurs ferromagnétiques à base d'oxydes [196].

Matériaux	Tc (K)	Elaboration	Références
SiC :Fe	270	Implantation d'ions Fe <sup>+</sup>	[242, 243]
Ge :Mn	285	Monocristaux	[40]
(Al,Cr)N	>300	EJM, pulvérisation et MOCVD	[264, 267, 78]
(Al,Co)N	300	MOCVD	[78]
(Ga,Cr)N	270	Monocristaux	[185]
(Ga,Mn)N	>750	EJM	[101, 226, 227]
(Ga,Mn)N	320	EJM (type n)	[241]
(Ga,Mn)N	370	Dopage Mn après croissance	[200]
(Ga,Mn)P :C	>330	Implantation Mn	[244]
(Ga,Mn)P :C	300	EJM	[183, 184]
(Zn,Cr)Te	300	EJM	[207]
(Zn,V)O	>350	PLD	[204]
(Zn,Co)O	>350	PLD	[248, 201]
(Zn,Co)O	>350	Méthode sol-gel	[136]
(Zn,Mn)O :Sn	250	Monocristaux	[165]
(Zn,Fe)O :Cu	>550	Polycristallin	[89]
(Zn,Cr)O :Li	>350	Méthode sol-gel	[137]
(Zn,Mn)GeP <sub>2</sub>	310	Monocristaux	[39]
(Cd,Mn)GeP <sub>2</sub>	310	Monocristaux	[212, 143, 151]
Zn(Ge,Si)N <sub>2</sub> :Mn	280	MOCVD	[191]
(Co,Ti)O <sub>2</sub>	>300	PLD et EJM	[149, 31]
(Co,Sn)O <sub>2</sub>	650	PLD	[166]

TAB. 2.1 – Semiconducteurs présentant une température de Curie supérieure ou proche de la température ambiante. Les sigles EJM, PLD et MOCVD désignent les différentes méthodes de dépôt. EJM pour épitaxie par jets moléculaires, PLD pour déposition par ablation laser et MOCVD pour déposition en phase vapeur d'organométalliques.

## 2.2 Semiconducteurs ferromagnétiques (III,Mn)V

La deuxième partie de ce chapitre est entièrement consacrée aux semiconducteurs III-V dopés au manganèse (dont  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ , matériau étudié et utilisé au cours de ce travail de thèse). On s'intéressera dans un premier temps à la configuration électronique des ions manganèse et à la structure de bande de ces composés puis à l'origine du ferromagnétisme.

### 2.2.1 Structure électronique

#### 2.2.1.1 Configuration électronique du manganèse

Les propriétés électroniques et magnétiques dépendent fortement de la position cristallographique des ions manganèse. En effet selon que le manganèse se situe sur les sites des cations (élément III) ou en site interstitiel, le composé sera ferromagnétique ou non, de type p ou de type n. Il a été montré pour les semiconducteurs III-V, de structures zinc-blende ou Wurtzite, que le manganèse substitue les cations [224]. Cependant, pour des concentrations de manganèse élevées ( $x \geq 5\%$ ), une partie des ions manganèse se placent en site interstitiel<sup>11</sup> [15] (Fig. 2.4).

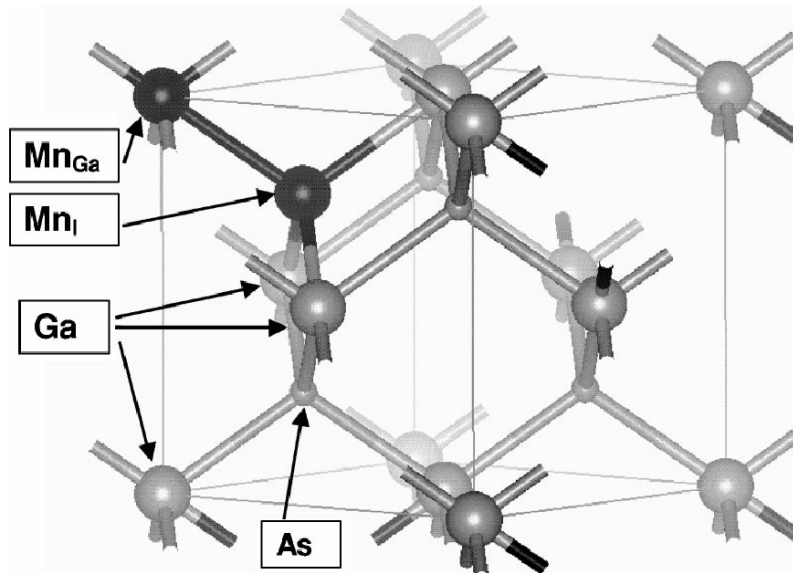


FIG. 2.4 – Positions des ions manganèse en site gallium et interstitiel dans la maille GaAs (d'après Blinowski *et al.* [15]).

<sup>11</sup>Je reviendrai en détail sur l'influence des ions Mn en site interstitiel sur les propriétés magnétique au cours du chapitre suivant.

Nous allons considérer ici uniquement le cas où le manganèse substitue les cations. L'ion Mn se trouve alors en coordination tétraédrique. Il existe donc un champ cristallin qui va induire une levée de dégénérescence des niveaux 3d du manganèse pour former deux bandes,  $t_{2g}$  et  $e_g$ .

Lorsqu'un atome de manganèse substitue un cation trivalent, il peut prendre trois configurations électroniques :  $d^4$ ,  $d^5$  plus un trou faiblement lié ( $d^5+h$ ) et  $d^5$  (Fig. 2.5). Les configurations  $d^4$  et  $d^5+h$  sont neutres, par rapport au cristal GaAs, alors que la configuration  $d^5$  est chargée négativement. Des mesures de résonance paramagnétique électronique (le terme ESR est aussi utilisé pour electron spin resonance), de dichroïsme magnétique circulaire de rayons-X et de photoémission ont permis de montrer que l'état fondamental du manganèse dans les semiconducteurs III-V est la configuration  $d^5+h$ .

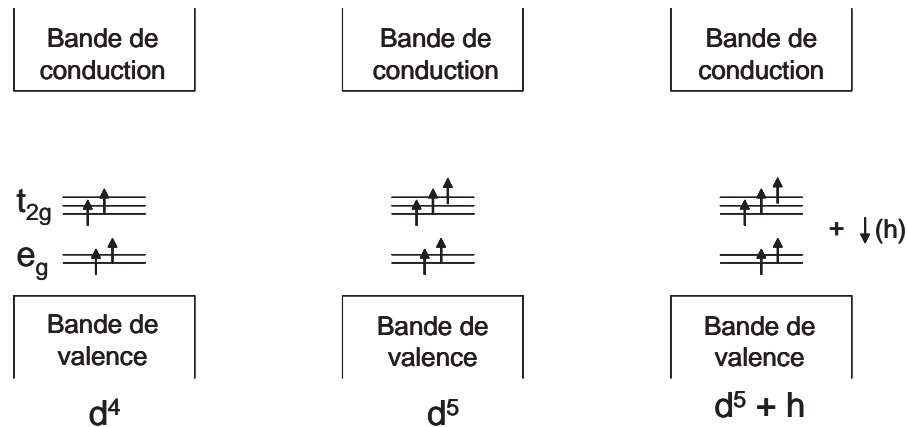


FIG. 2.5 – Configuration électronique schématique du manganèse. L'atome de Mn étant en coordination tétraédrique, le champ cristallin sépare les niveaux d en deux niveaux  $e_g$  et  $t_{2g}$ . De gauche à droite on représente les configurations  $d^4$ ,  $d^5$  et  $d^5+h$ .

Parmi les expériences récentes de résonance paramagnétique électronique (EPR) on peut citer les travaux de Szczytko *et al.* [235] qui montrent que pour des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  faiblement dopées (de 0.2% à 1%) les ions Mn sont chargés négativement. L'absence de configuration  $d^5+h$  peut être expliquée par la présence de défaut (antisites d'arsenic) qui compense les trous. D'un autre côté, les expériences de Linnarsson *et al.* [138] montrent clairement la présence d'une configuration  $d^5+h$ .

Les mesures de dichroïsme magnétique circulaire réalisées par Ueda *et al.* [249] et par Ohldag *et al.* [167] ont montré que plusieurs configurations électroniques coexistaient dans des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Ueda *et al.* obtiennent environ 80% de configuration en  $3d^5$  et 20% en  $3d^6$  tandis que Ohldag *et al.* ont

92% en  $3d^5$ . Des mesures de photoémission, effectuée par Okabayashi *et al.* [180] ont permis de montrer que le nombre d'électrons est de 5.3 par atome de Mn.

Les études de résonance paramagnétique électronique permettent aussi d'accéder au facteur de Landé. Des études EPR menées au début des années 60, sur des monocristaux de GaAs avec  $\sim 10^{18}$  atomes de Mn par  $\text{cm}^{-3}$ , révèlent que le facteur de Landé est 2.00 (voir par exemple Bleekrode *et al.* [14]). Schneider [216] fut un des premiers à montrer que le Mn incorporé dans le GaAs avait une configuration  $3d^5+h$  avec un facteur  $g$  de 2.77. Plus récemment, Szczytko *et al.* [235] ont montré qu'il existait dans les spectres EPR des raies additionnelles correspondant à  $g=2.77$  et  $g=5.72$ . Le facteur  $g=2$  est attribué à la configuration  $d^5$  chargée négativement alors que les deux autres valeurs de  $g$  sont attribuées aux configurations neutres  $d^5+h$  et  $d^4$ .

Il semble aujourd'hui bien établi que le manganèse dans le GaAs a soit une configuration électronique neutre  $d^5+h$  soit une configuration ionisée  $d^5$ . Des mesures de transport électrique effectuées sur des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  montrent que les couches sont de type p et que l'incorporation d'une faible quantité de Mn induit aussi une transition isolant-métal (augmentation de la densité de trous) [148, 254] confirmant que la configuration électronique est majoritairement  $d^5+h$ .

La nature de l'interaction entre les trous et les ions Mn a été déterminée par différentes méthodes expérimentales. Des mesures de photoémission [181, 180] ou de magnéto-absorption [234] ont montré qu'il existait une interaction antiferromagnétique (AF) entre les trous et les ions Mn. L'énergie d'échange  $\beta N_0$  (où  $\beta$  est l'intégrale d'échange p-d AF et  $N_0$  est la concentration de cations) est évaluée à  $\approx -1\text{eV}$ . Avec cette interaction d'échange AF entre les ions Mn  $3d^5$  ( $S=5/2$ ) et les trous ( $j=3/2$ ), la configuration  $d^5+h$  a un moment angulaire total  $J=1$ .

La configuration électronique, le facteur de Landé et l'énergie d'échange sont des données bien établies dans le cas des arséniures ou des antimoniures. En ce qui concerne les nitrures et les phosphures la situation est plus compliquée. Les mesures EPR indiquant la présence d'une seule raie, correspondant à  $g=2$ , est attribuée à une configuration  $d^5$  (voir par exemple pour le GaP Kreissl *et al.* [127] et pour le GaN Zajac *et al.* [271]). Lorsque l'on illumine le semiconducteur GaP :Mn, l'amplitude des spectres EPR diminue et de nouvelles raies apparaissent indiquant la présence d'une configuration  $d^4$  [127]. De plus la faible présence d'états  $d^5+h$  (même pour des semiconducteurs de type p) montre que l'état fondamental du Mn n'est pas  $d^5+h$  mais  $d^4$ . L'interaction entre les ions Mn serait alors gouvernée par un mécanisme de double échange nécessitant un "hopping" des électrons d et non via les trous de la bande de valence.

L'ensemble des études effectuées sur les semiconducteurs III-V dopés au manganèse montre que la configuration électronique du manganèse dépend du semiconducteur hôte. Ainsi selon que le Mn soit en  $d^4$  (GaP, GaN) ou en  $d^5+h$  (GaAs),

l'origine du ferromagnétisme ne peut pas être expliquée par les mêmes mécanismes.

### 2.2.1.2 Structure de bandes et densité d'états

L'introduction d'une impureté magnétique et les interactions magnétiques résultantes vont induire des modifications de la structure de bande et de la densité d'états du semiconducteur.

Deux approches théoriques ont été menées afin de calculer la densité d'états, la structure de bande et la polarisation des porteurs : des calculs ab-initio (développés par Sanvito par exemple) et des modèles phénoménologiques (développé par Dietl par exemple). Afin de décrire les propriétés physiques du matériau, une description "bande d'impureté" ou "bande de valence" est utilisée. Le modèle utilisé par Dietl, fondé sur les matrices  $k.p$  de Kohn-Luttinger, suppose que les moments magnétiques sont portés par les atomes de manganèse alors que les calculs ab-initio le montrent.

#### Structure de bandes

Dans un semiconducteur non magnétique, la bande de valence dérive "simplement" des fonctions d'onde des cations et des anions. Pour les semiconducteurs ferromagnétiques, l'introduction d'une impureté magnétique et l'interaction d'échange p-d qui en résulte vont modifier la structure de bande. Dietl *et al.* [55] et Abolfath *et al.* [1] ont déterminé la structure de bande en incluant la contribution de l'interaction d'échange p-d et en se plaçant dans les approximations du champ moléculaire et du cristal virtuel. La figure 2.6 représente la dispersion de la bande de valence du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  pour les vecteurs d'onde parallèle et perpendiculaire à l'aimantation. Dans leurs calculs [55], la levée de dégénérescence des trous lourds, induite par l'interaction d'échange p-d, est de 150mV au point  $\Gamma$  (centre de la zone de Brillouin) pour  $\text{Ga}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{As}$ . Cette levée de dégénérescence dépend de la concentration de Mn incorporée et de l'aimantation, par conséquent de la température.

Sanvito *et al.* [211,210] ont déterminé les structures de bande du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (3.125% de Mn) pour les spins majoritaires et minoritaires (Fig. 2.7) en utilisant la théorie de la densité fonctionnelle (DFT density functional theory). Le niveau de Fermi coupe le haut de la bande de valence pour les spins majoritaires alors qu'il se trouve dans le gap pour les spins minoritaires. Le matériau est alors demi-métallique, c'est à dire 100% polarisé en spin au niveau de Fermi. Ils montrent que tous les états d du Mn de la bande de spin majoritaire sont occupés et qu'ils sont couplés antiferromagnétiquement avec les trous.

Ce couplage antiferromagnétique est induit par la forte hybridation entre les états d du manganèse et les états p de l'arsenic. Ces calculs DFT montrent que la plupart des trous sont localisés autour des ions Mn, mais d'un autre côté les fits de



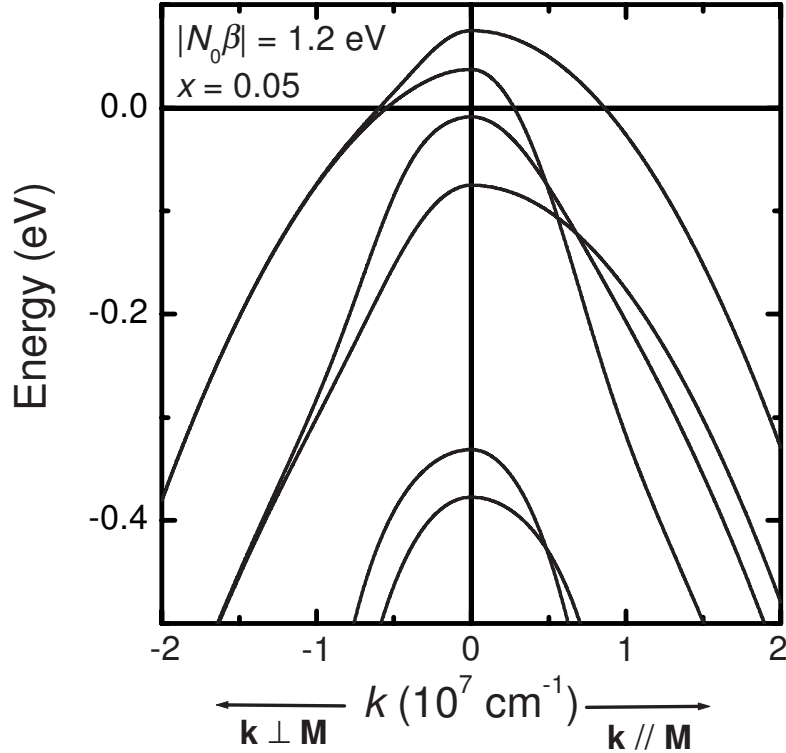


FIG. 2.6 – Structure de la bande de valence pour les vecteurs d’onde parallèle et perpendiculaire à l’aimantation des spins du Mn (d’après Matsukura *et al.* [147]).

la bande de valence montrent que la masse effective est similaire à celle du GaAs.

L’interaction d’échange p-d et les contraintes cristallographiques influent fortement sur l’anisotropie de la bande de valence. La figure 2.8 représente une coupe transverse des sphères de Fermi du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  pour différentes directions de l’aimantation et pour différentes contraintes (de gauche à droite,  $M//[100]$  et  $\epsilon_{xx}=0$ ,  $M//[100]$  et  $\epsilon_{xx}=-2\%$  et  $M//[001]$  et  $\epsilon_{xx}=+2\%$ ). La levée de dégénérescence à  $k \neq 0$  dépend des orientations relatives de l’aimantation et du vecteur d’onde. Les caractères non paraboliques et anisotropes de la bande de valence combinés au mélange des degrés de liberté orbital et de spin constituent les paramètres fondamentaux des propriétés magnétiques des semiconducteurs III-V.

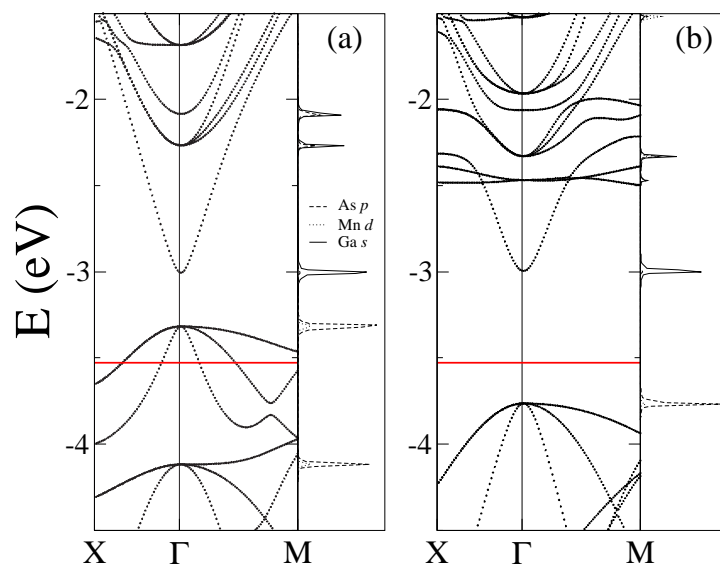


FIG. 2.7 – Structure de bandes et densité d'états résolue en orbitales (As p, Mn d et Ga s) au point  $\Gamma$  du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (3.125% de Mn). La ligne horizontale représente le niveau de Fermi. La Figure 2.7a représente la bande majoritaire et la Figure 2.7b la bande minoritaire. A noter que la densité d'états pour les orbitales p (As) et d (Mn) se situe au même niveau d'énergie (en haut de la bande de valence) pour les spins majoritaires. D'après Sanvito *et al.* [211, 210].

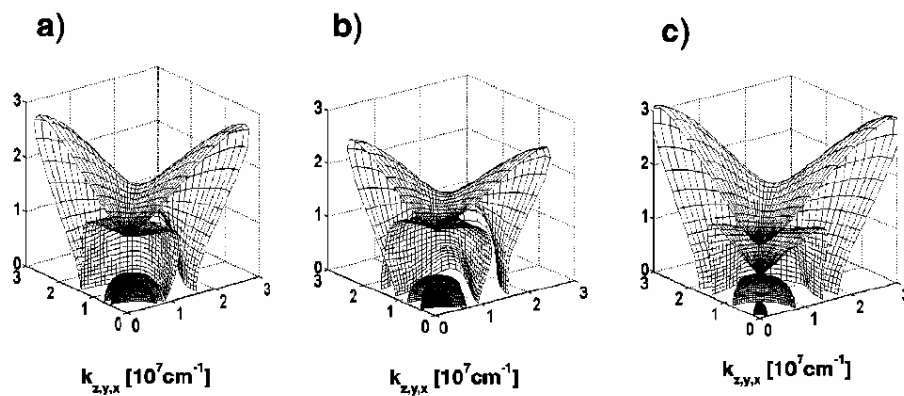


FIG. 2.8 – Coupe transverse des sphères de Fermi du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (5% de Mn,  $p=3.5 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ) pour différentes orientations de l'aimantation et pour différentes contraintes. D'après Dietl *et al.* [55])

### Densité d'états

La modification de la densité d'états induite par l'incorporation de manganèse ou par la présence de défauts (antisites d'arsenic) a été mise en évidence par plusieurs groupes.

La figure 2.9 (gauche) représente la densité d'états du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ( $x=3.125\%$ ) pour les spins majoritaires et minoritaires. Excepté pour des énergies proches du niveau de Fermi, la densité d'états du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est similaire à celle du GaAs. L'incorporation de Mn introduit un pic dans la densité d'états des spins majoritaires au niveau de Fermi. Le caractère demi-métallique du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est reflété par l'absence d'états au niveau de Fermi pour les spins minoritaires.

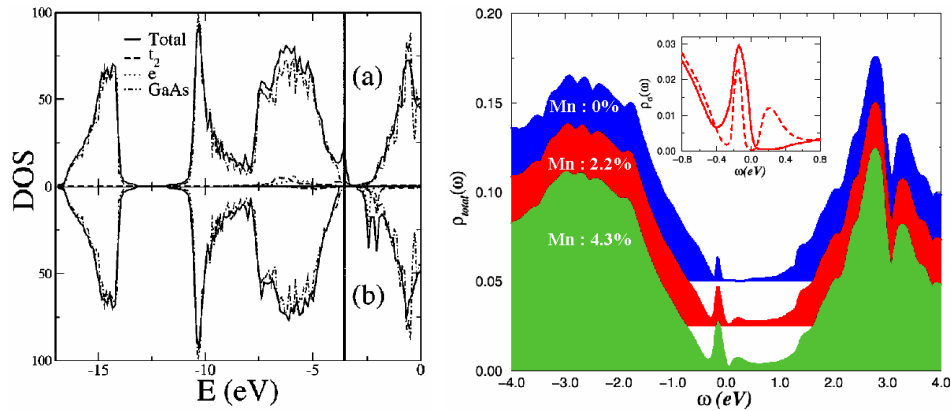


FIG. 2.9 – Fig.2.9 gauche : densité d'états partielle du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ( $x=3.125\%$ ) pour les spins majoritaires et minoritaires (d'après Sanvito *et al.* [211, 210]). Fig.2.9 droite : densité d'états pour différentes concentrations de Mn et en prenant en compte des antisites d'arsenic (d'après Craco *et al.* [48]).

La présence de défauts dans la structure crée aussi des modifications dans la densité d'états. L'incorporation de fortes concentrations de Mn dans les semiconducteurs III-V nécessite une croissance à relativement basse température ( $\sim 230^\circ\text{C}$  pour le GaAs) afin d'éviter la formation de phases secondaires (agrégats de MnAs par exemple). L'inconvénient de ces conditions d'élaboration est la présence de défauts dont notamment les antisites d'arsenic (un atome d'arsenic est sur un site gallium).

Craco *et al.* [48] ont pris en compte la présence de ces défauts pour calculer la densité d'états. La figure 2.9 (droite) représente trois densités d'états du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ( $x=0$ ,  $x=0.022$  et  $x=0.043$ ) contenant des antisites d'arsenic (la concentration d'antisites est de  $0.015+x$ ). La présence de ces antisites d'arsenic se traduit par un pic dans la densité d'états, proche du haut de la bande de valence en accord avec les mesures expérimentales de microscopie à effet tunnel en section transverse [83, 144]. Le caractère demi-métallique du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (pour

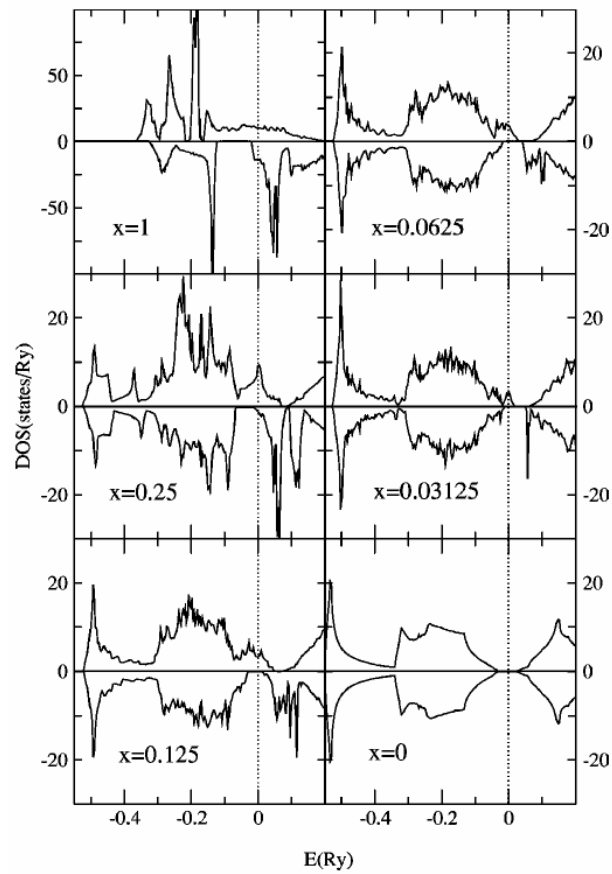


FIG. 2.10 – Densité d'états du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  des spins majoritaires et minoritaires pour différentes concentrations de Mn. D'après Sandratskii *et al.* [208].

$x=4.3\%$ ) est aussi visible sur l'insert de la figure 2.9 (droite) où sont représentées les densités d'états des spins majoritaires et minoritaires.

Sandraskii *et al.* [208] ont calculé les densités d'états du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  où  $x$  varie de 0 à 1. Quelle que soit la concentration de Mn, la structure cristallographique est supposée zinc-blende. Pour des concentrations comprises entre 1.25% et 25%, le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est demi-métallique.

### Polarisation des porteurs

L'ensemble des études ab-initio montre que le moment magnétique est essentiellement porté par le Mn [276] et que le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est demi-métallique (voir les calculs de densité d'états, figures 2.9 et 2.10).

A l'aide d'un modèle de champ moyen, Dietl calcule la polarisation en spin des trous en fonction de l'aimantation (figure 2.11). La polarisation de spin peut

atteindre 80% pour de faible concentration de porteurs. Cette polarisation de spin dépend fortement de la position du niveau de Fermi et de la levée de dégénérescence de la bande de valence.

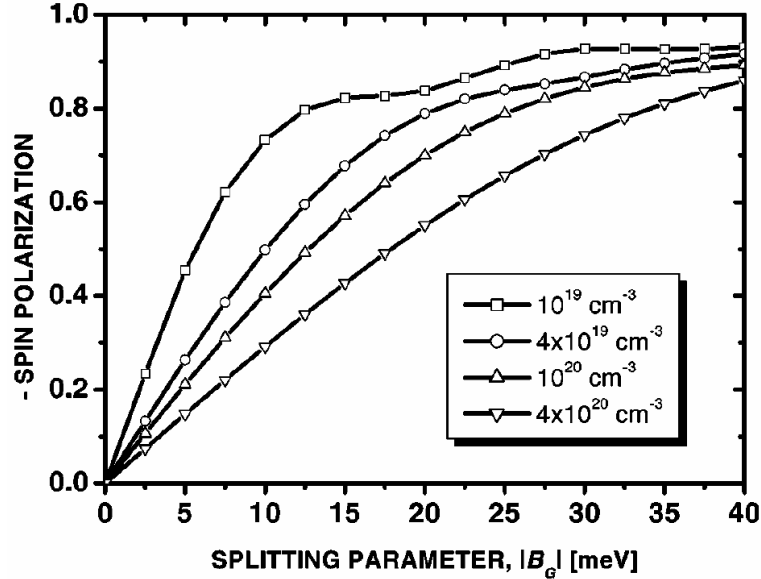


FIG. 2.11 – Variation de la polarisation de spin en fonction de  $B_G$ , c'est à dire en fonction de l'aimantation, pour différentes concentrations de porteurs. D'après Dietl *et al.* [55].

Cette forte polarisation de spins a été pour l'instant démontrée expérimentalement par des mesures de magnéto-optiques résolues en temps [121] ou par des mesures de réflexions d'Andreev [23] où une polarisation de 85% a été déterminée.

### 2.2.2 Origine du ferromagnétisme

Si l'origine du ferromagnétisme est bien établie pour plusieurs semiconducteurs ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ ,  $\text{In}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  pour les III-V,  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  par exemple pour les II-VI), elle est encore soumise à débat pour d'autres ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{N}$ ,  $\text{Zn}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}$ ). Les semiconducteurs ferromagnétiques peuvent être considérés comme un ensemble de deux systèmes électroniques, un contenant des électrons délocalisés (bande de valence ou de conduction) et un autre contenant les électrons des impuretés magnétiques avec un moment magnétique localisé.

### 2.2.2.1 Interactions magnétiques mises en jeu

Il existe alors des interactions magnétiques d'une part, entre les porteurs délocalisés et les électrons des impuretés magnétiques, et d'autre part, des interactions entre les électrons des ions magnétiques.

#### Interactions entre porteurs localisés et délocalisés

Les porteurs délocalisés sont soit dans la bande conduction  $\Gamma_6$  principalement composée des orbitales s des cations, soit dans la bande de valence  $\Gamma_7$  et  $\Gamma_8$  (au voisinage du centre de la zone de Brillouin) composée essentiellement des orbitales p des anions. Les porteurs localisés sont des électrons d dans le cas des métaux de transition. Les interactions d'échange s(p)-d entre les deux types de porteurs constituent la caractéristique essentielle de ces semiconducteurs ferromagnétiques.

Cette interaction d'échange entre les électrons d et les porteurs des bandes de valence et de conduction peut s'écrire par l'hamiltonien :

$$H_{\text{ech}} = \sum_{R_i} J(R_i - r) S_i \cdot s \quad (2.1)$$

où  $S_i$  est le spin des ions Mn (en position  $R_i$ ),  $s$  est le spin des porteurs délocalisés (en position  $r$ ) et  $J$  est l'interaction d'échange entre les porteurs délocalisés et les électrons du Mn. En utilisant l'approximation du champ moléculaire on peut remplacer l'opérateur de spin  $S_i$  par sa moyenne thermodynamique  $\langle S \rangle$ . Les ions Mn étant répartis aléatoirement, l'ordre cristallographique de la structure zinc-blende est brisé. En utilisant l'approximation du cristal virtuel qui consiste à remplacer la somme sur les sites Mn par une moyenne sur tous les sites cations multipliée par la concentration de Mn ( $x$ ), l'hamiltonien peut s'écrire sous la forme :

$$H_{\text{ech}} = x \sum_{R} J(R - r) \langle S \rangle \cdot s \quad (2.2)$$

L'interaction entre les porteurs de la bande  $\Gamma_6$  (bande de conduction) ou les porteurs de la bande  $\Gamma_8$  (bande de valence) et les électrons d localisés s'écrit par l'hamiltonien d'échange :

$$H_{\text{ech}} = -xN_0\alpha \langle S_{//} \rangle \cdot s_{//} \text{ ou } H_{\text{ech}} = -xN_0\beta \langle S_{//} \rangle \cdot s_{//} \quad (2.3)$$

où  $xN_0$  est la concentration d'ions magnétiques,  $\langle S_{//} \rangle$  et  $s_{//}$  sont les composantes parallèles au champ magnétique des spins des porteurs localisés et délocalisés. Les constantes d'échange s-d et p-d, notées  $\alpha$  et  $\beta$  sont respectivement positives (interaction ferromagnétique) et négatives (interaction antiferromagnétique).  $\beta$  est généralement plus élevée (en valeur absolue) que  $\alpha$ .

### Interactions entre ions magnétiques

Les principales interactions sont le super-échange, le double échange et l'interaction RKKY (Ruderman, Kittel, Kasuya et Yoshida).

Le super-échange, dans les semiconducteurs ferromagnétiques de type p, est un processus où les deux ions magnétiques sont corrélés via une interaction d'échange cinétique entre ces ions et la bande de valence. Le double échange est un transfert d'électrons entre deux ions de valence mixte ( $Mn^{2+}$  et  $Mn^{3+}$  par exemple) via les orbitales p de l'anion. Le super-échange est généralement anti-ferromagnétique tandis que le double échange est ferromagnétique.

Le mécanisme RKKY a été initialement introduit dans le cas des métaux pour expliquer l'interaction entre les spins nucléaires via un couplage d'échange avec les électrons de conduction. Cette interaction est à l'origine de la phase ferromagnétique des semiconducteurs (III,Mn)V à forte concentration de trous.

#### 2.2.2.2 Modèle de Zener et polarons magnétiques

Selon la concentration de porteurs, le ferromagnétisme n'est pas induit par les mêmes mécanismes d'interaction. Lorsque la densité de trous est élevée, ces trous sont délocalisés et le ferromagnétisme peut être décrit par le modèle de Zener. Par contre lorsque les trous restent localisés (faibles densités de trous) le ferromagnétisme est induit par la formation de polarons magnétiques.

##### a) Densités de porteurs élevées

Dietl *et al.* [55] ont montré que le double échange Zener ne pouvait être le mécanisme régissant l'ordre ferromagnétique car les électrons polarisés, étant localisés autour des ions magnétiques, ne contribuent pas au transport de charge<sup>12</sup>. L'origine du ferromagnétisme est alors expliquée par le modèle de Zener<sup>13</sup> [56, 55].

L'interaction entre les porteurs délocalisés de la bande de valence et les électrons des ions magnétiques constitue la caractéristique fondamentale des semiconducteurs ferromagnétiques. Dans la limite  $r_c \gg r_s$  (distance entre porteurs très supérieure à la distance en ions Mn), c'est à dire lorsque la concentration de Mn est supérieure à celle des porteurs, les modèles RKKY et Zener sont équivalents. Les interactions spin-orbite et porteurs-porteurs étant difficiles à prendre en compte dans le modèle RKKY, le modèle de Zener est alors utilisé pour décrire les propriétés magnétiques des semiconducteurs ferromagnétiques [56, 55, 1].

<sup>12</sup>L'origine du ferromagnétisme induit par les porteurs dans les III-V dopés Mn a été dans premier temps expliquée par le mécanisme de double échange [2].

<sup>13</sup>Zener propose que la polarisation des spins localisés a pour origine un "spin splitting" des bandes et que le couplage d'échange entre les porteurs et les spins localisés induit une phase ferromagnétique [272, 273].

D'après le mécanisme RKKY on peut exprimer l'énergie de couplage d'échange entre deux ions ( $J_{ij}$ ) en fonction de la densité d'état au niveau de Fermi,  $\rho(E_F)$ , et de l'intégrale d'échange de l'interaction s-d,  $N_0\alpha$  (ou p-d, mais dans ce cas on devrait introduire le couplage spin-orbite) selon :

$$J_{ij} = \frac{\rho(E_F)k_F^3(N_0\alpha)^2}{2\pi}F(2k_FR) \quad (2.4)$$

où  $R=R_j-R_i$  est la distance entre deux ions. Dans le cas d'une intégrale d'échange p-d, interaction avec les porteurs de la bande de valence, on devrait alors introduire le couplage spin-orbite. La fonction  $F(x)$  est positive pour  $R < \pi/2k_F$  et  $F(x) = -\cos(x)/x^3$  lorsque la distance entre les ions est grande ( $x \rightarrow \infty$ ). Pour les semiconducteurs III-V fortement dopés ( $x > \sim 3\%$ ) la distance entre les porteurs,  $r_c = (\frac{4}{3}\pi p)^{-1/3}$ , est très supérieure à la distance entre les ions Mn,  $r_S = (\frac{4}{3}\pi x N_0)^{-1/3}$ . Le premier zéro de l'interaction RKKY étant égal à  $r \simeq 1.17r_c$ , l'interaction, induite par les porteurs, est ferromagnétique et à longue portée. L'interaction de type RKKY est utilisée pour expliquer le ferromagnétisme dans les semiconducteurs ferromagnétiques (III,Mn)V que ce soit dans une approche de densité locale de spin<sup>14</sup> ou dans le modèle des liquides de Fermi [56].

L'incorporation du manganèse dans les semiconducteurs III-V crée un dopage de type p. Il existe un couplage d'échange entre les trous de la bande de valence (délocalisés) et les ions  $Mn^{2+}$  localisés. Cette interaction d'échange va coupler antiferromagnétiquement les trous itinérants avec les ions  $Mn^{2+}$  (Fig. 2.12) et ainsi induire une phase ferromagnétique.

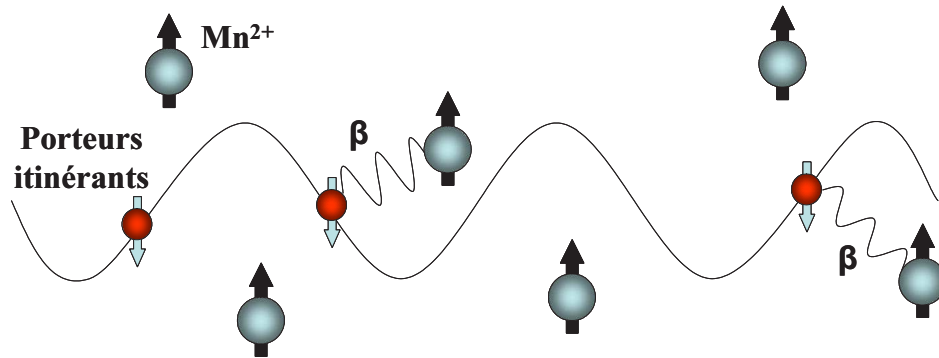


FIG. 2.12 – Moments magnétiques locaux  $Mn^{2+}$  de spin  $S=5/2$  couplés antiferromagnétiquement avec les porteurs itinérants de spin  $s=1/2$

La présence d'une phase ferromagnétique nécessite donc la présence de trous délocalisés. Pour les semiconducteurs III-V, le manganèse introduit à la fois les

<sup>14</sup>Voir par exemple les travaux de MacDonald *et al.* [122, 123].



porteurs et le spin. Par contre, pour les semiconducteurs II-VI, il est nécessaire de co-doper le semiconducteur afin d'avoir une densité de trous suffisante. Cette origine du ferromagnétisme est clairement établie pour les semiconducteurs III-V dopés au Mn tels que le GaAs ou l'InAs ou par exemple pour les tellurures concernant les II-VI.

Des expériences ont mis en évidence, pour les semiconducteurs II-VI et III-V, qu'une modification de la densité de porteurs induisait l'apparition ou la suppression d'une phase ferromagnétique démontrant ainsi que le ferromagnétisme était bien induit par les trous. La densité de porteurs peut être modifiée en co-dopant le semiconducteur ou par exemple à l'aide d'un champ électrique ou d'une source lumineuse. Concernant les semiconducteurs II-VI, on peut noter les travaux concernant les tellurures,  $Zn_{1-x}Mn_xTe$  [67] et puits quantique de  $Cd_{1-x}Mn_xTe$  [94]. Par exemple, Boukari *et al.* [19] ont montré que le ferromagnétisme d'un puits quantique de  $Cd_{1-x}Mn_xTe$  pouvait être contrôlé par un champ électrique ou par illumination. Concernant les semiconducteurs III-V, Koshihara *et al.* [125] ont mis en évidence pour des hétérostructures (In,Mn)As/GaSb que l'ordre ferromagnétique est induit par les trous. Ohno *et al.* [172] ont contrôlé la phase ferromagnétique de l' $In_{1-x}Mn_xAs$  à l'aide d'un champ électrique.

Le modèle de Zener constitue une bonne base pour décrire l'origine du ferromagnétisme de ces composés. Ce modèle, combiné à la théorie du champ moyen et à l'approximation du cristal virtuel, a été utilisé pour déterminer les températures de Curie [56, 115] mais aussi pour étudier les dépendances en température de l'aimantation et de la polarisation en spin des trous [55], les domaines magnétiques [54] ou l'anisotropie magnétique [55]. L'ensemble des calculs effectués pour le  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  et l' $In_{1-x}Mn_xAs$  sont, en général, en bon accord avec les résultats expérimentaux.

### b) Faible densité de porteurs

A faible concentration de Mn ( $x < \sim 3\%$ ), les trous restent localisés autour des ions et le modèle de Zener n'est plus adapté. L'interaction d'échange des trous localisés avec les impuretés magnétiques donne lieu à une formation de polarons magnétiques. Dans des systèmes où la concentration de trous est très faible comparée à la densité d'ions magnétiques<sup>15</sup>, un polaron magnétique est formé d'un trou localisé et d'un grand nombre d'impuretés magnétiques autour de ce trou (figure 2.13). Il existe alors des interactions antiferromagnétiques entre le trou localisé et les ions Mn et une interaction ferromagnétique entre les polarons.

On peut définir un rayon effectif du polaron ( $R_p$ ) qui dépend de la température, de l'interaction d'échange entre le trou et l'ion Mn et d'une longueur caractéris-

<sup>15</sup>La présence de défauts de type donneur (As en antisite, Mn interstitiel par exemple) compense les trous créés par les Mn en site gallium.

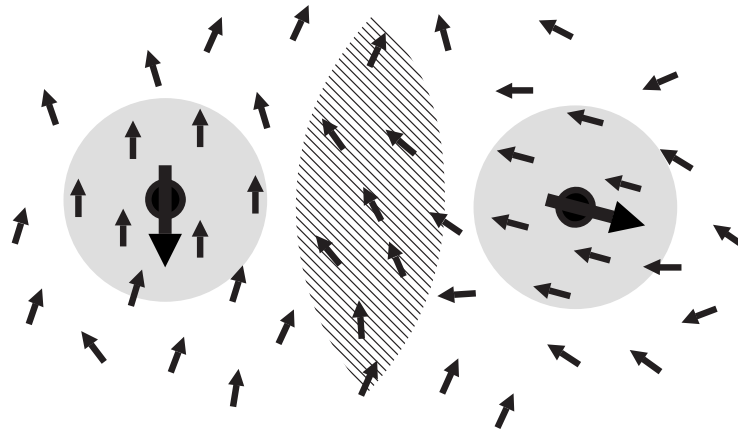


FIG. 2.13 – Interaction de deux polarons magnétiques où les petites flèches indiquent les impuretés magnétiques et les grandes les trous localisés. D’après A. Kaminski et S. Das Sarma [116].

tique de la fonction d’onde du trou. Lorsque la température diminue,  $R_p$  augmente et pour des températures suffisamment basses, il y a un recouvrement des polarons (percolation). L’interaction ferromagnétique entre les polarons domine l’interaction antiferromagnétique entre les ions manganèse et une phase ferromagnétique s’établit<sup>16</sup> [116, 245, 12].

### 2.3 Semiconducteurs ferromagnétiques à hautes températures de Curie

La valeur de la température de Curie des semiconducteurs ferromagnétiques, calculée à partir d’un modèle de champ moyen, est proportionnelle à [56, 55] :

$$T_c \propto p^{1/3} N_0 \beta^2 \rho_s \quad (2.5)$$

où  $p$  est la densité de trous,  $N_0$  la concentration de site cations,  $\beta$  est l’intégrale d’échange p-d et  $\rho_s$  est la densité d’états de spin. La figure 2.14 représente les températures de Curie calculées pour des semiconducteurs III-V et II-VI contenant 5% de manganèse et 2.5% de Mn pour les semiconducteurs IV et avec une densité de trous de  $3.5 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  [55].

L’énergie d’échange  $N_0 \beta$  étant inversement proportionnelle au cube du paramètre de maille, la température de Curie sera plus élevée pour les semiconducteurs

<sup>16</sup>Ce modèle devrait décrire correctement la situation loin de la transition métal-isolant, mais n’a jamais été confronté aux données expérimentales jusqu’à maintenant.

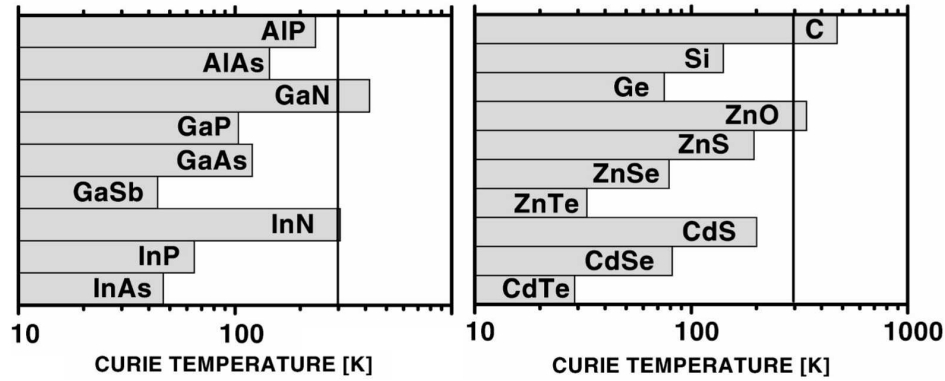


FIG. 2.14 – Températures de Curie calculées pour des semiconducteurs III-V (gauche), IV et II-VI (droite) contenant 5% de Mn de charge  $2+$  et une densité de trous de  $3.5 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$ . D'après Dietl *et al.* [55].

à anions légers où le paramètre de maille est plus faible. Parmi les semiconducteurs III-V, les  $T_c$  les plus élevées sont attendues pour les nitrures et les phosphures.

Le deuxième paramètre influant sur la température de Curie est la densité d'état  $\rho$  :

$$\rho(E_F) = \frac{m^* k_F}{\pi^2 \hbar^2} \quad (2.6)$$

où  $m^*$  est la masse effective. Par conséquent la température de Curie sera élevée pour des masses effectives lourdes, c'est à dire pour les bandes les plus plates. Les semiconducteurs à faible couplage spin-orbite auront aussi des  $T_c$  élevées.

Des températures de Curie proches ou supérieures à la température ambiante ont été reportées pour les nitrures (GaN, AlN) et les phosphures (GaP)<sup>17</sup>. La  $T_c$  calculée pour le semiconducteur II-VI ZnO dopé au manganèse est supérieure à 300K. Cependant la présence d'une phase ferromagnétique à température ambiante n'a pas encore été observée expérimentalement. Par contre le ZnO dopé au cobalt ou au vanadium est ferromagnétique à 300K.

<sup>17</sup>Deux articles de revue sont consacrés aux semiconducteurs ferromagnétiques à grand gap [189, 190].

## 2.4 Conclusion

La présence d'une phase ferromagnétique dans les semiconducteurs IV, III-V et II-VI est induite par une interaction d'échange entre les porteurs délocalisés (trous) et les ions magnétiques. La position des niveaux d'énergie des impuretés magnétiques par rapport aux bandes de conduction et de valence, le couplage spin-orbite dans la bande de valence, l'intégrale d'échange p-d, la concentration d'impureté magnétique sont les paramètres régissant l'apparition d'une phase ferromagnétique et la valeur de la température de Curie. Cependant, l'origine du ferromagnétisme pour certains composés, GaN dopé Mn et ZnO dopé Co, est encore soumise à débat.

Actuellement une grande variété de semiconducteurs magnétiques est étudiée. Une des motivations est l'intégration de ces semiconducteurs magnétiques dans des hétérostructures semiconductrices afin de réaliser une nouvelle génération de composants électroniques où seront associés les degrés de liberté du spin et de la charge des porteurs. Les chalcogénures et les chalcopyrites, bien que présentant une phase ferromagnétique à température ambiante, apparaissent moins attractifs, notamment en raison des difficultés d'élaboration et d'intégration dans des structures semiconductrices traditionnelles. Par contre les semiconducteurs (IV, II-VI, III-V) où l'on incorpore des impuretés magnétiques semblent être plus prometteurs. Ces semiconducteurs magnétiques sont actuellement les plus étudiés. Cependant, sachant que 99% de l'électronique est composée de semiconducteur IV, il est curieux que les semiconducteurs ferromagnétiques IV soient si peu étudiés.

Au cours de ces dernières années, un important effort, théorique et expérimental, a été consacré à l'étude des semiconducteurs magnétiques II-VI et III-V. Le semiconducteur GaAs dopé au Mn est sans doute le composé le plus étudié. Malgré sa relative faible  $T_c$  ( $< 150\text{K}$ ), il présente l'avantage d'une élaboration relativement facile avec les structures semiconductrices traditionnelles III-V (GaAs, AlAs, InAs).

Le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  peut être ainsi considéré comme un matériau "modèle" pour l'étude de ses propriétés magnétiques et de magnéto-transport en couches minces et pour l'étude de transport électrique dépendant du spin dans des hétérostructures semiconductrices.



## Chapitre 3

# Etude du semiconducteur ferromagnétique $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$

Paressons en toutes choses,  
hormis en aimant et en buvant,  
hormis en paessant.

*Lessing*

**Sommaire**

---

<b>3.1 Croissance et structure du composé</b> . . . . .	<b>41</b>
3.1.1 Conditions de croissance . . . . .	41
3.1.2 Analyses structurales . . . . .	43
<b>3.2 Propriétés magnétiques</b> . . . . .	<b>45</b>
3.2.1 Comportement en température . . . . .	45
3.2.2 Comportement en champ . . . . .	48
3.2.2.1 Moment magnétique et aimantation rémanente . . . . .	48
3.2.2.2 Anisotropie . . . . .	50
<b>3.3 Propriétés de transport et de magnéto-transport</b> . . . . .	<b>56</b>
3.3.1 Evolution en température . . . . .	56
3.3.2 Magnéto-résistance . . . . .	60
3.3.2.1 Champ magnétique dans le plan des couches et courant électrique parallèle au champ magnétique . . . . .	60
3.3.2.2 Effet Hall . . . . .	65
3.3.2.3 Anisotropie de magnéto-résistance . . . . .	67
<b>3.4 Recuits : mise en évidence de l'influence des défauts</b> . . . . .	<b>71</b>
<b>3.5 Conclusion</b> . . . . .	<b>75</b>

---

Ce chapitre est consacré à l'étude expérimentale des propriétés magnétiques et électroniques du semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Après avoir reporté les conditions d'élaboration et les analyses structurales, nous détaillerons l'influence de la concentration de manganèse sur les propriétés magnétiques, de transport et de magnéto-transport et nous verrons que ces propriétés sont intimement liées. Enfin nous montrerons que des recuits permettent d'améliorer les propriétés du matériau en réduisant le nombre de défauts dans la structure.

L'objectif principal de l'étude de couches minces de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est la détermination des conditions d'élaboration afin d'obtenir un matériau ferromagnétique et conducteur, la finalité de cette thèse étant l'étude d'un transport polarisé en spin dans des hétérostructures semiconductrices.

## 3.1 Croissance et structure du composé

L'élaboration et les caractérisations structurales des couches minces de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ont été réalisées par Bruno Lépine de l'équipe de physique des surfaces et des interfaces de l'université de Rennes.

### 3.1.1 Conditions de croissance

Les propriétés magnétiques et en particulier la température de Curie étant dépendantes de la concentration de manganèse, l'objectif est d'élaborer des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  à forte concentration de Mn. Or, à cause de la faible solubilité des éléments magnétiques dans les semiconducteurs, il est difficile d'incorporer une forte concentration de Mn sans former d'agrégats de MnAs. Cependant l'épitaxie par jets moléculaires hors équilibre à relativement basse température ( $250^\circ\text{C}$ ) permet d'élaborer des couches homogènes avec des concentrations de Mn élevées (jusqu'à  $\sim 8\%$ ). Cependant, l'inconvénient de ces croissances à relativement basse température est la formation de défauts. La croissance à basse température du GaAs favorise la formation d'antisites d'arsenic (voir par exemple Stellmacher *et al.* [231]). Les principaux défauts lors de la croissance du semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  sont la formation d'antisites d'arsenic et de Mn interstitiels.

Les couches minces de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ont été élaborées par épitaxie par jets moléculaires (EJM) sur des substrats semi-isolants de GaAs(001) à basse température ( $\sim 230^\circ\text{C}$ ). Une couche tampon de GaAs, d'une épaisseur de  $\sim 100\text{nm}$ , est préalablement déposée à haute température ( $\sim 580^\circ\text{C}$ ). Le rapport des flux entre  $\text{As}_4$  et Ga est fixé à 10 et la vitesse de croissance est de l'ordre de  $0.3\mu\text{m}$  par heure. La concentration de manganèse dépendant du rapport des flux de manganèse et de gallium, on peut alors fixer la concentration de Mn en ajustant la température des cellules de Mn et de Ga. La figure 3.1 représente un diagramme



de phase du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et montre que les propriétés structurales et de transport sont intimement liées aux conditions de croissance.

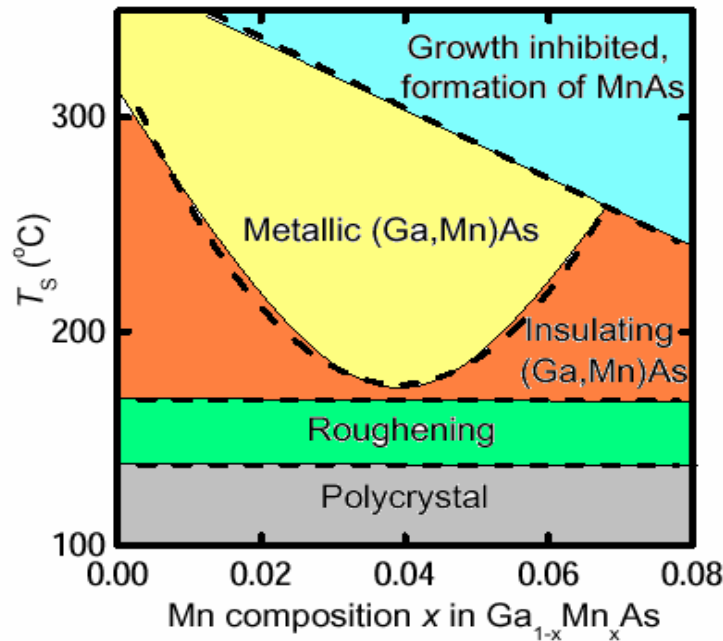


FIG. 3.1 – Diagramme de phase illustrant les relations entre les paramètres de croissance (température de dépôt et concentration de Mn) et les propriétés du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (D'après Ohno *et al.* [169]).

Pour des températures de dépôt trop élevées une phase secondaire (agrégats de MnAs) coexiste avec la phase homogène de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  tandis que pour des températures de croissance trop basses, les couches sont rugueuses ou polycristallines. Pour des températures de dépôt intermédiaires (entre  $220^\circ\text{C}$  et  $270^\circ\text{C}$ ) les couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  peuvent être isolantes ou conductrices selon la concentration de Mn. Par contre pour des concentrations de Mn trop élevées, on obtient de nouveau des agrégats de MnAs. Il existe donc une fenêtre relativement étroite (température de dépôt et concentration de Mn) pour obtenir des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  homogènes et métalliques. Le contrôle des conditions de croissance s'avère donc crucial pour l'élaboration de ce matériau.

Pendant et après la croissance, les diagrammes RHEED (reflection high-energy electron diffraction) présentent des "lignes" de diffraction avec une reconstruction de surface As  $2 \times 4$  pendant la croissance de la couche tampon de GaAs et une reconstruction  $1 \times 2$  pendant la croissance des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  [175]. Ces diagrammes RHEED (figure 3.2) permettent de contrôler le bon déroulement

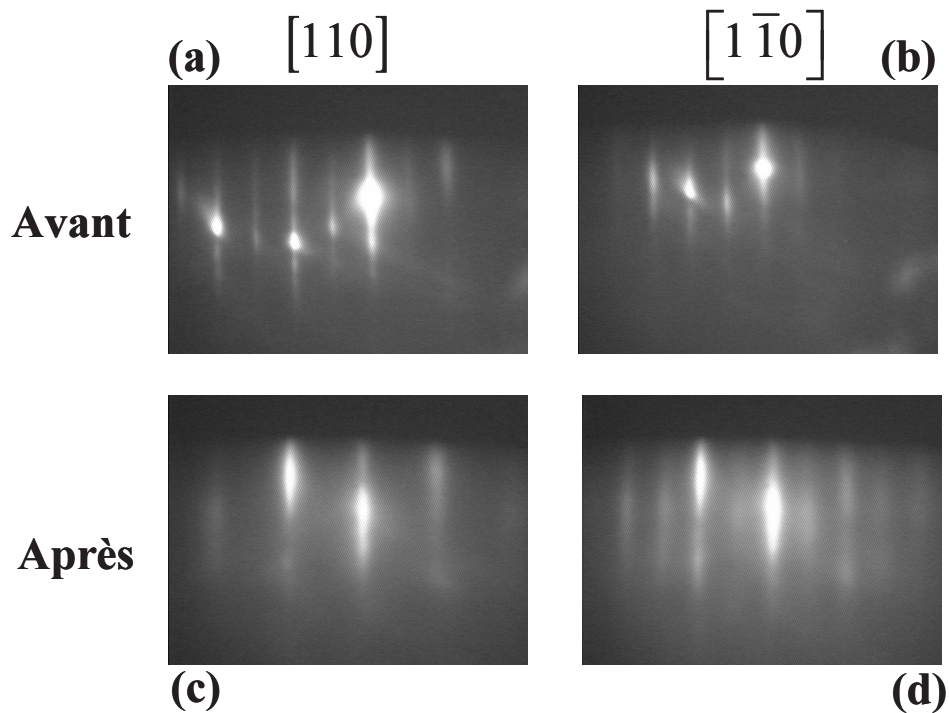


FIG. 3.2 – Diagramme RHEED avant (a,b) et après la croissance de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (c, d). Les diagrammes (a et c) sont pris selon l'azimutale  $[110]$  et selon  $[1\bar{1}0]$  (b et c).

de la croissance. En effet, lorsque le matériau démixe au cours de la croissance (apparition d'une phase secondaire de MnAs), les diagrammes RHEED présentent alors des motifs irréguliers.

### 3.1.2 Analyses structurales

La composition de manganèse a été déterminée par EDX (energy dispersive analysis of X-rays) et des analyses structurales ont été effectuées par diffraction de rayons-X.

Les distances réticulaires (déterminées à partir des réflexions (004) et (444)) permettent de calculer les paramètres de maille des couches  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  dans les directions parallèles ( $a_{//}$ ) et perpendiculaires ( $a_{\perp}$ ) à la surface des films. Pour toutes les concentrations de Mn, le paramètre de maille dans le plan ( $a_{//}$ ) est le même que le paramètre de maille du substrat (0.56533 nm) en prenant en compte la limite de résolution des appareils de mesure ( $\pm 10^{-4}$ ). Par conséquent les couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (de 200nm à  $1\mu\text{m}$ ) sont totalement contraintes en

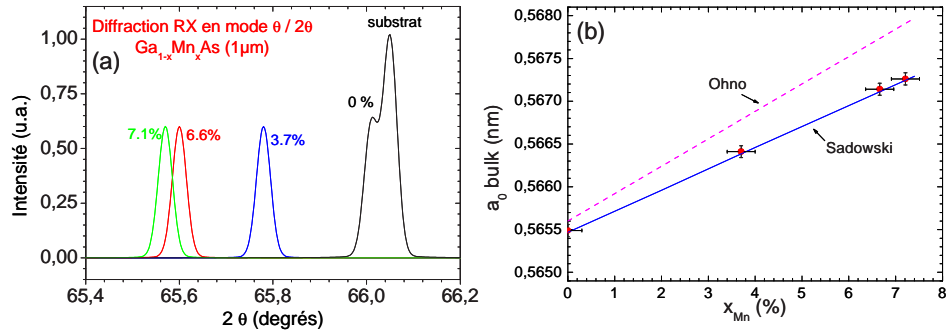


FIG. 3.3 – Diffraction de rayons X en mode  $\theta/2\theta$  des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  pour des concentrations de 0%, 3.7%, 6.6% et 7.1% (Fig. 3.3a). Dépendance linéaire du paramètre de maille relaxé ( $a_0$ ) du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  massif en fonction de la concentration de manganèse. Sont aussi représentés les résultats obtenus par Sadowski *et al.* [203] et par Ohno *et al.* [175] (Fig. 3.3b).

compression [203, 222]. Le paramètre de maille massif relaxé ( $a_0$ ) peut être calculé en supposant que  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  a les mêmes constantes élastiques que le GaAs. La figure 3.3b représente la dépendance linéaire du paramètre de maille  $a_0$  avec la concentration de Mn incorporée (loi de Vegard<sup>1</sup>).

La concentration de Mn a été déterminée par EDX pour quatre échantillons d'une épaisseur de  $1\mu\text{m}$ . Un de ces échantillons ne contient pas de Mn et sert ainsi de référence. Ces échantillons nous ont permis d'établir une courbe d'étalonnage définissant la relation entre la concentration de Mn et le paramètre de maille<sup>2</sup>.

La variation linéaire du paramètre de maille ( $a_0$ ) avec la concentration de Mn (Fig. 3.3b) est similaire aux résultats publiés par Shott *et al.* [217] et Sadowski *et al.* [203] mais est différente de celle observée par Ohno *et al.* [175]. Il a été montré que l'évolution du paramètre de maille avec la concentration de Mn incorporée dépend fortement des conditions de croissance (température de dépôt et rapport des flux de gallium et d'arsenic) [221, 217]. L'augmentation du paramètre de maille (à concentration de Mn fixe) est liée à l'augmentation de l'excès d'arsenic [218].

<sup>1</sup>Le paramètre de maille ne dépend pas uniquement de la concentration de Mn mais aussi de la température de croissance et du rapport des flux de Ga et d'As [218]. La variation du paramètre de maille avec la concentration de Mn suit la loi de Vegard si on ne change pas les conditions de croissance (température de croissance et rapport des flux de Ga et d'As).

<sup>2</sup>Ainsi, pour tous les autres échantillons (couches minces et hétérostructures), la concentration de Mn est estimée à partir du paramètre de maille.

## 3.2 Propriétés magnétiques

Les mesures d'aimantation ont permis de mettre en évidence l'influence de la concentration de Mn sur les propriétés magnétiques. Ces études ont été effectuées à l'aide d'un magnétomètre SQUID (superconducting quantum interference device). Des mesures complémentaires de magnéto-optique ont été réalisées (en collaboration avec Jacques Ferré, Laboratoire de Physique du Solide) afin d'étudier l'anisotropie magnétique et les mécanismes de renversement d'aimantation.

La concentration de Mn, la température de croissance et l'épaisseur des échantillons étudiés sont données dans le tableau 3.1.

Echantillon	Mn(%)	Epaisseur	T° substrat
M258	3,20	225nm	250°C
<b>M275</b>	<b>3,7</b>	<b>1μm</b>	<b>230°C</b>
M259	4,3	265nm	250°C
M265	4,8	1μm	235°C
M260	6.25	235nm	250°C
<b>M273</b>	<b>6,6</b>	<b>1μm</b>	<b>230°C</b>
<b>M274</b>	<b>7,1</b>	<b>1μm</b>	<b>230°C</b>

TAB. 3.1 – Concentration, épaisseur et température de croissance des couches étudiées. Les concentrations écrites en gras ont été déterminées par EDX.

### 3.2.1 Comportement en température

La mesure de l'aimantation en fonction de la température est évidemment intéressante pour déterminer la température de Curie ( $T_c$ ) mais permet aussi de détecter l'éventuelle présence d'une phase secondaire ferromagnétique de MnAs. En effet la  $T_c$  du MnAs, de l'ordre de 325K<sup>3</sup>, est bien supérieure à celle du  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  (50K à 110K [169]).

Selon la concentration de Mn, la variation de l'aimantation en fonction de la température présente trois comportements distincts (Fig.3.4) :

- à faible concentration ( $x < \sim 4\%$ ) : on observe une variation de l'aimantation exponentiellement dépendante de la température, indiquant un ferromagnétisme faible,
- à forte concentration : on observe une diminution de l'aimantation correspondant à une phase homogène de  $Ga_{1-x}Mn_xAs$ . Au delà de la  $T_c$  du  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  ( $\sim 60K$  ici) il subsiste une aimantation qui s'annule autour de

<sup>3</sup>La  $T_c$  est de 305 K pour le MnAs massif et de  $\sim 325$  K pour des couches minces (voir par exemple [93, 85]).

- 340K ( $T_c$  du MnAs) indiquant la présence d'une phase ferromagnétique de MnAs,
- pour des concentrations intermédiaires, la variation de l'aimantation en fonction de la température se rapproche d'une fonction de Brillouin.

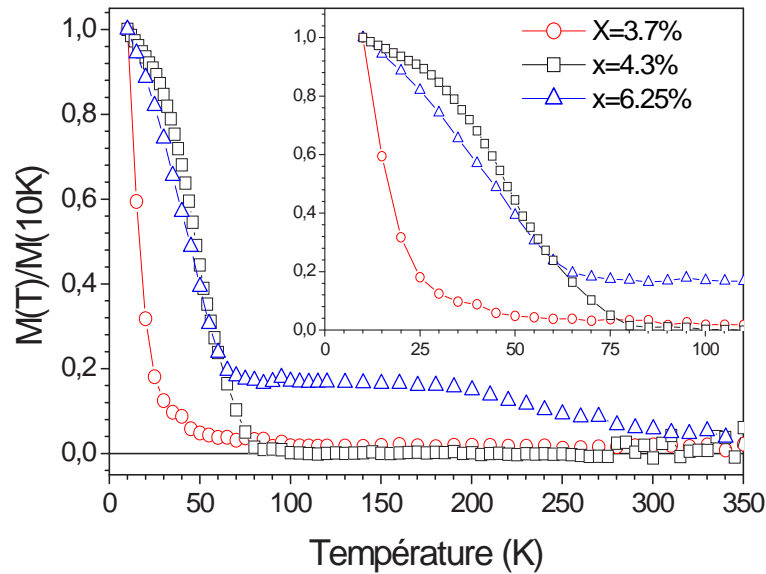


FIG. 3.4 – Variation de l'aimantation en fonction de la température pour trois couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  où  $x=3.7\%$  ( $\circ$ ),  $x=4.3\%$  ( $\square$ ) et  $x=6.25\%$  ( $\triangle$ ). En insert, même courbe mais restreinte aux basses températures.

Le comportement magnétique de l'échantillon à faible concentration de Mn (3.7%) est typique des semiconducteurs ferromagnétiques où les porteurs restent localisés autour des ions manganèse, la phase ferromagnétique est due alors à la percolation des polarons [245, 12, 257].

On a détecté une phase secondaire de MnAs pour la couche à 6.25% de Mn. Cependant pour des échantillons à concentration de Mn plus élevée (6.6 et 7.1%) nous n'avons pas détecté de phase magnétique correspondant au MnAs. Ces deux derniers échantillons ont été élaborés à 230°C alors que l'échantillon avec présence de MnAs a été élaboré à plus haute température (250°C).

La température de Curie varie de 35K à 75K selon la concentration de Mn incorporée (tableau 3.2). Ces températures de Curie sont déterminées à partir de  $M(T)$  effectuées sous un champ de 500Oe<sup>4</sup>. La variation de la  $T_c$  en fonction de

<sup>4</sup>Pour avoir une valeur plus précise de la  $T_c$ , il serait préférable d'effectuer une série de  $M(T)$  en diminuant le champ et d'extrapoler à champ nul. La  $T_c$  de nos couches est déterminée lorsque la dérivée  $dM/dT$  s'annule.

la concentration de Mn incorporée peut être séparée en deux gammes de concentration (Fig.3.5) :

- à faible concentration de Mn ( $x \leq 4.5\%$ ) où la  $T_c$  augmente avec la concentration de Mn,
- à forte concentration ( $x > 4.5\%$ ) où la  $T_c$  diminue puis semble être indépendante de la concentration de Mn.

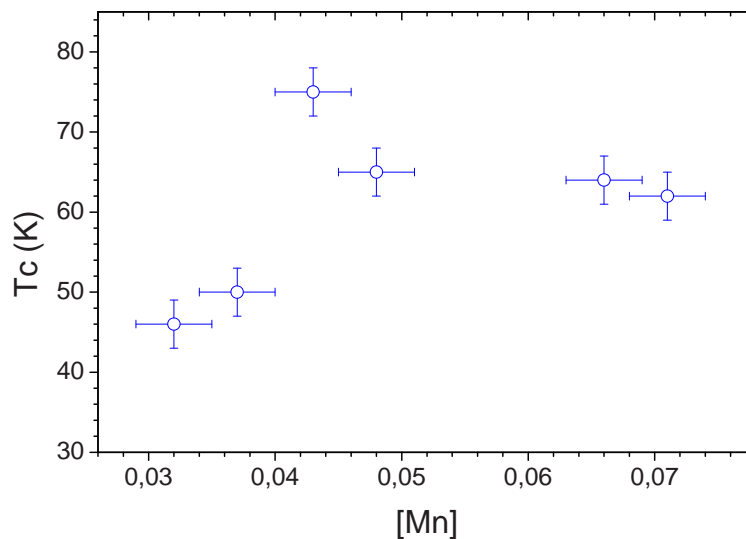


FIG. 3.5 – Evolution de la température de Curie avec la concentration de Mn.

Echantillon	Mn (%)	T <sub>c</sub> (K)	T <sub>c</sub> (théorique)
M258	3,20	46	64
M275	3,7	50	74
M259	4,3	75	86
M265	4,8	65	96
M260	6.25	MnAs	125
M273	6,6	64	132
M274	7,1	62	142

TAB. 3.2 – Températures de Curie mesurées et températures de Curie "théoriques" du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  :  $T_c \sim 2000x_{Mn}$  (d'après [148]).

L'augmentation de la  $T_c$  en fonction  $x_{Mn}$  à faible concentration est un comportement attendu puisque la température de Curie est proportionnelle à la concentration effective de Mn (equation 2.5, page 35). On peut noter cependant que les  $T_c$  mesurées sont bien inférieures aux  $T_c$  prédites [148, 56]. La température de Curie étant proportionnelle à  $p^{1/3}$  [56], ces faibles  $T_c$  mesurées suggèrent la présence de

défauts qui compensent le nombre de trous. Rappelons que les principaux défauts dans ces structures sont :

- **antisite d'arsenic** ( $\text{As}_{\text{Ga}}$ ) : un atome As substitue un atome Ga
- **Mn interstitiel** ( $\text{Mn}_I$ )

Ces deux types de défauts sont doubles donneurs, c'est à dire qu'ils donnent deux électrons, par conséquent ils compensent les trous créés par l'incorporation du Mn. Les défauts  $\text{As}_{\text{Ga}}$  ont été observés par microscopie tunnel en section transverse par Tsuruoka *et al.* [246] et par Grandidier *et al.* [83, 144].

La baisse de la Tc pour des concentrations supérieures à 5% s'expliquerait par la formation de paires Mn-Mn antiferromagnétiques et par l'augmentation (avec  $x_{\text{Mn}}$ ) de Mn interstitiels qui ne participent pas au ferromagnétisme [269, 15, 195]. Mahieu *et al.* ont montré que la fraction de Mn interstitiels augmentait avec la concentration de Mn et était de l'ordre de 20% pour des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  à 5.2% de Mn [144]. L'influence de ces défauts sur les propriétés magnétiques et de transport peut être clairement mis en évidence en effectuant des recuits qui permettent de réduire le nombre de défauts<sup>5</sup>.

### 3.2.2 Comportement en champ

Les mesures d'aimantation en fonction du champ magnétique sont principalement intéressantes pour déterminer le moment magnétique par atome de Mn et pour étudier l'anisotropie magnétique.

#### 3.2.2.1 Moment magnétique et aimantation rémanente

Les cycles d'hystérésis  $M(H)$  sont particulièrement délicats à traiter pour ces composés en raison de la difficulté à dissocier les contributions diamagnétiques, ferromagnétiques, paramagnétiques et éventuellement antiferromagnétiques (figure 3.6).

L'allure des cycles d'hystérésis (figure 3.7) peut être de nouveau séparée en trois gammes de concentrations.

- A faible concentration ( $<3.7\%$ ), on observe un cycle "mou", c'est à dire un renversement progressif de l'aimantation, une aimantation rémanente extrêmement faible ( $\sim 10\%$ ) et une faible ouverture de cycle,
- A forte concentration ( $>7.5\%$ ), la présence de MnAs semble provoquer un renversement d'aimantation en deux étapes, une associée à une phase de GaMnAs (renversement abrupte à faible champ) et une associée au MnAs à plus fort champ (renversement plus progressif). Ce comportement est observé pour l'échantillon à 6.25% élaboré à 250°C.

<sup>5</sup>Je reviendrai plus en détail au cours du § 3.4 (page 71) sur l'influence des recuits sur les propriétés magnétiques et de transport.

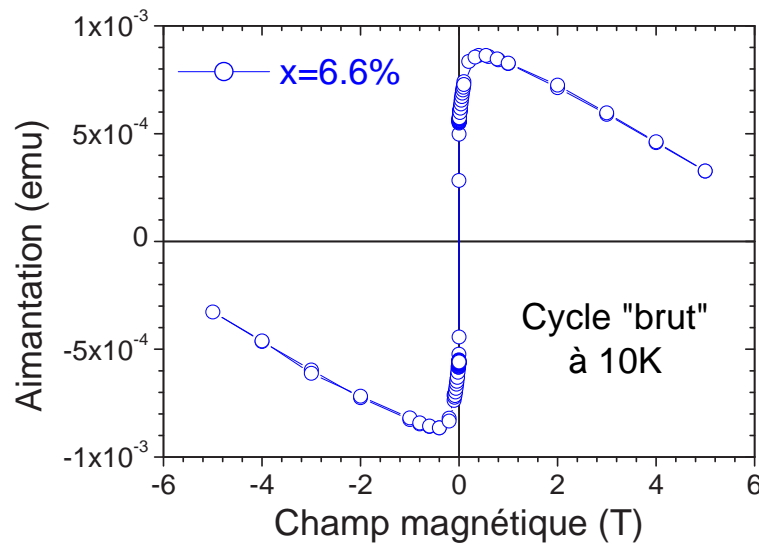


FIG. 3.6 – Exemple de variation de cycle  $M(H)$  "brut" pour une couche de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ( $x=6.6\%$ ). Le signal diamagnétique n'a pas été retiré.

- Pour des concentrations intermédiaires, on observe des cycles "durs" à faible champ avec des retournement d'aimantation sur quelques Oersted (champ coercitifs de l'ordre d'une dizaine d'Oersted et une aimantation rémanente qui varie de 40% à 75%).

Les cycles d'hystérésis ont été effectués à 10K en appliquant le champ magnétique selon les axes cristallographiques [100], [110] et [001]. Le moment magnétique à saturation pour la paire "ion manganèse - trou" varie de  $2\mu_B$  à  $3\mu_B$  selon la concentration de Mn. Pour tous les échantillons le moment magnétique est très inférieur au moment théorique. Ce moment magnétique est compris entre  $4\mu_B$  et  $5\mu_B$  pour la configuration  $3d^5+h$ . Les valeurs des moments magnétiques et de l'aimantation rémanente sont données dans le tableau 3.3 (page 64). La faible valeur du moment magnétique mesuré signifie qu'une seule partie des ions Mn participe au ferromagnétisme. Il est délicat de déterminer l'origine de ce déficit d'aimantation. Néanmoins plusieurs explications peuvent être avancées :

- Les défauts  $\text{As}_{\text{Ga}}$  ou  $\text{Mn}_I$
- Une partie des spins peuvent former un état "verre de spin".
- Complexes  $\text{Mn}^{6\text{As}}$  (atome de Mn entouré de 6 atomes d'As).

Les défauts  $\text{As}_{\text{Ga}}$  ou  $\text{Mn}_I$  peuvent être de nouveau évoqués et peuvent effectivement induire une réduction du moment magnétique<sup>6</sup>. Un état verre de spin est

<sup>6</sup>Korzhavii *et al.* ont montré par des calculs fondés sur la théorie de la densité fonctionnelle (DFT) que le moment magnétique par atome de Mn devenait nul pour des concentration de  $\text{As}_{\text{Ga}}$



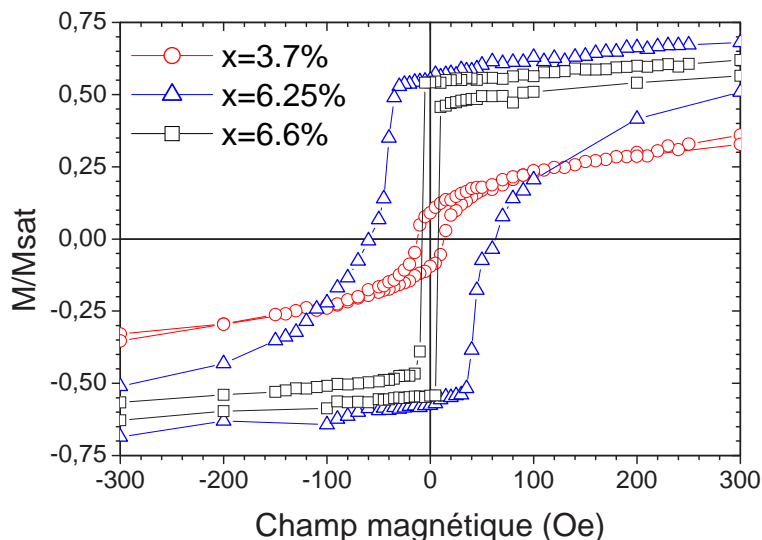


FIG. 3.7 – Cycle d’hystérésis pour trois couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  où  $x=3.7\%$  ( $\circ$ ),  $x=6.6\%$  ( $\square$ ) et  $x=6.25\%$  ( $\triangle$ ) à 10K. Le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches.

possible dans ces composés mais il est difficile de les détecter à partir des cycles  $M(H)$  en raison de la difficulté de soustraire le signal diamagnétique du substrat et des couches. Les défauts de types  $\text{Mn}^{6As}$  étant aussi de type donneurs, ils compensent les accepteurs  $\text{Mn}_{Ga}$  et réduisent ainsi le moment magnétique. Ce type de défaut ( $\text{Mn}^{6As}$ ) a été initialement observé dans le composé  $\text{In}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  par Krol *et al.* [128] puis évoqué dans le composé  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  par Van Esch *et al.* [254]. Plus récemment, des défauts (complexes Mn-As paramagnétiques) ont été mis en évidence par spectroscopie d’absorption de rayons-X par Ishiwata *et al.* [102].

### 3.2.2.2 Anisotropie

L’anisotropie magnétique des semiconducteurs ferromagnétiques III-V dépend de plusieurs paramètres [55, 1] :

- Contraintes
- Densité de porteurs

L’influence de ces paramètres sur l’anisotropie magnétique a été étudiée théoriquement (Dietl *et al.* [55] Abolfarth *et al.* [1]), et mis en évidence par plusieurs expériences. Selon que la couche ferromagnétique est en tension ou en compression, l’axe de facile aimantation est dans le plan (contrainte en compression) ou hors du plan (contrainte en tension). Par exemple Shen *et al.* [222] ont montré

supérieures ou égales à 2% [124].

qu'une couche de  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  déposée sur une couche tampon de GaAs présentait un axe de facile aimantation dans le plan de la couche alors qu'une couche déposée sur (In,Ga)As a son axe de facile aimantation hors du plan. Takamura *et al.* [237] ont montré, pour des couches de  $Ga_{1-0.05-y}Al_yMn_{0.05}As$ , qu'une variation de la densité de porteurs induisait un changement d'axe de facile aimantation dans le plan à hors du plan. Sawicki *et al.* [213] ont mis en évidence que l'axe de facile aimantation passait de [100] à [001] lorsque le degré d'occupation des bandes de la bandes de valence  $\Gamma_8$  changeait.

Afin de déterminer les axes de facile aimantation, nous avons effectué des cycles d'aimantation  $M(H)$  selon les axes cristallographiques [100], [110] et [001] et des mesures magnéto-optiques en rotation Kerr longitudinale.

### a) Mesures SQUID

Afin de vérifier, dans un premier temps, que l'axe de facile aimantation est dans le plan des couches nous avons effectué des cycles d'hystérésis où le champ magnétique est appliqué parallèlement et perpendiculairement au plan des couches (Fig. 3.8).

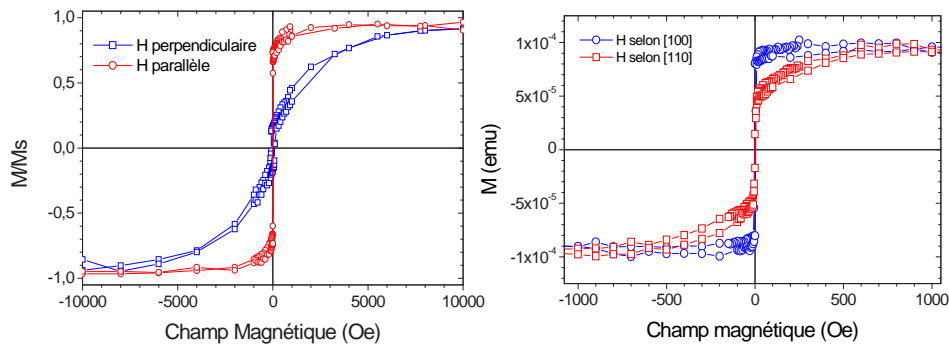


FIG. 3.8 – Cycle d'hystérésis effectués à 10K où le champ magnétique appliqué est parallèle (○) et perpendiculaire (□) à la surface de l'échantillon. Cycle d'hystérésis où le champ magnétique est appliqué selon les axes cristallographiques [100] (○) et [110] (□). Mesures effectuées sur l'échantillon à 4.3%.

Nous retrouvons bien un axe de facile aimantation dans le plan (les couches de  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  étant totalement contraintes, § 3.1.2, p. 43), le champ de saturation lorsque le champ magnétique est perpendiculaire ( $\sim 0.8T$ ) étant bien supérieur à  $4\pi M_s$  (l'aimantation à saturation étant de l'ordre de  $20 \text{ emu.cm}^{-3}$ ). Des cycles d'hystérésis en appliquant le champ magnétique selon les axes cristallographiques [100] et [110] ont mis en évidence un axe de facile aimantation dans le plan selon l'axe cristallographique [100] (Fig. 3.8).

### Constantes d'anisotropie cubique et uniaxiale

Les mesures d'aimantation effectuées au SQUID (Fig. 3.8, p. 51) en appliquant le champ magnétique selon [100], [110] et [001] permettent de donner l'ordre de grandeur de l'anisotropie cubique ( $K_c$ ) et uniaxiale ( $K_u$ ). Les champs d'anisotropie cubique ( $H_c=2K_c/M$ ) et uniaxiale ( $H_u=4\pi M_S-2K_u/M$ ) étant de l'ordre de 600G et 8000G lorsque le champ est appliqué selon [110] et [001], les énergies d'anisotropie sont de l'ordre de  $K_c = 6.10^3 \text{ erg.cm}^{-3}$  et  $K_u=8.10^4 \text{ erg.cm}^{-3}$ .

### b) Mesures magnéto-optiques<sup>7</sup>

Les mesures angulaires étant délicates à mener au SQUID, en raison de la géométrie du dispositif expérimental, des mesures de magnéto-optique ont été alors effectuées en collaboration avec J. Ferré (Laboratoire de Physique des Solides) afin d'étudier l'anisotropie magnétique et les mécanismes de renversement de l'aimantation des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

Ces mesures magnéto-optiques ont été effectuées en rotation Kerr longitudinale (LKR). Le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches et la polarisation de la lumière incidente est parallèle au plan d'incidence. Ces expériences ont été réalisées à 1.8K et la source de lumière utilisée est un laser He-Ne de longueur d'onde  $\lambda=535 \text{ nm}$ .

Une série de cycles d'hystérésis a été effectuée pour différentes directions de champ (Fig. 3.9). Les expériences étant effectuées à 1.8K, les champs coercitifs sont par conséquent plus élevés que les champs coercitifs des cycles effectués à 10K au SQUID [194]. Pour cette étude, on s'intéresse uniquement à la phase ferromagnétique à faible champ (quelques centaines d'Oe).

Le cycle où le champ est selon [110] présente un renversement d'aimantation en un seul saut mais a une amplitude plus faible ( $\sim 1.4$  fois plus faible, soit en environ un facteur  $\sqrt{2}$ ) que le cycle effectué avec un champ selon [100] (figures 3.9a et b). Pour des angles différents des axes de symétrie ([100] et de [110]), le renversement de l'aimantation s'effectue en deux sauts successifs (figures 3.9c et d).

### Mécanisme de renversement de l'aimantation

La figure 3.10 schématise le renversement de l'aimantation (en deux étapes) lorsque le champ magnétique est appliqué selon un axe cristallographique différent de [100] et [110].

<sup>7</sup>Les résultats présentés dans ce paragraphe ont été obtenus sur les échantillons de B. Lépine (Rennes). Ces résultats sont similaires à ceux obtenus par J. Ferré sur les échantillons de Däweritz (Berlin). Les résultats et l'analyse du mécanisme de renversement de l'aimantation, présenté dans ce paragraphe, sont détaillés dans l'article de Moore *et al.* [158].

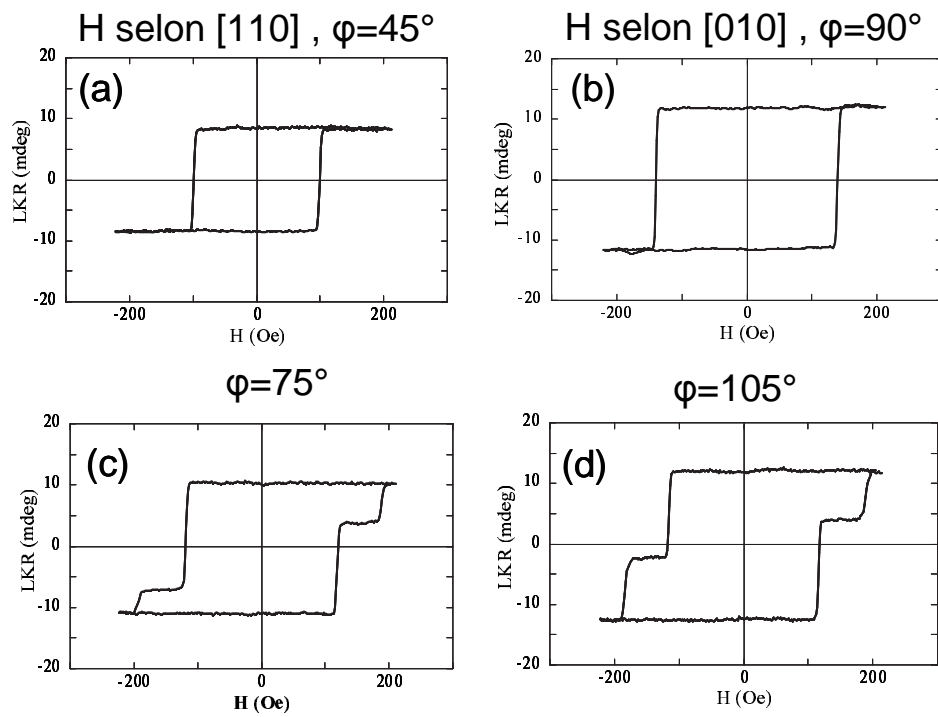


FIG. 3.9 – Cycle d’hystérésis (échantillon à 6.6%) où le champ magnétique est selon [110] et [010] (Fig. 3.9a et b) et selon  $\varphi=75^\circ$  et  $105^\circ$  (Fig. 3.9c et d).  $\varphi$  est l’angle entre la direction du champ magnétique et l’axe [100]

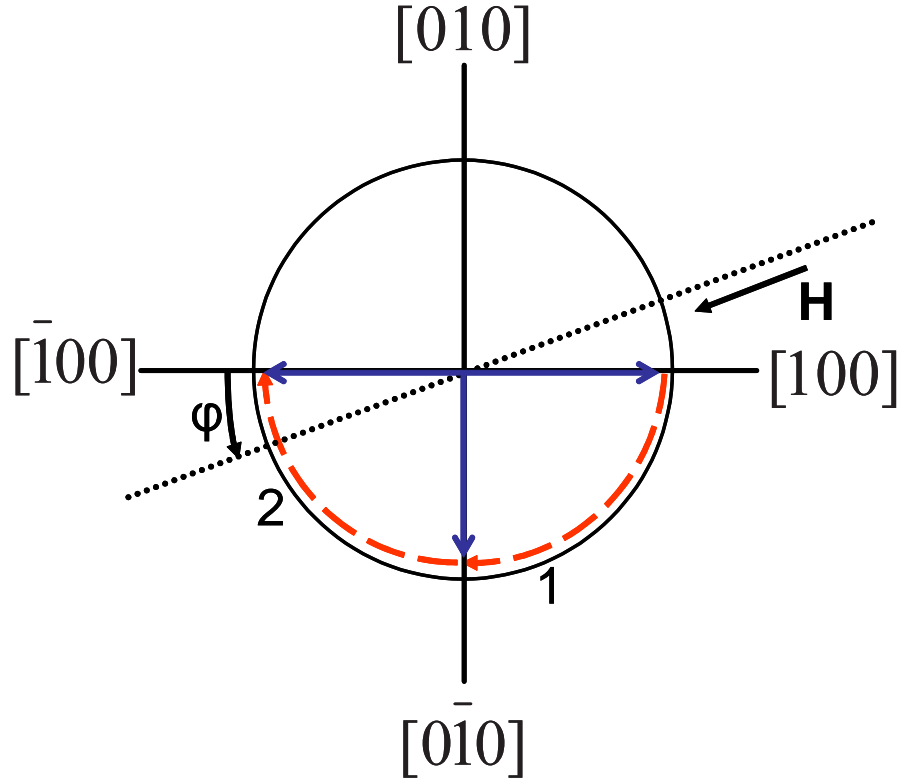


FIG. 3.10 – Schéma représentant le renversement de l'aimantation lorsque le champ est appliqué selon un axe quelconque. A la rémanence, l'aimantation est selon un axe de facile aimantation  $[100]$ , lorsque le champ augmente l'aimantation s'oriente selon  $[0\bar{1}0]$  puis selon  $[\bar{1}00]$ . Enfin pour des champ suffisamment élevés l'aimantation s'oriente selon la direction du champ. D'après Moore *et al.* [158].

L'énergie magnétique d'une couche de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  peut s'écrire sous la forme [55] :

$$E_M = K_u \cos^2 \Theta + K_c (\sin^4 \Theta \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi + \sin^2 \Theta \cos^2 \Theta) \quad (3.1)$$

où  $K_u$  et  $K_c$  sont les constantes d'anisotropie uniaxiale et cubique,  $\Theta$  et  $\varphi$  sont les angles entre la direction de l'aimantation et les axes  $[001]$  et  $[100]$ . Lorsque  $4K_u > -K_c$  l'axe de facile aimantation est dans le plan des couches. Cet axe est selon  $[100]$  lorsque  $K_c > 0$  et selon  $[110]$  lorsque  $K_c < 0$  [55].

Lorsque l'on applique le champ magnétique dans le plan des couches ( $\Theta = \pi/2$ ) l'équation 3.1 peut s'écrire :

$$E_M = \frac{K_c}{4} \sin^2 2\varphi \quad (3.2)$$

Si le champ magnétique appliqué est faible ( $H \ll 2K_c/M$ ), l'aimantation ne peut pas se renverser par rotation. Le champ magnétique induit un déplacement des parois des domaines magnétiques, orientés à  $90^\circ$  [47], et l'aimantation se renverse en deux sauts successifs. Le mode de renversement magnétique a été modélisé par Cowburn *et al.* [47]. Les valeurs des deux champs coercitifs  $H_{c1}$  et  $H_{c2}$  peuvent être calculées à partir des expressions :

$$H_{c1} = \frac{\varepsilon}{M(\cos \varphi + \sin \varphi)} \text{ et } H_{c2} = \frac{\varepsilon}{M(\cos \varphi - \sin \varphi)} \text{ pour } 0 < \varphi < \frac{\pi}{4} \quad (3.3)$$

où  $\varepsilon$  est l'énergie de piégeage de nucléation.

Pour  $\varphi = 45^\circ$  ( $H // [110]$ ), on a une solution dégénérée pour le premier saut et pas de deuxième saut car la coercivité est alors infinie. Le renversement de l'aimantation pour ces directions ( $[110]$  et  $[\bar{1}10]$ ) est équivalent à deux sauts successifs mais ayant le même champ coercitif.

On peut porter, par exemple, le champ coercitif  $H_{c1}$  ou  $H_{c2}$  expérimental en fonction de  $\varphi$  et montrer (Fig. 3.11) que les valeurs trouvées se placent bien sur la loi (3.3) prédite.

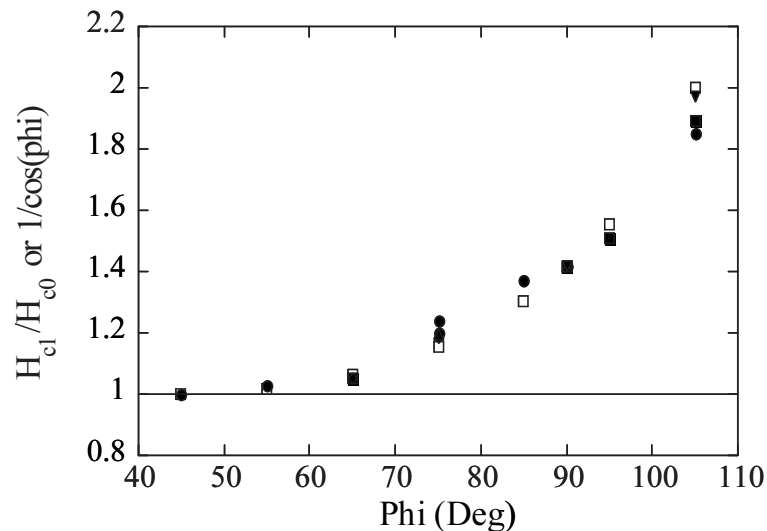


FIG. 3.11 – Evolution du champ coercitif (■ et ●) correspondant au premier saut pour  $\varphi < 90^\circ$  et au deuxième saut pour  $\varphi > 90^\circ$ . Les symboles (□) correspondent à la loi 3.3.

Ces expériences mettent clairement en évidence l'anisotropie des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . L'anisotropie cubique et uniaxiale induit un renversement de l'aimantation en deux étapes. Ce renversement ne s'effectue pas par rotation mais par la formation de domaines à  $90^\circ$  <sup>8</sup>.

<sup>8</sup>Ces domaines magnétiques ont observé récemment par imagerie magnéto-optique [260].

### 3.3 Propriétés de transport et de magnétotransport

Les mesures de transport et de magnétotransport ont été effectuées en appliquant le courant dans le plan des couches (géométrie CIP "current in plane"). Le champ magnétique est soit dans le plan des couches soit hors du plan.

#### 3.3.1 Evolution en température

L'évolution de la résistivité en fonction de la température (à champ nul) pour différents échantillons est illustrée sur la figure 3.12. On peut séparer les échantillons en deux catégories : couches isolantes et conductrices<sup>9</sup>.

Les couches isolantes (faible concentration de Mn) présentent une variation exponentielle de la résistivité avec la température. La résistance des couches conductrices augmente puis diminue. Le maximum de résistivité correspond approximativement à la température de mise en ordre magnétique (Fig. 3.12).

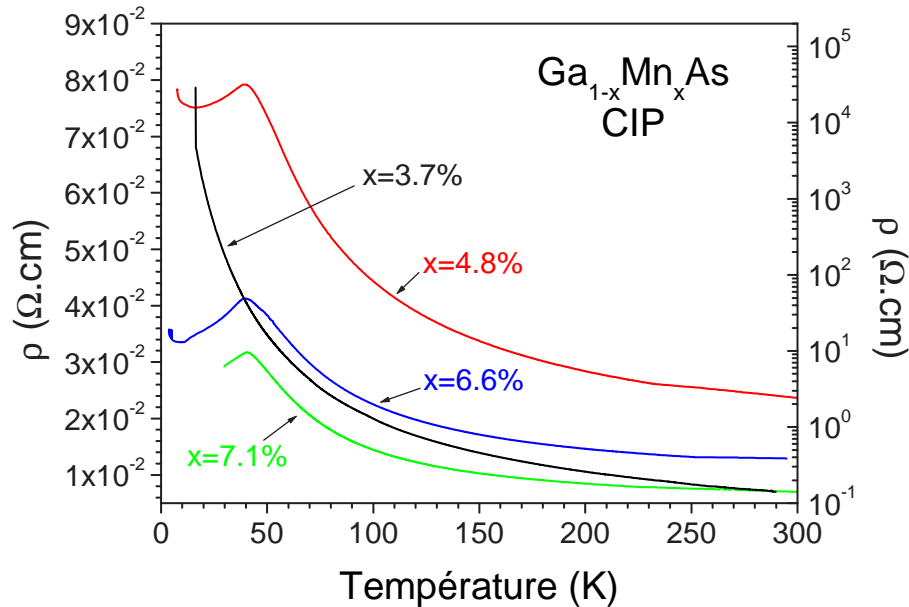


FIG. 3.12 – Résistivité en fonction de la température pour quatre couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  où  $x=4.8\%$ ,  $x=6.6\%$ ,  $x=7.1\%$  (échelle de gauche) et  $x=3.7\%$  (échelle de droite). L'échantillon à 3.7% est isolant tandis que les trois autres sont métalliques en terme de transition métal-isolant (MIT).

Il existe clairement une analogie entre les courbes  $M(T)$  et  $\rho(T)$ . En effet, on

<sup>9</sup>Dans la littérature, ces couches sont couramment définies comme "métalliques" (résistance finie à température nulle). Or les courbes  $\rho(T)$  ne sont pas vraiment caractéristiques d'un matériau métallique. Je préfère alors les qualifier de "conductrices".

avait séparé le comportement en température de l'aimantation en deux gammes de concentrations, à faible concentration de Mn et à des concentrations comprises entre 4% et 7% (§ 3.2.1, page 45). On retrouve ces deux gammes de concentrations (avec les mêmes limites) pour la variation de la résistivité avec la température. Les couches sont isolantes lorsque la concentration est inférieure à 4% et conductrices lorsque la concentration est comprise entre 4% et 7%.

Ces études en température de l'aimantation et de la résistivité sont en accord qualitatif avec le diagramme de phase du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (Fig. 3.1) établi par Ohno *et al.* [169]. Cependant on peut noter que les limites en concentrations établies par Ohno définissant les transitions "métal-isolant" et "métal-formation de MnAs" sont différentes des nôtres. Ce diagramme de phase dépend fortement des conditions de croissance et notamment du rapport des flux de gallium et d'arsenic<sup>10</sup>.

#### Mécanismes de transport :

Un semiconducteur dopé présente des états électroniques situés dans la bande interdite. Lorsque l'on augmente le dopage, ces états d'impureté dans le gap deviennent une bande d'impureté. Dans les semiconducteurs ferromagnétiques III-V où le dopage est élevé<sup>11</sup>, cette bande d'impureté se situe à proximité de la bande de valence (ou conduction selon le type de dopage). Pour des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  typiques ( $3\% < x < 7\%$ ) la bande d'impureté a une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 200mV et le milieu de la bande se situe approximativement à 100mV au dessus de la bande de valence [254]. Il est à noter toutefois qu'il n'existe pas de mesures directes de la largeur et de la position de cette bande d'impureté. Selon le dopage, les états électroniques de la bande d'impureté peuvent être localisés ou délocalisés. Le niveau d'énergie séparant les états localisés des états délocalisés est appelé "limite de mobilité" ( $E_m$ ). Lorsque le niveau de Fermi se trouve dans la région des états localisés, la conduction à basse température est due aux sauts des porteurs et est exponentiellement dépendante de la température et du taux de dopage. Le matériau est alors isolant. Par contre quand le niveau de Fermi se trouve dans la région des états délocalisés, la résistivité reste finie à température nulle, le matériau est conducteur. La transition entre les deux régimes est appelé "transition métal-isolant" (MIT)<sup>12</sup>.

<sup>10</sup>Tanaka *et al.* [223] ont montré, à concentration de Mn fixe, qu'une forte concentration d'As en antisite induisait un caractère isolant alors qu'avec une faible concentration d'As<sub>Ga</sub> les couches étaient conductrices. La transition entre les différentes phases peuvent donc avoir lieu à différentes températures de croissance et différentes concentrations de Mn selon l'excès d'As incorporé.

<sup>11</sup>Les concentrations de Mn dans  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  étant de l'ordre de 3% à 7%, on se trouve plutôt dans un régime de substitution que de dopage.

<sup>12</sup>Voir par exemple le livre de Mott et Davis [161]



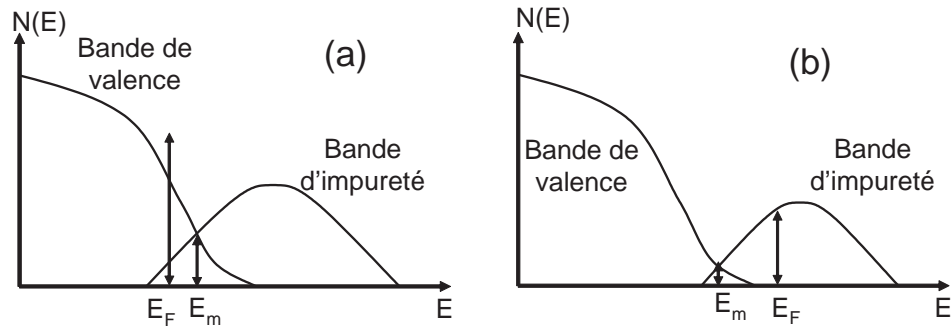


FIG. 3.13 – Structure de bandes schématisée représentant les positions relatives des niveaux d'énergie  $E_m$  et  $E_F$ .  $E_m > E_F$  représente le cas conducteur (a) où le niveau de Fermi est dans la région des états délocalisés. Dans le cas isolant (b),  $E_m < E_F$ ,  $E_F$  est dans la région des états localisés.

#### Cas isolant : $E_m < E_F$

La résistance, exponentiellement dépendante de la température, ressemble à un transport thermiquement activé, typique des matériaux isolants. Lorsque la concentration de Mn est faible, le niveau de Fermi est situé dans la région des états localisés, la conduction est assurée à travers une excitation thermique des trous vers les états délocalisés. La conductivité tend vers 0 à température nulle.

#### Cas conducteur : $E_m \sim E_F$

Au dessus de la température de Curie, la variation de la résistivité, inversement proportionnelle à la température, est caractéristique des matériaux proches de la transition métal-isolant [58]. Le niveau de Fermi se trouve alors à proximité de  $E_m$  et la différence d'énergie est inférieure à l'énergie d'activation thermique. Lorsque le niveau de Fermi se trouve dans la région des états localisés, la conduction est alors principalement assurée par l'excitation thermique des trous vers les états délocalisés de la bande de valence.

En dessous de la température de Curie, c'est à dire en dessous de la température de mise en ordre magnétique, la diffusion par désordre de spin va être fortement diminuée. Cette mise en ordre magnétique induit une augmentation de la mobilité des porteurs et par conséquent induit une diminution de la résistivité. On peut remarquer que la résistance augmente de nouveau au dessous de 10K. En dessous de cette température, l'aimantation spontanée est saturée, la diffusion par désordre de spin devient indépendante de la température. A basse température l'énergie pour exciter un trou de la bande d'impureté vers la bande de valence est plus grande que l'énergie thermique, le transport de charge est alors principalement assuré par sauts entre états localisés ("variable range hopping").

**Ajustement des courbes  $R(T)$  :**

En effectuant des ajustements des courbes  $\rho(T)$  pour des températures au-dessus de la  $T_c$  (Fig. 3.14), on peut déterminer les positions relatives de  $E_m$  et  $E_F$ . En utilisant l'équation (3.4) redéfinie par Van Esch *et al.* [254] en incluant la diffusion par les phonons, nous pouvons obtenir un résultat qualitatif des positions relatives de  $E_m$  et  $E_F$  pour les cas isolants et conducteurs. Cette équation (formulée dans un premier temps par Dubson et Holcomb [58]) est établie en supposant que la conductivité est assurée par des sauts thermiques plutôt que par des diffusion inélastiques.

$$\rho(T) = \frac{C_1 + F}{k_B T \ln(1 + \exp \frac{E_m - E_F}{k_B T})} \quad \text{où } F = \frac{C_2}{\exp \frac{\theta_D}{T} - 1} \quad (3.4)$$

où  $C_1$  et  $C_2$  sont des constantes indépendantes de la température et  $\theta_D$  est la température de Debye.

Le signe de la différence d'énergie  $E_m - E_F$  ( $\Delta E$ ) déterminée à partir des courbes expérimentales reflète bien le caractère isolant ( $\Delta E < 0$ ) ou conducteur ( $\Delta E > 0$ ) des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (Fig. 3.14c). Pour les couches conductrices, la valeur de  $\Delta E$  reflète le rapport de résistance entre 300K et la température de Curie ( $\frac{R(T_c)}{R(300K)}$ ). Lorsque ce rapport augmente,  $\Delta E$  semble diminuer, on se rapproche alors de la transition métal-isolant<sup>13</sup>.

La figure 3.14c montre la corrélation entre la température de Curie (déterminée par des mesures à l'aide du SQUID) et la différence d'énergie  $\Delta E$ . Lorsque la concentration de Mn augmente, la densité de trous devient plus élevée et le niveau de Fermi se situe dans la bande de valence. L'augmentation de la densité de trou traduit aussi une augmentation de la température de Curie. A forte concentration de Mn, cette différence d'énergie diminue et semblerait redevenir négative pour des concentrations encore plus élevées (Fig. 3.14c). Pour de telles concentration, les défauts  $\text{Mn}_I$  (doubles donneurs) induisent une diminution de la densité de trous et par conséquent une augmentation du niveau de Fermi et une baisse de la température de Curie<sup>14</sup>.

<sup>13</sup>Ce comportement est aussi observé lorsque l'on effectue des recuits (voir § 3.4, page 71).

<sup>14</sup>Cela a été observé par Ohno *et al.* [148, 179] et prédit par dos Santos *et al.* [57].

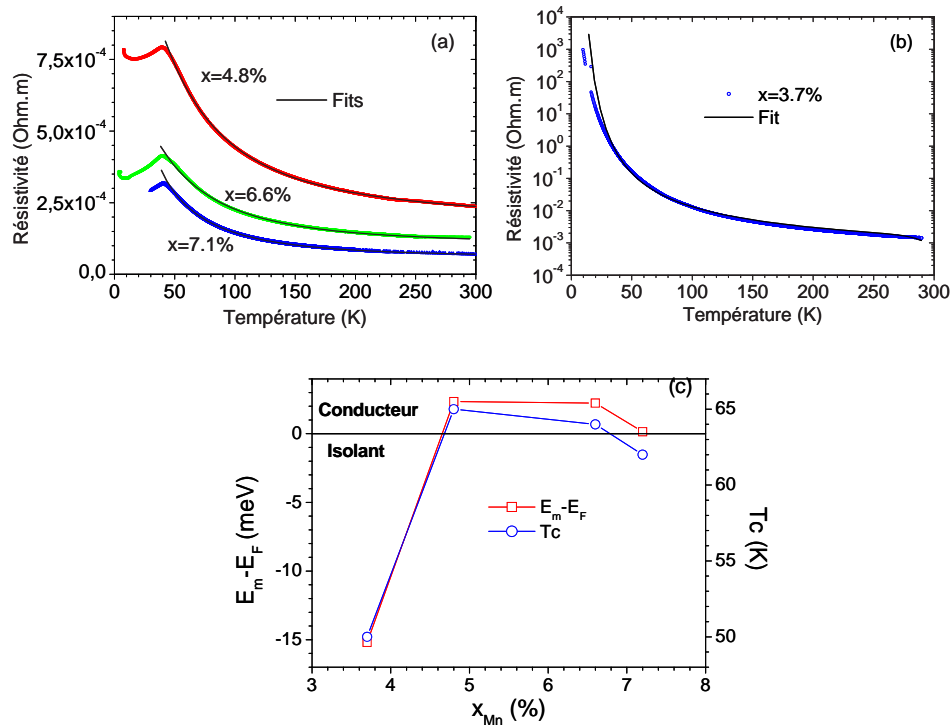


FIG. 3.14 – Résistivité ( $\Omega.m$ ) en fonction de la température et fit de la résistivité pour des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  où  $x=4.8\%$ ,  $x=6.6\%$ ,  $x=7.1\%$  (Fig. 3.14a) et  $x=3.7\%$  (Fig. 3.14a). Différence d'énergie  $E_m - E_F$  (échelle de gauche) et température de Curie (échelle de droite) en fonction de la concentration de Mn (Fig. 3.14a).

### 3.3.2 Magnétorésistance

Des études de la variation de résistance en fonction du champ magnétique ont été effectuées en appliquant le champ magnétique parallèlement et perpendiculairement au plan des couches.

On a vu (§ 3.3.1) qu'il existait une corrélation entre la variation de la résistance avec la température et les propriétés magnétiques. De même, les propriétés de magnéto-transport sont liées aux propriétés magnétiques.

#### 3.3.2.1 Champ magnétique dans le plan des couches et courant électrique parallèle au champ magnétique

##### Magnétorésistance : cas conducteur

Nous avons réalisé des mesures de magnéto-transport à différentes tempéra-

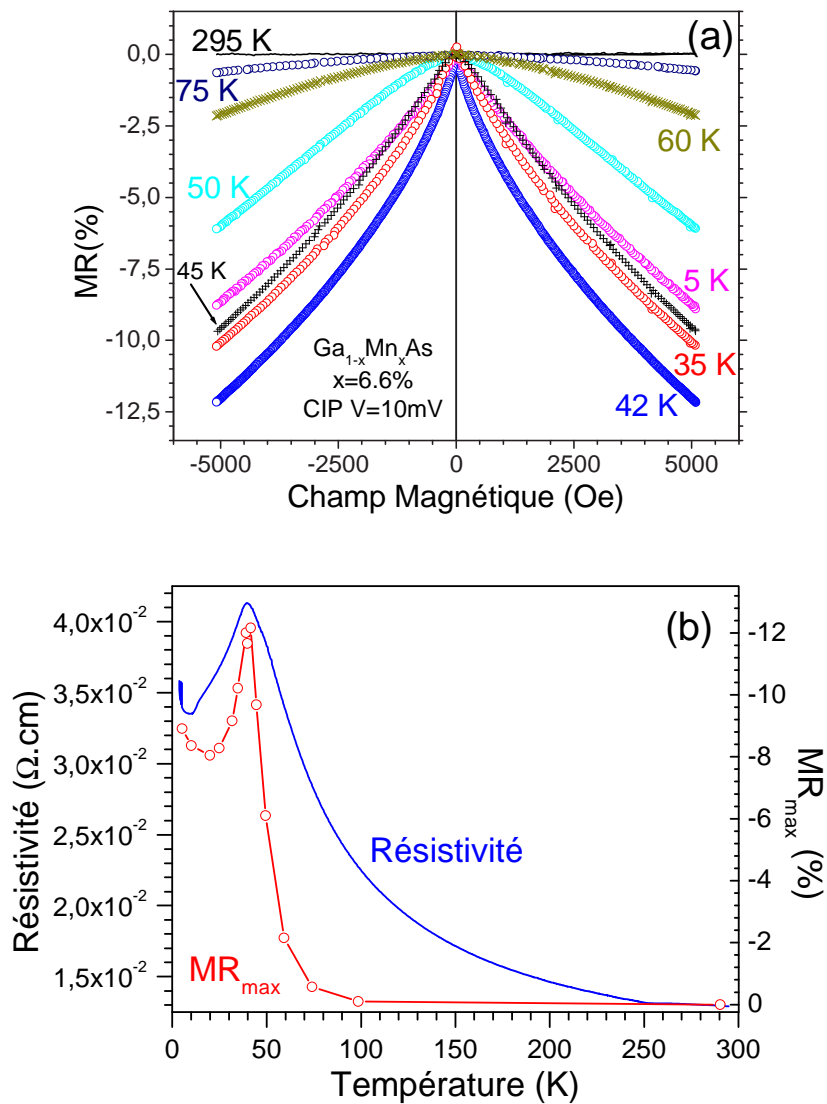


FIG. 3.15 – (a) : variation de la résistance en fonction du champ magnétique (parallèle à la surface) à différente température pour l'échantillon à 6.6% de Mn. (b) : résistivité (échelle de gauche) et magnéto-résistance à 0.5T (échelle de droite) en fonction de la température pour l'échantillon.

tures en appliquant, dans un premier temps, le champ magnétique dans le plan des couches. L'ensemble de ces mesures effectuées sur l'échantillon à 6.6% de Mn est résumé sur la figure 3.15a.

La magnétorésistance (MR) est définie par :

$$\text{MR}(\%) = 100 \times \frac{R(H) - R(0T)}{R(0T)} \quad (3.5)$$

Rappelons qu'en dessous de la  $T_c$ , la diminution de la résistivité est induite par la réduction de la diffusion par le désordre de spin (voir § 3.3.1). La mise en ordre magnétique par l'application du champ induit une diminution de la diffusion par le désordre de spin et par conséquent une diminution de la résistivité. On obtient alors une magnétorésistance négative.

La figure 3.15b représente la variation de la magnétorésistance (échelle de droite) et de la résistivité (échelle de gauche) avec la température. Le maximum de MR (-12.5% pour un champ magnétique de 0.5T) est obtenu à 42K correspondant au maximum de la résistivité, c'est à dire à la température de Curie lorsque la susceptibilité tend vers l'infini. La variation de la résistance avec le champ est donc plus grande à la  $T_c$  (désordre de spin important) qu'à plus basse température où une mise en ordre magnétique spontanée est établie.

#### Magnétorésistance : cas isolant

Les mêmes expériences ont été effectuées sur une couche de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ( $x=3.7\%$ ) isolante. La variation de la résistance en fonction du champ magnétique à différentes températures et la variation de la magnétorésistance en température sont illustrées sur la figure 3.16a.

On observe de nouveau de la MR négative mais contrairement aux couches conductrices, la MR est beaucoup plus élevée (45% à 10K) et le maximum de MR n'est pas obtenu à la température de mise en ordre magnétique ( $\sim 45\text{K}$ ) mais à basse température. Rappelons que pour ces couches isolantes, les porteurs restent localisés autour des ions manganèse, il y a donc une formation de polarons qui augmente l'énergie de liaison à champ nul, mais est déstabilisé par l'application d'un champ magnétique. Cela conduit ainsi à une diminution de la résistivité (MR négative).

La figure 3.17 (p. 64) met en évidence la corrélation entre l'aimantation rémanente ( $M_r/M_s$ ) mesurée au SQUID et la magnétorésistance mesurée à 10K. Plus l'aimantation rémanente est faible, plus la magnétorésistance est élevée et inversement.

Lorsque l'aimantation rémanente est faible, le désordre magnétique est grand. L'application d'un champ magnétique, qui rétablit l'ordre magnétique, aura alors plus d'effet sur la réduction de la diffusion par désordre de spin pour les couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  présentant une faible rémanence.

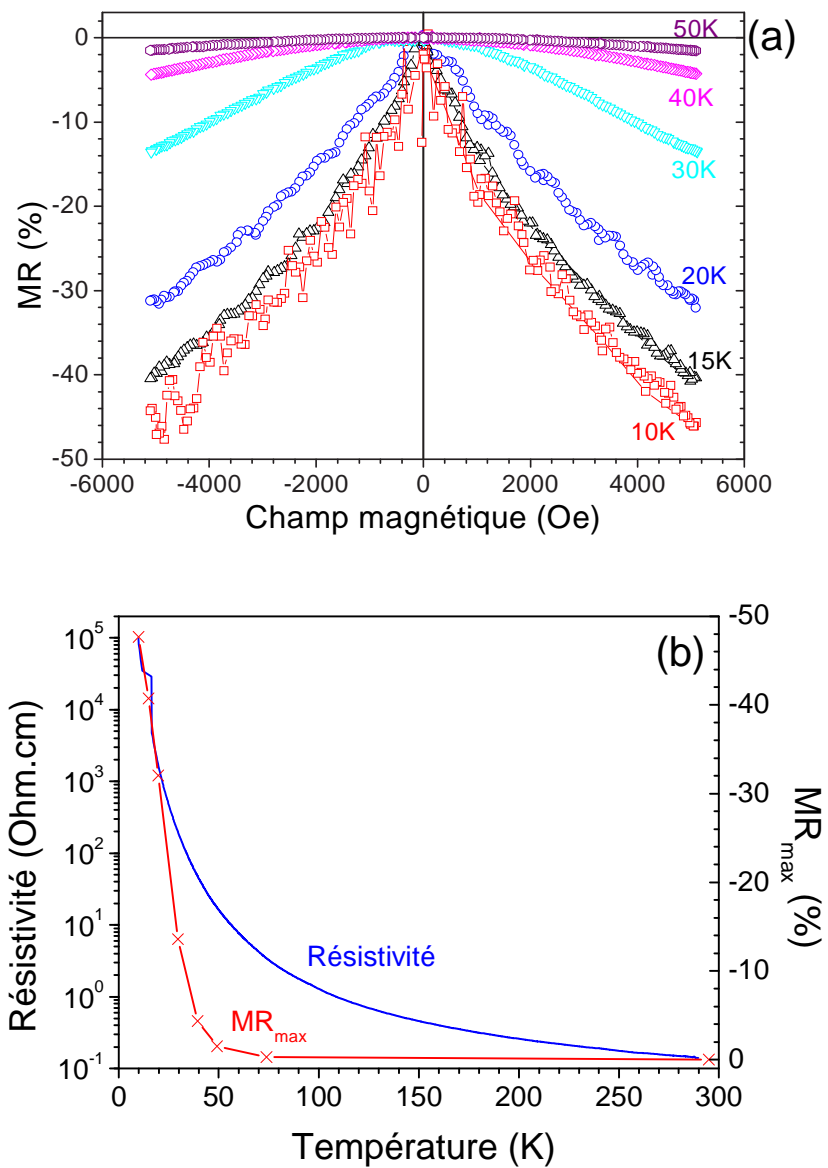


FIG. 3.16 – (a) : courbes de magnéto-résistance à différentes températures. (b) : magnéto-résistance (échelle de droite) et résistivité (échelle de gauche) en fonction de la température pour l'échantillon à 3.7%.

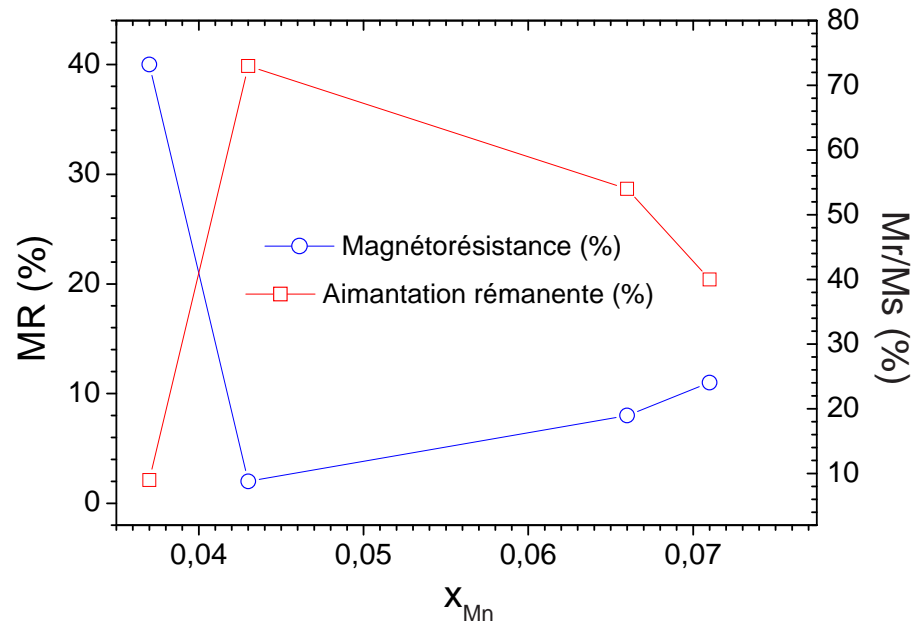


FIG. 3.17 – Magnétorésistance (○ - échelle de gauche) et aimantation rémanente (□ - échelle de droite) en fonction de la concentration de Mn.

Le tableau 3.3 récapitule l'ensemble des grandeurs physiques extraites des mesures magnétiques, de transport et de magnéto-transport. L'aimantation (en  $\mu_B$  par atome de Mn), la température de Curie, l'aimantation rémanente, la résistivité (en  $\Omega\cdot\text{cm}$ ) et la magnétorésistance obtenue à 10K et à 0.5T en fonction de la concentration de Mn sont reportées.

Mn (%)	M ( $\mu_B/\text{Mn}$ )	Tc (K)	Mr/Ms (%)	$\rho$ ( $\Omega\cdot\text{cm}$ )	MR (%)
3.7	1.9	50	9	$> 10^5$	40
3.2	3.2	41	60	–	–
4.8	2.6	65	50	0,079	–
4.3	2.5	75	73	–	2
6.6	2.7	64	54	0,041	8
7.1	2.4	62	40	0,032	11

TAB. 3.3 – Moment magnétique (en  $\mu_B$  par atome de Mn), température de Curie, aimantation rémanente, résistivité et magnétorésistance à 0.5T.

### 3.3.2.2 Effet Hall

Les mesures de magnéto-transport décrites au paragraphe 3.3.2.1 ont été effectuées en appliquant le champ parallèlement à la surface des couches et à faible champ ( $<0.6\text{T}$ ).

Afin de déterminer la densité de porteurs, des mesures d'effet Hall ont été réalisées<sup>15</sup>. Le champ magnétique (9T) est désormais appliqué perpendiculairement au plan des couches. Cette étude a été effectuée en collaboration avec Amir Hamzic (Faculté des Sciences de l'université de Zagreb).

La résistivité Hall est donnée par :

$$\rho_{xy} = \rho_{xy}^0 + \rho_{xx}^a = R_0 B + R_a M \quad (3.6)$$

où  $R_0$  et  $R_a$  sont les coefficients Hall ordinaire (proportionnel au champ) et anormal (proportionnel à l'aimantation perpendiculaire).

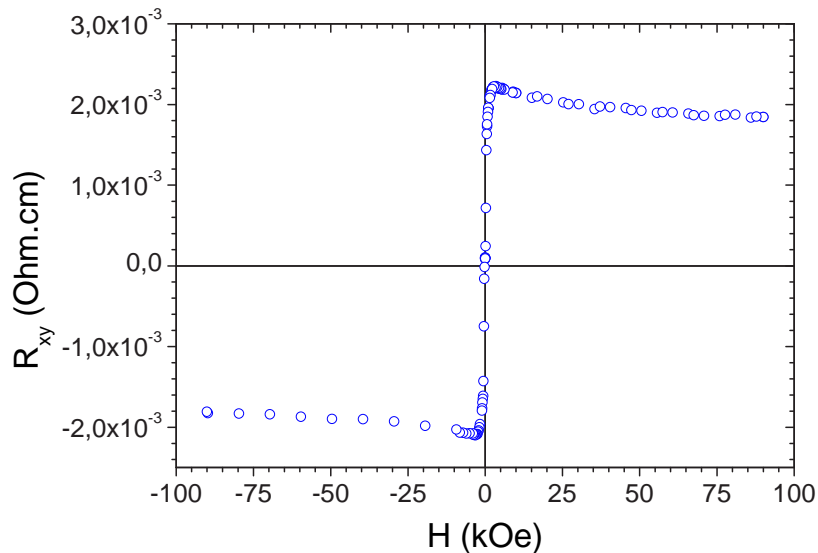


FIG. 3.18 – Résistivité Hall ( $R_{xy}$ ) à 5K pour l'échantillon à  $x=6.6\%$  de Mn.

A faible champ, la résistance est proportionnelle à l'aimantation (effet Hall extraordinaire).  $R_a$  a pour origine l'interaction spin-orbite qui induit une anisotropie entre la diffusion des spins "up" et "down" des porteurs. A fort champ,

<sup>15</sup>Pour réaliser ces mesures d'effet Hall, des croix de Hall ont été lithographiées par voie chimique. La solution chimique utilisée (3 volumes d'acide sulfurique, 1 volume d'eau oxygénée et 1 volume d'eau désionisée) a une vitesse de gravure de 120 nm/s.



la résistance  $R_0$  (inversement proportionnelle à la concentration de porteur) est proportionnelle au champ magnétique (effet Hall ordinaire).

Des mesures d'effet Hall ont été effectuées sur trois échantillons. La figure 3.18 représente la résistivité Hall pour la couche de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  à 6.6% à 5K. La résistance à fort champ ( $>1\text{T}$ ) diminuant avec le champ magnétique signifie qu'il y a deux effets superposés. En effet on s'attendrait à ce que la résistance augmente (transport de trous) pour des champs magnétiques suffisamment élevés. Dans cette gamme de champ, un effet de magnétorésistance intrinsèque (forte MR négative) subsiste (Fig. 3.19) et compense ainsi l'effet Hall ordinaire. A très fort champ (de 8 à 9 Tesla), la pente ( $dR/dH$ ) semble s'annuler ce qui nous fait penser qu'il faudrait un champ magnétique plus intense pour mesurer l'effet Hall ordinaire et déterminer ainsi la densité de trous.

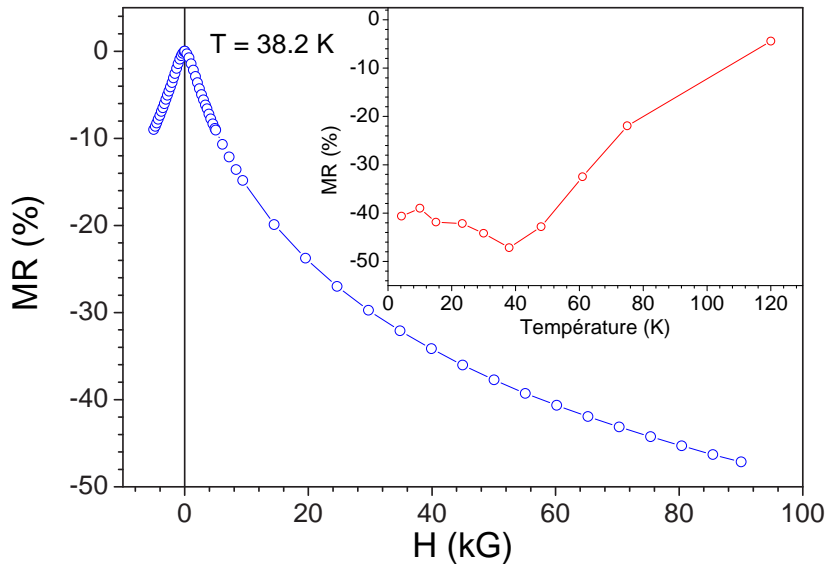


FIG. 3.19 – Variation de la résistance ( $R_{xx}$ ) en fonction du champ magnétique à 38K pour l'échantillon à 6.6%. Le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la surface de l'échantillon. En insert, variation de la MR en fonction de la température.

Les différents groupes qui ont réalisé des mesures d'effet Hall dans des conditions semblables aux nôtres (température et champ magnétique) avaient une MR plus faible<sup>16</sup> et pouvaient alors estimer la densité de porteurs. Cependant, Ohno *et al.* ont montré que la MR négative persistait à 50mK et à 27T [173]. La déter-

<sup>16</sup>Une faible MR est obtenue après un recuit à basse température.

mination de la densité de trous est alors toujours entachée d'une erreur si l'on ne retire pas correctement la contribution de la MR négative. Plus récemment Kuryliszyn *et al.* affirment que 30T n'est toujours pas suffisant pour saturer l'effet Hall extraordinaire [130].

Ces mesures d'effet Hall ne nous ont pas permis de déterminer la concentration de trous des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Ainsi nous ne pouvons pas donner la mobilité des porteurs ou le libre parcours moyen de nos couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ <sup>17</sup>.

### 3.3.2.3 Anisotropie de magnéto-résistance

L'anisotropie de magnéto-résistance (AMR) des métaux de transition ferromagnétiques, par exemple, est expliquée par un courant à deux canaux de spin et le couplage spin-orbite est traité en perturbation [108, 29]. Or, pour le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (ou plus généralement pour des semiconducteurs ferromagnétiques), l'énergie de couplage spin-orbite étant comparable à l'énergie de Fermi, on ne peut pas traiter l'anisotropie de magnéto-résistance avec le même formalisme<sup>18</sup>.

Afin d'étudier l'anisotropie de magnéto-résistance trois géométries de mesures (notées **L**, **T** et **TT**) ont été adoptées (Fig. 3.20) :

- **L** : le champ magnétique est dans le plan des couches et parallèle au courant,
- **T** : le champ magnétique est dans le plan des couches mais perpendiculaire au courant,
- **TT** : le champ magnétique est perpendiculaire au plan des couches.

La variation de la résistance en fonction du champ magnétique pour les trois configurations de mesure est représentée sur la figure 3.21. Pour des champs supérieurs à 1T le comportement de la résistance en fonction du champ (magnéto-résistance négative, § 3.3.2.1) est similaire pour les trois configurations (Fig. 3.21b). Par contre à faible champ magnétique ( $\leq 0.1\text{T}$ ), une magnéto-résistance positive et négative est observée (Fig. 3.21a).

L'anisotropie de résistivité à faible champ (appelé généralement anisotropie de résistivité spontanée, SRA) est négative<sup>19</sup> ( $\sim -8\%$ ) pour nos couches, c'est à dire la résistivité (à faible champ) est plus élevée lorsque le champ magnétique est

<sup>17</sup>Différents groupes ont réalisé des mesures d'effet Hall avec un champ suffisamment élevé, ils ont déterminé une densité de trous de l'ordre de  $5.10^{20}\text{cm}^{-3}$ , une mobilité de l'ordre de  $10\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  et un libre parcours moyen de l'ordre de 6 à  $8\text{\AA}$ . Voir par exemple Edmonds *et al.* [64] et Sørensen *et al.* [228].

<sup>18</sup>L'AMR des semiconducteurs (III,Mn)V a été étudié en utilisant la théorie du champ moyen pour les interactions d'échange et dans un modèle à six bandes pour la bande de valence (voir par exemple Abolfath *et al.* [1]).

<sup>19</sup>Pour les métaux ferromagnétiques traditionnels la SRA est généralement positive [29].

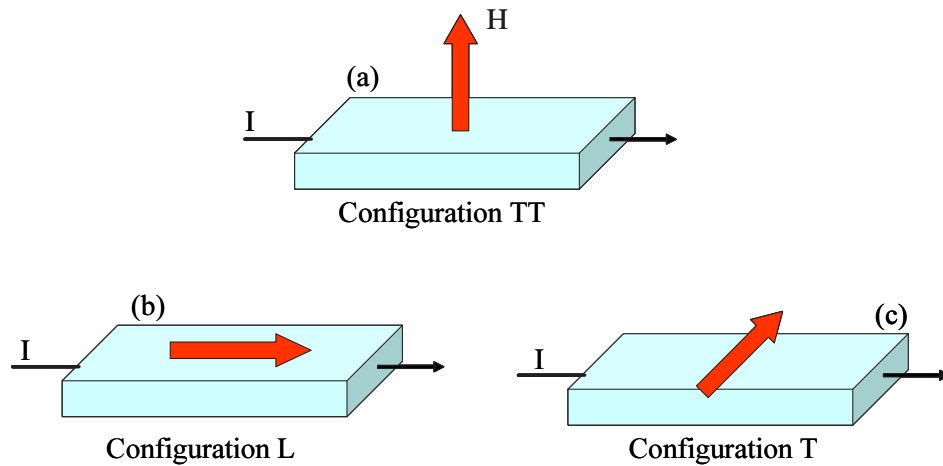


FIG. 3.20 – Schéma des trois configurations de mesure.  $H$  perpendiculaire au plan (a),  $H$  dans le plan et parallèle au courant électrique (b) et  $H$  dans le plan et perpendiculaire au courant (c). Ces trois géométries sont notées **TT** (a), **L** (b) et **T** (c).

appliqué perpendiculairement au courant. Baxter *et al.* [10] et Wang *et al.* [258] ont également observé une SRA négative et ont montré que l'amplitude de la SRA diminuait lorsque la concentration de Mn augmentait.

Lorsque le champ magnétique est perpendiculaire au courant électrique (configuration **T** et **TT**) on observe une augmentation de résistance à faible champ. Cependant la dépendance de la résistance en champ n'est pas la même pour les deux configurations (Fig. 3.21a).

**a)** Pour la configuration **T** (le courant est selon  $[110]$  et le champ selon  $[\bar{1}10]$ ), l'application d'un champ magnétique aligne les domaines magnétiques selon la direction du champ donc perpendiculairement au courant et induit donc une augmentation de la résistance. L'anisotropie cubique étant relativement faible (§ 3.2.2.2), l'augmentation de la résistance a lieu à faible champ magnétique (quelques dizaine d'Oe, valeur du champ d'anisotropie cubique).

**b)** Pour la configuration **TT** (champ magnétique hors du plan), l'augmentation de la résistance est observée sur une gamme de champ plus élevée ( $\sim 700$  Oe). En représentant la variation de la magnétorésistance et de la résistance Hall (Fig. 3.22) on s'aperçoit qu'il existe une corrélation entre les variations de la magnétorésistance et de l'aimantation ( $R_{xy}$  étant proportionnelle à  $M$  à faible champ). L'effet Hall extraordinaire,  $R_{xy}$ , dépend de la résistance longitudinale,  $R_{xx}$  (voir p. 65), on s'attend à voir un effet du saut de  $R_{xx}$  sur la mesure de  $R_{xy}$  même si l'aimantation ne change pas. Or on observe 4% de variation pour  $R_{xx}$  alors que  $R_{xy}$  augmente d'un facteur 3. La variation de la MR ( $R_{xx}$ ) est donc bien corrélée à

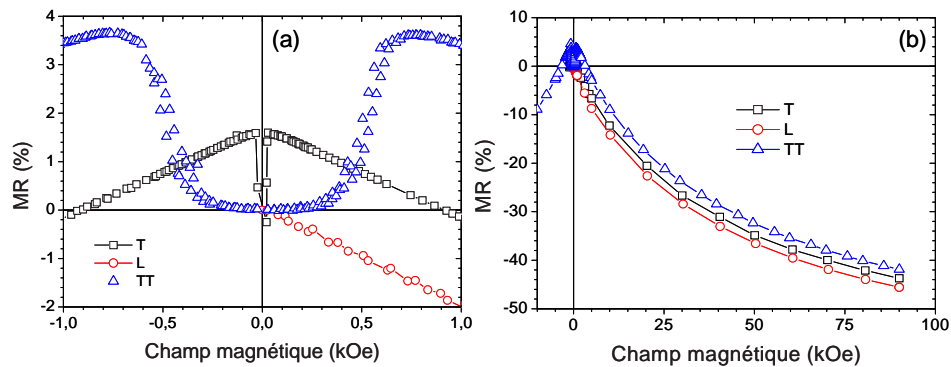


FIG. 3.21 – Variation de la résistance à faible (Fig. 3.21a) et fort champ magnétique (Fig. 3.21b) pour les configurations **T** ( $\square$ ), **L** ( $\circ$ ) et **TT** ( $\triangle$ ) à 15K pour l'échantillon à 6.6% de Mn.

une variation de la direction d'aimantation.

La variation de cette MR positive peut être divisée en trois gammes de champ (Fig. 3.22) :

1.  $H \leq 300$  Oe :  $R_{xy}$  varie peu, l'aimantation reste donc majoritairement dans le plan (axe de facile aimantation dans le plan des couches), la variation de la MR est alors faible.
2.  $300 \leq H \leq 650$  Oe : l'aimantation sort du plan (forte augmentation de  $R_{xy}$ ). L'aimantation est alors majoritairement perpendiculaire au courant. La magnétorésistance augmente.
3.  $H \geq 650$  Oe : la variation de  $R_{xy}$  est moins importante, la variation de la magnétorésistance est plus lente. Puis pour des champs plus élevés, la diminution de la résistance (MR négative) est due à la diminution de la diffusion par désordre de spin, c'est à dire à une augmentation de la mobilité.

La variation de la magnétorésistance et de la résistance de Hall ( $R_{xy} \propto M$ ) avec le champ magnétique (Fig. 3.22) met en évidence l'influence de l'orientation relative de l'aimantation et du courant électrique sur la résistivité.

La figure 3.23 représente la variation de la magnétorésistance en fonction de l'angle entre le champ magnétique appliqué et la normale à la surface ( $\theta$ ). Les mesures ont été effectuées à 720 Oe (champ où la MR positive est maximum dans la configuration **TT**, Fig. 3.23a) et à 9T (Fig. 3.23b). Pour les deux valeurs de champs, on applique d'abord le champ perpendiculairement à la surface (configuration **TT**) puis on incline l'échantillon. Nous avons effectué deux séries d'expériences afin de passer par les configurations **L** et **T** à  $\theta=90^\circ$ .

Lorsque le champ magnétique appliqué est de 9T (Fig. 3.23 b), la MR peut être ajustée par une fonction sinusoïdale. Pour cette valeur de champ, la couche

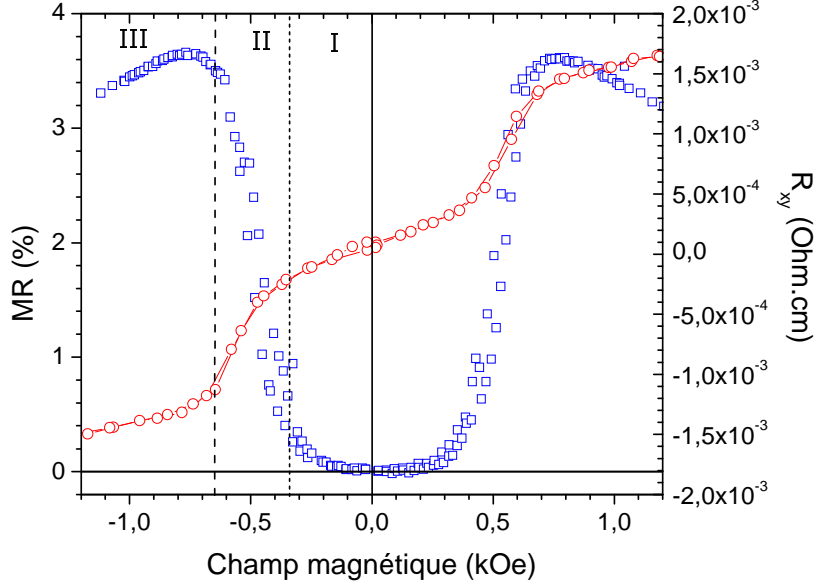


FIG. 3.22 – Magnétorésistance à faible champ en configuration **TT** ( $\square$ , échelle de gauche) et résistivité Hall ( $\circ$ , échelle de droite).

de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est totalement saturée quel que soit l'angle. Par conséquent la composante parallèle de l'aimantation ( $M_{//}$ ) suit une fonction sinusoïdale. La résistance dépendant des directions de l'aimantation et du courant, la MR peut être exprimée par la relation :

$$\text{MR} \propto \text{MR}(0) \sin^2(\theta) \quad (3.7)$$

où  $\text{MR}(0)$  est la magnétorésistance à  $\theta=0$ .

L'expérience qui consiste à partir de la configuration **TT** pour aller vers la configuration **T** ne devrait donner aucune variation de MR puisque l'aimantation est toujours perpendiculaire au courant. Or, on s'aperçoit qu'il existe une légère variation de MR (Fig. 3.23b). Une partie de la composante parallèle de l'aimantation peut être selon la direction du courant ( $[110]$ ) et une partie perpendiculaire au courant ( $[1\bar{1}0]$ ). Cette mesure de variation de magnétorésistance montrant que les axes cristallographiques  $[110]$  et  $[1\bar{1}0]$  ne sont pas totalement équivalents est probablement la signature d'une légère anisotropie uniaxiale dans le plan. Il a été montré effectivement par résonance ferromagnétique [140] et par des mesures magnéto-optiques [158] que ces deux axes ne sont pas effectivement totalement

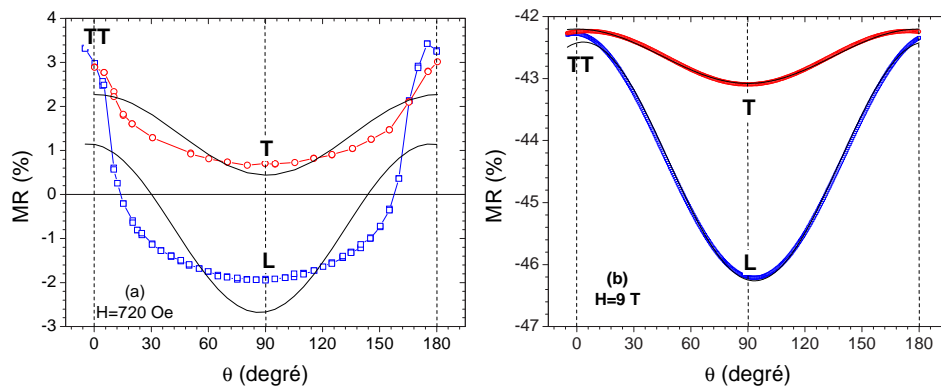


FIG. 3.23 – Variation de la magnétorésistance en fonction de  $\theta$  pour un champ de 720 Oe (Fig. 3.23 a) et de 9T (Fig. 3.23 b).  $\theta$  est l'angle entre la direction du champ magnétique appliqué et la normale à la surface. Les données expérimentales sont représentées par des points et les lignes sont des fonctions sinusoïdales.

identiques.

Par contre un champ de 720 Oe ne suffit pas à saturer l'aimantation. Il existe par conséquent une composante de l'aimantation dans le plan des couches pour la configuration **TT**. La dépendance de la MR ne suit donc plus une fonction sinusoïdale (Fig. 3.23 a). Dès que l'on s'écarte de quelques degrés de la configuration **TT**, l'aimantation est majoritairement dans le plan. La variation de la MR varie donc peu pour des angles compris entre  $30^\circ$  et  $150^\circ$  (Fig. 3.23 a).

Cette étude a montré que la résistance dépend de l'orientation relative de l'aimantation et du courant électrique et que la résistance est plus élevée lorsque l'aimantation est perpendiculaire au courant électrique. Le mécanisme exact de cette anisotropie de magnétorésistance et l'influence du couplage spin-orbite reste à approfondir.

### 3.4 Recuits : mise en évidence de l'influence des défauts

Les faibles températures de Curie et moments magnétiques mesurés (paragraphe 3.2) sont justifiés par la présence de défauts dans les couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Des recuits peuvent être effectués afin de réduire le nombre de défauts. En optimisant la température [97] et le temps de recuit [193], les propriétés magnétiques ( $T_c$  et moment magnétique) et de transport (résistivité et magnétorésistance) peuvent être nettement améliorées. Ainsi plusieurs groupes ont reporté des augmentations de températures de Curie significatives (voir par exemple [63, 129, 146, 131, 62]). Cependant ces hautes températures reportées (jus-

qu'à  $\sim 150\text{K}$ ) sont obtenues pour des couches minces dont la  $T_c$  avant recuit était déjà de l'ordre de  $\sim 90\text{K}$ .

Nous avons effectués des recuits sous atmosphère d'azote pour la couche à 7.1% de Mn. La température de recuit est de  $225^\circ\text{C}$  (de l'ordre de la température de croissance) et le temps de recuit varie de 25 à 150 minutes.

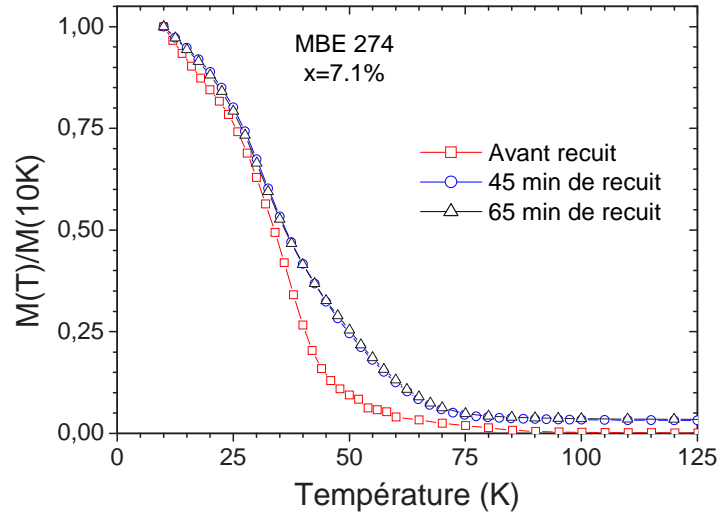


FIG. 3.24 – Variation de l'aimantation en fonction de la température pour l'échantillon à  $x=7.1\%$  avant ( $\square$ ) et après un recuit de 45 min ( $\circ$ ) et 65 min ( $\triangle$ ) à  $225^\circ\text{C}$ .

La figure 3.24 représente la variation de l'aimantation en fonction de la température avant et après recuit. Une augmentation de la  $T_c$  est obtenue pour des recuits de 45 et 65 minutes. Cette augmentation est aussi observée lorsque l'on mesure la résistivité en fonction de la température.

Le pic de résistance (correspondant à la température de mise en ordre magnétique) est décalé vers les hautes températures après un recuit de 25, 45 et 65 minutes (Fig. 3.25a). On peut aussi noter que la  $T_c$  diminue lorsque l'on augmente encore plus le temps de recuit (150 min). Cette variation de la  $T_c$  est corrélée à la valeur de la résistivité. Pour des temps de recuit de 25 à 65 minutes la résistivité est diminuée mais pour un recuit de 150 minutes elle est augmentée (Fig. 3.26b).

Pour des temps de recuit suffisamment courts ( $\leq 65$  min), l'augmentation de la température de Curie et la diminution de la résistivité est la signature d'une augmentation de la densité de porteurs. Ces recuits ont donc pour effet de diminuer le nombre de défauts qui compensaient le nombre de trous. Les faibles  $T_c$  et moments magnétiques mesurés étaient justifiés par la présence d'antisites d'arsenic ( $\text{As}_{\text{Ga}}$ ) ou de Mn interstitiels ( $\text{Mn}_i$ ) mais ne permettaient pas de différencier ces deux types de défauts. Par contre ces recuits effectués à relativement

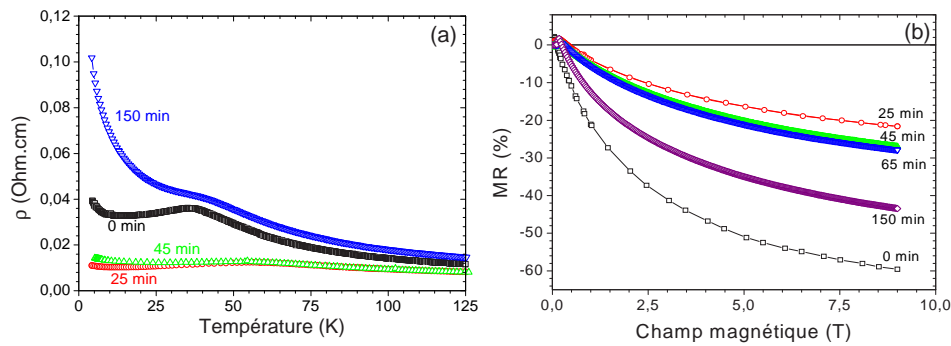


FIG. 3.25 – Variation de la résistivité en fonction de la température (Fig. 3.25a) et de la résistance en fonction champ magnétique à 4.2K (Fig. 3.25b) avant et après recuit.

basse température (225°C) permettraient de réduire préférentiellement les défauts  $Mn_I$  (les antisites d'arsenic étant thermodynamiquement plus stables). Même s'il existe un débat sur l'origine des défauts, il apparaît clairement aujourd'hui que les différents types de défauts coexistent [83, 144] mais que les recuits induisent principalement une réduction du nombre de Mn interstitiels [62]. Par ailleurs, des mesures de rétrodiffusion Rutherford (RBS) et de fluorescence X induite par particules accélérées (PIXE) (Kuryliszyn *et al.* [131]) ont montré que les recuits à basse température induisaient une réorganisation des sites Mn dans la structure.

Pour des temps de recuit longs ( $\sim 150$  min), les propriétés magnétiques et de transport sont dégradées (la résistivité et la magnétorésistance augmentent, Fig. 3.26 b). Cela provient probablement de la formation de complexes Mn-As [193]. Sanvito *et al.* [209, 211] ont calculé que les positions relatives des ions Mn et As donnaient lieu à des échanges ferromagnétiques ou antiferromagnétiques entre les spins Mn (compétition entre le super échange AF et le double échange FM) et pouvaient ainsi réduire la  $T_c$ .

Nous avons effectué des ajustements de la variation de la résistance en fonction de la température pour différents temps de recuit en utilisant l'équation 3.4 (page 59) afin d'évaluer les positions relatives de  $E_F$  et  $E_m$ . La figure 3.26c représente la différence d'énergie  $\Delta E = E_m - E_F$  en fonction du temps de recuit.

Avant et après un recuit de 150 minutes, cette différence d'énergie est pratiquement nulle, c'est à dire on se trouve près de la transition métal-isolant. Pour des temps de recuit de 25 à 65 minutes  $\Delta E$  augmente, le niveau de Fermi est alors dans la bande des états délocalisés.

La variation du niveau de Fermi avec le temps de recuit peut être corrélée aux variations des propriétés magnétiques et de magnéto-transport. En effet, lorsque le  $\Delta E$  augmente, la résistivité et la magnétorésistance diminuent tandis que la température de Curie mesurée au SQUID augmente (figures 3.24 et 3.26b). Ces recuits,



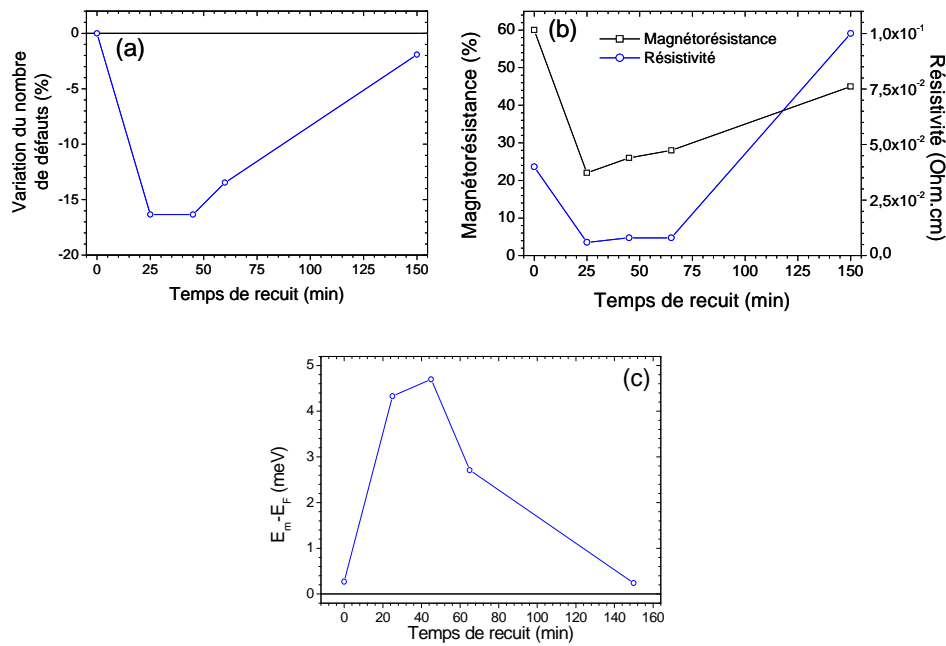


FIG. 3.26 – Variation du nombre de défauts en fonction du temps de recuit (Fig. 3.26a). Evolution de la magnétorésistance ( $\square$  échelle de gauche) et la résistivité ( $\circ$  échelle de droite) en fonction du temps de recuits pour l'échantillon à  $x=7.1\%$  (3.26b). Différence d'énergie  $\Delta E = E_m - E_F$  pour différents temps de recuit (3.26c).

réduisant le nombre de manganèse interstitiel, augmentent la densité de trous (signature de l'augmentation de  $\Delta E$ ) et par conséquent améliorent les propriétés du matériau. L'évolution de la  $T_c$  peut être liée à une variation de la densité de trous ( $T_c \propto p^{1/3}$  [56]). La  $T_c$  déterminée au SQUID permet d'estimer une réduction du nombre de défaut de 20% (figure 3.26a).

Cette étude nous a permis de mettre en évidence l'influence du temps de recuit sur les propriétés magnétiques, de transport et de magnéto-transport. Il apparaît clairement qu'il est possible d'améliorer la qualité du matériau en optimisant le temps de recuit. Nous avons observé une augmentation de la température de Curie et une diminution de la résistivité et de la magnétorésistance. Cela traduit une diminution du nombre de défauts et par conséquent une augmentation la densité de trous corrélée par l'augmentation de  $\Delta E$ .

## 3.5 Conclusion

L'étude effectuée sur ces couches minces de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  a permis de déterminer les conditions de croissance afin d'obtenir un matériau ferromagnétique et conducteur et pouvoir ainsi utiliser le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  comme électrodes ferromagnétiques dans des hétérostructures.

Cette étude a permis aussi de montrer l'influence de la concentration de manganèse sur les propriétés magnétiques, de transport et de magnéto-transport. De plus nous avons mis en évidence la corrélation entre les propriétés magnétiques et électroniques. L'axe de facile aimantation (selon [100]) et le renversement de l'aimantation assuré par la formation de domaines à  $90^\circ$  ont été déterminés par les mesures magnéto-optiques. Les recuits permettent une réduction du nombre de défauts (Mn interstitiels) et induisent ainsi une amélioration des propriétés du matériau.

Les propriétés magnétiques et de transport étant fortement dépendantes de la concentration de Mn, donc de la densité de porteurs, il est intéressant de voir l'évolution de ces propriétés en fonction de la différence d'énergie  $\Delta E = E_m - E_F$ . En effet, la position du niveau de Fermi (située soit dans la bande des états délocalisés,  $\Delta E > 0$ , ou localisés  $\Delta E < 0$ ) influe énormément sur les propriétés du matériau. La figure 3.27 représente la résistivité, la magnéto-résistance, l'aimantation rémanente et la température de Curie en fonction de  $\Delta E$ .

Lorsque  $\Delta E$  augmente, c'est à dire lorsque la densité de trous augmente, on observe une diminution de la résistivité et de la MR et une augmentation de la  $T_c$  et de l'aimantation rémanente. Cette corrélation entre  $\Delta E$  et les propriétés du matériau a été aussi observée lors de l'étude sur l'influence des recuits.

L'ensemble des résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre, notamment l'influence de la concentration de manganèse sur les propriétés magnétiques et de transport, montre bien la spécificité de ce matériau où le manganèse introduit à la fois les porteurs (trous) et le spin. La corrélation entre les propriétés magnétiques et de transport est aussi une signature de l'originalité de ce matériau où le ferromagnétisme est induit par les trous.

L'ensemble des caractéristiques physiques du semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  présentées dans la première partie de ce manuscrit est résumé dans le tableau 3.4 (page 77).

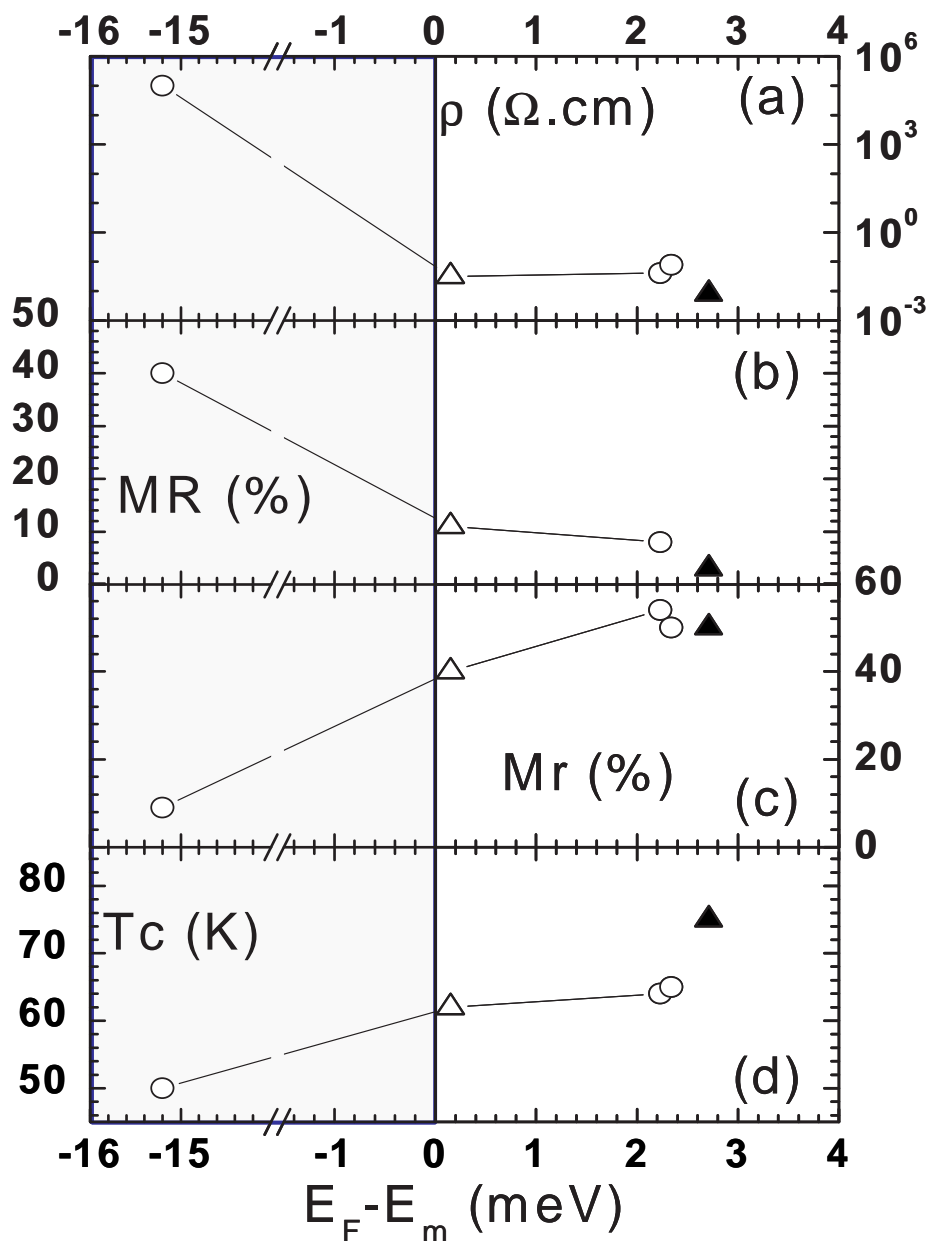


FIG. 3.27 – Résistivité (a), magnétorésistance (b), aimantation rémanente (c) et température de Curie (d) en fonction de la différence d'énergie  $E_F - E_m$ . La résistivité est tracée en échelle logarithmique. On représente l'échantillon à 7.1% de Mn avant recuit par ( $\triangle$ ) et après un recuit 65 min par ( $\blacktriangle$ ) et les autres échantillons par ( $\circ$ ).

<b>Caractéristiques du Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As</b>	
Origine du ferromagnétisme	Le ferromagnétisme est induit par les trous itinérants ; couplage AF entre les trous et les ions Mn <sup>2+</sup> (§ 2.2.2, p. 30)
Position cristallographique du Mn	Le Mn substitue les cations (Ga)
Configuration électronique du Mn	Le Mn a majoritairement une configuration 3d <sup>5</sup> plus un trou (§ 2.2.1.1, p. 22)
Structure de bandes	Splitting de la bande de valence $\Gamma_8$ induit par l'interaction d'échange p-d (§ 2.2.1.2, p. 25)
Polarisation en spin	Elle est comprise entre 80% et 100% selon les modèles et de l'ordre de 80% expérimentalement (p. 29)
Croissance	Croissance essentiellement par MBE à basse température ( $\sim 250^\circ\text{C}$ ) afin d'obtenir une phase homogène (pas d'agrégats de MnAs) (§ 3.1, p. 41)
Concentration de Mn incorporée	Les conditions de croissance limitent l'incorporation de Mn à $\sim 8\%$
Température de Curie	Dépend de la concentration d'ions Mn et de la concentration de trous ( $T_c \leq 150\text{K}$ ) (§ 3.2.1, p. 45)
Moment magnétique	2 à 3 $\mu_B$ par atome de Mn mesuré (4-5 $\mu_B$ théorique)
Concentration de trous	De l'ordre de $10^{20}\text{cm}^{-3}$ pour $\sim 5\%$ de Mn
Anisotropie	Aimantation dans le plan ou hors du plan selon les contraintes cristallographiques (§ 3.2.2.2, p. 50)
Conductivité	Pour des concentrations de Mn comprises entre $\sim 4\%$ et $\sim 7\%$ le Ga <sub>1-x</sub> Mn <sub>x</sub> As est conducteur ( $\sim 10^{-2}\Omega.\text{cm}$ ) et hors de ces limites il est isolant (§ 3.3.1, p. 56)
Magnétorésistance	Fort signal magnétorésistif (MR négative) (§ 3.3.2, p. 60)
Défauts cristallographiques	Les principaux défauts sont les antisites d'arsenic et les Mn interstitiels. Des recuits à basse température ( $\sim 230^\circ\text{C}$ ) permettent de réduire les Mn interstitiels (§ 3.4, p. 71)

TAB. 3.4 – Principales caractéristiques du semiconducteur ferromagnétique Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As.



**Deuxième partie**

**Hétérostructures à base du  
semiconducteur ferromagnétique**

**$\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$**



## Chapitre 4

# Jonctions tunnel magnétiques

t'es fou  
tire pas  
c'est pas des corbeaux  
c'est mes souliers  
je dors parfois dans les arbres

*Paul Vincensini*



---

**Sommaire**

---

<b>4.1</b>	<b>Etat de l'art</b> . . . . .	<b>83</b>
<b>4.2</b>	<b>Diffusion du manganèse</b> . . . . .	<b>84</b>
<b>4.3</b>	<b>Propriétés de jonctions tunnel simple</b> <b>Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As/AlAs/Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As</b> . . . . .	<b>86</b>
4.3.1	Magnétorésistance tunnel . . . . .	87
4.3.2	Dépendance en température de la polarisation des porteurs . . . . .	92
4.3.3	Dépendance en angle . . . . .	94
4.3.4	Dépendance en tension . . . . .	98
<b>4.4</b>	<b>Influence de la hauteur de la barrière tunnel sur la ma-</b> <b>gnétorésistance tunnel</b> . . . . .	<b>102</b>
4.4.1	Magnétorésistance . . . . .	103
4.4.2	Mécanismes de transport . . . . .	104
<b>4.5</b>	<b>Conclusion</b> . . . . .	<b>108</b>
<b>4.6</b>	<b>Annexe A : expression de la variation angulaire de la ma-</b> <b>gnétorésistance tunnel</b> . . . . .	<b>110</b>
<b>4.7</b>	<b>Annexe B : transport tunnel et transport thermiquement</b> <b>activé : expression de la magnétorésistance</b> . . . . .	<b>111</b>

---

Ce chapitre est consacré à l'étude d'hétérostructures à base du semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et portera plus particulièrement sur l'étude du transport dépendant du spin dans des jonctions tunnel magnétiques. Dans un premier temps je présenterai les propriétés de transport tunnel de jonctions F/I/F ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ ). La deuxième partie de ce chapitre est consacrée aux différents mécanismes de transport présents dans des jonctions tunnel F/N/I/N/F et F/N/F où N est du GaAs.

## 4.1 Etat de l'art

Etant donné que l'effet tunnel conserve le spin, une jonction tunnel magnétique (deux couches ferromagnétiques séparées par une fine couche isolante) peut être utilisée afin de sonder la polarisation en spin des porteurs à l'interface entre une couche ferromagnétique et une barrière tunnel [52]. Les jonctions tunnel magnétiques (JTM) composées de métaux de transition ferromagnétiques (Co, Fe, FeNi par exemple) ou d'oxydes magnétiques ( $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) ont été intensivement étudiées ces dernières années<sup>1</sup> alors que peu d'études ont été effectuées sur des jonctions tunnel composées de semiconducteurs ferromagnétiques.

Seuls les semiconducteurs ferromagnétiques  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et EuS ont été utilisés expérimentalement dans des jonctions tunnel. Le sulfure d'euprium a été employé comme barrière tunnel magnétique (filtre à spin) [135] et le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  comme électrode ferromagnétique.

Les premiers résultats de magnétorésistance sur des jonctions tunnel constituées d'électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ont été publiés par les groupes de Ohno [34, 35] et de Tanaka [95, 240]. Ces jonctions tunnel étaient composées de deux électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  séparées par une barrière tunnel d'AlAs. Ces premiers résultats montrent clairement qu'il existe un transport dépendant du spin mais les taux de magnétorésistance ( $\sim 10\%$ ) restent relativement faibles. Des jonctions tunnel hybrides composées du semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et du métal ferromagnétique MnAs et d'une barrière tunnel d'AlAs ont été aussi étudiées [43]. Malgré une publication intense sur les couches minces de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ , seulement trois groupes<sup>2</sup> ont reporté à ce jour des mesures de magnétorésistance de jonctions tunnel composées du semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

<sup>1</sup> Pour un aperçu des différentes études on pourra se référer à l'article de revue de Tsymal *et al.* [247]. En ce qui concerne les travaux du laboratoire on peut citer thèses de J. Nassar [163], F. Montaigne [154] et D. Lacour [132] concernant les JTM à base de métaux de transition et les thèses de P. Seneor [220] et de M. Bowen [20] pour les JTM à base d'oxyde demi-métalliques. Ces thèses sont ou seront disponibles sur le site web du laboratoire ([www.lcr.thomson-csf.fr/cnrs/umr137.html](http://www.lcr.thomson-csf.fr/cnrs/umr137.html)).

<sup>2</sup>Laboratory for Electronic Intelligent Systems (Tohoku University), Department of Electronic Engineering (University of Tokyo) et Department of Physics and Materials Research Institute (Pennsylvania State University).

## 4.2 Diffusion du manganèse

Il est apparu que l'insertion d'une fine couche de GaAs ( $\sim 10 \text{ \AA}$ ) entre les électrodes ferromagnétiques et la barrière tunnel augmentait significativement l'amplitude de la magnétorésistance tunnel ( $\sim 75\%$  dans le meilleur des cas) [238,239]. Il semblerait que cette couche de GaAs permette d'éviter la diffusion du Mn dans la barrière tunnel et augmente ainsi la magnétorésistance tunnel. Il a été montré par Jansen et Moodera [106, 107] que la présence d'impuretés (Co, Pd, Cu, Ni) dans une barrière  $\text{Al}_2\text{O}_3$  réduisait la magnétorésistance. Ces résultats étaient expliqués par un "spin-flip" des électrons lors de l'effet tunnel.

Il s'avère donc intéressant de connaître la profondeur de diffusion du Mn à l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$ . Des études de spectroscopie d'électrons Auger et de microscopie électronique en transmission ont été effectuées afin de déterminer la profondeur de diffusion du Mn en collaboration avec le groupe d'Analyse de Thales. La profondeur de diffusion de Mn a été déterminée sur deux types de structure :

- $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}(100\text{\AA})/\text{AlAs}/\text{GaAs}(100\text{\AA})/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (I)
- $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}(10\text{\AA})/\text{AlAs}/\text{GaAs}/\text{AlAs}/\text{GaAs}(10\text{\AA})/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (II)

Nous avons réalisé une étude en microscopie électronique en transmission (TEM) sur l'échantillon I. La faible concentration de Mn ( $\sim 5\%$ ) et la faible différence de masse entre le manganèse et le gallium n'introduit qu'un faible contraste en TEM. L'observation a été alors réalisée sur un coin clivé où

- la direction d'observation est [001], direction très sensible à la composition chimique,
- la géométrie permet de visualiser de faible concentration liée à la variation de contraste le long de l'épaisseur de l'échantillon.

La figure 4.1a représente une image en champ clair, avec une résolution de  $5\text{\AA}$ , de l'échantillon I où l'on peut distinguer les couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et de GaAs. Malgré un faible contraste à l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$ , on peut déterminer à partir du profil d'intensité (Fig. 4.1b) une variation d'intensité sur environ  $10\text{\AA}$ . Cependant, il est difficile de quantifier la profondeur de la diffusion du manganèse à partir de cette étude TEM.

La spectroscopie d'électrons Auger (AES) constitue une bonne spectroscopie de surface car la longueur d'échappement des électrons Auger (qui dépend de l'énergie cinétique des électrons et du matériau) est de l'ordre de  $0.5 \text{ nm}$  à  $3 \text{ nm}$ . Associée à une gravure ionique, l'AES peut être utilisée pour mesurer une variation de concentration d'un élément chimique dans une hétérostructure. Cependant plusieurs facteurs affectent la résolution des mesures. Pour la détermination de la profondeur de diffusion de manganèse, on doit tenir compte, en plus de la profondeur d'échappement des électrons Auger, les effets du bombardement ionique. La profondeur de diffusion mesurée  $W_m$  dépend de plusieurs facteurs et peut s'écrire

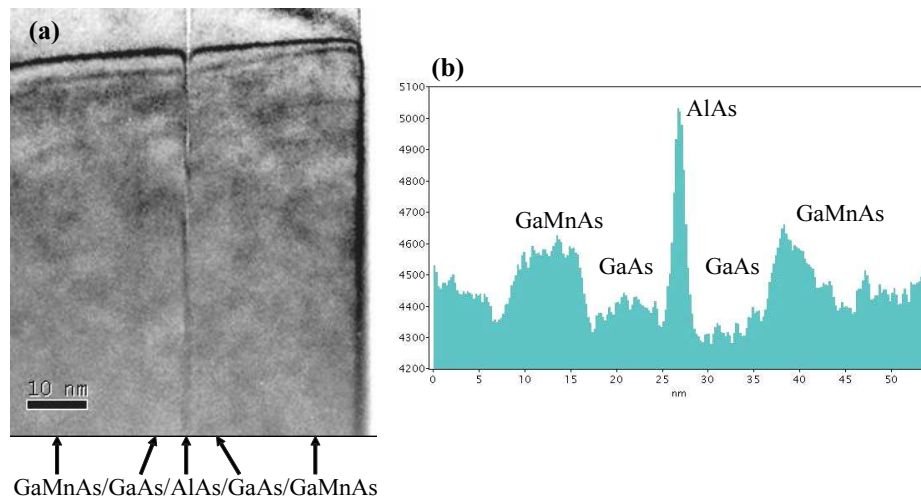


FIG. 4.1 – Cliché de microscopie électronique en transmission en coin clivé de l'échantillon I (fig. 4.1a) et profil d'intensité du négatif (fig. 4.1b).

selon la relation [219] :

$$W_m = \sqrt{W_t^2 + a^2 L^2 + X_M^2 + X_R^2} \quad (4.1)$$

où  $W_t$  est la profondeur de diffusion réel,  $X_M$  et  $X_R$  sont les termes d'élargissement dus à l'interdiffusion et à la rugosité,  $L$  est la profondeur d'échappement et  $a$  est un paramètre dépendant de la géométrie de l'analyseur. La profondeur de diffusion mesurée est définie comme la distance entre deux points où le signal Auger normalisé varie de 84% à 16%. La rugosité de la surface avant et après gravure ionique, mesurée à l'aide d'un microscope à force atomique, est de l'ordre de  $6\text{\AA}$  (même ordre de grandeur que l'interface AlGaAs/GaAs [182]).

La profondeur de diffusion du Mn mesurée a été déterminée pour différentes énergies de gravure ionique. L'ensemble des expériences montre que la profondeur de diffusion de Mn à l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$  reste inférieure à  $15\text{\AA}$  (avec une incertitude de  $\pm 4\text{\AA}$ ) pour l'échantillon I ( $100\text{\AA}$  de GaAs).

Les mêmes expériences ont été réalisées sur l'échantillon II (uniquement  $10\text{\AA}$  de GaAs ont été insérés). Pour cet échantillon, la profondeur de diffusion du Mn semble légèrement plus faible ( $\sim 10\text{\AA}$ ).

Ces études montrent que la concentration de Mn à l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$  est divisée par 5 après 4 à 5 monocouches de GaAs déposées. La variation de la concentration de Mn a été déterminée, par des études magnéto-optiques, pour le système  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}/\text{CdTe}$  par W. Grieshaber *et al.* [84]. La concentration de Mn, pour ce système, est divisée par 2 à chaque couche de CdTe déposée. Ainsi la diminution de la concentration de Mn apparaît

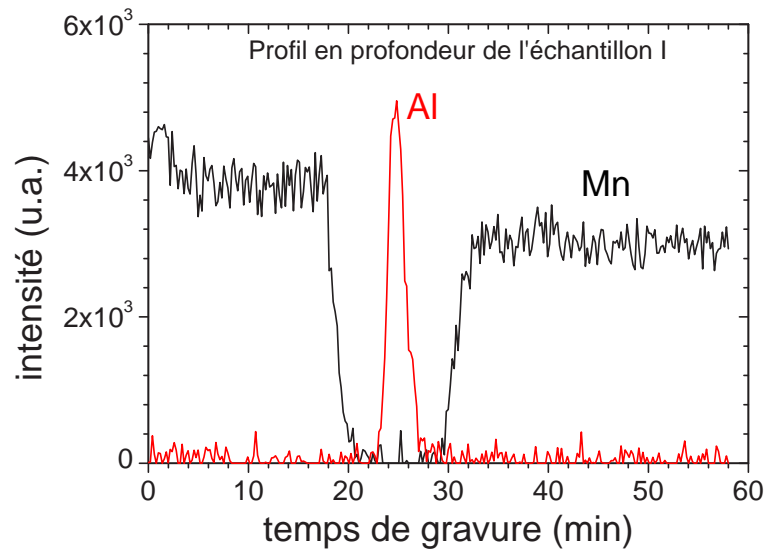


FIG. 4.2 – Profil du manganèse et de l'aluminium en profondeur de l'échantillon I.

beaucoup plus rapide dans le système  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}/\text{CdTe}$  ( $x_{\text{Mn}}$  divisé par 16 après 4 monocouches de CdTe déposées) que dans le système  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$  ( $x_{\text{Mn}}$  5 fois plus faible après 4 monocouches de GaAs).

Cette étude montre donc qu'il existe bien une légère diffusion du Mn à l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$ . Toutefois, l'insertion d'une couche de GaAs d'une dizaine d'Å entre l'électrode ferromagnétique et la barrière tunnel limite a priori une diffusion importante du Mn dans la barrière tunnel.

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$

Les jonctions tunnel ont été élaborées par épitaxie par jets moléculaires sur une couche tampon de GaAs dans les mêmes conditions que la croissance des couches minces (voir § 3.1.1, page 41). Ces jonctions tunnel sont nommées "jonctions tunnel *simples*" car une seule barrière d'AlAs est insérée entre les électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

Ces jonctions tunnel, identiques à celles proposées par Tanaka [238] sont composées de deux électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  séparées par une barrière tunnel d'AlAs de 17Å (fig. 4.3). Deux couches de GaAs ont été insérées entre les électrodes et la barrière tunnel afin de limiter la diffusion du Mn dans la barrière tunnel. Ces couches de GaAs ont une épaisseur (10Å) équivalente à la profondeur

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ 87

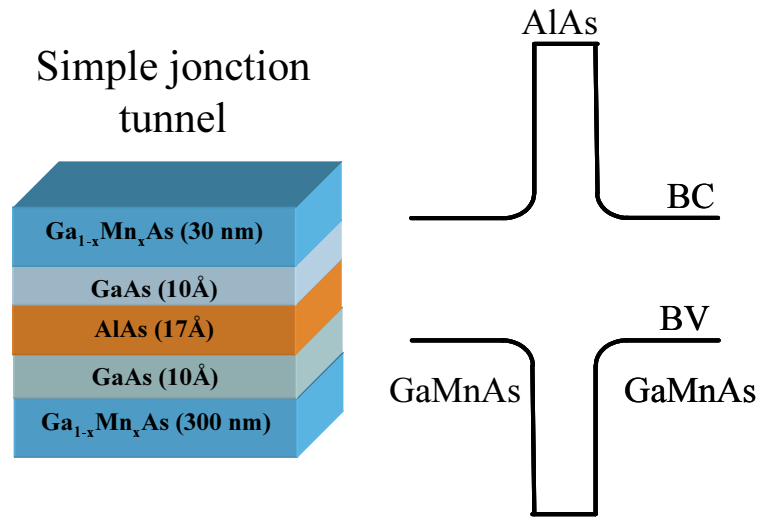


FIG. 4.3 – Structure de la jonction tunnel magnétique simple et profile de la bande de conduction et de valence de la simple jonction tunnel.

de diffusion du Mn.

Les photographies de microscopie électronique en transmission (fig. 4.4), à deux échelles différentes montrent que la barrière d'AlAs est continue mais rugueuse. Le cliché TEM haute résolution montre toutefois que la jonction tunnel est entièrement épitaxiée.

Afin d'effectuer les mesures de transport électrique, nous utilisons un procédé de lithographie optique ultra-violet, développé au laboratoire [154, 156], qui permet de prendre des contacts électriques sur les deux électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Les couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  étant fortement dopées p ( $\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ), un dépôt de titane (500 Å) et d'or (1500 Å) assure un contact électrique ohmique. Cette lithographie permet de définir des motifs circulaires dont le diamètre varie de  $10 \mu\text{m}$  à  $300 \mu\text{m}$ .

La figure 4.5 représente la variation non linéaire du courant en fonction de la tension qui peut être caractéristique d'un transport tunnel [26].

#### 4.3.1 Magnétorésistance tunnel

Afin d'obtenir une configuration magnétique respectivement parallèle et anti-parallèle les deux électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ont des épaisseurs (30 nm et 300 nm) et des concentrations de Mn différentes (5.3% et 4.3%).

La figure 4.6 représente un cycle d'hystérésis effectué à 10 K. Le champ magnétique est appliqué selon l'axe de facile aimantation (selon [100]). Les deux

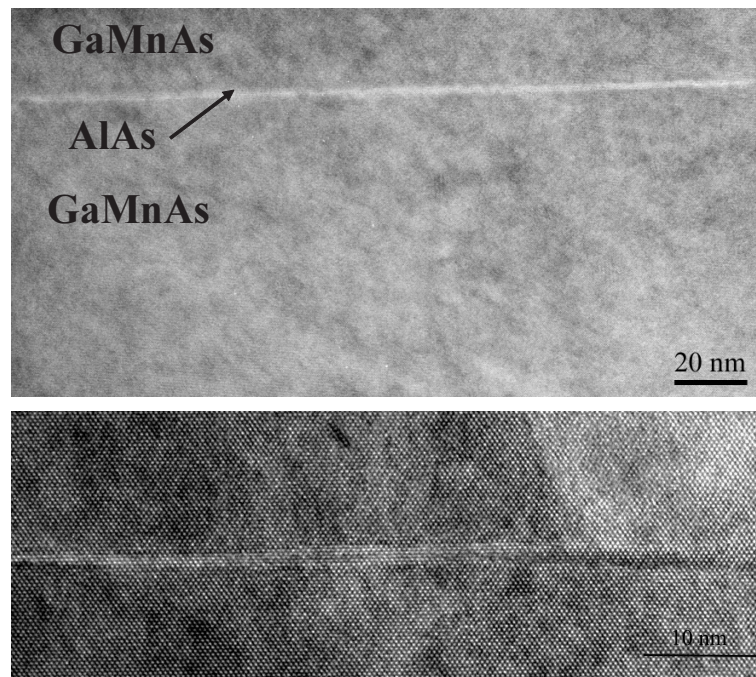


FIG. 4.4 – Photographies de microscopie électronique à transmission d’une jonction tunnel  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  réalisées par P. Galtier.

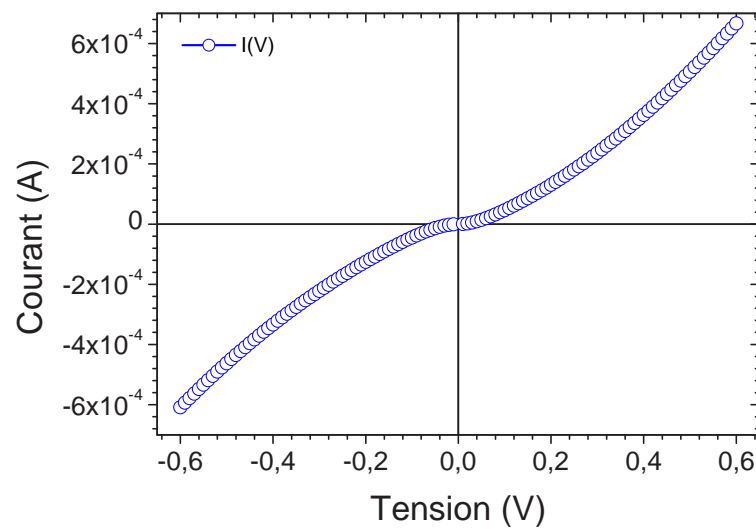


FIG. 4.5 – Variation du courant tunnel en fonction de la tension à 4.2K sans champ magnétique.

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ 89

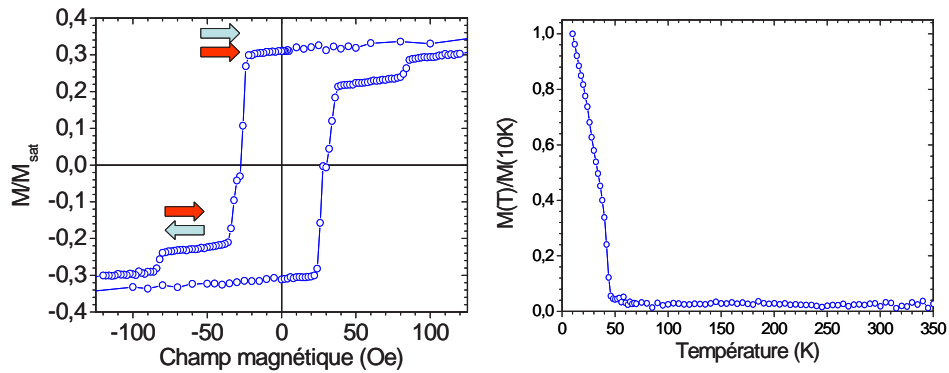


FIG. 4.6 – Cycle d’hystérésis effectué à 10K de la jonction tunnel. Le champ magnétique est appliqué selon l’axe cristallographique [100]. Variation de l’aimantation en fonction de la température sous un champ de 500 Oe.

sauts correspondent au renversement des deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (l’électrode épaisse a le plus faible champ coercitif). Pour cet échantillon, l’aimantation rémanente est uniquement de 30% et l’aimantation est saturée pour un champ de 1T. La variation de l’aimantation en fonction de la température (Fig. 4.6) n’indique pas la présence de phase secondaire (agrégats de MnAs).

La figure 4.7 représente la variation de la résistance tunnel en fonction du champ magnétique. On définit la magnétorésistance tunnel (TMR) par :

$$\text{TMR}(\%) = 100 \times \frac{R_{\text{AP}} - R_{\text{P}}}{R_{\text{P}}} \quad (4.2)$$

où  $R_{\text{P}}$  et  $R_{\text{AP}}$  sont les résistances dans les configurations magnétiques parallèles (à champ nul) et antiparallèles.

Nous avons obtenu, à basse température (4.2K) et à faible tension (1mV), une magnétorésistance de 38% pour un champ magnétique appliqué selon l’axe cristallographique [100] (Fig. 4.7a). Notons que la résistance surfacique est environ de  $0.1\Omega.\text{cm}^2$ . Cette magnétorésistance à faible champ est associée à la transition d’une configuration parallèle à antiparallèle de l’aimantation rémanente<sup>3</sup>.

L’amplitude de la magnétorésistance égale à 38% traduit, selon le modèle de Jullière, une polarisation de spin de 40% à l’interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}$  (d’après l’équation 4.3, page 92). Tanaka *et al.* avaient obtenu une TMR de  $\sim 45\%$  pour une épaisseur de barrière équivalente ( $17\text{\AA}$ ) et 75% pour des barrières de

<sup>3</sup>Les champs coercitifs obtenus par les mesures d’aimantation (Fig. 4.6) et les mesures de magnétorésistance (Fig. 4.7a) ne sont pas identiques. Afin de réaliser les mesures de transport on a défini, par lithographie optique, des jonctions de taille microscopique. La géométrie de ces jonctions induit des couplages magnétiques supplémentaires entre les couches et modifie ainsi les champs coercitifs.



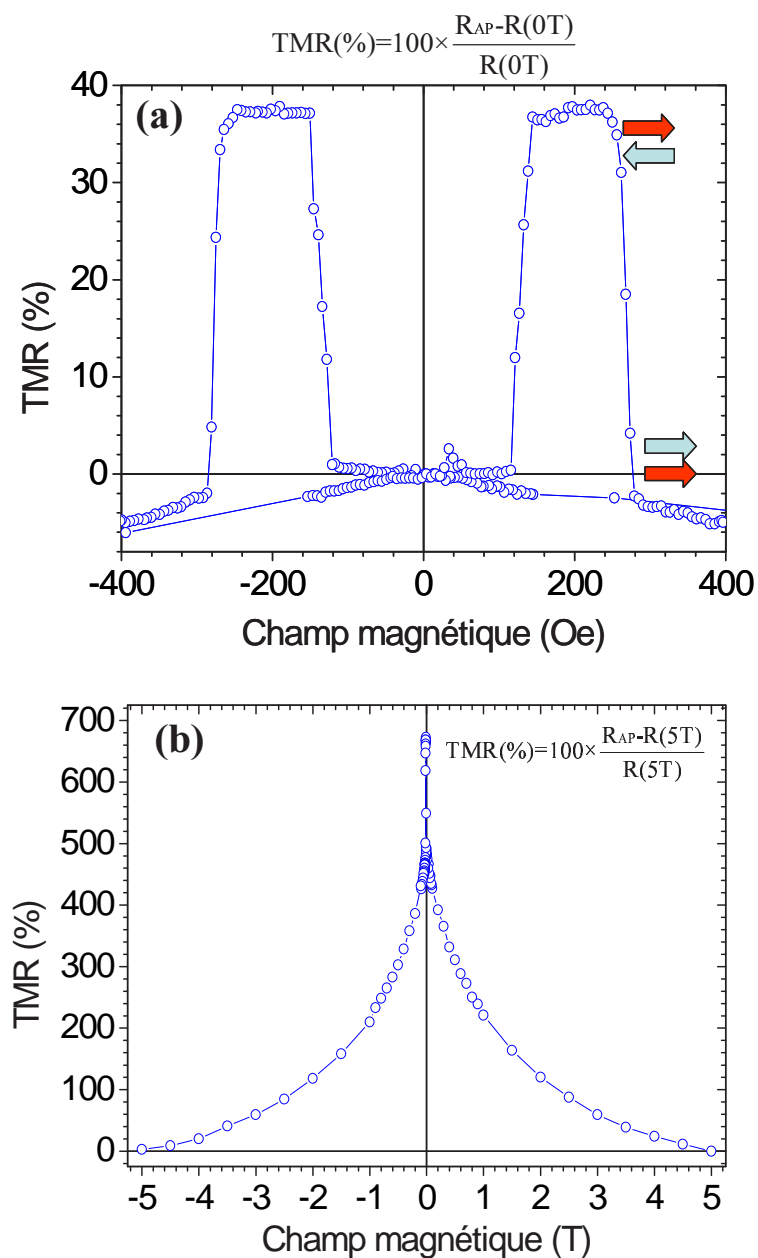


FIG. 4.7 – Variation de la résistance en fonction du champ magnétique appliqué. Courbe de TMR à faible champ magnétique (Fig. 4.7a) et courbe de TMR à fort champ magnétique (Fig. 4.7b). La normalisation de la TMR diffère pour les deux courbes.

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ 91

$\sim 15\text{\AA}$  [238, 239]. L'ensemble de ces résultats montrent que le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  a une polarisation en spin relativement élevée mais ne révèle pas la forte polarisation attendue théoriquement<sup>4</sup>. Ces amplitudes de TMR peuvent s'expliquer par le fait que la polarisation en spin du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  massif n'est pas identique à la polarisation en spin à l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}$ . Il est aussi possible qu'une faible concentration de Mn ait diffusé dans la barrière tunnel induisant des "spin flip" au cours de l'effet tunnel.

Lorsque l'on applique un fort champ magnétique (jusqu'à 5T), on obtient une magnétorésistance d'environ 700% (en normalisant par la résistance à 5T). Ce fort effet magnétorésistif<sup>5</sup> a principalement deux origines : la saturation de l'aimantation des électrodes (a) et la variation de la hauteur de barrière (b).

a) Une aimantation rémanente de 30% peut expliquer, en partie, cette magnétorésistance à fort champ. En effet lorsque le champ magnétique augmente, les spins s'orientent de plus en plus parallèlement et par conséquent la résistance diminue. Par contre, les mesures magnétiques (effectuées à l'aide d'un SQUID) montrent que l'aimantation est saturée dès 1T. Il peut alors exister, avec la phase ferromagnétique, un état verre de spin (où les champs de saturation sont très élevés) à l'interface donnant lieu à une MR au delà de 1T. Cependant, au SQUID nous mesurons essentiellement l'aimantation des ions manganèse tandis que les mesures de magnétotransport sont sensibles à l'orientation des spins des trous. Ainsi les champs nécessaires pour aligner les ions Mn et les trous ne sont pas forcément identiques.

b) L'action d'un fort champ magnétique induit, via l'effet Zeeman, une modification des bandes de valence du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . La hauteur de barrière  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}$  peut être alors modifiée. Or, comme la résistance tunnel est exponentiellement dépendante de la hauteur de la barrière, l'action d'un fort champ magnétique peut aussi modifier fortement la résistance.

Des études complémentaires seraient nécessaires afin de mieux comprendre l'origine de cet effet. Des recuits sous atmosphère d'azote permettrait d'augmenter l'aimantation rémanente (§ 3.4) et pourrait ainsi nous permettre de différencier ces deux contributions. Cependant l'effet du recuit semble être moins efficace dans le cas des hétérostructures [37, 232, 62] où l'effet de la diffusion des Mn interstitiels des couches inférieures semble être fortement diminuée.

<sup>4</sup>Pour une polarisation de spin de 80%, une TMR de 350% est espérée selon le modèle de Jullière. Une TMR théoriquement infinie est attendue pour des couches ferromagnétiques demi-métalliques. Par exemple Bowen *et al.* [21] ont observé des taux de TMR de 1800% pour des jonctions à base  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  correspondant à une polarisation de spin de 95%.

<sup>5</sup>Ces 700% de MR (pour un champ de 5T) sont très supérieurs à la magnétorésistance d'une couche de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ( $\sim 50\%$  pour un champ de 5T). De plus la résistance des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est deux ordres de grandeur plus faible que la résistance tunnel. On peut donc attribuer cet effet au processus tunnel.

Dans la suite de ce chapitre je discuterai uniquement de la magnétorésistance tunnel à faible champ magnétique, c'est à dire à la TMR associée à la transition d'une configuration magnétique parallèle à antiparallèle et donc à la polarisation du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

### 4.3.2 Dépendance en température de la polarisation des porteurs

La magnétorésistance tunnel étant la signature de la polarisation des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ , la variation de la TMR avec la température permet de sonder la variation de la polarisation des trous avec la température.

La figure 4.8a représente des courbes de TMR mesurées à différentes températures et pour une tension de 5mV <sup>6</sup>. La figure 4.8b représente la variation en température de la TMR, de l'aimantation et de la polarisation des trous, déduite des mesures de TMR.

La magnétorésistance tunnel s'annulant à la température de Curie des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ( $\sim 50\text{K}$ ) confirme que la TMR mesurée est bien due à la polarisation des couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

La polarisation en spin des trous peut être déterminée à partir de la magnétorésistance tunnel en utilisant la formule de Jullière [114] :

$$\text{TMR} = \frac{2P^2}{1 - P^2} \Leftrightarrow P = \sqrt{\frac{\text{TMR}}{2 + \text{TMR}}} \quad (4.3)$$

où P est la polarisation en spin des deux couches ferromagnétiques. Malgré une concentration de manganèse différente pour les deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ , la polarisation en spin des porteurs est supposée identique pour les deux couches.

La dépendance en température de l'aimantation et de la polarisation des trous avec la température ne sont pas identiques. D'après les mesures magnétiques et de transport on s'aperçoit que la chute du moment magnétique des ions manganèse avec la température, notamment à basse température, est plus rapide que la diminution de la polarisation en spin des trous. Des comportements similaires ont été observés par Matsukura *et al.*. La figure 4.9 représente la variation de "l'aimantation" en fonction de la température mesurée au SQUID et par effet Hall. Les mesures SQUID sont sensibles à l'alignement des ions manganèse (le moment magnétique des trous étant très inférieur au moment magnétique des ions Mn) alors que les mesures de transport, effet Hall en l'occurrence, sont sensibles à la polarisation des trous. Le fait que la polarisation des trous sature avant l'aimantation des ions Mn s'explique par le fait que le champ effectif vu par les trous est plus fort que le champ vu par les ions Mn.

<sup>6</sup>La TMR est seulement de 27% à 4.2K. Sur cet échantillon, une trentaine de jonctions ont été mesurées, le taux de TMR de 38% correspond à la "meilleure" jonction. Les autres ont une magnétorésistance qui varie de 15% à 35%.

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ 93

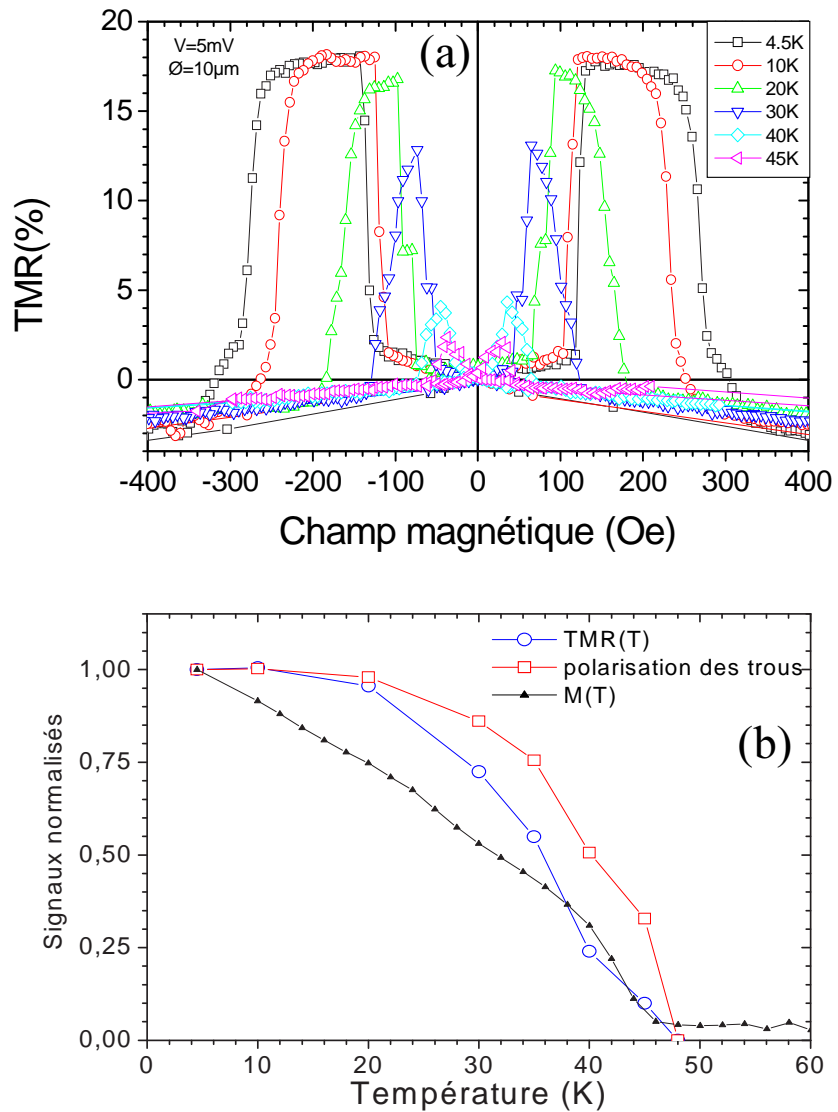


FIG. 4.8 – Magnétorésistance tunnel à 5mV mesurée à différentes températures (Fig. 4.8a). Variation de la TMR, de la polarisation des trous et de l'aimantation en fonction de la température normalisées à 4K (Fig. 4.8b).

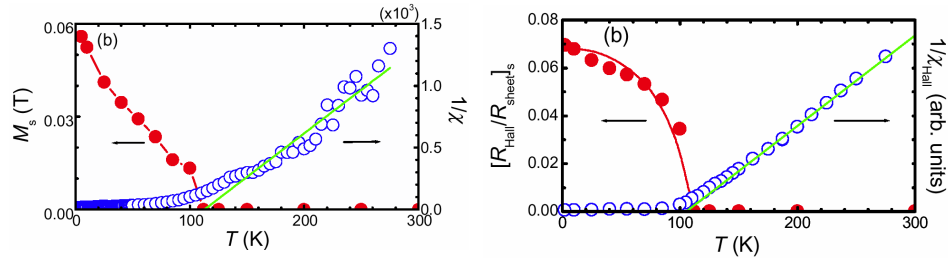


FIG. 4.9 – Variation de l'aimantation en fonction de la température mesurée au SQUID et par effet Hall. D'après Matsukura *et al.* [147]

Cette dépendance en température de la polarisation des trous a été calculée par Dietl *et al.* [55] (voir figure 2.11, page 30) pour différentes concentrations de porteurs. Il montre, pour de faibles concentrations de trous ( $< 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ) que la polarisation des porteurs sature alors que l'aimantation des ions Mn continue d'augmenter<sup>7</sup>.

### 4.3.3 Dépendance en angle

Selon l'axe [100] (Fig. 4.7a, page 90), on observe deux états de résistance associés à la transition d'une configuration magnétique parallèle à antiparallèle. Lorsque l'on s'écarte de cette direction, on observe plusieurs sauts de résistance<sup>8</sup>. Les figures 4.12 b, c et d (page 97) représentent des exemples de variation de résistance pour différentes orientations du champ magnétique.

Afin de déterminer les différentes configurations magnétiques, nous avons effectué des mesures de magneto-optique. Cette étude, réalisée en collaboration avec J. Ferré (Laboratoire de Physique des Solides), nous a permis de déterminer les valeurs des champs coercitifs des deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  en fonction de la direction du champ et de connaître ainsi les différentes configurations magnétiques.

La figure 4.10 représente des cycles d'hystérésis, obtenus par effet Kerr en rotation longitudinale, pour deux directions de champ magnétique. Lorsque le champ magnétique est selon l'axe [110] (Fig. 4.10b), on observe deux retournements d'aimantation associés à chaque couche. Lorsque l'on s'écarte de la direction [110], on observe des retournements d'aimantation en plusieurs étapes (Fig. 4.10a).

<sup>7</sup>La polarisation des trous et la dépendance en température de cette polarisation dépend fortement de la position du niveau de Fermi.

<sup>8</sup>Y. Higo *et al.* [99] ont observé le même type de comportement lorsque le champ magnétique est appliqué selon [100] et [110].

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ 95

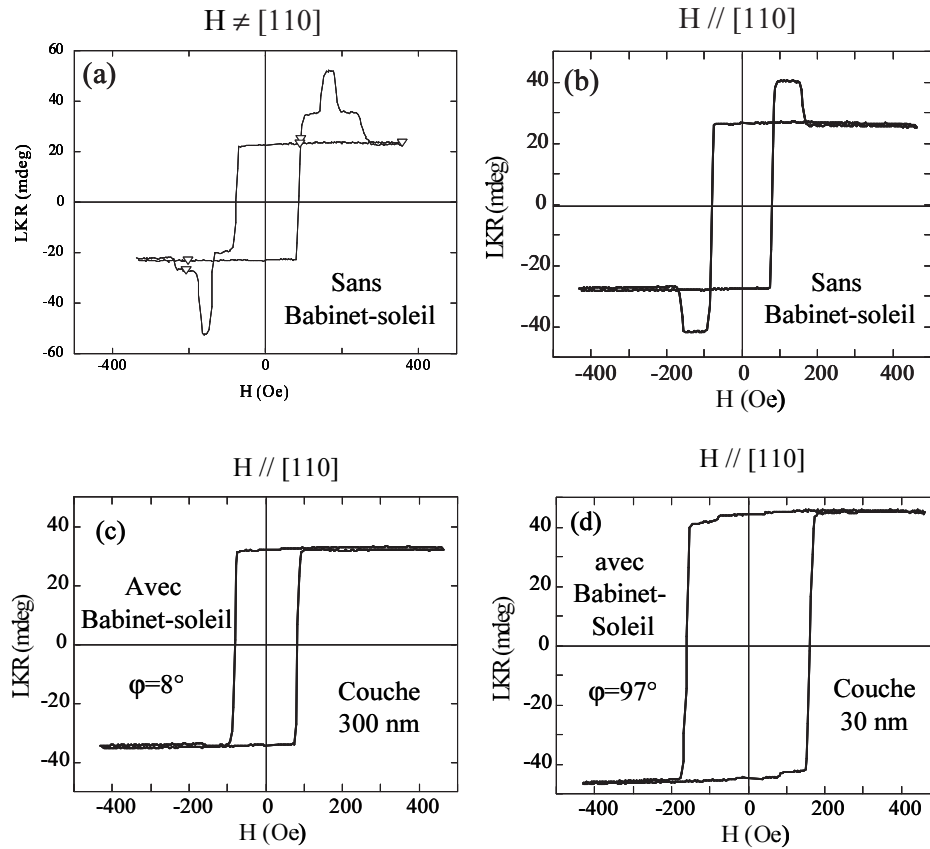


FIG. 4.10 – Cycles d’hystérésis effectués à 1.8K sans Babinet-soleil en appliquant le champ magnétique selon  $[110]$  et selon un axe à  $15^\circ$  de l’axe  $[110]$  (Fig. 4.10 a et b). Cycles d’hystérésis selon  $[110]$  en utilisant un Babinet-soleil permettant de mesurer uniquement la couche fine (phase de  $97^\circ$ ) ou épaisse (phase  $8^\circ$ ); Fig. 4.10 c et d.

En utilisant un compensateur de Babinet-soleil, qui permet de moduler la polarisation de la lumière incidente sur l'échantillon, il est possible de mesurer l'état d'aimantation en profondeur<sup>9</sup>. On peut ainsi sonder l'état d'aimantation de la couche inférieure ou supérieure de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

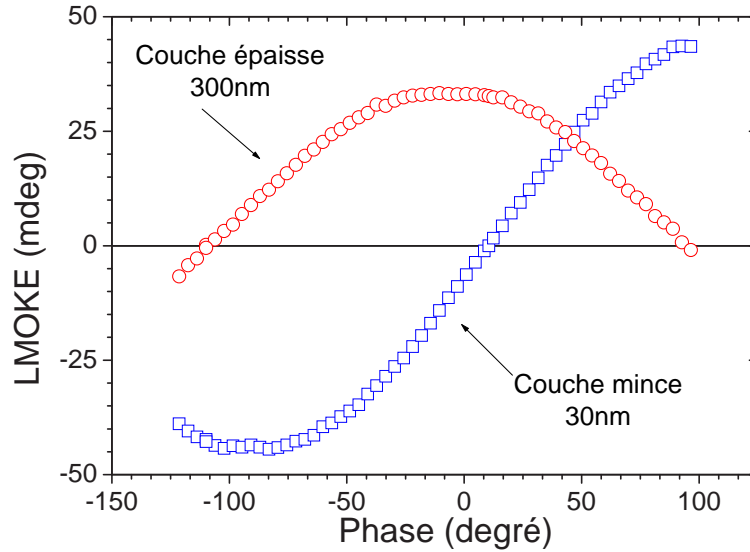


FIG. 4.11 – Variation du signal magnéto-optique en fonction de la phase de la lumière incidente pour la couche fine et épaisse de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

La figure 4.11 représente la variation du signal magnéto-optique en fonction de la phase de la lumière incidente pour la couche fine et épaisse. Ainsi pour une phase de  $8^\circ$ , on mesure uniquement la couche de 300nm tandis que pour une phase de  $97^\circ$  on mesure l'autre couche.

La figure 4.12a représente les valeurs des champs coercitifs, selon la direction du champ (par rapport à la direction [100]), pour les deux couches ferromagnétiques.

D'après les champs coercitifs déterminés par les mesures de magnéto-optique et selon la direction du champ magnétique on obtient des configurations magnétiques parallèles, antiparallèles mais également intermédiaires.

Du point de vue électrique, à l'aide du modèle de Jullière [114], on peut exprimer la TMR en fonction de l'angle ( $\varphi$ ) entre les directions de l'aimantation des deux couches ferromagnétiques par<sup>10</sup> :

$$TMR(\varphi) = \frac{P_1 P_2 (1 - \cos \varphi)}{1 + P_1 P_2 \cos \varphi} \quad (4.4)$$

<sup>9</sup>Pour plus de détails, on pourra se référer aux articles de J. Ferré [66, 88].

<sup>10</sup>Le détail des calculs est donné en annexe (§ 4.6 page 110).

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ 97

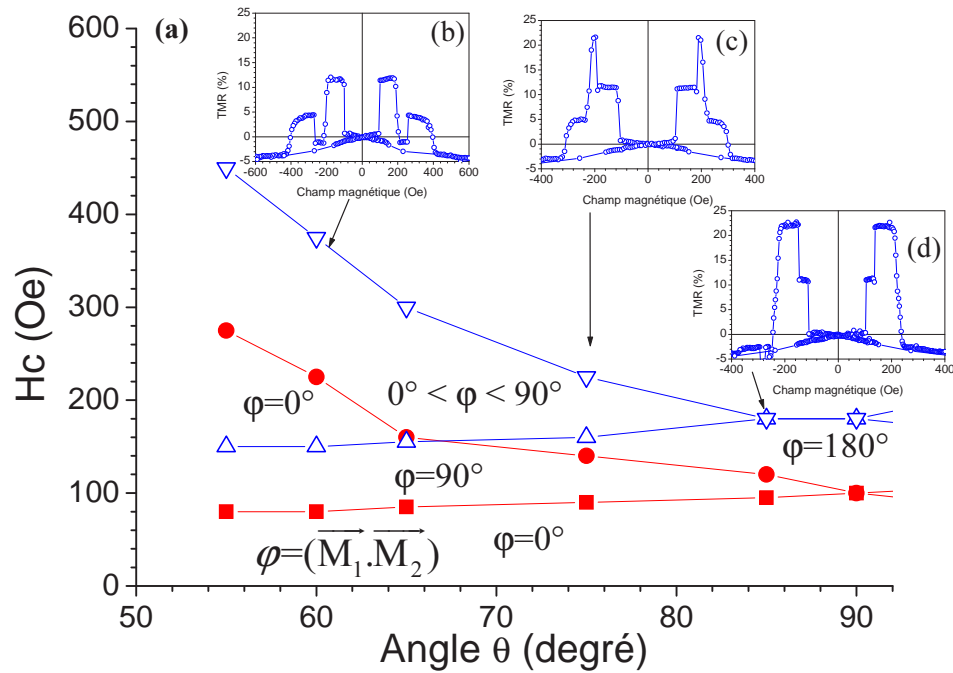


FIG. 4.12 – Valeurs des champs coercitifs, déterminées par effet Kerr à 1.8K, des deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  en fonction de l'angle entre le champ magnétique appliqué et l'axe cristallographique [100]. Les symboles  $\bullet$  et  $\blacksquare$  représentent les champs coercitif de la couche épaisse et les symboles  $\triangle$  et  $\nabla$  les champs coercitifs de la couche fine. Selon la direction du champ appliqué ( $\theta$ ), l'angle entre les directions des aimantations ( $\varphi$ ) des deux couches diffèrent. Les figures 4.12 b, c et d représentent des mesures (à 4.2K) de TMR pour différentes directions du champ magnétique.

La figure 4.13 représente la variation de l'amplitude de la TMR en fonction de l'angle entre les directions des aimantations des deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Inversement, à partir de la variation angulaire de la TMR, on peut déterminer les configurations magnétiques associées aux différents niveaux de résistance obtenue.

Les trois valeurs de magnétorésistance mesurées (insert de la figure 4.13) correspondent à des transitions entre des configurations magnétiques :

- parallèle ( $\varphi=0^\circ$ ) et antiparallèle ( $\varphi=180^\circ$ ) : la TMR est maximum (22%),
- parallèle ( $\varphi=0^\circ$ ) et perpendiculaire ( $\varphi=90^\circ$ ) : la TMR est de  $\sim 10\%$ ,
- parallèle ( $\varphi=0^\circ$ ) et une configuration intermédiaire ( $0 < \varphi < 90^\circ$ ), la TMR est de l'ordre de 5%

où  $\varphi$  est l'angle entre les directions des aimantations des deux couches ferroma-



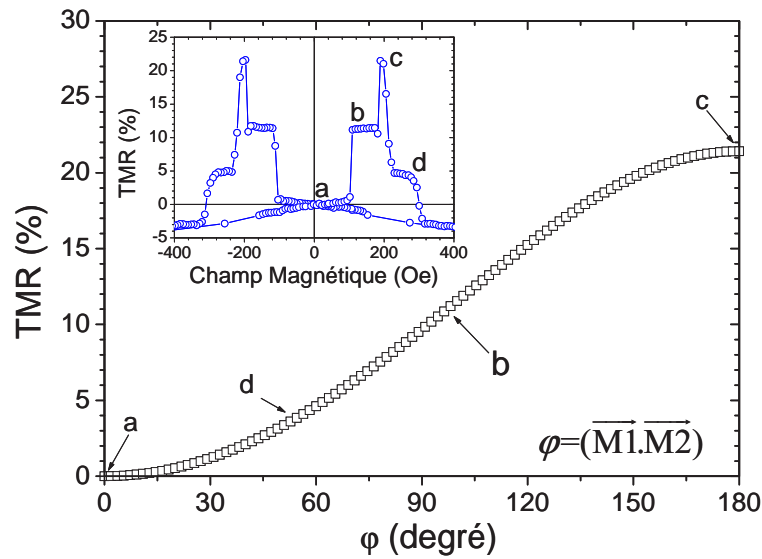


FIG. 4.13 – Variation du taux de magnétorésistance en fonction de  $\phi$  calculée à partir de l'équation 4.11.

gnétiques.

Les mesures magnéto-optiques couplées avec l'étude angulaire de la magnétorésistance tunnel constituent une sonde efficace de la configuration magnétique des deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Ces courbes de magnétorésistance tunnel présentant plusieurs sauts de résistance, est la conséquence du mécanisme de renversement d'aimantation du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

#### 4.3.4 Dépendance en tension

La variation de la magnétorésistance tunnel avec la tension électrique appliquée dépend fortement de la nature des matériaux ferromagnétiques et de la barrière tunnel. Par exemple, pour des jonctions tunnel composées de métaux de transition et d'une barrière d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), on obtient une diminution de la TMR à faible tension [157] puis une oscillation de la TMR à forte tension [155]. Par contre pour des jonctions tunnel de type  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{Co}$  la dépendance en tension de la TMR est plus structurée ce qui reflète en partie la densité d'états du Co [52].

Les figures 4.14 a et b représentent des courbes de TMR obtenues à différentes tensions (de 2mV à 250mV) à 4.2K et la variation de la TMR en fonction de la tension appliquée. On observe une diminution monotone de la magnéto-

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ 99

résistance tunnel avec la tension beaucoup plus rapide que celle donnée par des jonctions tunnel à base de métaux de transition. On caractérise généralement cette décroissance de la TMR par la tension (notée  $V_{1/2}$ ) à laquelle la TMR est divisée par deux. Ici, la TMR est divisée par deux pour une tension de l'ordre de 15mV. Pour les jonctions à base de métaux de transition ( $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$  [157] ou  $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{FeCo}$  [22]),  $V_{1/2}$  est supérieur à 300mV.

Bien que l'origine de la décroissance de la TMR en tension soit encore largement débattue, trois facteurs sont invoqués ; les excitations d'onde de spins, la structure de bande électronique et la nature de la barrière tunnel.

Les deux premiers effets sont liés à deux énergies caractéristiques : la température de Curie des électrodes pour les excitations d'onde de spins et l'énergie d'échange en ce qui concerne la structure de bande électronique. Enfin la nature de la barrière, c'est à dire la masse effective des porteurs, la hauteur et l'épaisseur de la barrière tunnel, influe sur la dépendance en tension de la TMR.

Dans notre cas, toutes ces énergies sont bien inférieures à celles mises en jeu dans des jonctions tunnel à base de métaux de transition et peuvent expliquer cette rapide diminution de la TMR en tension.

#### Excitations d'onde de spins

La diminution de la TMR avec la tension a été attribuée à des excitations d'ondes de spins localisées à l'interface entre la couche ferromagnétique et la barrière tunnel par Zhang *et al.* [275]. Lorsque l'on applique une tension aux bornes de la jonction tunnel, les électrons passent par effet tunnel de la première couche ferromagnétique vers la seconde couche et sont transmis avec une énergie plus grande que l'énergie de Fermi de la deuxième électrode. Ce sont alors des électrons chauds. Ces électrons chauds perdent leur énergie en émettant des magnons, effet associé à une perte de polarisation en spin. Lorsque l'on augmente la tension, davantage de magnons vont être émis entraînant une diminution de la TMR. Le nombre de magnons émis, à tension constante, sera plus élevé pour les matériaux ferromagnétiques à faible température de Curie. La température de Curie de nos électrodes, de l'ordre de 60K, est inférieure à celle des métaux de transition.

L'excitation d'onde de spins influe sur la variation de la TMR avec la tension mais aussi sur la conductance tunnel. Dans le régime tunnel, la conductance  $G(V)$  a une variation quadratique avec la tension (Brinkman [26]). Or, les magnons induisent une anomalie à faible tension<sup>11</sup> dans la dépendance de conductance. La figure 4.15 représente des courbes  $dI/dV$  mesurées à différentes températures. On observe une forte anomalie à faible tension ( $V < 25\text{mV}$ ) et à basse température ( $T < 40\text{K}$ ). Cette anomalie s'atténue lorsque la température augmente et disparaît à 70K où l'on retrouve une conductance parabolique. A cette température les deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  sont paramagnétiques (la  $T_c$  étant de 60K) ce qui cor-

<sup>11</sup>Cette anomalie est régulièrement appelée "anomalie à tension nulle".

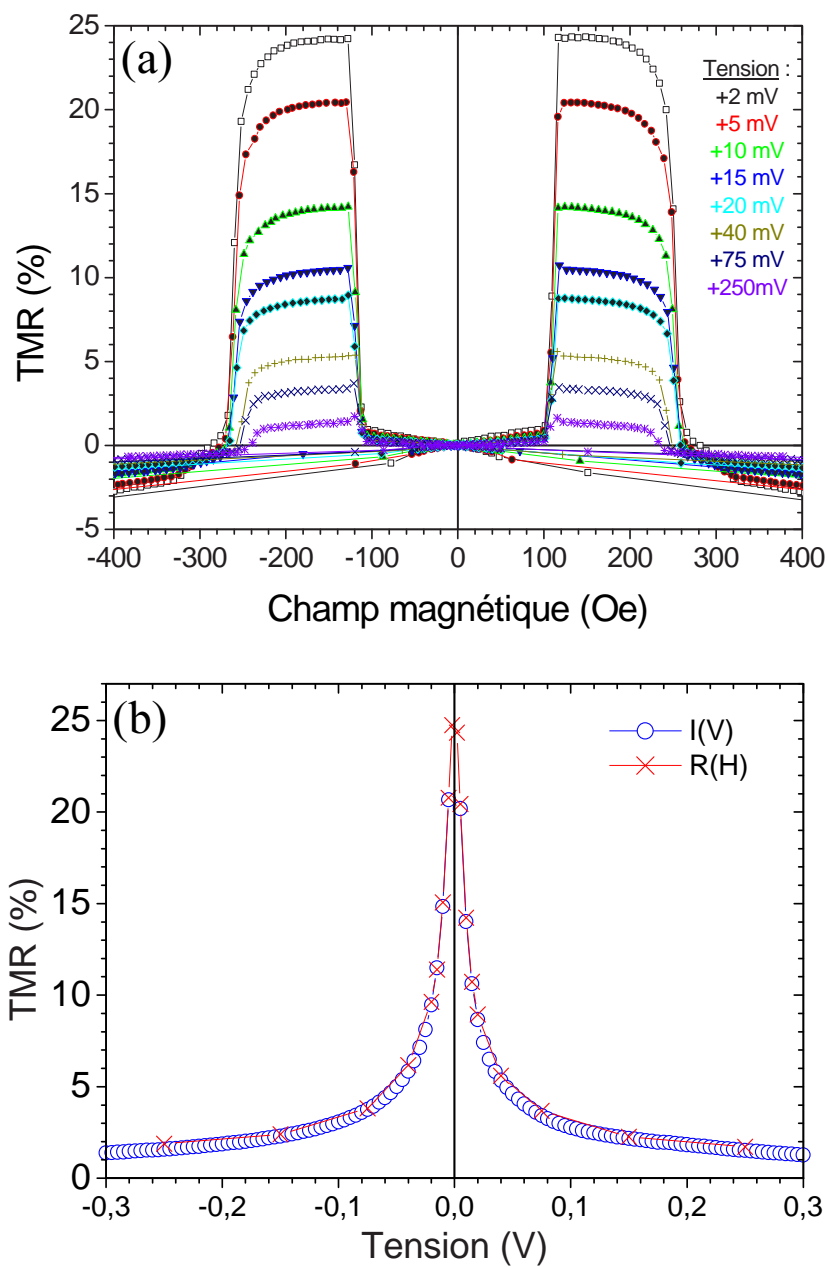


FIG. 4.14 – Magnétorésistance tunnel mesurée à 4.2K à différentes tensions (Fig. 4.14a). Variation de la TMR avec la tension (Fig. 4.14b) obtenue à partir de deux courbes  $I(V)$  mesurées dans les configurations magnétiques parallèles et antiparallèles ( $\circ$ ) et à partir de mesures de magnétorésistance ( $\times$ ).

### 4.3 Propriétés de jonctions tunnel simple $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$

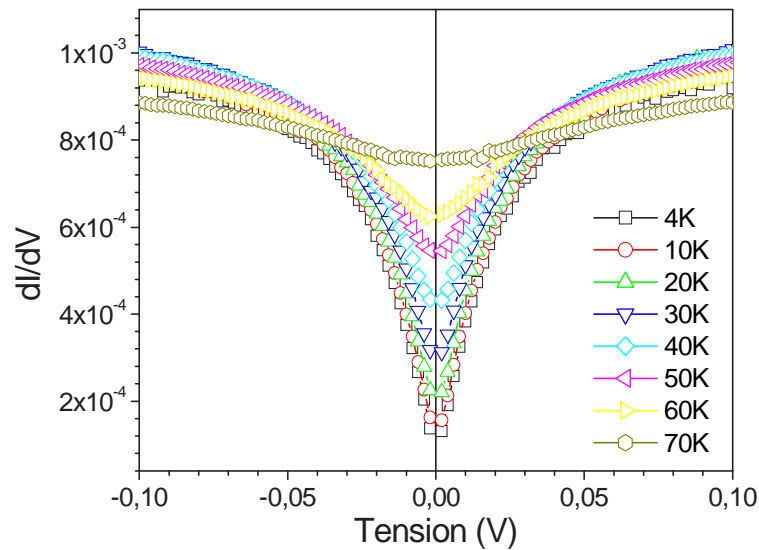


FIG. 4.15 – Courbes  $dI/dV$  à différentes température dans la configuration magnétique antiparallèle (Fig. 4.15).

respond à la disparition d'excitations d'onde de spin à l'interface entre la couche ferromagnétique et la barrière tunnel. Le fait que l'on observe deux types de comportement dans les courbes de conductance de part et d'autre de la  $T_c$  est donc la signature de la présence d'excitations d'onde de spins à basse température.

#### Structure de bande électronique et nature de la barrière tunnel

La variation de la magnétorésistance tunnel avec la tension peut être aussi imputée à la structure électronique des électrodes ferromagnétiques. En effet en modifiant la tension appliquée aux bornes de la jonction les porteurs transmis par effet tunnel des états occupés d'une électrode vers des états vides de la deuxième électrode, n'ont pas la même polarisation en spin. Par conséquent la variation de la TMR avec la tension reflète la densité d'états électronique des matériaux ferromagnétiques. La diminution rapide de la TMR avec la tension peut être liée au "spin splitting" des bandes électroniques. Pour le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ce "spin splitting" est de l'ordre de 100 meV alors que pour les métaux de transition il est de l'ordre de 1eV.

La hauteur et l'épaisseur de la barrière ainsi que la masse effective influent sur la valeur du  $V_{1/2}$ . Montaigne *et al.* [155] ont montré que  $V_{1/2}$  diminuait lorsque la hauteur de la barrière diminuait ou lorsque l'épaisseur augmentait. La hauteur de barrière  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}$ , de l'ordre de 0.4 eV, est beaucoup plus faible que les hauteurs de barrière d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  ou de  $\text{MgO}$ . De plus  $V_{1/2}$  diminue fortement lorsque

la masse effective augmente. Dans le cas d'une barrière d'AlAs, les masses effectives des trous sont de l'ordre de  $0.5 m_{e^-}$  pour les trous légers et de  $0.75 m_{e^-}$  pour les trous lourds. La masse effective des électrons dans une barrière d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  cristalline est de l'ordre de  $0.4 m_{e^-}$ .

Même si l'étude de la dépendance en tension de la conductance à différentes températures a mis en évidence la présence d'excitation d'onde de spin à l'interface, il apparaît bien difficile de quantifier l'influence de ces différents mécanismes.

#### 4.4 Influence de la hauteur de la barrière tunnel sur la magnétorésistance tunnel

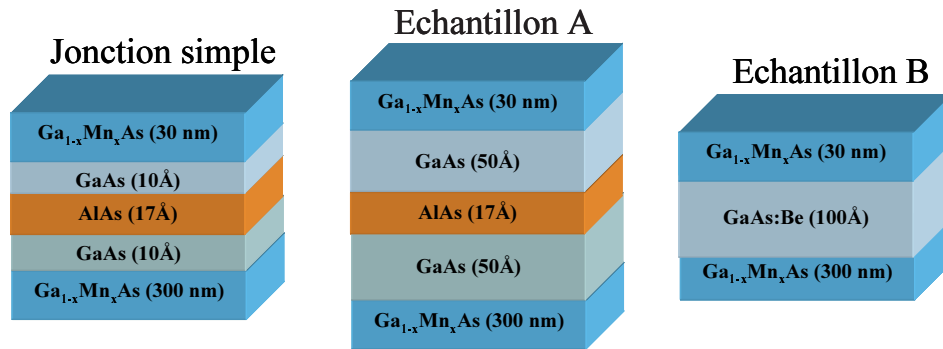


FIG. 4.16 – Les électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  sont séparées soit par une couche d'AlAs (jonction simple), soit par une tricouche GaAs/AlAs/GaAs (échantillon A) soit par une couche de GaAs dopée au béryllium ( $10^{19}\text{cm}^{-3}$ ) (échantillon B).

Nous avons élaboré deux autres types de jonctions tunnel où les électrodes ferromagnétiques sont séparées par une couche d'AlAs et/ou de GaAs. Dans un cas les électrodes sont séparées par la tricouche GaAs(50 Å)/AlAs(17 Å)/GaAs(50 Å) (échantillon A) dans l'autre par une couche de 100 Å de GaAs dopée au béryllium (échantillon B). La concentration de Mn des électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  varie de 4.5% à 5.5%.

Ces structures<sup>12</sup>, présentant des profils de potentiel différents, vont permettre de mettre en évidence différents mécanismes de transport.

<sup>12</sup>La jonction simple et l'échantillon A ont été élaborés à Rennes par Bruno Lépine et l'échantillon B au Laboratoire de Photonique et de Nanostructure (Marcoussis) par Aristide Lemaître.

### 4.4.1 Magnétorésistance

Les figures 4.17a et b représentent la variation de la résistance en fonction du champ magnétique. Les résistances surfaciques des échantillons A et B sont de l'ordre de  $25\Omega\cdot\text{cm}^2$  et  $0.25\Omega\cdot\text{cm}^2$  respectivement (simple jonction :  $0.1\Omega\cdot\text{cm}^2$ ).

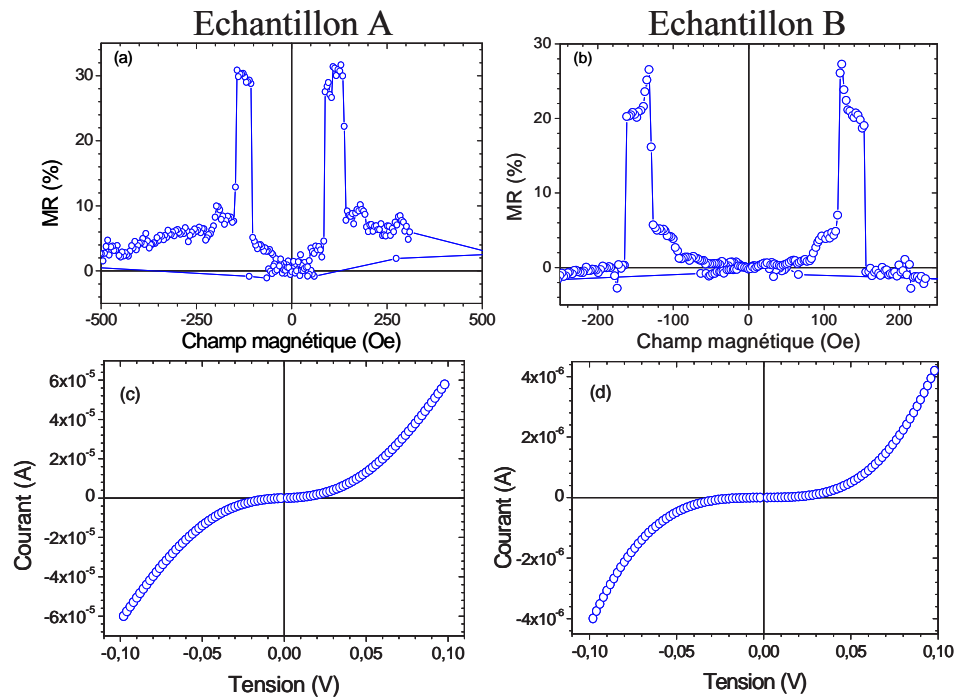


FIG. 4.17 – Variation de la résistance en fonction du champ magnétique à 4.2K et à 1mV (figures 4.17 a et b) et variation du courant en fonction de la tension appliquée à 4.2K et à champ nul pour les échantillons A et B (figures 4.17 c et d).

Nous avons obtenu des MR de 30% (échantillon A) et de 25% (échantillon B) à 4.2K et pour une tension de 1mV. Ces amplitudes de magnétorésistance sont similaires à celles obtenues pour la jonction simple dans les mêmes conditions d'expérience.

Les figures 4.17c et d représentent la variation du courant avec la tension appliquée. On retrouve une variation non linéaire du courant qui peut être caractéristique d'un transport tunnel [26].

Par contre, la dépendance en température de la MR des échantillons A et B (Fig. 4.18) diffère de celle de la jonction simple (voir Fig. 4.8b, page 93). Contrairement à la jonction simple où la magnétorésistance tunnel était constante entre 4K et 20K, la forte diminution de la TMR à basse température pour les échantillons A et B peut être expliquée par l'ouverture d'un canal thermique non pola-

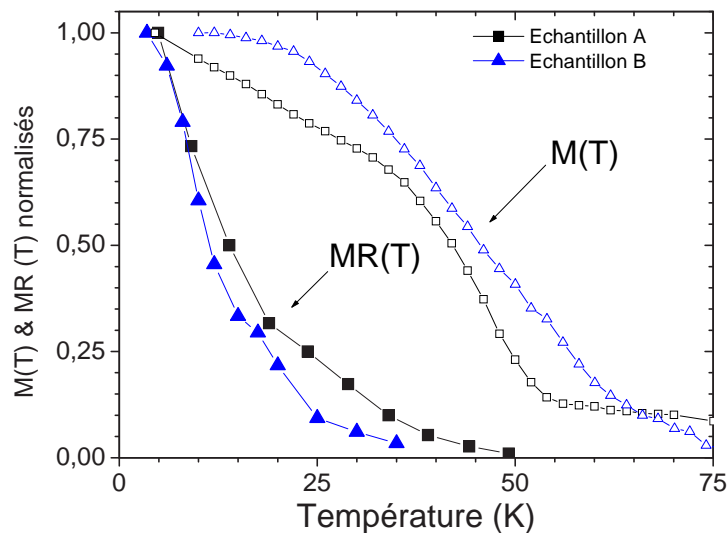


FIG. 4.18 – Variation de l'aimantation et de la magnétorésistance en fonction de la température pour les échantillons A et B.

risé en spin que nous allons détailler.

#### 4.4.2 Mécanismes de transport

Concernant les échantillons A et B, l'insertion des couches de GaAs ( $\sim 100\text{\AA}$  dans chaque cas) introduit une marche de potentiel (barrière tunnel) [36] (Fig 4.19). Cette propriété déjà observée par Ohno *et al.* [176] est également mise en évidence par l'allure de nos courbes  $I(V)$  et  $R(T)$ <sup>13</sup>. Ce décalage de bande a été déterminé par Ohno *et al.* [176] dans le cas de couches épaisses (de 200 à 400nm). Selon la concentration de Mn l'offset de bande est de l'ordre de 90 à 140meV. Cependant, pour des couches de GaAs beaucoup plus fines (de 5 à 10 nm) ce décalage de bande doit être fortement réduit pour atteindre quelques meV seulement (la figure 4.19 schématise ces profils de potentiel) .

Cependant la faible valeur de ce décalage de bande à l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$  ne permet pas d'exclure un transport de charge thermiquement activé au niveau de la bande de valence du GaAs contrairement au cas de la jonction simple avec barrière d'AlAs<sup>14</sup>. Il faut considérer dans ce cas deux canaux

<sup>13</sup>La résistance varie de trois ordres de grandeurs entre 300K et 4K pour les échantillons A et B à 1mV traduisant une certaine activation thermique.

<sup>14</sup>Compte tenu de la diffusion du manganèse et de la faible épaisseur des couches intercalaires de GaAs (10 $\text{\AA}$ ), on peut considérer que la barrière de potentiel ( $\phi$ ) correspondant à la jonction simple est celle de l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}$ . Cette hauteur de barrière  $\phi$  étant très supérieure à l'agitation thermique  $k_B T$ , on suppose que le seul mécanisme de transport est l'effet tunnel

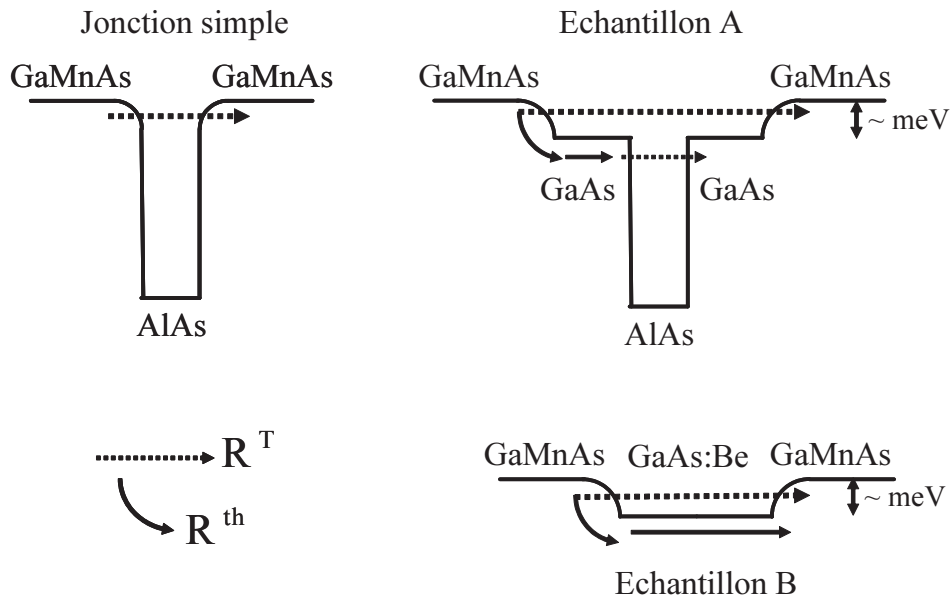


FIG. 4.19 – Profil de potentiel vu par les trous pour les échantillons A et B et la jonction simple. Les différents mécanismes de transport pour les échantillons sont symbolisés par  $--\rightarrow$  (transport tunnel) et  $\curvearrowright$  (transport thermiquement activé).

de conduction différents (thermique et tunnel) potentiellement dépendant du spin (soit quatre canaux au total).

Dans un modèle simple à deux résistances en parallèle (résistance due au transport tunnel et résistance due au transport thermiquement activé) on peut donner une expression généralisée de la magnétorésistance ( $MR^{mes}$ ) qui s'exprime en fonction des résistances tunnel ( $R^T$ ) et thermique ( $R^{th}$ ) selon<sup>15</sup> :

$$MR^{mes} = R_{AP}^{mes} \times \left( \frac{TMR}{R_{AP}^T} + \frac{MR^{th}}{R_{AP}^{th}} \right) \quad (4.5)$$

où TMR est la magnétorésistance tunnel et  $MR^{th}$  est la magnétorésistance associée au transport thermiquement activé. Il faut donc distinguer potentiellement deux cas selon que le transport thermique est polarisé ou non en spin.

#### a) Transport thermique non polarisé en spin

Dans le cas d'une MR thermique nulle, l'équation 4.5 donne une magnétorésistance égale à :

$$MR^{mes} = R_{AP}^{mes} \times \frac{TMR}{R_{AP}^T} \quad (4.6)$$

<sup>15</sup>Le détail des calculs est donné en annexe (§ 4.7, page 111).



Or les propriétés du transport tunnel (TMR et  $R_{AP}^T$ ) sont assez peu dépendantes de la température entre 4K et 20K<sup>16</sup>. En conséquence, la magnétorésistance mesurée doit suivre la même loi que la résistance mesurée dans l'état antiparallèle (cas de la figure 4.20, échantillons A et B).

### b) Transport thermique polarisé en spin

Dans le cas où le transport thermique est dépendant du spin, la magnétorésistance mesurée est donnée par l'équation générale 4.5. Les dépendances en température de la magnétorésistance mesurée et de la résistance (AP) mesurée ne sont pas alors corrélées.

### Résultats expérimentaux :

la figure 4.20 représente les variations expérimentales de la magnétorésistance et de la résistance en fonction de la température.

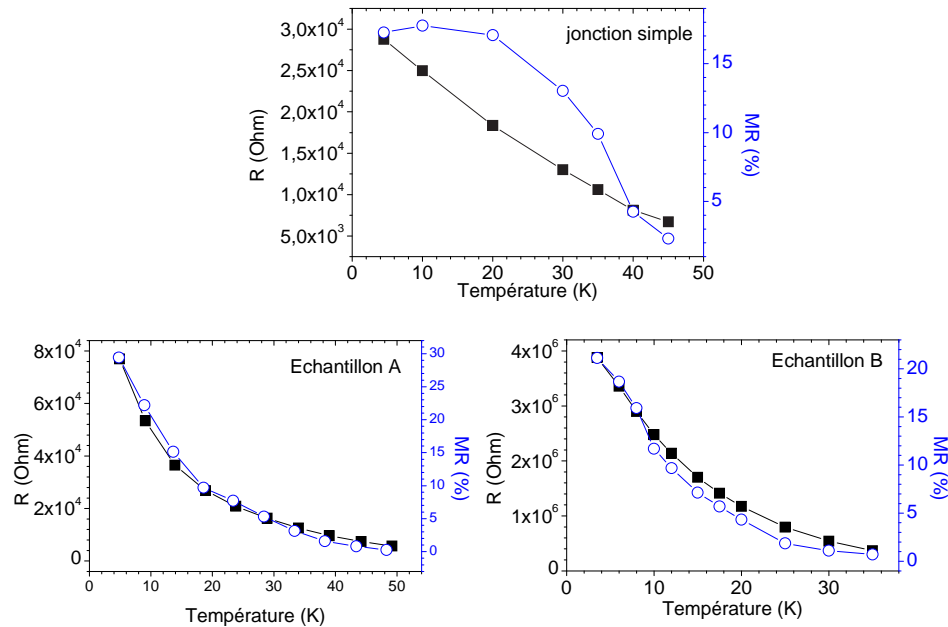


FIG. 4.20 – Variation de la résistance (échelle de gauche - ■) et de la magnétorésistance (échelle de droite - ○) des échantillons A et B comparées à celles de la jonction simple.

<sup>16</sup>On mesure cependant dans le cas de la jonction simple une variation absolue de résistance d'environ 25%, ce qui est toutefois bien supérieur à ce qui est observé sur les jonctions tunnel à base de métaux de transition (variation de 10%) [233]. Cette variation peut provenir d'une activation thermique et/ou d'une augmentation de la hauteur de la barrière tunnel associée à une mise en ordre magnétique et au splitting des bandes  $\Gamma_8$ .

La variation en température de la magnétorésistance, des échantillons A et B, étant similaire à celle de la résistance, on peut supposer que le transport thermique est alors non polarisé en spin (d'après l'équation 4.6). La magnétorésistance de l'échantillon A s'annule à 50K correspondant à la température de Curie d'une des couches de  $Ga_{1-x}Mn_xAs$ . Par contre la magnétorésistance de l'échantillon B s'annule à  $\sim 40K$  pour une température de Curie avoisinant de 80K. Dans ce cas, l'annulation de la TMR avant la  $T_c$  signifie que le transport thermiquement activé (non polarisé en spin) doit être le principal mécanisme de conduction à partir de  $\sim 40K$ .

La contribution thermique non-polarisée se manifeste assez clairement sur les séries de courbes  $TMR(V,T)$  (figure 4.21, échantillon B). En effet, si la chute de la magnétorésistance en température mesurée à faible tension ( $V < \sim 10mV$ ) est la conséquence du court-circuit thermique (Fig. 4.21b), cette chute relative est de moins en moins marquée en tension pour disparaître au delà d'un certain seuil ( $V \sim 30mV$ ).

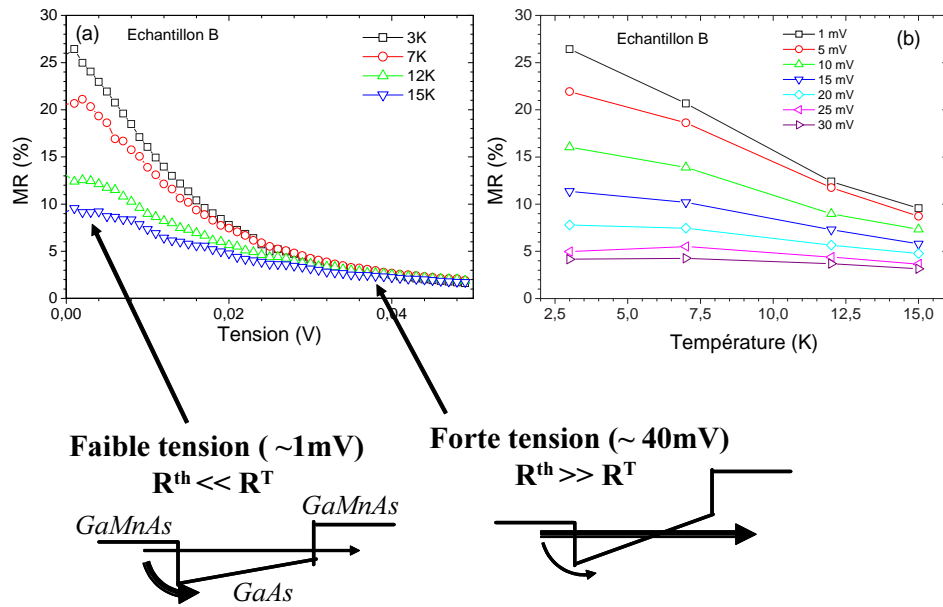


FIG. 4.21 – Variation de la magnétorésistance en fonction de la tension à différentes températures (Fig. 4.21a). Variation de la MR en fonction de la température à différentes tension (Fig. 4.21b). Profils de potentiel lorsqu’une faible et une forte tension est appliquée.

La raison est une forte diminution de la résistance tunnel (liée à la modification de la géométrie de barrière), contrairement à la résistance thermique qui reste invariante (hauteur de barrière constante). Ceci a pour effet d’augmenter, en

proportion, le courant polarisé en spin dans la branche tunnel. Dans cette gamme de tension, la chute de la TMR est donc intrinsèquement liée à l'effet tunnel (magnons par exemple).

La forme des courbes TMR(T) à différentes tensions laisse présager un court-circuit thermique à faible tension (MR diminue comme  $R_{AP}$ ) qui disparaît à plus forte tension (MR constante en température non corrélée à  $R_{AP}$ , comportement similaire à la jonction simple).

## 4.5 Conclusion

L'étude des propriétés tunnel dépendantes du spin de la jonction simple a permis de montrer que les porteurs dans le  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  sont polarisés en spin. L'étude en température de la magnétorésistance nous a permis de mettre en évidence que la variation de la polarisation des porteurs et des ions manganèse avec la température est différente. Ces résultats expérimentaux sont en accord qualitatif avec les calculs de König *et al.* [123]. L'étude angulaire de la magnétorésistance tunnel couplée avec les mesures magnéto-optiques corroborent les propriétés d'anisotropie cubique du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Au cours de la deuxième partie de ce chapitre, nous avons vu que l'étude en température de la résistance et de la magnétorésistance pouvait permettre de distinguer différents modes de conduction. Le diagramme de phase (figure 4.22) résume la dépendance en température attendue de la magnétorésistance selon les différents mécanismes de transport.

Les deux lignes, délimitant la zone hachurée, représentent deux cas limites. La ligne horizontale représente la magnétorésistance dans le cas où l'effet tunnel est le seul mécanisme de transport. A basse température ( $<20\text{K}$  pour nos jonctions tunnel), la magnétorésistance ne dépend pas de la température (barrière d'AlAs). La limite inférieure est définie lorsque qu'un transport thermique non dépendant du spin est activé (barrière de GaAs). La magnétorésistance s'exprime alors selon l'équation 4.6 (page 105). Entre ces deux cas limites, la magnétorésistance s'exprime par l'équation 4.5 (page 105) et indique a priori un transport thermiquement activé partiellement polarisé en spin. Ce diagramme de phase établi à partir de nos résultats expérimentaux et d'un modèle à deux résistances (quatre canaux de spin) est valable à basse température où la polarisation en spin des porteurs des deux couches ferromagnétiques est indépendante de la température.

Une des perspectives à ce travail est une meilleure compréhension des différents mécanismes de conduction. La réalisation d'échantillons similaires à la structure de l'échantillon B mais en diminuant l'épaisseur de GaAs nous permettra peut être de mettre en évidence un transport thermiquement activé polarisé en spin.

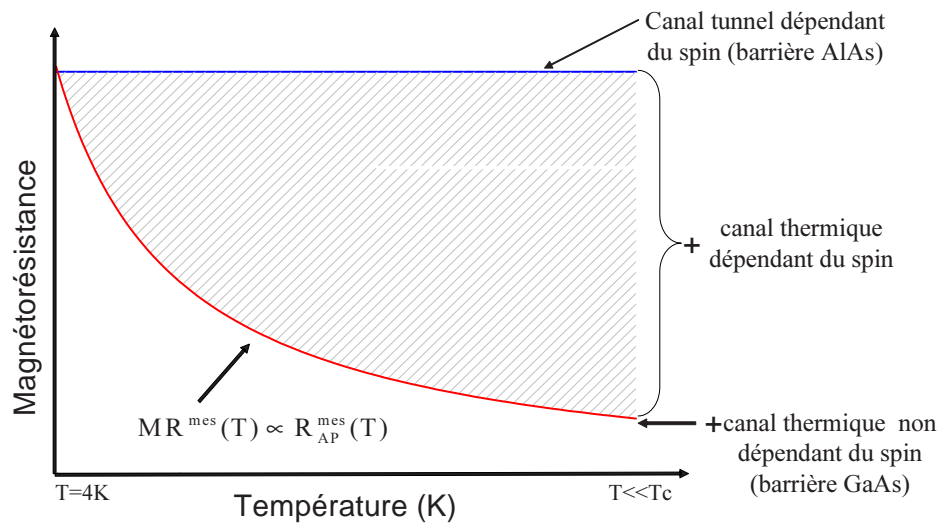


FIG. 4.22 – Variation de la magnétorésistance normalisée en fonction de la température en fonction des différents modes de conduction. Les trois modes de conduction envisagés sont un courant thermiquement activé polarisé en spin ou non polarisé et le cas où le transport tunnel est le seul mécanisme de conduction.

L'étude de ces structures a permis de montrer qu'il existe une marche de potentiel à l'interface  $Ga_{1-x}Mn_xAs/GaAs$  (dopé Be ou non). Il serait intéressant de réaliser des tricouches  $Ga_{1-x}Mn_xAs/semiconducteur$  non magnétique/ $Ga_{1-x}Mn_xAs$  en adaptant les bandes de valence afin d'étudier un transport de charge dans un régime ohmique. L'augmentation de la densité de courant associé est un des défis futurs pour l'étude du renversement d'aimantation par l'injection d'un courant polarisé en spin [225, 117, 87, 86]. L'étude des courants critiques de renversement dont l'ordre de grandeur est bien connue pour des structures métalliques (Co/Cu/Co par exemple), n'a pas été encore abordée (expérimentalement et théoriquement) pour des structures semiconductrices.

La magnétorésistance tunnel étant dépendante de la polarisation de spin à l'interface matériaux ferromagnétique/barrière tunnel, l'influence de l'interface F/I sur la magnétorésistance tunnel constitue une étude intéressante. Afin de modifier l'interface F/I on peut songer à modifier la nature de la barrière tunnel. La croissance de jonction tunnel  $Ga_{1-x}Mn_xAs/AlAs/Ga_{1-x}Mn_xAs$  selon des axes cristallographiques autres que [001] pourrait permettre de mettre en évidence l'influence de l'hybridation des fonctions d'onde à l'interface F/I [270, 142] sur le transport tunnel dépendant du spin.

## 4.6 Annexe A : expression de la variation angulaire de la magnétorésistance tunnel

Le magnétorésistance tunnel dépend de la polarisation des deux couches ferromagnétiques et de l'orientation relative des aimantations de ces couches ferromagnétiques.

A l'aide du modèle de Jullière [114], on peut exprimer l'amplitude de la TMR en fonction de l'angle ( $\varphi$ ) entre les directions de l'aimantation des deux couches ferromagnétiques. La conductance tunnel  $G(\varphi)$  s'écrit sous la forme [104] :

$$G(\varphi) = G_p \cos^2 \frac{\varphi}{2} + G_{ap} \sin^2 \frac{\varphi}{2} = G_p + \frac{G_{ap} - G_p}{2} (1 - \cos \varphi) \quad (4.7)$$

où  $G_p$  et  $G_{ap}$  sont les conductances tunnel dans les configurations parallèles et antiparallèles. On exprime alors la TMR en fonction de  $\varphi$ ,  $G_p$  et  $G_{ap}$  :

$$TMR(\varphi) = \frac{G_p - G(\varphi)}{G(\varphi)} = \frac{\frac{G_p - G_{ap}}{2} (1 - \cos \varphi)}{\frac{G_p + G_{ap}}{2} + \frac{G_p - G_{ap}}{2} \cos \varphi} \quad (4.8)$$

On peut écrire, à partir de la formule de Jullière (équation 4.3, page 92),  $G_p - G_{ap}$  et  $G_p + G_{ap}$  en fonction de  $P_1$  et  $P_2$  :

$$G_p - G_{ap} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} G_{ap} \quad (4.9)$$

$$G_p + G_{ap} = \frac{2}{1 - P_1P_2} G_{ap} \quad (4.10)$$

On peut alors exprimer le taux de TMR en fonction de  $\varphi$  et des polarisations des couches ferromagnétiques :

$$TMR(\varphi) = \frac{P_1P_2(1 - \cos \varphi)}{1 + P_1P_2 \cos \varphi} \quad (4.11)$$

Lorsque  $\varphi=0^\circ$ , les aimantations des deux couches ferromagnétiques sont parallèle, on obtient une TMR nulle et lorsque  $\varphi=180^\circ$  (configuration magnétique antiparallèle) on retrouve la formule de Jullière :

$$TMR(\varphi = 180^\circ) = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad (4.12)$$

## 4.7 Annexe B : transport tunnel et transport thermiquement activé : expression de la magnétorésistance

Lorsque le mécanisme de transport d'une jonction tunnel est uniquement un transport par effet tunnel, on peut écrire la magnétorésistance tunnel ( $MR^T$ ) sous la forme :

$$MR^T = \frac{R_{AP}^T - R_P^T}{R_P^T} \quad (4.13)$$

où  $R_P^T$  et  $R_{AP}^T$  sont les résistances tunnel dans les configurations magnétiques parallèles et antiparallèles.

Lorsqu'un mécanisme de transport thermiquement activé coexiste parallèlement au transport tunnel, la résistance mesurée ( $R^{mes}$ ) s'écrit :

$$R^{mes} = \frac{R^T R^{th}}{R^T + R^{th}} \quad (4.14)$$

La magnétorésistance mesurée ( $MR^{mes}$ ) peut donc s'écrire sous la forme :

$$MR^{mes} = \frac{R_{AP}^{mes} - R_P^{mes}}{R_P^{mes}} = \frac{\frac{R_{AP}^T R_{AP}^{th}}{R_{AP}^T + R_{AP}^{th}} - \frac{R_P^T R_P^{th}}{R_P^T + R_P^{th}}}{\frac{R_P^T R_P^{th}}{R_P^T + R_P^{th}}} \quad (4.15)$$

$$MR^{mes} = \frac{R_{AP}^T R_P^T (R_{AP}^{th} - R_P^{th}) + R_{AP}^{th} R_P^{th} (R_{AP}^T - R_P^T)}{(R_{AP}^T + R_{AP}^{th})(R_P^T + R_P^{th})} \times \frac{R_P^T + R_P^{th}}{R_P^T R_P^{th}} \quad (4.16)$$

La MR mesurée peut donc s'écrire sous la forme :

$$MR^{mes} = \frac{R_{AP}^T}{R_{AP}^T + R_{AP}^{th}} MR^{th} + \frac{R_{AP}^{th}}{R_{AP}^T + R_{AP}^{th}} TMR \quad (4.17)$$

où la magnétorésistance associée au transport thermiquement activé ( $MR^{th}$ ) est définie par :

$$MR^{th} = \frac{R_{AP}^{th} - R_P^{th}}{R_P^{th}} \quad (4.18)$$

En multipliant le premier terme par  $R_{AP}^{th}$  au numérateur et au dénominateur et le deuxième terme par  $R_{AP}^T$  on obtient :

$$\frac{MR^{mes}}{R_{AP}^{mes}} = \frac{TMR}{R_{AP}^T} + \frac{MR^{th}}{R_{AP}^{th}} \quad (4.19)$$



## Chapitre 5

# Détection électrique d'un courant polarisé en spin injecté dans un puits quantique d'arséniure de gallium

Il me plaît d'imaginer un État qui puisse se permettre d'être juste envers tous les hommes et qui traite l'individu avec respect comme un voisin ; qui ne jugerait pas sa propre quiétude menacée si quelques-uns s'installaient à l'écart, ne s'y mêlant pas, en refusant l'étreinte, sans pouvoir s'abstenir de remplir tous les devoirs de bons voisins et de compatriotes. Un État qui porterait ce genre de fruit, et le laisserait tomber aussi vite qu'il a mûri, ouvrirait la voie à un État encore plus glorieux et parfait, que j'ai également imaginé sans le voir nulle part.

*La désobéissance civile,  
Henry David Thoreau, 1849*



**Sommaire**

---

<b>5.1 Propriétés de doubles jonctions tunnel magnétiques Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As/AlAs/GaAs/AlAs/Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As . . . . .</b>	<b>115</b>
5.1.1 Structure des échantillons étudiés . . . . .	115
5.1.2 Magnétorésistance tunnel à 4K . . . . .	115
5.1.3 Mécanismes de transport : transport tunnel cohérent et transport tunnel séquentiel . . . . .	117
<b>5.2 Détection électrique d'une accumulation de spins dans un puits quantique de GaAs . . . . .</b>	<b>122</b>
<b>5.3 Conditions de détection électrique d'un courant polarisé en spin injecté dans un puits quantique . . . . .</b>	<b>125</b>
5.3.1 Temps de vie du spin des trous dans un puits quantique de type p : action de la température . . . . .	125
5.3.2 Influence de la résistance des barrières tunnel sur la magnétorésistance tunnel . . . . .	130
5.3.3 Discussion sur les mécanismes de relaxation de spin des trous dans les puits . . . . .	131
<b>5.4 Conclusion . . . . .</b>	<b>133</b>
<b>5.5 Annexe A : canaux de conduction dans les puits de GaAs . . . . .</b>	<b>137</b>
<b>5.6 Annexe B : conditions d'injection et de détection - état de l'art expérimental . . . . .</b>	<b>141</b>
<b>5.7 Annexe C : jonctions tunnel F/I/N/I/F : expression de la magnétorésistance tunnel . . . . .</b>	<b>143</b>

---

Ce chapitre est consacré à l'étude des propriétés de transport dépendant du spin dans des hétérostructures où deux couches ferromagnétiques ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ ) sont séparées par un puits quantique non magnétique ( $\text{AlAs}/\text{GaAs}/\text{AlAs}$ ). Dans un premier temps je discuterai des différents mécanismes de transport pertinents puis je montrerai que l'origine de la magnétorésistance tunnel dans ces structures peut être attribuée à une accumulation de spins dans le puits quantique de GaAs. Je discuterai ensuite des conditions de détection électrique de spins injectés dans le puits quantique liées au temps de vie du spin dans le puits et à la résistance des barrières tunnel d'AlAs.

## **5.1 Propriétés de doubles jonctions tunnel magnétiques** **$\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{GaAs}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$**

### **5.1.1 Structure des échantillons étudiés**

La structure des échantillons étudiés est représentée sur la figure 5.1 (page 116). Les deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  sont séparées par un puits quantique  $\text{AlAs}/\text{GaAs}/\text{AlAs}$ . Ces doubles jonctions tunnel ont été élaborées par épitaxie par jets moléculaires par B. Lépine dans les mêmes conditions que la croissance des couches minces (voir § 3.1.1, page 41).

L'épaisseur nominale des deux barrières d'AlAs est de 17Å et la largeur des puits étudiés est de 3.1, 5.0, 6.2 ou 9.3 nm. La figure 5.1 représente une photographie de microscopie électronique en transmission pour une double jonction tunnel dont le puits a une épaisseur de 6.2 nm.

A l'instar des jonctions simples, nous avons effectué une analyse par spectroscopie Auger afin de s'assurer de l'absence de manganèse dans le puits de GaAs. La figure 5.2 représente le profil Auger des éléments Mn, Ga et Al des doubles jonctions où la largeur du puits est de 3.1 nm (puits le plus étroit) et 9.3 nm (puits le plus large). Ces analyses montrent, dans la limite de résolution du dispositif de mesure ( $\sim 10^{19}\text{cm}^{-3}$ ) et de la longueur caractéristique d'extraction des électrons<sup>1</sup> (1 à 2 nm), la disparition de tout signal de manganèse dans les puits.

### **5.1.2 Magnétorésistance tunnel à 4K**

Les échantillons ont été lithographiés selon la même procédé que pour les simples jonctions tunnel. Nous avons vérifié par des mesures d'aimantation que

<sup>1</sup>Les effets de la longueur d'extraction des électrons peuvent être vus sur la figure 5.2 où la deuxième interface paraît moins abrupte.

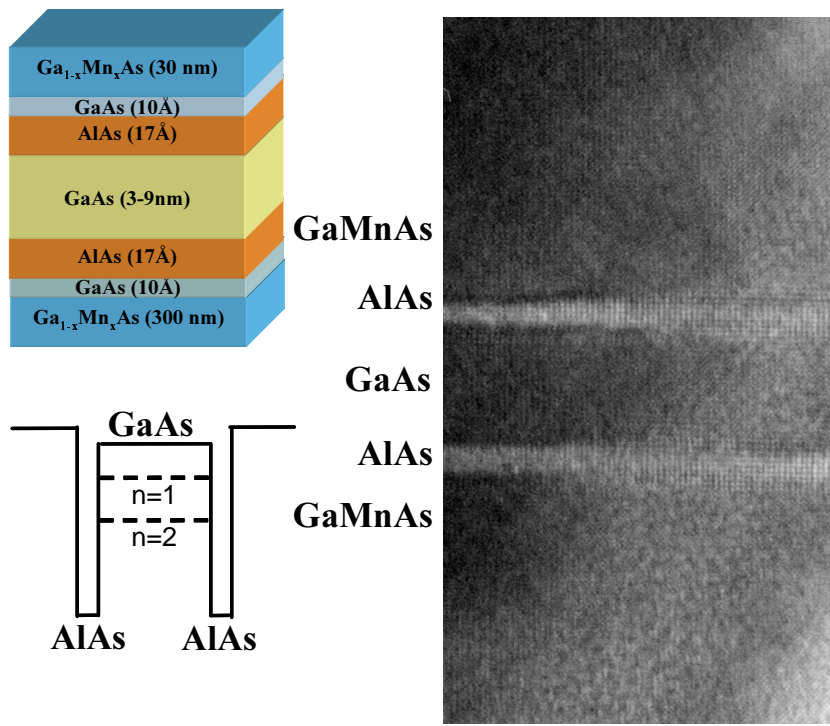


FIG. 5.1 – Structure et profil de la bande de valence des échantillons étudiés. Les électrodes de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  sont séparées par un puits quantique  $\text{AlAs}/\text{GaAs}/\text{AlAs}$ . La largeur des puits varie de 3.1 nm à 9.3nm. Cliché de microscopie électronique en transmission haute résolution d'un puits quantique de 6.2nm réalisé par Jean-Luc Maurice.

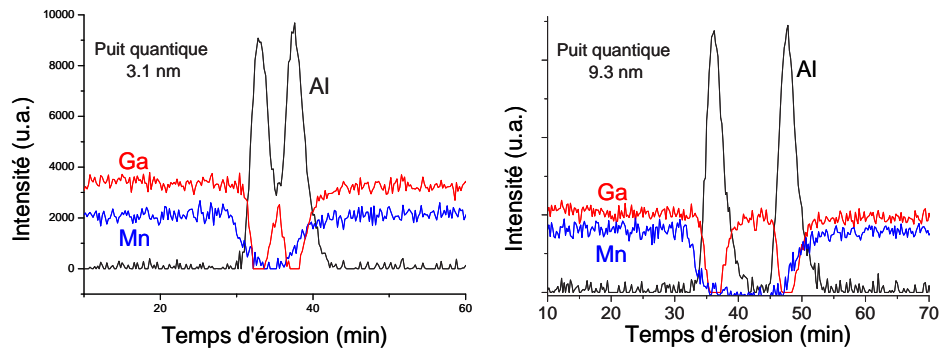


FIG. 5.2 – Variation du signal Auger des éléments Mn, Ga et Al pour les doubles jonctions contenant un puits de 3.1 nm et 9.3 nm.

les couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  étaient découplées et qu'il n'y avait pas de phase secondaire de MnAs.

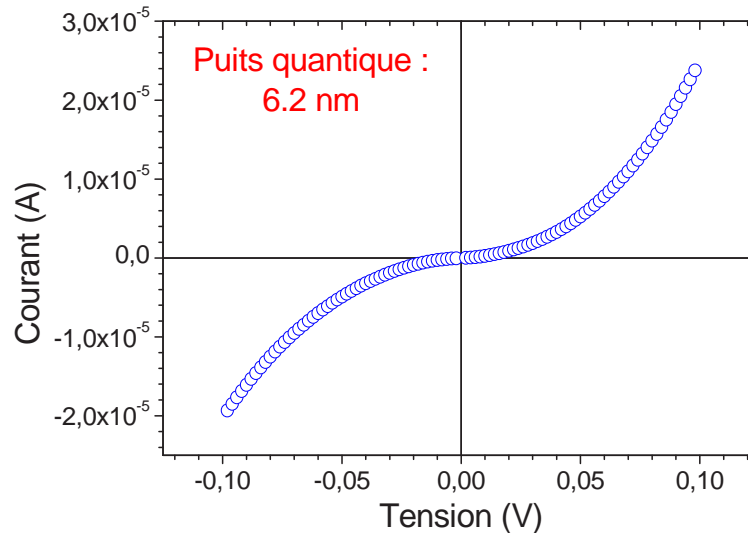


FIG. 5.3 – Variation du courant tunnel en fonction de la tension à 4.2K sans champ magnétique pour un puits de 6.2nm.

La figure 5.3 représente la variation non linéaire du courant en fonction de la tension qui peut être caractéristique d'un transport tunnel [26]. La figure 5.4 (page 118) représente les courbes de magnétorésistance obtenues à 4K et 1mV, en appliquant le champ magnétique selon [100] (conditions d'expérience identiques à celles de la simple jonction tunnel) pour quatre échantillons particuliers.

### 5.1.3 Mécanismes de transport : transport tunnel cohérent et transport tunnel séquentiel

Les mécanismes de transport dans de telles structures ont été très étudiés dans le cas où les électrodes sont non magnétiques et largement explicités dans le cas particulier des diodes tunnel résonnantes<sup>2</sup> [32]. Les principaux modes de conduction dans ces structures sont :

1. transport tunnel cohérent à travers un état discret ou non,
2. transport tunnel séquentiel.

<sup>2</sup>Plusieurs ouvrages sont consacrés aux mécanismes de transport dans des doubles jonctions tunnel [33, 70]. On peut aussi se référer à l'article de M. Büttiker [28]

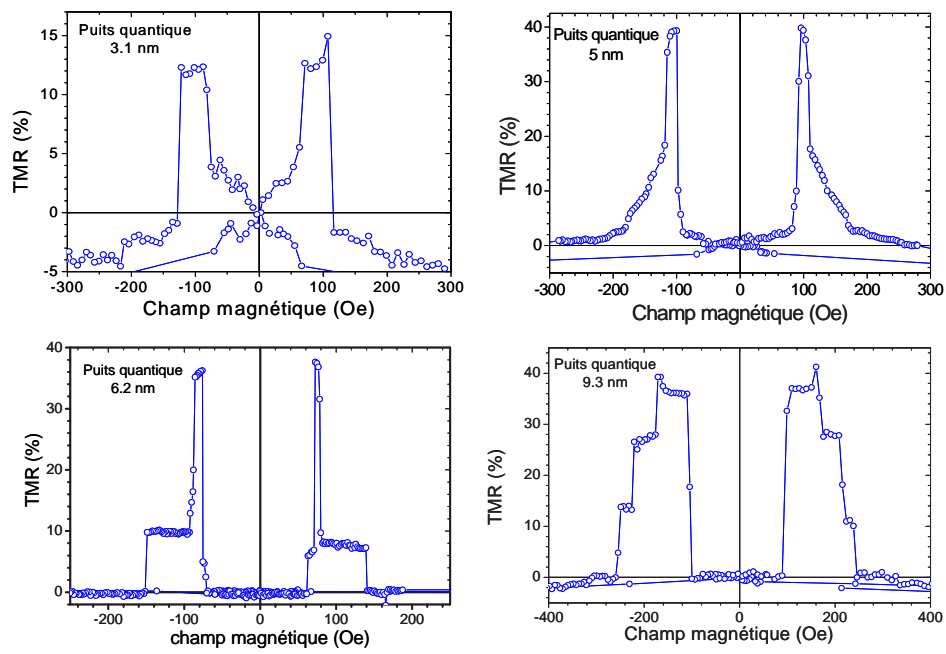


FIG. 5.4 – Variation de la résistance en fonction du champ magnétique à 4K et à 1mV pour les puits quantiques de 3.1 nm, 5 nm, 6.2 nm et 9.3 nm.

Le transport tunnel cohérent peut être un transport tunnel à travers la tricouche I/N/I considérée comme une unique barrière tunnel ou peut être un transport tunnel sur les niveaux discret du puits quantique.

### a) Transport tunnel direct

La résistance tunnel étant exponentiellement dépendante de l'épaisseur de la barrière tunnel, on s'attend à une forte augmentation de la résistance tunnel. Or, les résistances de la simple jonction tunnel (une barrière d'AlAs) et de la double jonction tunnel (AlAs/GaAs/AlAs) sont du même ordre de grandeur ( $0.1 \Omega \cdot \text{cm}^2$  et  $10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}^2$ ) pour les puits de 3.1 nm, 5 nm et 6.2 nm. On peut donc exclure ce mécanisme de transport.

Par contre, la résistance de la double jonction tunnel avec le puits de 9.3nm est très supérieure (de trois ordres de grandeur) à la résistance de la jonction simple. Pour cet échantillon on ne peut donc pas exclure totalement le transport tunnel direct bien que la TMR soit attendue très faible pour de telles épaisseurs de barrières (voir figure 5.5b).

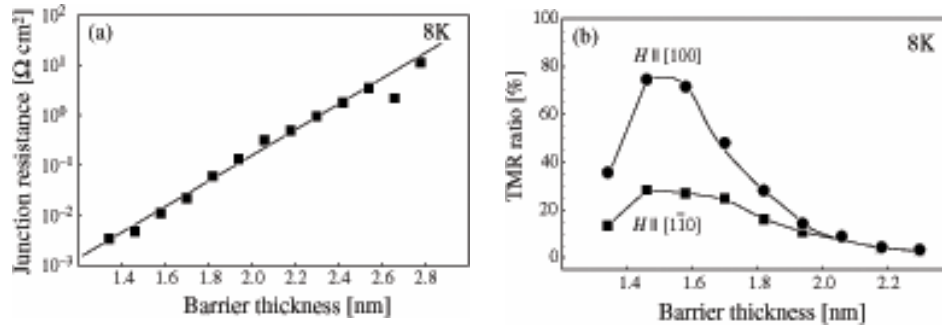


FIG. 5.5 – Variation de la résistance (Fig. 5.5a) et de la TMR (Fig. 5.5b) en fonction de l'épaisseur de la barrière tunnel. D'après Tanaka *et al.* [238].

### b) Effet tunnel résonnant ??

Même s'il s'avère plus délicat d'observer un effet tunnel résonnant pour un transport de trous, la structure de ces doubles jonctions tunnel aurait dû permettre l'observation d'un effet tunnel résonnant [153]. Pour autant la variation monotone de la magnéto-résistance et de la conductance (figure 5.6) avec la tension ne révèlent pas de telles propriétés.

L'absence d'effet résonnant dans nos structures peut avoir plusieurs origines :

- l'élaboration à froid ( $\sim 230^\circ\text{C}$ ),
- des processus tunnel inélastiques (diffusion du manganèse dans la barrière),
- l'absence de couches d'accumulation entre l'électrode et la barrière tunnel,
- désordre entraînant la formation d'une bande d'impuretés dans le puits (annexe A)

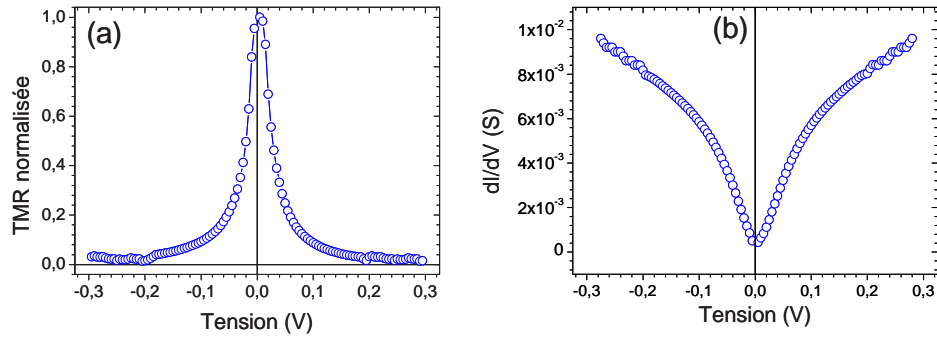


FIG. 5.6 – Variation de la magnétorésistance (Fig. 5.6a) et de la conductance (Fig. 5.6b) en fonction de la tension à 4K.

i) L'élaboration des structures à relativement basse température ( $\sim 230^\circ\text{C}$ ) introduit des rugosités supplémentaires et par conséquent des diffusions aux interfaces et un élargissement (inhomogène) des niveaux susceptibles de montrer une résonance. Ohno *et al.* [171] ont observé un effet résonnant dans une structure voisine mais réalisée à chaud où seule une électrode de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est utilisée. Par contre Tanaka *et al.* [96] n'observent pas d'effets résonnants significatifs sur des doubles jonctions élaborées à froid. L'élaboration à basse température semble donc rédhitoire pour l'observation de tunnel résonnant.

ii) Dans les diodes tunnel résonnantes, des couches d'accumulation (quelques nanomètres) faiblement ou non dopées sont insérées généralement entre l'électrode et la barrière tunnel afin d'éviter une diffusion des dopants dans les barrières tunnel [98]. Dans notre cas, la profondeur de diffusion du manganèse étant estimée à 10 à 15Å (analyses Auger, § 4.2, p. 84), il est possible qu'une faible concentration de Mn dans les barrières tunnel limite les processus résonnants. L'insertion de ces couches d'accumulation introduit aussi une transition 3D-2D à l'interface avec la barrière tunnel et permet ainsi de favoriser l'existence d'un niveau discret propice à l'observation d'une résonance.

### c) Transport tunnel cohérent résonnant ou séquentiel

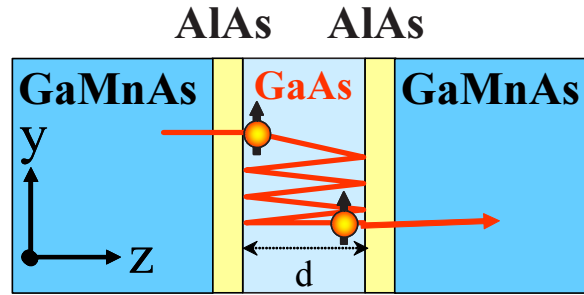
Le transport tunnel dans ce type de structure est cohérent résonnant si le temps de vie des porteurs dans le puits quantique ( $\tau_N$ ) est inférieur au temps de cohérence de la fonction d'onde d'espace ( $\tau_\Phi$ ). Inversement le transport tunnel est séquentiel si le temps de vie des porteurs dans le puits est supérieur à ce temps de cohérence. Il peut être élastique (propice à l'observation d'une conductance différentielle négative) ou inélastique (diffusion du vecteur d'onde parallèle,  $k_{//}$ ).

### Temps de vie des porteurs

Le temps de vie des porteurs ( $\tau_N$ ) est le temps que passent les porteurs dans le puits. Ce temps de vie peut s'exprimer selon la relation [259] :

$$\tau_N \cong \frac{\hbar}{\Gamma} = \frac{2d}{v_Z \mathbf{T}} \cong \frac{\pi \hbar}{\epsilon_{cin} \mathbf{T}} \quad (5.1)$$

où  $d$  est la largeur du puits,  $v_Z$  est la vitesse des porteurs,  $\mathbf{T}$  est le coefficient de transmission des barrières tunnel (supposé identique pour les deux barrières),  $\epsilon_{cin}$  est l'énergie cinétique des trous et  $\Gamma$  est l'élargissement intrinsèque du niveau [24].



**$N=1/\mathbf{T}$  réflexions sur les barrières**  
 **$\mathbf{T}$  : Coefficient de transmission**

FIG. 5.7 – Dans un schéma balistique simplifié, les trous sont injectés dans le puits quantique et subissent  $1/\mathbf{T}$  réflexions avant d'être transmis vers la seconde électrode de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .  $\mathbf{T}$  est le coefficient de transmission des barrières tunnel.

Les trous sont injectés dans le puits et subissent  $1/\mathbf{T}$  réflexions sur la barrière avant d'être transmis vers la deuxième couche de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . L'énergie cinétique des trous pour le premier niveau dans le puits est de l'ordre de 100meV (dans le cas des trous légers) [98, 261, 171]. Le coefficient de transmission est déterminé à partir des travaux de Tanaka [238]. La figure 5.5a représente la variation de la résistance tunnel en fonction de l'épaisseur de la barrière tunnel. Le coefficient de transmission<sup>3</sup> selon l'expression

$$\mathbf{T} \cong \exp\left(\frac{-2\sqrt{2m^*}\phi t_B}{\hbar}\right) \quad (5.2)$$

où  $\phi$  est la hauteur de barrière,  $t_B$  l'épaisseur de la barrière tunnel et  $m^*$  la masse effective des porteurs dans la barrière, se situe dans la gamme de  $10^{-4}$  à  $10^{-3}$  pour une barrière d'AlAs de 17Å.

<sup>3</sup>Le coefficient de transmission est déterminé à partir de la pente du logarithme de la résistance en fonction de l'épaisseur d'AlAs (figure 5.5a).



Ainsi, d'après l'équation 5.1, le temps de vie des porteurs dans les puits est estimé dans la gamme de la centaine de picosecondes ( $\tau_N \simeq 100\text{ps}$ ).

### Temps de cohérence

Le temps de cohérence est lié aux diffusions inélastiques des porteurs par des phonons, impuretés ou autres rugosités [70]. En général, ce temps n'excède guère quelques picosecondes à 4K ( $\tau_\Phi \simeq 1\text{ps}$ ) [41, 45] mais peut s'avérer beaucoup plus long dans le cas où la fonction d'onde est localisée dans les trois directions (levée de dégénérescence totale).

**Conclusion :** Nous nous plaçons donc dans un mode de transport séquentiel valable dans le cas où  $\tau_N \gg \tau_\Phi$ , ou dans le cas d'un transport à travers une bande d'impuretés. Des trous sont alors injectés de la première électrode de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  dans le puits quantique avant d'être transmis vers la seconde électrode de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ .

## 5.2 Détection électrique d'une accumulation de spins dans un puits quantique de GaAs

Dans la configuration magnétique antiparallèle (AP) avant l'équilibre électrique, on injecte de la première électrode vers le puits une majorité de spins "up" ( $\uparrow$ ) alors qu'une majorité de spins "down" ( $\downarrow$ ) est transmise vers la seconde électrode de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Ceci crée un déséquilibre entre les deux populations de spins et par conséquent une accumulation de spins dans le puits de GaAs au détriment d'un courant polarisé. Dans la configuration magnétique parallèle (P), le même flux de spin "up" (resp. "down") est transmis de la première électrode vers le puits et du puits vers la seconde électrode. Il n'y a pas d'effets d'accumulation et le courant de spins subsiste selon la polarisation des électrodes (figure 5.8).

Cette accumulation de spins dans la configuration AP est associée à une levée de dégénérescence des potentiels électrochimiques  $\mu_\uparrow$  et  $\mu_\downarrow$  (figure 5.9). Dans une image à deux canaux de spins (spins  $\uparrow$  et  $\downarrow$ ), les conductances sont différentes pour les trous de spins  $\uparrow$  et  $\downarrow$ . Dans la configuration P, il apparaît deux faibles résistances en série (spins  $\uparrow$ ), en parallèle avec deux fortes résistances (spins  $\downarrow$ ). Dans la configuration AP, au contraire chaque résistance faible est associée à une résistance forte (figure 5.9).

La condition pour observer de la TMR est la non relaxation de la levée de dégénérescence des potentiels électrochimiques, c'est à dire un taux de "spin flips"

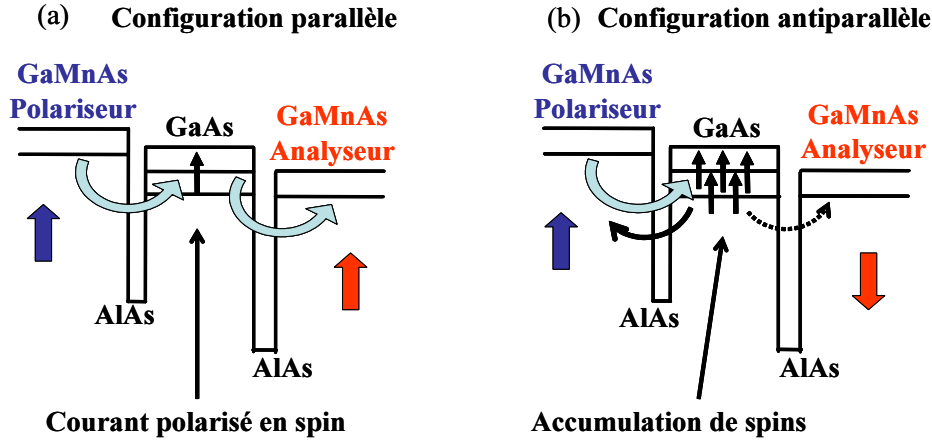


FIG. 5.8 – Dans la configuration magnétique AP (Fig. 5.8b) le nombre de spins  $\uparrow$  (resp.  $\downarrow$ ) injecté dans le puits quantique est supérieur (resp. inférieur) au nombre de spin  $\downarrow$  (resp.  $\uparrow$ ) transmis vers la seconde électrode. Cela crée une accumulation de spins dans le puits quantique. Dans la configuration P, le nombre de spins  $\uparrow$  injectés est identique au nombre de spins  $\uparrow$  transmis et l'accumulation disparaît.

inférieur au courant de spins injectés :

$$\frac{\Delta\mu}{k_B T} \frac{n^{2D}}{\tau_{sf}} \ll \frac{j}{e} \quad (5.3)$$

où  $\Delta\mu$  est la différence des potentiels électrochimiques dans le puits quantique,  $\tau_{sf}$  est le temps de vie du spin et  $n^{2D}$  est la densité du gaz bidimensionnel (qui peut être thermiquement activé). La condition pour que la levée de dégénérescence se maintienne proche de la tension appliquée est [103] :

$$r_T \ll \frac{l_{sf}^2}{n^{2D} e v} \Leftrightarrow j \gg \frac{e^2 V n^{2D}}{k_b T \tau_{sf}} \quad (5.4)$$

où  $r_T$  est la résistance tunnel et  $l_{sf} = \sqrt{k_B T v \tau_{sf}} / e$  est la longueur de diffusion de spin,  $v$  est la mobilité des porteurs et  $V$  la tension appliquée.

Les densités de courant mesurées étant de l'ordre de  $10^2 \text{ A.m}^{-2}$ , la densité de trous dans le puits quantique étant estimée de l'ordre  $10^{15} \text{ m}^{-2}$ , l'inégalité 5.4 est satisfaite si on considère que  $\tau_{sf}$  dans le puits est de  $\sim 10^{-10} \text{ s}$  à  $4\text{K}$ <sup>4</sup>.

Jusqu'à présent l'effet d'accumulation de spins avait été détecté uniquement dans des structures métalliques [109, 80]. L'obtention de magnétorésistance sur ces doubles jonctions tunnel constitue en ce sens la première mesure électrique d'une accumulation de spins dans une structure semiconductrice [150].

<sup>4</sup>Une détermination plus rigoureuse sera explicitée dans la deuxième partie de ce chapitre.

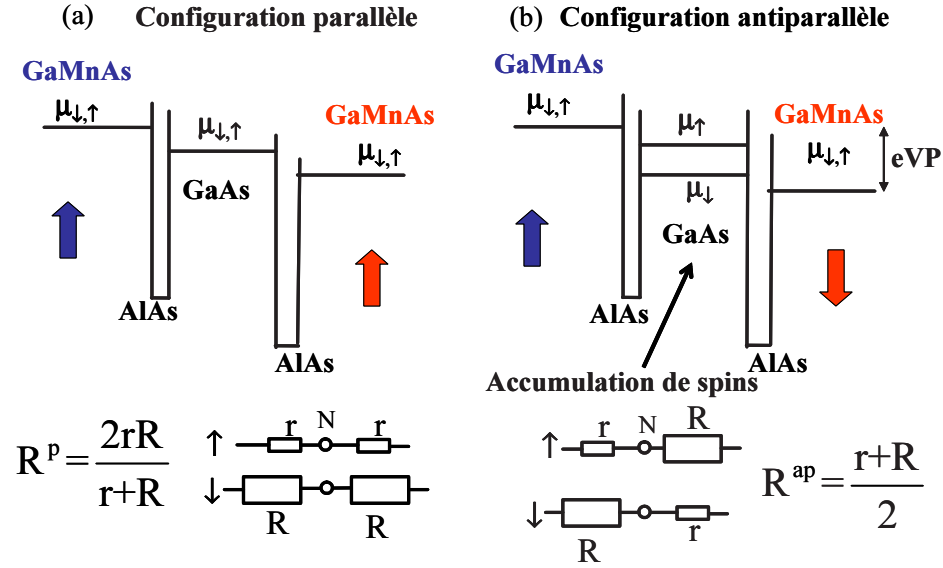


FIG. 5.9 – Profil des potentiels électrochimiques dans les configurations magnétiques parallèle et antiparallèle. Les potentiels électrochimiques  $\mu_{\uparrow}$  et  $\mu_{\downarrow}$  dans le GaAs sont non dégénérés dans la configuration AP par effet d'accumulation de spins.

La levée de dégénérescence des potentiels électrochimiques  $\mu_{\uparrow}$  et  $\mu_{\downarrow}$  est proportionnelle à :

$$\Delta\mu = \mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow} = 2P \times r_T \times eJ \quad (5.5)$$

où  $P$  est la polarisation des électrodes,  $r_T$  est la résistance tunnel et  $J$  la densité de courant. Avec  $P \cong 40\%$ ,  $r_T$  de l'ordre de  $10^{-5} \Omega m^2$  et  $J$  de l'ordre de  $10^2 A.m^{-2}$  on obtient une levée de dégénérescence ( $\Delta\mu$ ) des potentiels électrochimiques de l'ordre du meV. On peut noter que le  $\Delta\mu$  dans notre structure est trois ordres de grandeur plus élevé que le  $\Delta\mu$  mesuré dans des structures entièrement métalliques (Co/Cu/Co ou Py/Cu/Py par exemple) [109, 80]. Récemment il a été prédit [236] qu'en insérant des barrières tunnel entre le métal ferromagnétique et le métal non magnétique on augmentait  $\Delta\mu$ . Jedema *et al.* [110] ont mesuré  $\Delta\mu$  de l'ordre de  $10 \mu eV$  en insérant des barrière d' $Al_2O_3$  entre le cobalt et l'aluminium. La forte augmentation de  $\Delta\mu$  dans le cas des semiconducteurs ( $\sim meV$  dans nos expérience) est due aux caractéristiques des semiconducteurs (fortes résistivités, grandes longueurs de diffusion de spin et faible densité d'états). On peut noter que des levées de dégénérescence élevées sont attendues dans des systèmes à dimensions réduites (faible densité d'états) comme dans des boites quantiques semiconductrices ou bien dans des agrégats métalliques.

### Taux de magnétorésistance des simples et doubles jonctions tunnel

Le taux de magnétorésistance tunnel est de l'ordre de 15% pour le puits de 3.1nm et de l'ordre de 40% pour les trois autres puits (figure 5.4, page 118). Pour une structure F/I/N/I/F, la magnétorésistance s'écrit  $\frac{P_1 P_2}{1 - P_1 P_2}$  (Fert-Jaffrès [73]) dans le cas où les porteurs sont injectés dans la couche non magnétique, puis transmis séquentiellement vers la seconde couche magnétique ( $P_1$  et  $P_2$  représentent la polarisation des électrodes). Par conséquent, à électrodes magnétiques identiques, la TMR d'une double jonction tunnel est attendue deux fois plus faible que celle d'une simple jonction ( $TMR = \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2}$ , Jullière [114]).

Il peut donc paraître surprenant d'obtenir environ la même valeur de TMR pour la simple et les doubles jonctions tunnel. Cependant, il a été montré par Tanaka *et al.* [238] que l'amplitude de la TMR d'une jonction  $Ga_{1-x}Mn_xAs/AlAs/Ga_{1-x}Mn_xAs$  dépendait fortement de l'épaisseur de la barrière tunnel (figure 5.5, page 119). Les valeurs de résistance des puits quantiques (5 nm et 6.2 nm) sont légèrement inférieures à la résistance de la simple jonction tunnel. Par conséquent les barrières d'AlAs doivent être plus fines que l'épaisseur nominale, ce qui peut expliquer une magnétorésistance plus élevée.

## 5.3 Conditions de détection électrique d'un courant polarisé en spin injecté dans un puits quantique

### 5.3.1 Temps de vie du spin des trous dans un puits quantique de type p : action de la température

Selon une vision balistique simple, la magnétorésistance tunnel de doubles jonctions tunnel est observée si le temps de vie du spin des trous ( $\tau_{sf}$ ) est supérieur à leur temps de vie dans le puits ( $\tau_N$ ). Soit,

$$\tau_{sf} \gg \tau_N \quad (5.6)$$

Le temps de vie des trous, c'est à dire le temps que passe le trou dans le puits, a été estimé de l'ordre de la centaine de picosecondes (équation 5.1, page 121). Par conséquent, le temps de vie du spin des trous dans ces puits quantiques est supérieur à 100ps<sup>5</sup>.

Ce temps de vie du spin des trous ( $\tau_{sf}$ ) dans un puits quantique apparaît considérablement plus long que dans le massif où il a été mesuré inférieur à la picoseconde [100]. Cette forte augmentation de  $\tau_{sf}$  par rapport aux matériaux massifs est attendue pour des systèmes à dimension réduite et notamment pour les puits quantiques [250, 68]. En effet, dans des structures semiconductrices bidimensionnelles

<sup>5</sup>Le temps de vie du spin des trous dans des puits quantique de GaAs a été déterminé, par des mesures optiques, à plusieurs centaines de picosecondes. Voir par exemple les travaux de Roussignol ou de Baylac [202, 11].

les mécanismes de relaxation de spin sont fortement atténués par l'apparition de niveaux quantifiés et par la modification de la structure de bande électronique. L'allongement du temps de vie du spin dans ces puits est la conséquence de la levée de dégénérescence des trous lourds et trous légers dans le puits par effet de confinement unidimensionnel (niveaux trous lourds, trous légers) ou tridimensionnel (localisation).

**Variation de la magnétorésistance tunnel avec la température : mise en évidence de la relaxation de spin des porteurs**

La figure 5.10 représente la variation de l'aimantation et de la magnétorésistance en fonction de la température pour la simple jonction tunnel et pour un puits de 6.2nm.

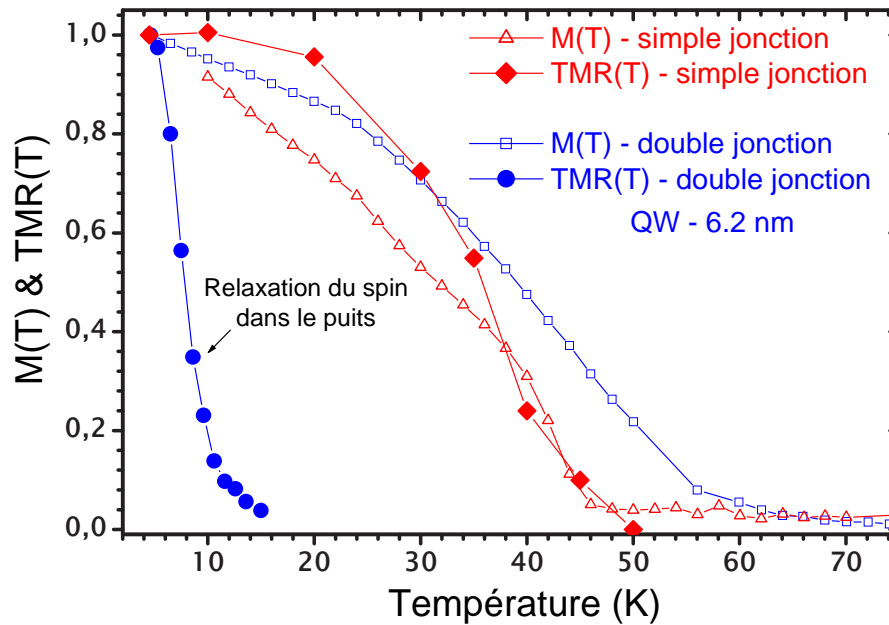


FIG. 5.10 – Variation de l'aimantation et de la TMR en fonction de la température pour la simple et la double jonction tunnel.

Contrairement à la simple jonction où la TMR s'annule au voisinage de la température de Curie (ce qui traduit une perte de la polarisation des électrodes), la TMR dans la double jonction s'annule à ~20K bien avant la Tc (60K). Ce comportement en température peut avoir deux origines :

- L'ouverture d'un canal thermique non polarisé en spin (§ 4.4.2, p. 104)
- Variation des temps caractéristiques ( $\tau_{sf}$  et  $\tau_N$ ) avec la température

a) Transport thermiquement activé ?

On a vu dans le chapitre précédent qu'un transport thermiquement activé pouvait induire une forte diminution de la magnétorésistance. Dans un modèle à deux résistances en parallèle (résistance tunnel et résistance thermique) la magnétorésistance mesurée dépend de la magnétorésistance tunnel, de la magnétorésistance thermique et des résistances associées. La figure 5.11 représente un récapitulatif des variations observées de magnétorésistance et de résistance en fonction de la température pour divers échantillons étudiés.

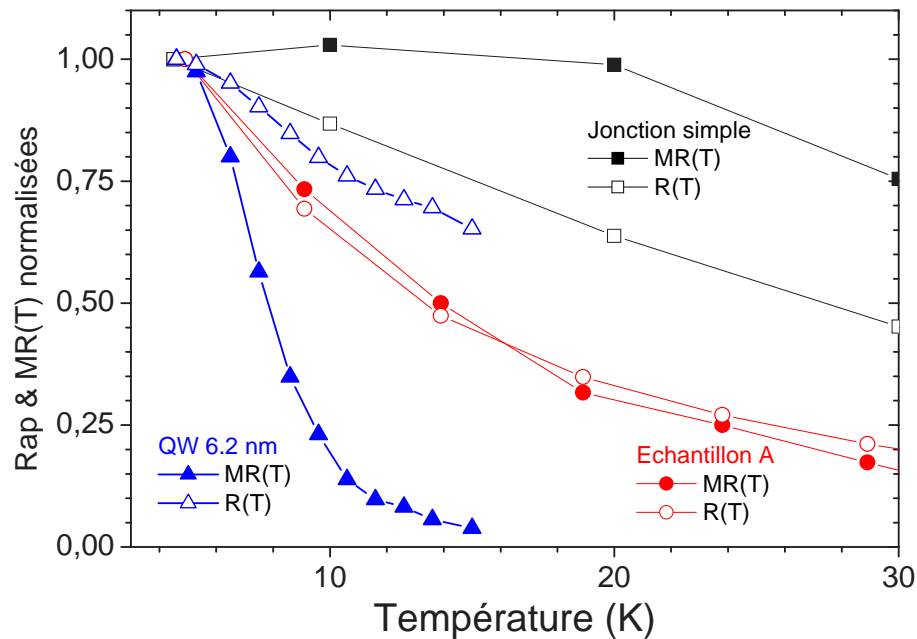


FIG. 5.11 – Variation de la résistance et de la magnétorésistance en fonction de la température pour la jonction simple, l'échantillon A (50Å de GaAs entre l'électrode et la barrière tunnel) et pour le puits quantique de 6.2 nm.

Rappelons que pour la jonction simple ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/ \text{GaAs}(10\text{\AA})/ \text{AlAs}/ \text{GaAs}(10\text{\AA})/ \text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ ), la variation de la TMR et de la résistance ne sont pas corrélées. Pour l'échantillon A ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/ \text{GaAs}(50\text{\AA}) / \text{AlAs} / \text{GaAs}(50\text{\AA})/ \text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ ) la MR diminue fortement et possède la même dépendance en température que la résistance traduisant un court-circuit thermique.

Dans le cas du puits quantique ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/ \text{GaAs}(10\text{\AA})/ \text{QW} / \text{GaAs}(10\text{\AA})/ \text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ ), la magnétorésistance diminue plus rapidement que la résistance ce qui implique que le temps de vie du spin doit diminuer rapidement avec la température.

**b) Diminution de  $\tau_{sf}$  et  $\tau_N$  avec la température ?**

La figure 5.12a représente la variation de la magnétorésistance tunnel, de la résistance dans l'état parallèle et antiparallèle en fonction de la température.

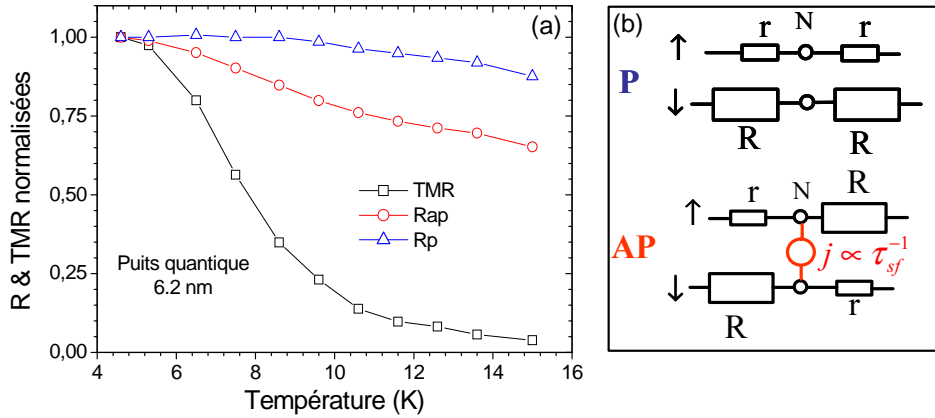


FIG. 5.12 – Variation de la TMR et de résistance dans l'état parallèle et antiparallèle en fonction de la température pour le puits de 6.2 nm (Fig 5.12a). Modèle à deux canaux de spin pour la configuration magnétique parallèle et antiparallèle (Fig 5.12b).

L'invariance en température de la résistance parallèle signifie que le temps de vie des porteurs dans le puits ( $\tau_N$ ) est constant. Par contre, dans l'état antiparallèle, la diminution de la résistance est induite par la relaxation de spin ( $\tau_{sf}$ ) dans le puits quantique qui peut être symbolisée par un court-circuit dans le puits (Fig. 5.12b).

Il a été démontré théoriquement [69] et expérimentalement [11] que le temps de vie du spin des trous diminue fortement avec la température par activation thermique des différents mécanismes de relaxation de spin. En conséquence, la condition  $\tau_{sf} \gg \tau_N$  (equation 5.6) ne doit plus être satisfaite à partir d'une certaine température ( $T < T_c$ ).

*La forte diminution de la TMR de double jonctions tunnel apparaît donc comme une véritable signature de l'injection de trous polarisés dans le puits.*

**c) Dépendance en température de la TMR**

La figure 5.13 représentent la variation de la TMR et de l'aimantation avec la température pour les puits quantiques de 3.1, 6.2 et 9.3nm en échelle linéaire et logarithmique.

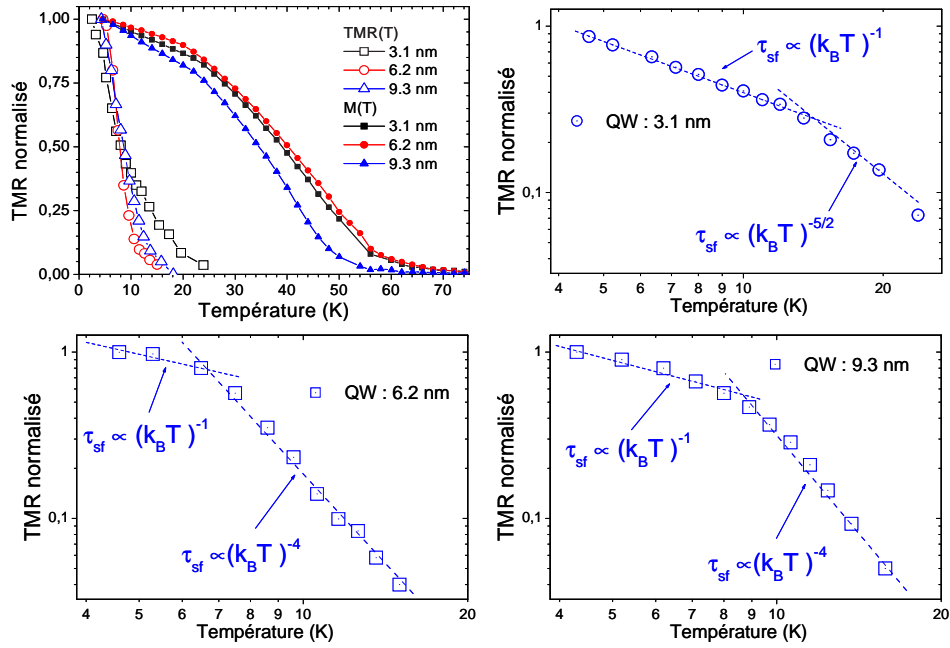


FIG. 5.13 – Variation de la TMR et de l'aimantation en fonction de la température en échelle linéaire et variation de la TMR en échelle log-log pour les doubles jonctions tunnel où la largeur des puits est de 3.1, 6.2 et 9.3 nm .

La diminution rapide de la TMR entre 4K et 20K pour les doubles jonctions doit être attribuée à la variation en température du rapport  $\frac{\tau_{sf}}{\tau_N}$ . Le temps de vie des porteurs,  $\tau_N$  dépend du coefficient de transmission  $T$  et de l'énergie du premier niveau quantifié dans le puits mais dépend a priori très peu de la température. On doit donc principalement attribuer la diminution de la TMR à la variation du temps de vie de spin des trous dans le puits quantique.

Pour ces structures, la magnéto-résistance peut s'exprimer en fonction de  $\tau_{sf}$  et de  $\tau_N$  selon <sup>6</sup> :

$$TMR \cong \frac{P^2}{1 - P^2} \times \frac{1}{1 + \frac{\langle \tau_N \rangle_{pa}}{\tau_{sf}}} \quad (5.7)$$

où  $TMR_0$  est la magnéto-résistance tunnel maximale obtenue en négligeant la relaxation de spins dans le puits quantique de GaAs.

La dépendance en température de la TMR du puits de 3.1 nm diffère quelque peu de celle des puits de 6.2 nm et 9.3 nm qui manifestent le même comportement (figure 5.13). La magnéto-résistance tunnel du puits de 3.1 nm décroît avec

<sup>6</sup>Le détail des calculs est donné en annexe (§ 5.7, page 143).



la température en  $T^{-1}$  puis en  $T^{-5/2}$  tandis que pour les puits de 6.2 nm et 9.3 nm la TMR décroît plutôt en  $T^{-4}$  (figure 5.13).

### 5.3.2 Influence de la résistance des barrières tunnel sur la magnéto-résistance tunnel

Une autre façon de faire varier la magnéto-résistance, par l'intermédiaire du rapport  $\frac{\tau_N}{\tau_{sf}}$  est de modifier le temps de vie des porteurs dans le puits,  $\tau_N$ , en jouant sur la transparence des barrière **T**. Il existe en ce sens une équivalence étroite entre la condition reliée à  $\tau_N$  ( $\tau_{sf} \gg \tau_N$ ) et celle reliée à la résistance tunnel ( $r_T$  ou **T**). Cette condition correspond à une limite supérieure pour  $r_T$  au delà de laquelle la magnéto-résistance doit disparaître [73].

Pour le voir simplement, il suffit d'explicitier la résistance tunnel suivant la formule de Landauer :

$$r_T \propto \frac{h}{e^2} \frac{1}{n^{2D}} \frac{k_B T}{\epsilon_n} \quad (5.8)$$

où  $\epsilon_n$  est introduit par les effets de quantification. La longueur de diffusion de spin s'écrit selon :

$$l_{sf} = \sqrt{\frac{k_B T v \tau_{sf}}{e}} \quad (5.9)$$

Il est facile de montrer la relation d'équivalence

$$\tau_N \ll \tau_{sf} \Leftrightarrow r_T \ll \frac{l_{sf}^2}{n^{2D} e v} \quad (5.10)$$

qui a déjà été démontrée précédemment par des arguments d'accumulation et de relaxation de spins.

La figure 5.14 représente les différentes valeurs de TMR en fonction de la résistance tunnel de la jonction à basse température (4K). Les différentes valeurs de résistances (dus à la rugosité des barrières tunnel) ont été obtenues sur plusieurs jonctions tunnel de la même plaquette.

Selon l'équation 5.10, lorsque la résistance augmente la condition sur le temps de vie et le temps de vie du spin des trous est de moins en moins satisfaite et la magnéto-résistance chute en conséquence.

Il est important de noter que cette condition haute est une condition supplémentaire à celle introduite par Rashba [199] et Fert-Jaffrès [73] (condition basse) permettant de remédier au problème de désaccord d'impédance entre un métal et un semiconducteur en régime diffusif. Dans notre cas, cette condition introduite par Rashba et Fert n'est pas pertinente (ne limite pas l'efficacité d'injection), l'injection s'opérant dans le régime balistique où l'épaisseur du puits est de l'ordre de grandeur (voir inférieure) au libre parcours moyen des porteurs.

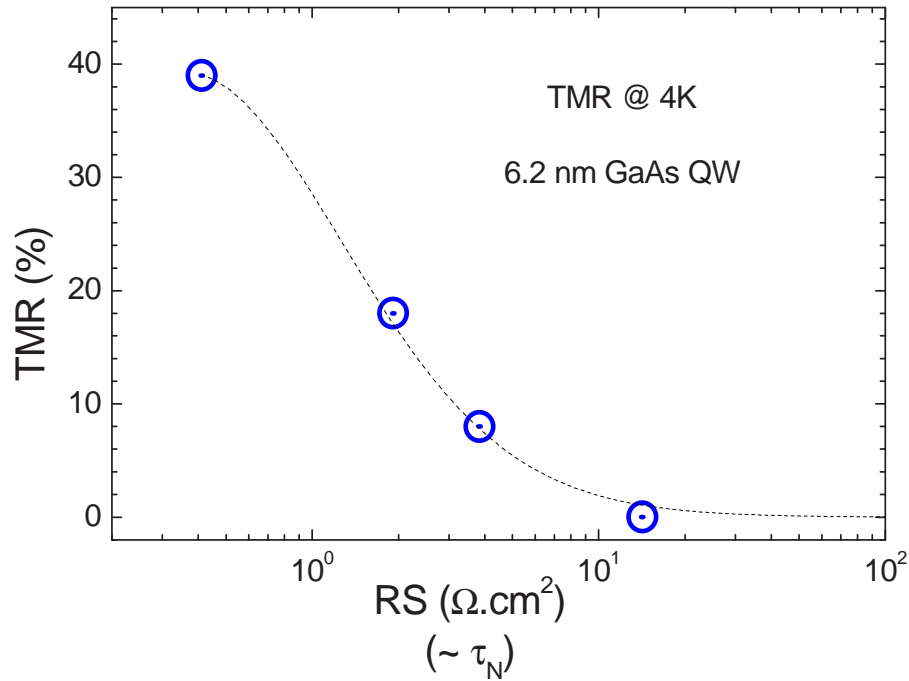


FIG. 5.14 – Variation de la TMR (à basse température) en fonction de la résistance de la double jonction tunnel pour le puits de 6.2 nm.

### 5.3.3 Discussion sur les mécanismes de relaxation de spin des trous dans les puits

Les principaux mécanismes de relaxation de spins connus sont les mécanismes D'yakonov-Perel (DP), Bir-Aronov-Pikus (BAP), Elliot-Yafet (EY) et l'interaction entre le spin électronique et le spin nucléaire<sup>7</sup>. Le mécanisme DP [60] est lié à un spin-splitting anisotrope de la bande de conduction. L'absence de symétrie d'inversion dans les semiconducteurs III-V et le couplage spin-orbite sont responsables de cette levée de dégénérescence de la bande de conduction. Il apparaît un champ magnétique local dans l'espace des  $\vec{k}$  entraînant une relaxation du spin global par décohérence. Le mécanisme de relaxation EY [65, 265] est dû aux diffusions avec renversement de spin (impuretés, phonons, rugosité). Le mécanisme BAP [13] est quant à lui lié aux interactions d'échange entre les électrons et les trous.

Le temps de relaxation de spin est proportionnel (respectivement inversement proportionnel) au temps de relaxation du moment pour les mécanismes EY et

<sup>7</sup>Ces différents mécanismes ont été étudiés dans l'arséniure de gallium de type p. Voir par exemple l'article de G. Fishman et G. Lampel [77].

BAP (respectivement DP) [77]. Cette propriété explique que les mécanismes de relaxation de spin prépondérants dépendent très clairement de la qualité des puits en terme de mobilité [69]. Ceci rend assez difficile la comparaison entre plusieurs échantillons de source différentes.

Les différentes études menées jusqu'alors ont majoritairement concernées les électrons. Elles indiquent que les mécanismes de relaxation prédominants dans les puits sont les interactions d'échange entre les électrons et les trous (mécanisme BAP) et le mécanisme D'Yakonov-Perel. A basse température le mécanisme BAP est plus efficace puis à partir d'une température donnée (qui dépend, entre autre de la qualité et de la largeur du puits [68, 69]) le mécanisme DP devient dominant [255]. Dans le GaAs massif la transition entre les mécanismes BAP et DP s'effectue à  $\sim 100\text{K}$  [274]. Par contre pour des systèmes bidimensionnels, le mécanisme DP est plus efficace (effets de confinement plus marqués). Pour des puits quantique de  $55\text{\AA}$  le mécanisme DP domine dès  $7\text{K}$  [255]. Contrairement au cas des électrons, le mécanisme EY (diffusions par des impuretés ou des phonons) s'avère être un des mécanismes prépondérants pour les trous [68, 69, 4].

Cependant, la dépendance en température des ces différents mécanismes de relaxation ont une signature différente en température. Par exemple, dans le cas des électrons, pour les semiconducteurs III-V massifs, le mécanisme DP varie en  $T^{-3}$ , le mécanisme BAP varie en  $T^{-1/2}$  et le mécanisme EY en  $T^{-2}$  [77]. Dans le cas des puits quantiques, la quantification dans une direction implique des modifications de la dépendance en température des différents mécanismes. Le mécanisme EY est désormais proportionnel à  $T^{-1}\tau_p$  et le mécanisme DP à  $T^{-1}\tau_p^{-1}$  [59] où  $\tau_p$  est le temps de relaxation du moment. Le cas des trous est moins clair. Il a été montré toutefois théoriquement que la dépendance en température du mécanisme DP dans des puits était plus rapide que  $T^{-1}$  [68, 69] et qu'une forte variation ( $\sim T^{-4}$  est attendue dans le cas EY [202].

Dans nos expériences la différence de comportement en température des puits de  $3\text{ nm}$  ( $T^{-1}$  puis  $T^{-5/2}$ ) et  $6-9\text{ nm}$  ( $T^{-1}$  puis  $T^{-4}$ ) doit peut être imputée aux mécanismes de relaxation de spin DP puis EY. Toutefois nous ne pouvons pas y apporter une preuve formelle. Il est à noter que dans notre cas, les porteurs sont unipolaires dans le puits (on ne crée pas d'excitation de type exciton), le mécanisme BAP est à exclure.

Par contre si les trous sont injectés sur des niveaux d'impuretés, la relaxation de spin est due aux diffusions inélastiques (phonon). La dépendance en température de  $\tau_{sf}$  est alors exponentielle.

## 5.4 Conclusion

En s'appuyant sur les temps caractéristiques (temps de vie des porteurs et temps de cohérence des fonctions d'onde d'espace) et sur la valeur de la résistance tunnel, on a montré que le mécanisme de transport électrique à travers la structure est un transport tunnel séquentiel. La forte magnétorésistance tunnel observée est attribuée à une accumulation de spins dans le puits quantique de GaAs, c'est à dire à une levée de dégénérescence des potentiels électrochimiques  $\mu_{\uparrow}$  et  $\mu_{\downarrow}$ . Cette levée de dégénérescence ( $\Delta\mu = \mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}$ ) de l'ordre du meV, trois ordres de grandeur plus élevée que pour les métaux, est attribuée aux caractéristiques des semiconducteurs (plus forte résistivité et longueur de diffusion de spin, faible densité d'états).

L'obtention d'un signal magnétorésistif peut être aussi expliquée par les temps caractéristiques à considérer lors du transport électrique. En effet, on peut observer une magnétorésistance à condition que le temps de vie du spin dans le puits quantique ( $\tau_{sf}$ ) soit supérieur au temps de vie des trous ( $\tau_N$ ). Le temps de vie du spin dans ces puits quantiques est de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes.

Les mesures de la variation de la magnétorésistance en fonction de la température ont permis de mettre en évidence l'activité thermique des mécanismes de relaxation de spin dans le puits quantique de GaAs sans toutefois pouvoir créditer un mécanisme particulier.

On a montré au cours de ce chapitre que la variation de la magnétorésistance tunnel dépendait du rapport  $\frac{\tau_N}{\tau_{sf}}$ . Le temps de vie du spin ( $\tau_{sf}$ ) dépend principalement de la température alors que le temps de vie des porteurs dépend quant à lui de la résistance tunnel.

L'ensemble des conditions d'observation de la magnétorésistance est synthétisé sur la figure 5.15 où est reportée la TMR expérimentale (correspondant au puits de 6.2 nm, ○) et la TMR modélisée à partir de  $MR = \frac{MR_{max}}{1 + \frac{\tau_N}{\tau_{sf}}}$  (code couleur) en fonction des paramètres pertinents : température et résistance.

Lorsque le rapport  $\frac{\tau_{sf}}{\tau_N}$  est très supérieur à 1 (basse température et résistance tunnel élevée), la magnétorésistance est maximale, dans le cas contraire  $\frac{\tau_{sf}}{\tau_N} \ll 1$  la magnétorésistance tend vers zero. Lorsque la température augmente, à  $r_T$  fixe (résistance tunnel), le temps de vie du spin diminue et on observe une réduction de la TMR. De même lorsque la résistance augmente (à température fixe), la TMR diminue. Ainsi les études de la variation de la TMR en fonction de la température et de la résistance tunnel ont permis d'établir les conditions nécessaires afin de détecter une injection de spins dans un semiconducteur (Annexe B).

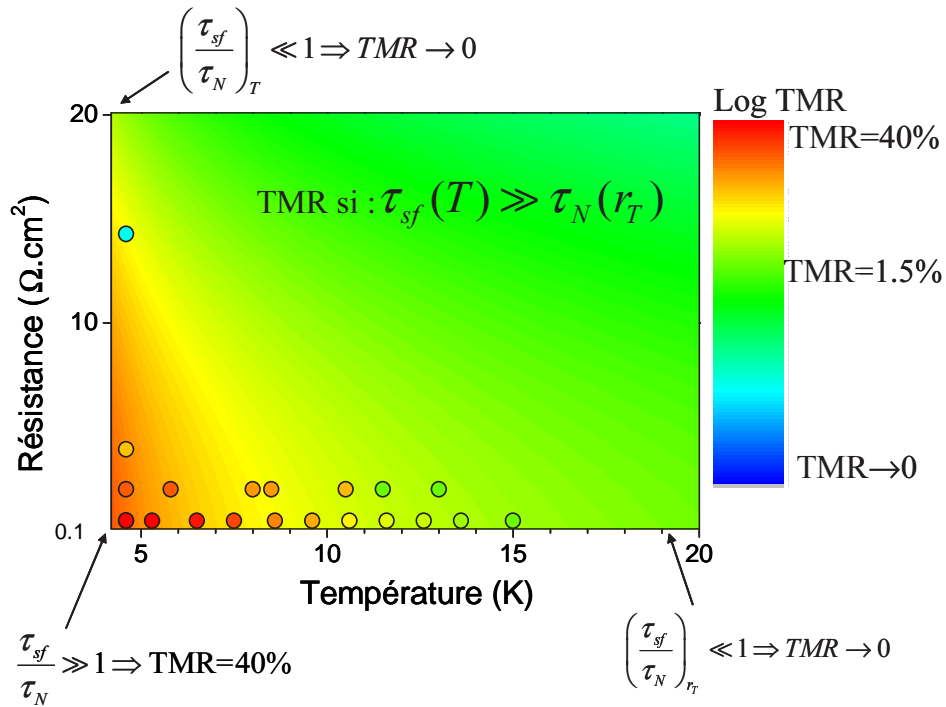


FIG. 5.15 – Variation du taux de magnétorésistance tunnel en fonction de la température et la résistance tunnel.

### Temps de vie du spin : mesures électriques et mesures optiques

En conclusion nous pouvons affirmer que cette étude a permis de montrer que la magnétorésistance tunnel pouvait constituer une sonde pour déterminer le temps de vie du spin dans des nanostructures semiconductrices à l'instar des mesures optiques pompes-sondes. L'analogie entre les deux techniques peut d'ailleurs être étendue si l'on considère que la polarisation en optique s'écrit [11] :

$$P = \frac{P(0)}{1 + \frac{\tau_r}{\tau_{sf}}} \Leftrightarrow TMR \cong \frac{TMR_0}{1 + \frac{\tau_N}{\tau_{sf}}} \quad (5.11)$$

où  $\tau_r$  représente le temps de recombinaison électron-trou qui constitue également le temps de vie des porteurs dans le puits ( $\tau_N$  pour les expériences électriques).

Ainsi la condition pour détecter une polarisation optique, dans les expériences de type pompe-sonde, est liée au rapport entre le temps de vie du spin et le temps de recombinaison électron-trou. Dans nos expériences, l'observation d'un signal électrique polarisé est liée cette fois-ci au rapport entre le temps de vie du spin et le temps de séjour des porteurs.

L'observation de la forte diminution de la TMR avec la température est com-

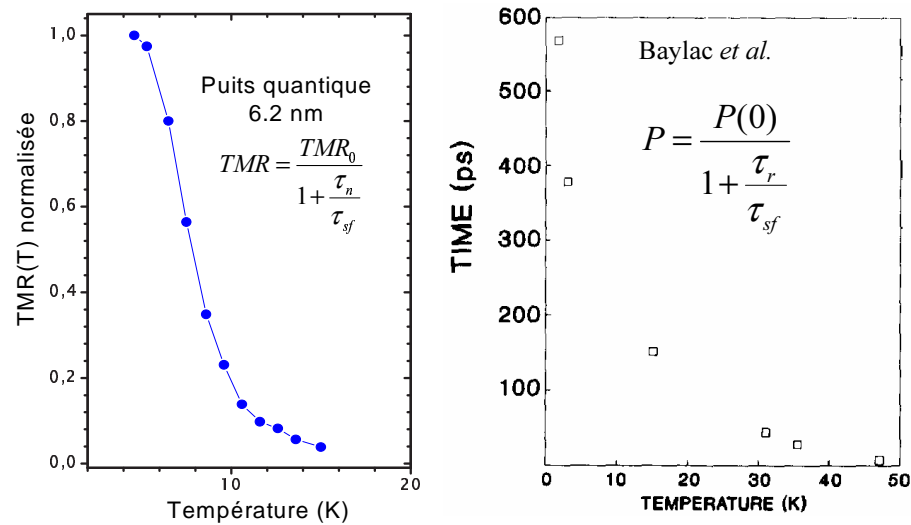


FIG. 5.16 – Variation de la TMR en fonction de la température pour le puits de 6.2 nm et variation de la polarisation avec la température (d’après Baylac *et al.* [11]).

parable à la forte variation du temps de vie du spin mesurée par les expériences optiques de Baylac *et al.* [11]. Cet exemple (figure 5.16) montre que les deux approches expérimentales peuvent permettre de remonter à la valeur du temps de vie du spin et à sa dépendance en température.

Pour nos puits quantiques, la magnétorésistance devient négligeable lorsque la température est proche de 20K. L’amplitude de magnétorésistance étant dépendante du rapport  $\frac{\tau_{sf}}{\tau_N}$ , on pourra obtenir une magnétorésistance significative à plus haute température en diminuant  $\tau_N$ . Le temps de vie des trous étant dépendant de la nature de la barrière, on pourra diminuer  $\tau_N$  en réduisant l’épaisseur et/ou la hauteur des barrières tunnel en remplaçant par exemple les barrières d’AlAs par  $Al_{1-x}Ga_xAs$  (travail en cours).

Le temps de vie du spin des trous dans nos puits quantique est proche de la nanoseconde. Il a été montré pour des électrons que le temps de vie du spin est augmenté d’un ordre de grandeur dans des puits quantiques de GaAs(110) [177]. Il serait intéressant d’élaborer ces doubles jonctions tunnel selon une direction différentes de [100] afin d’étudier l’influence de l’orientation cristallographique sur le temps de vie du spin des trous.

Une autre perspective à court terme de cette étude est une mesure directe de l’accumulation de spin. Cette levée de dégénérescence des potentiels électrochimiques peut être effectuée par des mesures électriques ou optiques. Des prises de contact électrique supplémentaires sur le puits quantiques permettraient de me-

sur l'accumulation de spins [109, 80] selon une géométrie semblable à celle développée dans le cas des multicouches métalliques. L'autre méthode pourrait consister en des mesures optiques.

## 5.5 Annexe A : canaux de conduction dans les puits de GaAs

Les résultats présentés dans ce chapitre portent sur l'injection d'un courant polarisé en spin dans un puits quantique de GaAs. La croissance du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  est effectuée à basse température ( $230^\circ\text{C}$ ) afin d'une part d'incorporer une quantité de manganèse importante (jusqu'à 6%) et d'autre part d'obtenir un matériau homogène, c'est-à-dire sans phase secondaire (voir chapitre 3). Les couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et par conséquent le puits de GaAs, ne peuvent pas être exposées à des températures plus élevées que ce soit pendant ou après la croissance. Ainsi ces structures et notamment le GaAs présentent de nombreux défauts.

Le principal défaut (ou du moins le plus connu) du GaAs basse température (BT) est l'antisite d'arsenic [17, 231]. Les niveaux d'énergie correspondant à ces antisites d'arsenic sont situés au milieu de la bande interdite du GaAs. Les études effectuées sur le GaAs BT ont montré qu'il existe d'autres défauts dont les niveaux d'énergie sont situés en haut de la bande de valence. Ces défauts, de types accepteurs, sont fréquemment attribués aux lacunes de gallium. La figure 5.17 représente la position énergétique des antisites d'arsenic et des lacunes de gallium [79].

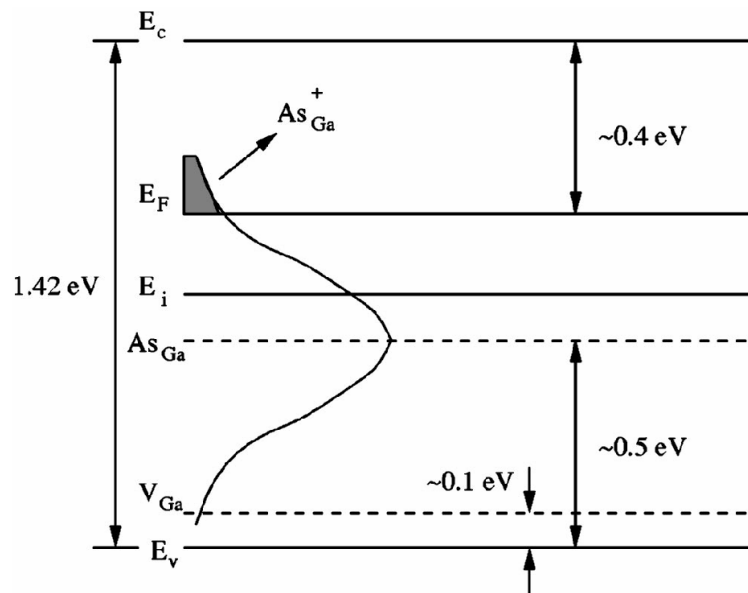


FIG. 5.17 – Position énergétique des antisites d'arsenic et des lacunes de gallium. D'après Lodha *et al.* [141].

Quelle est alors la conséquence de la position de ces niveaux d'énergie sur l'injection de spins dans les puits de GaAs. Les trous polarisés en spin sont-ils



injectés sur les niveaux discrets du puits de GaAs ou sur les états électroniques correspondant aux défauts accepteurs (lacune de gallium par exemple).

La figure 5.18 représente le profil de la bande de valence des doubles jonctions tunnel ainsi que la position des niveaux d'énergie correspondant aux défauts et niveaux discrets des trous.

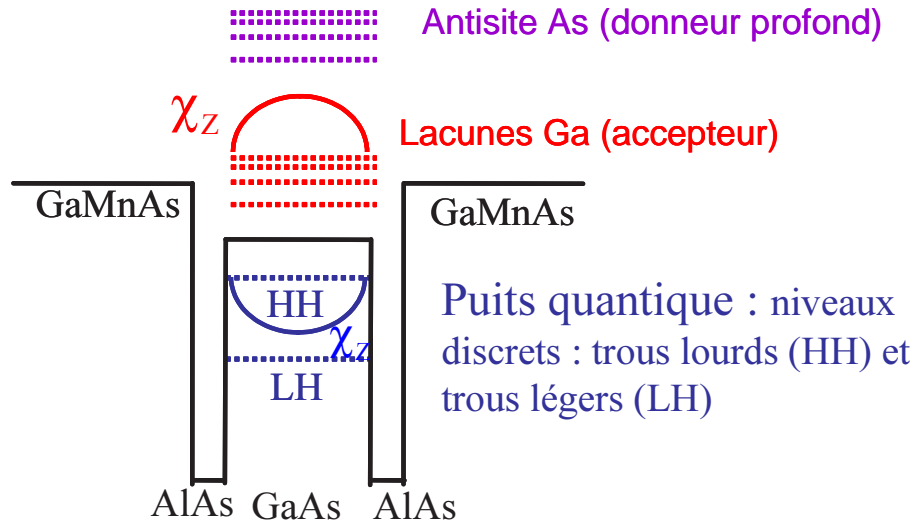


FIG. 5.18 – Profil de potentiel de la double jonction tunnel. Les niveaux quantifiés (trous lourds et légers) et les états électronique correspondant aux antisites d'arsenic et aux lacunes de gallium sont représentés.

Selon que l'on injecte les spins sur les niveaux quantifiés du puits (trous lourds HH et trous légers LH) ou sur dans les impuretés (défauts accepteurs) il existe des similitudes et différences concernant l'analyse des résultats présentés au cours de ce chapitre.

**Similitudes :**

L'injection de spins sur les niveaux HH, LH ou sur les niveaux d'impuretés ne modifie pas les résultats concernant le transport séquentiel et l'accumulation de spins, le temps de vie du spin des trous dans le puits de GaAs, et enfin l'expression de la TMR en fonction de  $\tau_{sf}$  et  $\tau_N$ .

**i) Transport séquentiel et accumulation de spins**

En comparant les temps caractéristiques (temps de séjour et temps de cohérence) et les niveaux de résistance (simple et double jonctions tunnel) le transport électrique à travers les doubles jonctions tunnel est un transport tunnel séquentiel. Que les trous soient injectés sur les niveaux discrets du puits ou sur les impuretés,

le temps de séjours des trous dans le puits s'écrit :

$$\tau_N = \frac{d}{v_Z \mathbf{T}} = \frac{\pi \hbar}{\epsilon_{\text{cin}} \mathbf{T}} \quad (5.12)$$

Le coefficient de transmission  $\mathbf{T}$  étant proportionnel à la hauteur de barrière tunnel et à l'épaisseur de cette barrière est identique dans les deux cas. L'énergie cinétique est de l'ordre de 100 meV pour les niveaux discrets ou les impuretés. Par conséquent le temps de séjour est du même ordre de grandeur pour les deux canaux de conduction. Dans le cas d'un niveau quantifié ou d'une bande d'impuretés la magnétorésistance tunnel peut être toujours liée à une accumulation de spins dans le puits de GaAs. La levée de dégénérescence, étant proportionnelle à la polarisation en spin des électrodes ferromagnétiques et à la tension appliquée, est de l'ordre du meV pour les deux canaux de conduction.

#### ii) Temps de vie du spin des trous dans le puits de GaAs

La condition pour obtenir un signal magnétorésistif est la conservation du spin dans le GaAs. Par conséquent le temps de vie du spin doit être supérieur au temps de séjour des trous dans le puits. Ce temps de séjour étant du même ordre de grandeur pour les deux canaux de conduction, le temps de vie du spin des trous, à basse température, est supérieur à la centaine de picosecondes.

#### iii) Expression de la TMR

La TMR s'exprime en fonction de la polarisation des électrodes et deux temps caractéristiques  $\tau_{sf}$  et  $\tau_N$  selon :

$$TMR \cong \frac{P^2}{1 - P^2} \times \frac{1}{1 + \frac{\langle \tau_N \rangle_{pa}}{\tau_{sf}}} \quad (5.13)$$

Les détails des calculs permettant d'établir cette expression sont donnés dans l'annexe C (page 143). Cette expression est établie dans le cas général où un puits quantique est inséré entre deux électrodes ferromagnétique. Quels que soit les canaux de conduction, la TMR s'exprime selon cette relation.

#### Différences :

Si les trous sont injectés sur les niveaux discrets ou sur les impuretés, la principale différence est la dépendance en température de  $\tau_{sf}$  car on ne peut pas invoquer les mêmes mécanismes de relaxation de spins pour les deux canaux de conduction.

Si l'on injecte sur les niveaux discrets (HH, LH) les mécanismes de relaxations de spins sont du type D'Yakonov-Pérel et/ou Elliot-Yafet (voir paragraphe 5.3.3, page 131). La variation du temps de vie du spin des trous avec la température suit alors une loi polynomiale approchée.

Par contre si les trous sont injectés sur des niveaux d'impuretés, la relaxation de spin est due aux diffusions inélastiques (phonon). La dépendance en température de  $\tau_{sf}$  est alors exponentielle.

Le temps de vie du spin de l'ordre de la centaine de picosecondes, que ce soit pour les niveaux discrets ou les niveaux d'impureté est très supérieur au temps de vie du spin dans le GaAs massif (quelques dizaines de femtosecondes).

L'allongement du temps de vie dans le cas des niveaux discrets est induit par la levée de dégénérescence des niveaux HH et LH. Il y a alors une diminution de  $k_{//}$  et  $\mathbf{J}_z$  de vient un état propre (voir paragraphe 5.3.1, page 125). Dans le cas des états localisés (niveaux d'impureté)  $\mathbf{J}$  devient un bon nombre quantique. Par conséquent les mécanismes de relaxation de spin sont bloqués et le temps de vie du spin est allongé.

A l'heure actuelle et à la vue des résultats obtenus au cours de cette thèse, on ne peut pas différencier entre les deux scénarii.

## 5.6 Annexe B : conditions d'injection et de détection - état de l'art expérimental

Les conditions d'injection de spins dans un semiconducteurs ont été établies dans un premier temps dans des articles théoriques [214, 199]. Dans un second temps les conditions d'injection et de détection électrique ont été établies [73]. Il est aujourd'hui admis que la présence d'une résistance d'interface conservant le spin, entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur, est nécessaire afin d'effectuer un transport polarisé en spin dans des hétérostructures hybrides.

La figure 5.19 résume les conditions nécessaires sur les résistance d'interface afin d'injecter et de détecter des spins. L'observation d'un signal magnétorésistif est la signature d'une injection de spins dans un semiconducteur, de la conservation et de la détection de ces spins dans le semiconducteur.

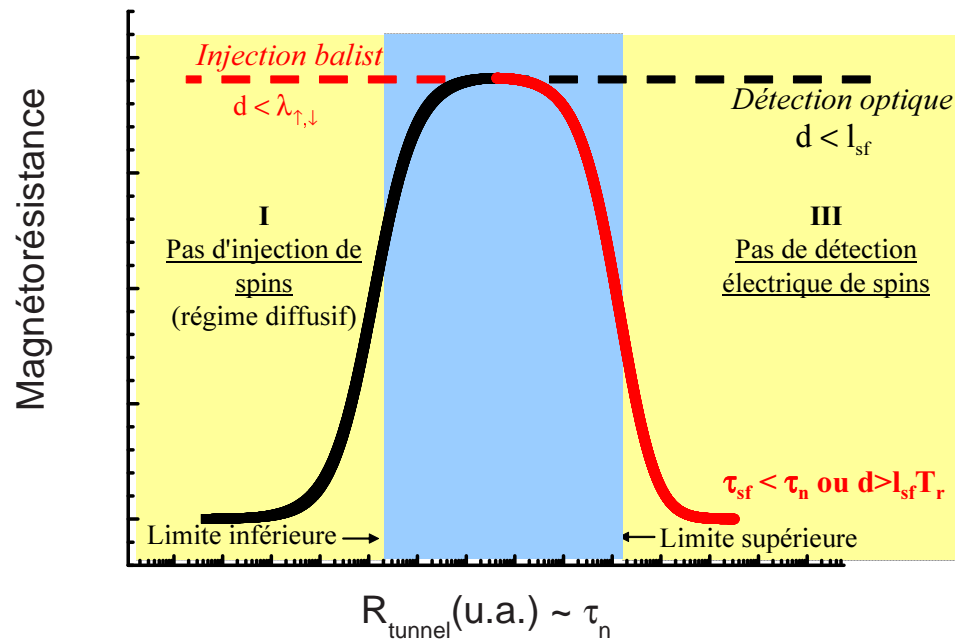


FIG. 5.19 – Variation de la magnétorésistance en fonction des résistances d'interface. D'après Fert-Jaffrès [73]

Il existe une plage de résistance (région II de la figure 5.19) où il est possible d'obtenir de la magnétorésistance. La valeur seuil inférieure traduit les conditions d'injection (problème d'adaptation des impédances) et la valeur seuil supérieure traduit le temps fini du temps de vie du spin dans le semiconducteur.

Si on se situe dans la région I, il n'est pas possible d'injecter des spins dans un régime diffusif. Cependant si l'on se place dans le cas d'un transport balistique (la

distance sur laquelle le spin est injecté est inférieure au libre parcours moyen du spin), il est alors possible d'injecter des spins. C'est le cas des structures étudiées dans cette thèse.

Si on se situe dans la région III (cas des résistances d'interface trop élevées), le temps de vie du spin est inférieur au temps de séjour, il n'y a pas d'effets magnéto-résistifs. Cette valeur seuil supérieur a été démontrée expérimentalement au cours de cette thèse. Par contre si l'on détecte l'injection de spins par des expériences optiques (cas des spin-LEDs par exemple) il n'y a pas de valeur seuil supérieur. La distance sur laquelle on injecte des spins doit être cependant inférieure à la longueur de diffusion de spin.

## 5.7 Annexe C : jonctions tunnel F/I/N/I/F : expression de la magnétorésistance tunnel

L'expression de la magnétorésistance tunnel de doubles jonctions tunnel F/I/N/I/F, en prenant en compte la relaxation de spin dans le matériau non magnétique, est l'objet de cette annexe.

Le courant électrique dans la configuration magnétique parallèle et antiparallèle est proportionnel à :

$$j_p \simeq \left[ \frac{eV/2}{1-P} + \frac{eV/2}{1+P} \right] \frac{1}{r_b} \text{ et } j_{ap} \simeq \left[ \frac{(eV - \Delta\mu)/2}{1-P} + \frac{(eV + \Delta\mu)/2}{1+P} \right] \frac{1}{r_b} \quad (5.14)$$

où  $\Delta\mu$  est la levée de dégénérescence des potentiels chimiques,  $P$  la polarisation des électrodes,  $r_b$  est la résistance des barrières tunnel et  $eV$  la tension appliquée aux bornes de la jonction. On peut alors exprimer la magnétorésistance en fonction de  $\Delta\mu$  et de  $P$

$$\text{TMR} = \frac{j_p - j_{ap}}{j_{ap}} = \frac{P \times \Delta\mu}{eV - P \times \Delta\mu} \quad (5.15)$$

Dans le cas où la relaxation de spin dans le semiconducteur n'est pas pris en compte, la levée de dégénérescence des potentiels chimiques est égale à :  $\Delta\mu = PeV$ . La TMR ( $\text{TMR}_0$ ) dans relaxation de spin s'écrit donc :

$$\text{TMR}_0 = \frac{P^2}{1 - P^2} \quad (5.16)$$

Lorsque l'on prend en compte la relaxation de spin,  $\Delta\mu$  dépend de  $\tau_{sf}$  (temps de relaxation du spin). Pour déterminer  $\Delta\mu$  on fait un bilan du nombre d'électrons injectés ( $N_{inj}^\uparrow$ ) et éjectés ( $N_j^\uparrow$ ) du puits quantique.

Dans la configuration magnétique antiparallèle, le nombre d'électrons "up" injectés est proportionnel à la densité d'états  $2D$ ,  $N_{DOS}^{2D}$ , multiplié par l'énergie  $(eV - \Delta\mu)/2$ . Un trou injecté dans le puits peut être assimilé à un transfert d'un électron vers l'électrode. La probabilité ( $\tau_\uparrow^{-1}$ ) qu'un électron soit transmis vers l'électrode est inversement proportionnelle au temps que passe l'électron dans le puits  $\tau^*$ , affectée par la polarisation de l'électrode ( $1+P$  car spins majoritaires). De même le taux de spins "up" éjectés est proportionnel à  $(eV - \Delta\mu)/2$  et la probabilité des spins éjectés est multiplié par le facteur  $1-P$  (spins minoritaires).

Si  $N_{sf}^{\uparrow\downarrow}$  est le nombre de spin flip dans le puits, on a  $N_{inj}^\uparrow = N_j^\uparrow + N_{sf}^{\uparrow\downarrow}$  qui s'écrit :

$$N_{DOS}^{2D} \left( \frac{eV - \Delta\mu}{2} \right) \frac{1+P}{\tau^*} = N_{DOS}^{2D} \left( \frac{eV + \Delta\mu}{2} \right) \frac{1-P}{\tau^*} + \frac{N_{DOS}^{2D} \Delta\mu}{\tau_{sf}} \quad (5.17)$$

La relation entre  $\Delta\mu$  et  $eV$  devient :

$$\Delta\mu = \frac{P}{1 + \frac{\tau^*}{\tau_{sf}}} eV \quad (5.18)$$

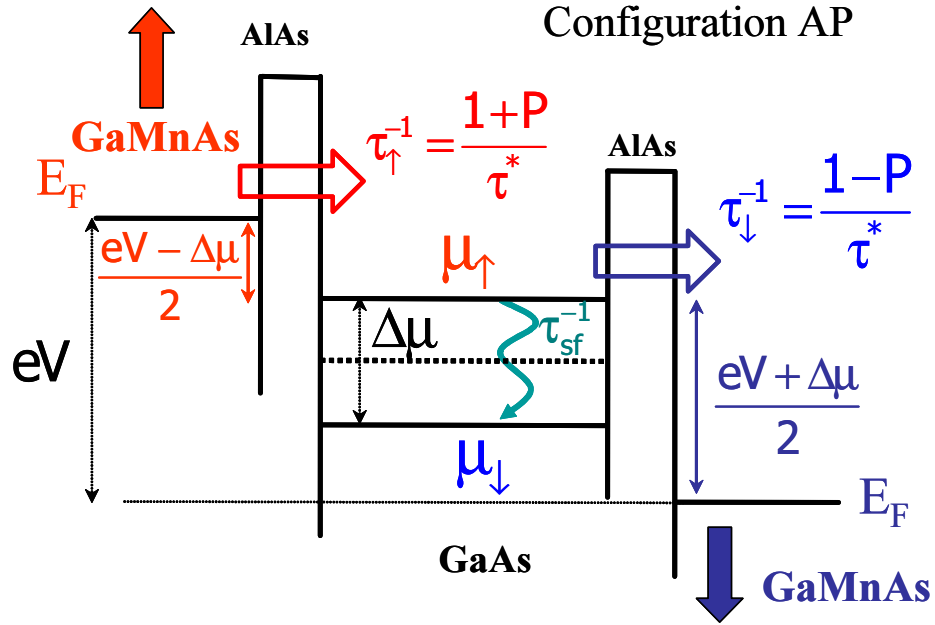


FIG. 5.20 – Profil des potentiels électrochimiques dans la configuration magnétique antiparallèle.

Avec cette relation et l'équation 5.15 on obtient :

$$\text{TMR} = \frac{P^2}{1 - P^2 + \frac{\tau^*}{\tau_{sf}}} = \frac{\text{TMR}_0}{1 + \frac{\tau^*}{(1-P^2)\tau_{sf}}} \quad (5.19)$$

Si on écrit  $\tau^*$  en fonction des temps caractéristiques des électrons de spins "up" et "down" et de la polarisation on a :

$$[\tau_{n\uparrow}]_p = \frac{\tau^*}{1+P} \text{ et } [\tau_{n\downarrow}]_p = \frac{\tau^*}{1-P} \quad (5.20)$$

et par conséquent on obtient :

$$\text{TMR} = \frac{\text{TMR}_0}{1 + \frac{(\tau_{n\uparrow} + \tau_{n\downarrow})_p}{2\tau_{sf}}} = \frac{\text{TMR}_0}{1 + \frac{\tau_N}{\tau_{sf}}} \quad (5.21)$$

avec  $\tau_N = \frac{(\tau_{n\uparrow} + \tau_{n\downarrow})_p}{2}$ .

La magnétorésistance tunnel peut être aussi déterminée à partir des expressions de  $\Delta R$  (différence des résistances entre la configuration magnétique parallèle et anti parallèle), et de  $R^{(P)}$ , établies dans les articles de Valet-Fert [251] et Fert-Jaffrès [73], pour des hétérostructures F/N/F. Les expressions ci-dessous correspondent aux équations 24 et 25 de l'article [73] :

$$\Delta R = \frac{2(\beta r_F + \gamma r_T)^2}{(r_T + r_F) + \frac{r_N}{2} \left[ 1 + \left( \frac{r_T}{r_N} \right)^2 \right] \frac{t_N}{l_{sf}^N}} \quad (5.22)$$

$$\begin{aligned} R^{(P)} &= 2(1 - \beta^2)r_F + r_N \frac{t_N}{l_{sf}^N} + 2(1 - \gamma^2)r_T \\ &+ 2 \frac{(\beta - \gamma)^2 r_F r_T + r_N (\beta^2 r_F + \gamma^2 r_T) \tanh\left(\frac{t_N}{2l_{sf}^N}\right)}{(r_F + r_T) \tanh\left(\frac{t_N}{2l_{sf}^N}\right)} \end{aligned} \quad (5.23)$$

Dans le cas de nos doubles jonctions tunnel, les résistances des matériaux magnétiques et non magnétiques ( $r_F$  et  $r_N$ ) sont inférieures à la résistance tunnel ( $r_T$ ). Par conséquent  $\Delta R$  et  $R^{(P)}$  peuvent s'écrire selon le relation :

$$\Delta R \cong \frac{2\gamma^2 r_T}{1 + \frac{1}{2} \frac{r_T}{r_N} \frac{t_N}{l_{sf}^N}} \quad (5.24)$$

$$R^{(P)} \cong 2(1 - \gamma^2)r_T \quad (5.25)$$

La magnétorésistance tunnel est alors égale à :

$$\text{TMR} = \frac{\Delta R}{R^{(P)}} \cong \frac{\gamma^2}{1 - \gamma^2} \times \frac{1}{1 + \frac{1}{2} \frac{r_T}{r_N} \frac{t_N}{l_{sf}^N}} \quad (5.26)$$

Le rapport  $\frac{\gamma^2}{1 - \gamma^2}$  est égal au taux de magnétorésistance ( $\text{TMR}_0$ ) dans le cas idéal où  $\tau_{sf}$  est infini.

La résistance s'écrit  $r_N = \rho_N l_{sf}$ , on obtient alors :

$$\text{TMR} \cong \text{TMR}_0 \times \frac{1}{1 + \frac{1}{2} \frac{r_T}{\rho_N} \frac{t_N}{l_{sf}^2}} \quad (5.27)$$

où  $\rho_N$  est la résistivité du puits et  $t_N$  est la largeur du puits. En explicitant la longueur de diffusion de spin  $l_{sf}^2 = \frac{2}{3} \frac{\epsilon_F v \tau_{sf}}{e}$ , la résistance tunnel à  $r_T = \frac{h}{e^2} \frac{1}{n^{2D} \Gamma}$  et la résistivité à  $\rho_N = \frac{1}{v n^{3D} e}$  et en remplaçant  $r_T$ ,  $\rho_N$  et  $l_{sf}^2$  par leur expression on obtient :

$$\text{TMR} \cong \text{TMR}_0 \times \frac{1}{1 + \frac{3}{4} \frac{h t_N n^{3D}}{n^{2D} \epsilon_F \tau_{sf} \Gamma}} \quad (5.28)$$



En explicitant  $n^{3D}$ ,  $n^{2D}$  et  $\epsilon_n$  on a :

$$\frac{n^{3D}}{n^{2D}} = \frac{2k_F}{3\pi} \text{ et } \frac{k_F}{\epsilon_n} = \frac{2}{V_F \hbar} \quad (5.29)$$

Le dénominateur de l'équation 5.28 peut s'écrire selon :

$$1 + \frac{\hbar t_N n^{3D}}{n^{2D} \epsilon_n \tau_{sf} \mathbf{T}} = 1 + \frac{t_N}{V_F \mathbf{T} \tau_{sf}} \quad (5.30)$$

Comme  $\tau_N = 2t_N / (v_F \mathbf{T})$  la magnétorésistance s'exprime donc en fonction de  $\tau_N$  et de  $\tau_{sf}$

$$TMR \cong TMR_0 \times \frac{1}{1 + \frac{\tau_N}{\tau_{sf}}} \quad (5.31)$$

## Chapitre 6

# Conclusions et perspectives

L'esprit libre et curieux de l'homme  
est ce qui a le plus de prix au monde.

*John Steinbeck*

L'aboutissement de ce travail de thèse est la démonstration d'une détection électrique de spins injectés dans un puits quantique.

Pour cela, nous avons préalablement caractérisé le semiconducteur ferromagnétique  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et étudié la polarisation en spin de ses porteurs. L'étude effectuée sur les couches minces de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  a permis de montrer l'influence de la concentration de porteurs et de manganèse sur les propriétés magnétiques et de transport. Cette étude a permis de mettre en évidence la corrélation entre ces propriétés, signature de l'originalité de ce matériau où le manganèse introduit à la fois le spin et les porteurs. L'effet des recuits a montré de plus l'influence des défauts sur les propriétés magnétiques et électroniques. L'anisotropie cubique du  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  et le mode de renversement de l'aimantation, par la formation de domaines magnétiques à  $90^\circ$ , ont été déterminés par des mesures magnéto-optiques.

L'étude des jonctions tunnel magnétiques simples  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}/\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  a permis de déterminer la polarisation en spin des trous à l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{AlAs}$  et d'étudier la dépendance en température de cette polarisation. De plus des études structurales et de transport ont permis de caractériser la chimie et les propriétés électroniques de l'interface  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}/\text{GaAs}$ . La profondeur de diffusion de Mn, déterminée par spectroscopie Auger, à cette interface est de l'ordre d'une quinzaine d'Å et le décalage de bande est de quelques meV (pour une épaisseur de GaAs de 10 nm).

Cette faible marche de potentiel induit, parallèlement à un transport tunnel, un transport thermiquement activé et non polarisé en spin. Un modèle à deux résistances en parallèle (transport tunnel et transport thermiquement activé) a permis de décrire qualitativement la variation de la magnétorésistance tunnel avec la température pour les différentes structures étudiées.

Enfin nous avons élaboré des structures où deux couches de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  sont séparées par un puits de GaAs limité par des barrières d'AlAs. Le mécanisme de transport à travers cette structure est un transport tunnel séquentiel avec accumulation de spins dans le puits. Le temps de vie du spin du trou dans le puits quantique a été estimé, par des mesures exclusivement électriques, à la centaine de picosecondes. L'étude de la variation de la magnétorésistance tunnel en fonction des deux temps caractéristiques, temps de vie des trous et temps de vie du spin des trous dans le puits, a permis d'établir expérimentalement les conditions nécessaires pour la détection électrique des spins injectés dans le puits.

Ces travaux constituent le premier résultat d'une détection électrique de spins injectés dans un semiconducteur à partir d'un matériau ferromagnétique.

Compte tenu du temps de vie du spin des trous relativement court, les expériences de détection électrique de spins effectuées sont ici limitées aux basses températures. Deux voies sont à explorer pour augmenter significativement ce temps de vie : l'injection d'électrons et/ou la réduction supplémentaire des dimensions

du semiconducteurs (nanofils, boîtes quantiques).

L'injection d'électrons peut être réalisée à partir de semiconducteurs ferromagnétiques de type n ou encore de type p couplés à une diode Zener qui permet de convertir des trous en électrons polarisés en spin. Actuellement le nitrure de gallium dopé au manganèse et l'oxyde de zinc substitué cobalt sont attrayants puisqu'ils sont ferromagnétiques à température ambiante et de type n. Les métaux de transition ou les chalcopyrites constituent aussi une source d'électrons polarisés à température ambiante.

Enfin l'injection de spins dans des semiconducteurs à dimensions réduites (gaz bidimensionnels pour un transport latéral, boîtes quantiques) permettrait d'exploiter le spin des porteurs sur des temps beaucoup plus longs, les diffusions avec renversement du spin ou non étant de plus en plus inhibées.

Depuis maintenant une quinzaine d'années l'injection de spins dans des semiconducteurs s'est heurtée à beaucoup d'obstacles. Désormais, la meilleure compréhension des conditions nécessaires pour une injection de spins efficace, les progrès des différentes méthodes de croissance doivent permettre d'avancer plus rapidement vers la réalisation de dispositifs où l'injection, la manipulation et la détection de spins dans des structures semiconductrices seront effectuées électriquement. Un des défis majeurs pour les années à venir sera de démontrer les potentialités d'une électronique fondée sur le spin.



# Bibliographie

- [1] M. ABOLFATH, T. JUNGWIRTH, J. BRUM, AND A. H. MACDONALD, Phys. Rev. B, **63**, p. 054418, (2001). "**Theory of magnetic anisotropy in  $III_{1-x}Mn_xV$  ferromagnets**".
- [2] H. AKAI, Phys. Rev. Lett., **81**, p. 3002, (1998). "**Ferromagnetism and Its Stability in the Diluted Magnetic Semiconductors (In,Mn)As**".
- [3] H. AKINAGA, S. NEMETH, J. DE BOECK, L. NISTOR, H. BENDER, G. BORGHS, H. OFUCHI, AND M. OSHIMA, Appl. Phys. Lett., **77**, p. 4377, (2000). "**Growth and characterization of low-temperature grown GaN with high Fe doping**".
- [4] N. S. AVERKIEV, L. E. GOLUB, AND M. WILLANDER, J. Phys. : Condens. Matter, **14**, p. R271, (2002). "**Spin relaxation anisotropy in tow-dimensional semiconductor systems**".
- [5] D. D. AWSCHALOM AND J. M. KIKKAWA, Physics Today, p. 33, (June 1999). "**Electron spin and optical coherence in semiconductors**".
- [6] D. D. AWSCHALOM, D. LOSS, AND N. SARMATH, eds., "**Semiconductor spintronics and quantum computation**", NanoScience and Technology, —, eds., Springer, 2002.
- [7] D. D. AWSCHALOM AND N. SARMATH, "**Optical manipulation, transport and storage of spin coherence in semiconductors**", Semiconductor spintronics and quantum computation, D. D. AWSCHALOM, D. LOSS, AND N. SARMATH, eds., p. 147, Springer, 2002.
- [8] M. N. BAIBICH, J. M. BROTO, A. FERT, F. NGUYEN VAN DAU, F. PETROFF, P. ETIENNE, G. CREUZET, A. FRIEDRICH, AND J. CHAZELAS, Phys. Rev. Lett., **61**, p. 2472, (1988). "**Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices**".
- [9] A. BARTHÉLÉMY, A. FERT, AND F. PETROFF, "**Giant magnetoresistance in magnetic multilayers**", Handbook of Magnetic materials, K. H. J. BUSCHOW, ed., **Vol. 12**, p. 1, North-Holland, 1999.

- [10] D. V. BAXTER, D. RUZMETOV, J. SCHERSCHLIGT, Y. SASAKI, X. LIU, J. K. FURDYNA, AND C. H. MIELKE, *Phys. Rev. B*, **65**, p. 212407, (2002). "**Anisotropic magnetoresistance in  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$** ".
- [11] B. BAYLAC, T. AMAND, X. MARIE, B. DAREYS, M. BROUSSEAU, G. BACQUET, AND V. THIERRY-MIEG, *Solid State Communications*, **93**, p. 57, (1995). "**Hole spin relaxation in a n-modulation doped quantum-wells**".
- [12] R. N. BHATT, M. BERCIU, M. P. KENNETT, AND X. WAN, *Journal of Superconductivity : Incorporating Novel Magnetism*, **15**, p. 71, (2002). "**Diluted Magnetic Semiconductors in the Low Carrier Density Regime**".
- [13] G. L. BIR, A. G. ARANOV, AND G. E. PIKUS, *Sov. Phys.-JETP*, **42**, p. 705, (1976). "**Spin relaxation of electrons due to scattering by holes**".
- [14] R. BLEEKRODE, J. DIELEMAN, AND H. J. VEGTER, *Physics Letters*, **2**, p. 355, (1962). "**Electron spin resonance on Mn in GaAs**".
- [15] J. BLINOWSKI AND P. KACMAN, *Phys. Rev. B*, **67**, p. 121204, (2003). "**Spin interaction of interstitial Mn ions in ferromagnetic GaMnAs**".
- [16] J. BLINOWSKI, P. KACMAN, AND T. DIETL, cond-mat/0201012 (*Proc. Materials Research Society*), (2002). "**Kinetic exchange vs. room temperature ferromagnetism in diluted magnetic semiconductors**".
- [17] D. E. BLISS, W. WALUKIEWICZ, J. W. AGER, E. E. HALLER, K. T. CHAN, AND S. TANIGAWA, *Appl. Phys. Lett.*, **71**, p. 1699, (1992). "**Annealing studies of low-temperature-grown GaAs :Be**".
- [18] J. D. BOECK, W. VAN ROY, J. DAS, V. MOTSNYI, Z. LIU, L. LAGAE, H. BOEVE, K. DESSEIN, AND G. BORGHIS, *Semicond. Sci. Technol.*, **17**, p. 342, (2002). "**Technology and materials issues in semiconductor-based magnetoelectronics**".
- [19] H. BOUKARI, P. KOSSACKI, M. BERTOLINI, D. FERRAND, J. CIBERT, S. TATARENKO, A. WASIELA, J. A. GAJ, AND T. DIETL, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, p. 207204, (2002). "**Light and Electric Field Control of Ferromagnetism in Magnetic Quantum Structures**".
- [20] M. BOWEN, Thèse de l'Université Paris XI, (2003).
- [21] M. BOWEN, M. BIBES, A. BARTHELEMY, J.-P. CONTOUR, A. ANANE, Y. LEMAITRE, AND A. FERT, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, p. 233, (2003). "**Nearly total spin polarization in  $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$  from tunneling experiments**".
- [22] M. BOWEN, V. CROS, F. PETROFF, A. FERT, C. M. BOUBETA, J. L. COSTA-KRÄMER, J. V. ANGUITA, A. CEBOLLADA, F. BRIONES, J. M. DE TERESA, L. MORELLON, M. R. IBARRA, F. GUELL, F. PEIRO, AND

- A. CORNET, Appl. Phys. Lett., **79**, p. 1655, (2001). "**Large magnetoresistance in Fe/MgO/FeCo(001) epitaxial tunnel junctions on GaAs(001)**".
- [23] J. G. BRADEN, J. S. PARKER, P. XIONG, S. H. CHUN, AND N. SAMARTH, Phys. Rev. Lett., **91**, p. 056602, (2003). "**Direct Measurement of the Spin Polarization of the Magnetic Semiconductor (Ga,Mn)As**".
- [24] A. M. BRATKOVSKY, Phys. Rev. B, **56**, p. 2344, (1997). "**Tunneling of electrons in conventional and half-metallic system : Towards very large magnetoresistance**".
- [25] S. BRAUNSTEIN, ed., "**Quantum computing - Where do we want to go tomorrow ?**", —, ed., Wiley-VCH, 2002.
- [26] W. F. BRINKMAN, R. C. DYNES, AND J. M. ROWELL, J. Appl. Phys., **41**, p. 1915, (1970). "**Tunneling conductance of asymmetrical barriers**".
- [27] G. BURKARD AND D. LOSS, "**Electron spins in quantum dots as Qubits for quantum information processing**", Semiconductor spintronics and quantum computation, D. D. AWSCHALOM, D. LOSS, AND N. SAMARTH, eds., p. 229, Springer, 2002.
- [28] M. BUTTIKER, IBM J. Res. Develop., **32**, p. 63, (1988). "**Coherent and sequential tunneling in series barriers**".
- [29] I. A. CAMPBELL AND A. FERT, "**Transport properties of ferromagnets**", Ferromagnetic materials : A handbook on the properties of magnetically ordered substances, E. P. WOHLFARTH, ed., **Vol. 3**, p. 747, North-Holland, 1982.
- [30] S. A. CHAMBERS, T. DROUBAY, C. M. WANG, A. S. LEA, R. F. C. FARROW, L. FOLKS, V. DELINE, AND S. ANDERS, Appl. Phys. Lett., **82**, p. 1257, (2003). "**Clusters and magnetism in epitaxial Co-doped TiO<sub>2</sub> anatase**".
- [31] S. A. CHAMBERS, S. THEVUTHASAN, R. F. C. FARROW, R. MARKS, J. THIELE, L. FOLKS, M. SAMANT, A. KELLOCK, N. RUZYCKI, D. EDERER, AND U. DIEBOLD, Appl. Phys. Lett., **82**, p. 1257, (2003). "**Epitaxial growth and properties of ferromagnetic Co-doped TiO<sub>2</sub> anatase**".
- [32] L. L. CHANG, L. ESAKI, AND R. TSU, Appl. Phys. Lett., **24**, p. 593, (1974). "**Resonant tunneling in semiconductor double barriers**".
- [33] L. L. CHANG, E. E. MENDEZ, AND C. TEJEDOR, eds., "**Resonant tunneling in semiconductors - Physics and applications**", —, eds., **Series B :Physics Vol.277**, NATO ASI Series, 1991.
- [34] D. CHIBA, N. AKIBA, F. MATSUKURA, Y. OHNO, AND H. OHNO, Appl. Phys. Lett., **77**, p. 1873, (2000). "**Magnetoresistance effect and inter-layer coupling of (Ga,Mn)As trilayer structures**".



- [35] ———, *Physica E*, **10**, p. 278, (2001). **"Properties of (Ga,Mn)As/(Al,Ga)As/(Ga,Mn)As magnetic trilayer structures"**.
- [36] D. CHIBA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, Proceedings of The 8th symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors ; (December 2002 Sendai-Japan), **85**, p. 250. **"Tunneling magnetoresistance in (Ga,Mn)As/GaAs/(Ga,Mn)As heterojunctions"**.
- [37] D. CHIBA, K. TAKAMURA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, p. 3020, (2003). **"Effect of low-temperature annealing on (Ga,Mn)As trilayer structures"**.
- [38] S. CHO, S. CHOI, G.-B. CHA, S. C. HONG, Y. KIM, A. J. FREEMAN, J. B. KETTERSON, Y. PARK, AND H.-M. PARK, *Solid State Communications*, **129**, p. 609, (2004). **"Synthesis of new pure ferromagnetic semiconductors : MnGeP<sub>2</sub> and MnGeAs<sub>2</sub>"**.
- [39] S. CHO, S. CHOI, G.-B. CHA, S. C. HONG, Y. KIM, Y.-J. ZHAO, A. J. FREEMAN, J. B. KETTERSON, B. J. KIM, Y. C. KIM, AND B.-C. CHOI, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, p. 257203, (2002). **"Room-Temperature Ferromagnetism in Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>GeP<sub>2</sub> Semiconductors"**.
- [40] S. CHO, S. CHOI, S. C. HONG, Y. KIM, J. B. KETTERSON, B.-J. KIM, Y. C. KIM, AND J.-H. JUNG, *Phys. Rev. B*, **66**, p. 033303, (2002). **"Ferromagnetism in Mn-doped Ge"**.
- [41] K. K. CHOI, D. C. TSUI, AND K. ALAVI, *Phys. Rev. B*, **36**, p. 7751, (1987). **"Dephasing time and one-dimensional localization of two-dimensional electrons in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As heterostructures"**.
- [42] S. CHOI, S. C. HONG, S. CHO, Y. KIM, J. B. KETTERSON, C.-U. JUNG, K. RHIE, B.-J. KIM, AND Y. C. KIM, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 3606, (2002). **"Ferromagnetism in Cr-doped Ge"**.
- [43] S. H. CHUN, S. J. POTASHNIK, K. C. KU, P. SCHIFFER, AND N. SAMARTH, *Phys. Rev. B*, **66**, p. 100408, (2002). **"Spin-polarized tunneling in hybrid metal-semiconductor magnetic tunnel junctions"**.
- [44] Y. CHYE, M. E. WHITE, E. JOHNSTON-HALPERIN, B. D. GERARDOT, D. D. AWSCHALOM, AND P. M. PETROFF, *Phys. Rev. B*, **66**, p. R201301, (2002). **"Spin injection from (Ga,Mn)As into InAs quantum dots"**.
- [45] R. M. CLARKE, I. H. CHAN, C. M. MARCUS, C. I. DURUOZ, J. S. HARRIS, K. CAMPMAN, AND A. C. GOSSARD, *Phys. Rev. B*, **52**, p. 2656, (1995). **"Temperature dependence of phase breaking in ballistic quantum dots"**.
- [46] J. M. D. COEY, M. VIRET, AND S. VON MOLNAR, *Advances in Physics*, **48**, p. 167, (1999). **"Mixed Valence Manganites"**.

- [47] R. P. COWBURN, S. J. GRAY, J. FERRÉ, J. A. C. BLAND, AND J. MILTAT, *J. Appl. Phys.*, **78**, p. 7210, (1995). "**Magnetic switching and in-plane uniaxial anisotropy in ultrathin Ag/Fe/Ag(100) epitaxial films**".
- [48] L. CRACO, M. S. LAAD, AND E. MULLER-HARTMANN, *condmat/0303427*, (2003). "**Towards a Fully Ab-Initio Description of the Diluted Magnetic Semiconductor  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ . Ferromagnetic, Electronic structure, and Optical Response**".
- [49] A. DAKHAMA, B. LAKSHMI, AND D. HEIMAN, *Phys. Rev. B*, **67**, p. 115204, (2003). "**Magnetic interactions and transport in (Ga,Cr)As**".
- [50] S. DAS SARMA, *American Scientist*, **89**, p. 516, (2001). "**Spintronics**".
- [51] S. DATTA AND B. DAS, *Appl. Phys. Lett*, **56**, p. 665, (1990). "**Electronic analog of the electro-optic modulator**".
- [52] J. M. DETERESA, A. BARTHELEMY, A. FERT, J. P. CONTOUR, F. MONTAIGNE, AND P. SENEOR, *Science*, **286**, p. 507, (1999). "**Role of the metal-oxide interface in determining the spin polarization of magnetic tunnel junction**".
- [53] T. DIETL, *Semicond. Sci. Technol.*, **17**, p. 377, (2002). "**Ferromagnetic semiconductors**".
- [54] T. DIETL, J. KONIG, AND A. H. MACDONALD, *Phys. Rev. B*, **64**, p. 241201, (2001). "**Magnetic domains in III-V magnetic semiconductors**".
- [55] T. DIETL, H. OHNO, AND F. MATSUKURA, *Phys. Rev. B*, **63**, p. 195205, (2001). "**Hole-mediated ferromagnetism in tetrahedrally coordinated semiconductors**".
- [56] T. DIETL, H. OHNO, F. MATSUKURA, J. CIBERT, AND D. FERRAND, *Science*, **287**, p. 1019, (2000). "**Zener Model Description of Ferromagnetism in Zinc-Blende Magnetic semiconductors**".
- [57] R. R. DOS SANTOS, L. E. OLIVEIRA, AND J. D'ALBUQUERQUE E CASTRO., *J. Phys. : Condens. Matter*, **14**, p. 3751, (2002). "**Hole concentration in a diluted ferromagnetic semiconductor**".
- [58] M. A. DUBSON AND D. F. HOLCOMB, *Phys. Rev. B*, **32**, p. 1955, (1985). "**Metal-insulator transition in the compensated sodium bronze,  $\text{Na}_x\text{Ta}_y\text{W}_{1-y}\text{O}_3$** ".
- [59] M. I. D'YAKANOV AND V. Y. KACHOROVSKII, *Sov. Phys. Semicond.*, **20**, p. 110, (1986). "**Spin relaxation of two-dimensional electrons in noncentrosymmetric semiconductors**".

- [60] M. I. D'YAKANOV AND V. PEREL', *Sov. Phys.-JETP*, **33**, p. 1053, (1971). **"Spin orientation of electrons associated with the interband absorption of light in semiconductors"**.
- [61] M. I. DYAKONOV, cond-mat/0110326, (2001). **"Quantum computing : A view from the enemy camp"**.
- [62] K. W. EDMONDS, P. BOGUSAWSKI, K. Y. WANG, R. P. CAMPION, S. N. NOVIKOV, N. R. S. FARLEY, B. L. GALLAGHER, C. T. FOXON, M. SAWICKI, T. DIETL, M. B. NARDELLI, AND J. BERNHOLC, *Phys. Rev. Lett.*, **92**, p. 037201, (2004). **"Mn Interstitial Diffusion in (Ga,Mn)As"**.
- [63] K. W. EDMONDS, K. Y. WANG, R. P. CAMPION, A. C. NEUMANN, N. R. S. FARLEY, B. L. GALLAGHER, AND C. T. FOXON, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 4991, (2002). **"High-Curie-temperature Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As obtained by resistance-monitored annealing"**.
- [64] K. W. EDMONDS, K. Y. WANG, R. P. CAMPION, A. C. NEUMANN, C. T. FOXON, B. L. GALLAGHER, AND P. C. MAIN, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 3010, (2002). **"Hall effect and hole densities in Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As"**.
- [65] R. J. ELLIOT, *Phys. Rev.*, **96**, p. 266, (1954). **"Theory of the effect of spin-orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors"**.
- [66] J. FERRÉ, P. MEYER, M. NYVLT, S. VISNOVSKY, AND D. RENARD, *J. Magn. Mater.*, **165**, p. 92, (1997). **"Magneto-optic depth sensitivity in a simple ultrathin film structure"**.
- [67] D. FERRAND, J. CIBERT, A. WASIELA, C. BOURGOGNON, S. TATARENKO, G. FISHMAN, T. ANDREARCZYK, J. JAROSZYNSKI, S. K. T. DIETL, B. BARBARA, AND D. DUFEU, *Phys. Rev. B*, **63**, p. 085201, (2001). **"Carrier-induced ferromagnetism in p-Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te"**.
- [68] R. FERREIRA AND G. BASTARD, *Phys. Rev. B*, **43**, p. 9687, (1991). **"Spin-flip scattering of holes in semiconductor quantum wells"**.
- [69] —, *Europhys. Lett.*, **23**, p. 439, (1993). **"Hole spin relaxation in semiconductor quantum wells"**.
- [70] D. K. FERRY AND S. M. GOODNICK, **"Transport in nanostructures"**, H. AHMED, M. PEPPER, AND A. BROERS, eds., Cambridge University Press, 1997.
- [71] A. FERT, Image de la Physique ([www.spm.cnrs-dir.fr](http://www.spm.cnrs-dir.fr)), (2000). **"L'électronique de spin"**.
- [72] A. FERT, J.-M. GEORGE, H. JAFFRÈS, R. MATTANA, AND P. SENEOR, *Europhysics News*, **34**, (November-December 2003). **"The new era of spintronics"**.

- [73] A. FERT AND H. JAFFRÈS, *Phys. Rev. B.*, **64**, p. 184420, (2001). "**Conditions for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor**".
- [74] R. FIEDERLING, M. KEIM, G. REUSCHER, W. OSSAU, G. SCHMIDT, A. WAAG, AND L. W. MOLENKAMP, *Nature*, **402**, p. 787, (1999). "**Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode**".
- [75] A. T. FILIP, P. LECLAIR, C. J. P. SMITS, J. T. KOHLHEPP, H. J. M. SWAGTEN, B. KOOPMANS, AND W. J. M. DE JONGE, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 1815, (2002). "**Spin-injection device based on EuS magnetic tunnel barriers**".
- [76] A. FILIPE, Thèse de l'Ecole Polytechnique, (1997). "**Jonction métal ferromagnétique/semi-conducteur : structure et magnétisme d'interface, transport électronique et dépendance en spin**".
- [77] G. FISHMAN AND G. LAMPEL, *Phys. Rev. B*, **16**, p. 820, (1977). "**Spin relaxation of photoelectrons in p-type gallium arsenide**".
- [78] R. M. FRAZIER, J. STAPLETON, G. T. THALER, C. R. ABERNATHY, S. J. PEARTON, R. RAIRIGH, J. KELLY, A. F. HEBARD, M. L. NAKARMI, K. B. NAM, J. Y. LIN, H. X. JIANG, J. M. ZAVADA, AND R. G. WILSON, *J. Appl. Phys.*, **94**, p. 1592, (2003). "**Properties of Co-,Cr-, or Mn-implanted AlN**".
- [79] J. GEBAUER, R. KRAUSE-REHBERG, S. EICHLER, M. LUYSBERG, H. SOHN, AND E. R. WEBER, *Appl. Phys. Lett.*, **71**, p. 638, (1997). "**Ga vacancies in low-temperature-grown GaAs identified by slow positrons**".
- [80] J.-M. GEORGE, A. FERT, AND G. FAINI, *Phys. Rev. B*, **67**, p. 012410, (2003). "**Direct measurement of spin accumulation in a metallic mesoscopic structure**".
- [81] S. GHOSH AND P. BHATTACHARYA, *J. Vac. Sci. Technol. B*, **20**, p. 1182, (2002). "**Electrical spin injection into  $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dots using  $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$** ".
- [82] V. N. GOLOVACH AND D. LOSS, *Semicond. Sci. Technol.*, **17**, p. 355, (2002). "**Electron spins in artificial atoms and molecules for quantum computing**".
- [83] B. GRANDIDIER, J. P. NYS, C. DELERUE, D. STIÉVENARD, Y. HIGO, AND M. TANAKA, *Appl. Phys. Lett.*, **77**, p. 4001, (2000). "**Atomic-scale study of  $\text{GaMnAs}/\text{GaAs}$  layers**".
- [84] W. GRIESHABER, A. HAURY, J. CIBERT, Y. M. D'AUBIGNE, A. WASIELA, AND J. A. GAJ, *Phys. Rev. B*, **53**, p. 4891, (1996). "**Magneto-optic**".

- study of the interface in semimagnetic semiconductor heterostructures : Intrinsic effect and interface profile in CdTe-Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te".**
- [85] A. M. GRISHIN, S. KHARSTEV, AND K. V. RAO, Appl. Phys. Lett, **68**, p. 2008, (1996). **"Giant fluctuation magnetoresistance in MnAs thin films"**.
- [86] J. GROLIER, Thèse de l'Université Paris VII-Denis Diderot, (2003).
- [87] J. GROLIER, V. CROS, A. HAMZIC, J.-M. GEORGE, H. JAFFRES, A. FERT, G. FAINI, J. B. YOUSSEF, AND H. LEGALL, Appl. Phys. Lett., **78**, p. 3663, (2001). **"Spin-polarized current induced switching in Co/Cu/Co pillars"**.
- [88] J. HAMRLE, J. FERRÉ, M. NYVLT, AND S. VISNOVSKY, Phys. Rev. B, **66**, p. 224423, (2002). **"In-depth resolution of the magneto-optical Kerr effect in ferromagnetic multilayers"**.
- [89] S.-J. HAN, J. W. SONG, C.-H. YANG, S. H. PARK, J.-H. PARK, Y. H. JEONG, AND K. W. RHIE, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 4212, (2002). **"A key to Room-temperature ferromagnetism in Fe-doped ZnO : Cu"**.
- [90] A. T. HANBICKI AND B. T. JONKER, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 2131, (2002). **"Response to 'Comment on "Efficient electrical spin injection from a magnetic metal/tunnel barrier contact into a semiconductor" ", Appl. Phys. Lett. 80, 1240 (2002)"**.
- [91] A. T. HANBICKI, B. T. JONKER, G. ITSKOS, G. KIOSEOGLU, AND A. PETROU, Appl. Phys. Lett., **80**, p. 1240, (2002). **"Efficient electrical spin injection from a magnetic metal/tunnel barrier contact into a semiconductor"**.
- [92] A. T. HANBICKI, O. M. J. VAN'T ERVE, R. MAGNO, G. KIOSEOGLU, C. H. LI, B. T. JONKER, G. ITSKOS, R. MALLORY, M. YASAR, AND A. PETROU, Appl. Phys. Lett., **82**, p. 4092, (2003). **"Analysis of the Transport Process Providing Spin Injection through an Fe/AlGaAs Schottky Barrier"**.
- [93] S. HANEDA, N. KAZAMA, Y. YAMAGUSHI, AND H. WATANABE, J. Phys. Soc. Jpn, **42**, p. 1201, (1977). **"Electronics state of high spin MnAs"**.
- [94] A. HAURY, A. WASIELA, A. ARNOULT, J. CIBERT, T. DIETL, Y. M. D'AUBIGNÉ, AND S. TATARENKO, Phys. Rev. Lett., **79**, p. 511, (1997). **"Observation of ferromagnetic transition induced by two-dimensionnal hole gas in modulation doped CdMnTe quantum wells"**.
- [95] T. HAYASHI, H. SHIMADA, H. SHIMIZU, AND M. TANAKA, Journal of crystal growth, **201/202**, p. 689, (1999). **"Tunneling spectroscopy and tunneling magnetoresistance in (Ga,Mn)As ultrathin heterostructures"**.

- [96] T. HAYASHI, M. TANAKA, AND A. ASAMITSU, *Appl. Phys. Lett.*, **87**, p. 4673, (2000). **"Tunneling magnetoresistance of a GaMnAs-based double barrier ferromagnetic tunnel junction"**.
- [97] T. HAYASHI, YOSHIKI, S. KATSUMOTO, AND Y. IYE, *Appl. Phys. Lett.*, **78**, p. 1691, (2001). **"Effect of low temperature annealing on transport and magnetism of diluted magnetic semiconductor (Ga,Mn)As"**.
- [98] R. K. HAYDEN, D. K. MAUDE, L. EAVES, E. C. VALADARES, M. HENINI, F. W. SHEARD, O. H. HUGHES, J. C. PORTAL, AND L. CURY, *Phys. Rev. Lett.*, **66**, p. 1749, (1991). **"Probing the hole dispersion curves of a quantum well using resonant magnetotunnelling spectroscopy"**.
- [99] Y. HIGO, H. SHIMIZU, AND M. TANAKA, *J. Appl. Phys.*, **89**, p. 6745, (2001). **"Anisotropic tunneling magnetoresistance in GaMnAs/AlAs/GaMnAs ferromagnetic semiconductor tunnel junction"**.
- [100] D. J. HILTON AND C. L. TANG, *Phys. Rev. Lett.*, **89**, p. 146601, (2002). **"Optical orientation and femtosecond relaxation of spin-polarized holes in GaAs"**.
- [101] H. HORI, S. SONODA, T. SASAKI, Y. YAMAMOTO, S. SHIMIZU, K. ICHI SUGA, AND K. KINDO, (cond-mat/0203223) *Physica B*, **324**, p. 142, (2002). **"High TC ferromagnetism in diluted magnetic semiconducting GaN :Mn Films"**.
- [102] Y. ISHIWATA, M. WATANABE, R. EGUCHI, T. TAKEUCHI, Y. HARADA, A. CHAINANI, S. SHIN, T. HAYASHI, Y. HASHIMOTO, S. KATSUMOTO, AND Y. IYE, *Phys. Rev. B.*, **65**, p. 233201, (2002). **"Manganese concentration and low-temperature annealing dependence of Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As by x-ray absorption spectroscopy"**.
- [103] H. JAFFRÈS AND A. FERT, *J. Appl. Phys.*, **91**, p. 8111, (2001). **"Spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor"**.
- [104] H. JAFFRÈS, D. LACOUR, F. NGUYEN VAN DAU, J. BRIATICO, F. PETROFF, AND A. VAURÈS, *Phys. Rev. B.*, **64**, p. 064427, (2001). **"Angular dependence of the tunnel magnetoresistance in transition-metal-based junctions"**.
- [105] R. JANSEN, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 2130, (2002). **"Comment on 'Efficient electrical spin injection from a magnetic metal/tunnel barrier contact into a semiconductor', Appl. Phys. Lett. 80, 1240 (2002)"**.
- [106] R. JANSEN AND J. S. MOODERA, *J. Appl. Phys.*, **83**, p. 6682, (1998). **"Influence of barrier impurities on the magnetoresistance in ferromagnetic tunnel junctions"**.
- [107] —, *Phys. Rev. B*, **61**, p. 9047, (2000). **"Magnetoresistance in doped magnetic tunnel junctions : Effect of spin scattering and impurity-assisted transport"**.

- [108] O. JAOU, I. A. CAMPBELL, AND A. FERT, *J. Magn. Magn. Mat.*, **5**, p. 23, (1977). "**Sontaneous resistivity anisotropy in Ni alloys**".
- [109] F. J. JEDEMA, A. T. FILIP, AND B. J. VAN WEES, *Nature*, **410**, p. 345, (2001). "**Electrical spin injection and accumulation at room temperature in an all-metal mesoscopic spin valve**".
- [110] F. J. JEDEMA, H. B. HEERSCHE, A. T. FILIP, J. J. A. BASELMANS, AND B. J. VAN WEES, *Nature*, **416**, p. 713, (2002). "**Electrical detection of spin precession in a metallic mesoscopic spin valve**".
- [111] B. T. JONKER, A. T. HANBICKI, G. KIOSEOGLOU, R. M. STROUD, J. SULLIVAN, S. C. ERWIN, H. B. ZHAO, Y. H. REN, G. LUEPKE, G. ITSKOS, R. MALLORY, AND A. PETROU, "**Electrical spin injection and band offsets in CdCr<sub>2</sub>Se<sub>4</sub>AlGaAs/GaAs structure**", in 47<sup>th</sup> annual conference on Magnetism and Magnetic Materials, Nov. 2002.
- [112] B. T. JONKER, A. T. HANBICKI, Y. D. PARK, G. ITSKOS, M. FURIS, G. KIOSEOGLOU, A. PETROU, AND X. WEI, *Appl. Phys. Lett.*, **79**, p. 3098, (2001). "**Quantifying electrical spin injection : Component-resolved electroluminescence from spin-polarized light-emitting diodes**".
- [113] B. T. JONKER, Y. D. PARK, B. R. BENNETT, H. D. CHEONG, G. KIOSEOGLOU, AND A. PETROU, *Phys. Rev. B*, **62**, p. 8180, (2000). "**Robust electrical spin injection into a semiconductor heterostructure**".
- [114] M. JULLIÈRE, *Phys. Lett.*, **54A**, p. 225, (1975). "**Tunneling between ferromagnetic films**".
- [115] T. JUNGWIRTH, J. KONIG, J. SINOVA, J. KUCERA, AND A. H. MACDONALD, *Phys. Rev. B*, **66**, p. 012402, (2002). "**Curie temperature trends in (III,Mn)V ferromagnetic semiconductors**".
- [116] A. KAMINSKI AND S. DAS SARMA, *Phys. Rev. Lett.*, **247202**, p. 88, (2002). "**Polaron percolation in diluted magnetic semiconductors**".
- [117] J. A. KATINE, F. J. ALBERT, R. A. BUHRMAN, E. B. MYERS, AND D. C. RALPH, *Phys. Rev. Lett.*, **84**, p. 3149, (2000). "**Current-driven magnetization reversal and spin wave excitations in Co/Cu/Co pillars**".
- [118] J. H. KIM, H. KIM, D. KIM, Y. E. IHM, AND W. K. CHOO, *J. Appl. Phys.*, **92**, p. 6066, (2002). "**Magnetic properties of epitaxially grown semiconducting Zn<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>O thin films by pulsed laser deposition**".
- [119] J.-Y. KIM, J.-H. PARK, B.-G. PARK, H.-J. NOH, S.-J. OH, J. S. YANG, D.-H. KIM, S. D. BU, T.-W. NOH, H.-J. LIN, H.-H. HSIEH, AND C. T. CHEN, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, p. 017401, (2003). "**Ferromagnetism Induced by Clustered Co in Co-Doped Anatase TiO<sub>2</sub> Thin Films**".

- [120] G. KIOSEOGLU, A. HANBICKI, C. LI, S. ERWIN, R. GOSWAMI, AND B. JONKER, cond-mat/0302231 (submitted to Appl. Phys. Lett., (2003). **"Epitaxial Growth of the Diluted Magnetic Semiconductors  $\text{Cr}_y\text{Ge}_{1-y}$  and  $\text{Cr}_y\text{Mn}_x\text{Ge}_{1-x-y}$ "**.
- [121] E. KOJIMA, R. SHIMANO, Y. HASHIMOTO, S. KATSUMOTO, Y. IYE, AND M. KUWATA-GONOKAMI, Phys. Rev. B, **68**, p. 193203, (2003). **"Observation of the spin-charge thermal isolation of ferromagnetic  $\text{Ga}_{0.94}\text{Mn}_{0.06}\text{As}$  by time-resolved magneto-optical measurement"**.
- [122] J. KONIG, H.-H. LIN, AND A. H. MACDONALD, Phys. Rev. Lett., p. 5628, (2000). **"Theory of Diluted Magnetic Semiconductor Ferromagnetism"**.
- [123] J. KONIG, J. SCHLIEMANN, T. JUNGWIRTH, AND A. H. MACDONALD, **"Ferromagnetism in (III,Mn)V Semiconductors"**, (cond-mat/0111314) in Electronic structure and magnetism of complex Materials, D. J. SINGH AND D. A. PARACONSTANTOPOULOS, eds., Springer Verlag, 2002.
- [124] P. A. KORZHAVYI, I. A. ABRIKOSOV, E. A. SMIRNOVA, L. BERGQVIST, P. MOHN, R. MATHIEU, P. SVEDLINDH, J. SADOWSKI, E. I. ISAEV, Y. K. VEKILOV, AND O. ERIKSSON., Phys. Rev. Lett., **88**, p. 187202, (2002). **"Defect-Induced Magnetic Structure in  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{As}$ "**.
- [125] S. KOSHIHARA, A. OIWA, M. HIRASAWA, S. KATSUMOTO, Y. IYE, C. URANO, H. TAKAGI, AND H. MUNEKATA, Phys. Rev. Lett., **78**, p. 4617, (1997). **"Ferromagnetic order induced by photogenerated carriers in magnetic III-V semiconductor heterostructures of  $(\text{In},\text{Mn})\text{As}/\text{GaSb}$ "**.
- [126] J. KOSSUT AND W. DOBROWOLSKI, **"Diluted Magnetic Semiconductors"**, Handbook of Magnetic Materials, K. H. J. BUSCHOW, ed., Vol. 7, p. 231, North-Holland, 1993.
- [127] J. KREISSL, W. ULRICI, M. EL-METOUI, A. VASSON, AND G. GAVAIX, Phys. Rev. B, **54**, p. 10508, (1996). **"Neutral manganese acceptor in GaP : An electron-paramagnetic resonance study"**.
- [128] A. KROL, Y. L. SOO, S. HUANG, Z. H. MING, Y. H. KAO, H. MUNEKATA, AND L. CHANG, Phys. Rev. B, **47**, p. 7187, (1993). **"Local structure about Mn atoms in  $\text{In}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  diluted magnetic semiconductors"**.
- [129] K. C. KU, S. J. POTASHNIK, R. F. WANG, S. CHUN, P. SCHIFFER, N. SAMARTH, M. J. SEONG, A. MASCARENHAS, E. JOHNSTON-HALPERIN, R. C. MEYERS, A. C. GOSSARD, AND D. D. AWSCHALOM, Appl. Phys. Lett., **82**, p. 2302, (2003). **"Highly enhanced Curie temperature in low-temperature annealed  $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$  epilayers"**.



- [130] I. KURLISZYN, T. WOJTOWICZ, X. LIU, J. K. FURDYNA, W. DOBROWOLSKI, J.-M. BROTO, M. GOIRAN, O. PORTUGALL, H. RAKOTO, AND B. RAQUET, (cond-mat/0207354) Journal of Superconductivity incorporating Novel Magnetism, **16**, p. 63, (2003). "**Low temperature annealing studies of  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$** ".
- [131] I. KURLISZYN, T. WOJTOWICZ, X. LIU, J. K. FURDYNA, W. DOBROWOLSKI, J.-M. BROTO, M. GOIRAN, O. PORTUGALL, H. RAKOTO, AND B. RAQUET, cond-mat/0206371, (2002). "**Transport and magnetic properties of LT annealed  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (to be published in acta Physica Polonica A)**".
- [132] D. LACOUR, Thèse de l'université Henri Poincaré, Nancy I, (2002). "**L'effet tunnel dépendant du spin comme sonde du micromagnétisme et du transport d'électrons chauds : application aux capteurs**".
- [133] C. LALLAIZON, Thèse de l'université de Rennes I, (2000). "**Les hétérostructures epitaxiées Fe/semi-conducteur III-V : croissance, interdiffusion, propriétés physiques et magnétiques**".
- [134] J. M. LANGER, C. DELERUE, M. LANNOO, AND H. HEINRICH, Phys. Rev. B, **38**, p. 7723, (1988). "**Transition-metal impurities in semiconductors and heterojunction band lineups**".
- [135] P. LECLAIR, J. K. HA, H. J. M. SWAGTEN, J. T. KOHLHEPP, C. H. VAN DE VIN, AND W. J. M. DE JONGE, Appl. Phys. Lett., **80**, p. 625, (2002). "**Large magnetoresistance using hybrid spin filter devices**".
- [136] H.-J. LEE, S.-Y. JEONG, C. R. CHO, AND C. H. PARK, Appl. Phys. Lett, **81**, p. 4020, (2002). "**Study of diluted magnetic semiconductor : Co-doped ZnO**".
- [137] H.-J. LEE, S.-Y. JEONG, J.-Y. HWANG, AND C. R. CHO, Europhys. Lett., **64**, p. 797, (2003). "**Ferromagnetism in Li co-doped ZnO :Cr**".
- [138] M. LINNARSSON, E. JANSEN, B. MONEMAR, M. KLEVERMEN, AND A. THILDERKVIST, Phys. Rev. B, **55**, p. 6938, (1997). "**Electronic structure of the  $\text{GaAs}:\text{Mn}_{\text{Ga}}$  center**".
- [139] B. L. LIU, M. SÉNÈS, S. COUDERC, J. F. BOBO, X. MARIE, T. AMAND, C. FONTAINE, AND A. ARNOULT, Physica E, **17**, p. 358, (2003). "**Optical and electrical spin injection in spin-LED**".
- [140] X. LIU, Y. SASAKI, AND J. K. FURDYNA, Phys. Rev. B, **67**, p. 205204, (2003). "**Ferromagnetic resonance in  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  : effects of magnetic anisotropy**".
- [141] S. LODHA, D. B. JANES, AND N. P. CHEN, J. Appl. Phys., **93**, p. 2772, (2003). "**Unpinned interface Fermi-level in Schottky contacts to n-GaAs capped with low-temperature-grown GaAs; experiments and modeling using defect state distributions**".

- [142] J. M. MACLAREN, X.-G. ZHANG, W. H. BUTLER, AND X. WANG, *Phys. Rev. B*, **59**, p. 5470, (1999). "**Layer KKR approach to Bloch-wave transmission and reflection : Application to spin-dependent tunneling**".
- [143] P. MAHADEVAN AND A. ZUNGER, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, p. 047205, (2002). "**Room Temperature Ferromagnetism in Mn-doped semiconducting CdGeP<sub>2</sub>**".
- [144] G. MAHIEU, P. CONDETTE, B. GRANDIDIER, J. P. NYS, G. ALLAN, D. STIÉVENARD, P. ELBERT, H. SHIMIZU, AND M. TANAKA, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, p. 712, (2003). "**Compensation mechanisms in low-temperature-grown Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As investigated by scanning tunneling microscopy**".
- [145] T. MANAGO AND H. AKINAGA, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 694, (2002). "**Spin-polarized light-emitting diode using metal/insulator/semiconductor structures**".
- [146] R. MATHIEU, B. S. SORENSEN, J. SADOWSKI, J. KANSKI, P. SVEDLINDH, P. E. LINDELOF, D. HRABOVSKY, AND E. VANELLE, *cond-mat/0208411*, (2002). "**Magnetization of ultrathin (Ga,Mn)As layers**".
- [147] F. MATSUKURA, H. OHNO, AND T. DIETL, "**III-V Ferromagnetic Semiconductors**", *Handbook of Magnetic Materials*, K. H. J. BUSCHOW, ed., **Vol. 14**, Elsevier Science, 2002.
- [148] F. MATSUKURA, H. OHNO, A. SHEN, AND Y. SUGAWARA, *Phys. Rev. B*, **57**, p. R2037, (1998). "**Transport properties and origin of ferromagnetism in (Ga,Mn)As**".
- [149] Y. MATSUMOTO, M. MURAKAMI, T. SHONO, T. HASEGAWA, T. FUKUMURA, M. KAWASAKI, P. AHMET, T. CHIKYOW, S. YA KOSHIHARA, AND H. KOINUMA, *Science*, **291**, p. 854, (2001). "**Room-Temperature Ferromagnetism in Transparent Transition Metal-Doped Titanium Dioxide**".
- [150] R. MATTANA, J.-M. GEORGE, H. JAFFRÈS, F. NGUYEN VAN DAU, A. FERT, B. LÉPINE, A. GUIVERC'H, AND G. JÉZÉQUEL, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, p. 166601, (2003). "**Electrical detection of spin accumulation in a p-type GaAs quantum well**".
- [151] G. A. MEDVEDKIN, T. ISHIBASHI, T. NISHI, K. HAYATA, Y. HASEGAWA, AND K. SATO, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39**, p. 949, (2000). "**Room temperature ferromagnetism in Novel Diluted Magnetic Semiconductor Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>GeP<sub>2</sub>**".
- [152] F. MEIER AND B. P. ZAKHARCHENYA, eds., "**Optical Orientation**", —, eds., Elsevier Science, Amsterdam, 1984.

- [153] E. E. MENDEZ, W. I. WANG, B. RICCO, AND L. ESAKI, *Appl. Phys. Lett.*, **47**, p. 415, (1985). "**Resonant tunneling of holes in AlAs-GaAs-AlAs heterostructures tunneling in double-barrier diodes**".
- [154] F. MONTAIGNE, Thèse de l'Université Paris VII-Denis Diderot, (1999). "**Effet tunnel dépendant du spin : Des simples aux doubles jonctions**".
- [155] F. MONTAIGNE, M. HEHN, AND A. SCHUHL, *Phys. Rev. B*, **64**, p. 144402, (2001). "**Tunnel barrier parameters and magnetoresistance in the parabolic band model**".
- [156] F. MONTAIGNE, J. NASSAR, A. VAURÈS, F. NGUYEN VAN DAU, F. PETROFF, A. SCHUHL, AND A. FERT, *Appl. Phys. Lett.*, **73**, p. 2829, (1998). "**Enhanced tunnel magnetoresistance at high bias voltage in double-barrier planar junctions**".
- [157] J. S. MOODERA, L. R. KINDER, T. M. WONG, AND R. MESERVEY, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, p. 3273, (1995). "**Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junction**".
- [158] G. P. MOORE, J. FERRÉ, A. MOUGIN, M. MORENO, AND L. DAWERITZ, *J. Appl. Phys.*, **94**, p. 4530, (2003). "**Magnetic anisotropy and switching process in diluted Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As magnetic semiconductor films**".
- [159] V. F. MOTSNYI, J. DE BOECK, J. DAS, W. VAN ROY, G. BORGHS, E. GOOVAERTS, AND V. I. SAFAROV, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 265, (2002). "**Electrical spin injection in a ferromagnet/tunnel barrier/semiconductor heterostructure**".
- [160] V. F. MOTSNYI, P. V. DORPE, W. V. ROY, E. GOOVAERTS, V. I. SAFAROV, G. BORGHS, AND J. DE BOECK, *Phys. Rev. B*, **68**, p. 245319, (2003). "**Optical investigation of electrical spin injection into semiconductors**".
- [161] N. F. MOTT AND E. A. DAVIS, "**Electronic processes in non-crystalline materials**", The international series of monographs on physics, W. MARSHALL AND D. H. WILKINSON, eds., Clarendon Press Oxford, 1979.
- [162] H. MUNEKATA, H. OHNO, S. VON MOLNAR, A. SEGMÜLLER, L. L. CHANG, AND L. ESAKI, *Phys. Rev. Lett.*, **63**, p. 1849, (1989). "**Diluted magnetic III-V semiconductors**".
- [163] J. NASSAR, Thèse de l'École Polytechnique, (1999). "**Magnétorésistance tunnel de jonctions à base de métaux de transition et oxydes ferromagnétiques**".
- [164] A. NATH, Z. KLENCAR, E. KUZMANN, Z. HOMONNAY, A. VERTES, A. SIMOPOULOS, E. DEVLIN, G. KALLIAS, A. P. RAMIREZ, AND R. J. CAVA, *Phys. Rev. B*, **66**, p. 212401, (2002). "**Nanoscale magnetism in the chalcogenide spinel FeCr<sub>2</sub>S<sub>4</sub> : Common origin of colossal magnetoresistivity**".

- [165] D. P. NORTON, S. J. PEARTON, A. F. HEBARD, N. THEODOROPOULOU, L. A. BOATNER, AND R. G. WILSON, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, p. 239, (2003). **"Ferromagnetism in Mn-implanted ZnO :Sn single crystals"**.
- [166] S. B. OGALE, R. J. CHOUDHARY, J. P. BUBAN, S. E. LOFLAND, S. R. SHINDE, S. N. KALE, V. N. KALE, V. N. KULKARNI, J. HIGGIND, C. LANCI, J. R. SIMPSON, N. D. BROWNING, S. DAS SARMA, H. D. DREW, R. L. GREENE, AND T. VENKASTAN, *Phys. Rev. Lett.*, **91**, p. 077205, (2003). **"High temperature ferromagnetism with a giant magnetic moment in transparent Co-doped SnO<sub>2-δ</sub>"**.
- [167] H. OHLDAG, V. SOLINUS, F. U. HILLEBRECHT, J. B. GOEDKOOP, M. FINAZZI, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, *Appl. Phys. Lett.*, **76**, p. 2928, (2000). **"Magnetic moment of Mn in the ferromagnetic semiconductor (Ga<sub>0.98</sub>Mn<sub>0.02</sub>)As"**.
- [168] H. OHNO, *Science*, **281**, p. 951, (1998). **"Making Nonmagnetic Semiconductors Ferromagnetic"**.
- [169] —, *J. Magn. Magn. Mat.*, **200**, p. 110, (1999). **"Properties of ferromagnetic III-V semiconductors"**.
- [170] —, **"Ferromagnetic III-V Semiconductors and their heterostructures"**, *Semiconductor spintronics and quantum computation*, D. D. AW-SCHALOM, D. LOSS, AND N. SARMATH, eds., p. 1, Springer, 2002.
- [171] H. OHNO, N. AKIBA, F. MATSUKURA, A. SHEN, K. OHTAANI, AND Y. OHNO, *Appl. Phys. Lett.*, **78**, p. 363, (1998). **"Spontaneous splitting of ferromagnetic (Ga,Mn)As valence band observed by resonant tunneling spectroscopy"**.
- [172] H. OHNO, D. CHIBA, F. MATSUKURA, T. OMIYA, E. ABE, T. DIETL, Y. OHNO, AND K. OHTANI, *Nature*, **408**, p. 944, (2000). **"Electric-field control of ferromagnetism"**.
- [173] H. OHNO, F. MATSUKURA, T. OMIYA, AND N. AKIBA, *J. Appl. Phys.*, **85**, p. 4277, (1999). **"Spin-dependent tunneling and properties of ferromagnetic (Ga,Mn)As"**.
- [174] H. OHNO, H. MUNEKATA, T. PENNY, S. VON MOLNÁR, AND L. L. CHANG, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, p. 2664, (1992). **"Magnetotransport Properties of p-type (In,Mn)As Diluted Magnetic III-V semiconductors"**.
- [175] H. OHNO, A. SHEN, F. MATSUKURA, A. OIWA, A. ENDO, S. KATSUMOTO, AND Y. IYE, *Appl. Phys. Lett.*, **69**, p. 363, (1996). **"(Ga,Mn)As : A new diluted magnetic semiconductor based on GaAs"**.
- [176] Y. OHNO, I. ARATA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, *Physica E*, **13**, p. 521, (2002). **"Valence band barrier at (Ga,Mn)As/GaAs interfaces"**.

- [177] Y. OHNO, R. TERAUCHI, T. ADACHI, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, Phys. Rev. Lett., **83**, p. 4196, (1999). **"Spin relaxation in GaAs(110) quantum wells"**.
- [178] Y. OHNO, D. K. YOUNG, B. BESCHOTEN, F. MATSUKURA, H. OHNO, AND D. D. AWSCHALOM, Nature, **402**, p. 790, (1999). **"Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure"**.
- [179] A. OIWA, S. KATSUMOTO, A. ENDO, M. HIRASAWA, Y. IYE, H. OHNO, F. MATSUKURA, A. SHEN, AND Y. SUGAWARA, Solid State Commun., **103**, p. 209, (1997). **"Nonmetal-metal-nonmetal transition and large negative magnetoresistance in(Ga,Mn)As/GaAs"**.
- [180] J. OKABATASHI, A. KIMURA, T. MIZOKAWA, A. FIJUMORI, T. HAYASHI, AND M. TANAKA, Phys. Rev. B, **59**, p. R2486, (1999). **"Mn 3d partial density of states in Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As studied by resonant photoemission spectroscopy"**.
- [181] J. OKABAYASHI, A. KIMURA, O. RADER, T. MIZOKAWA, A. FUJIMORI, T. HAYASHI, AND M. TANAKA, Phys. Rev. B, **58**, p. R4211, (1998). **"Core-level photoemission study of Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As"**.
- [182] J. OLIVIER, F. WYCZISK, R. BISARO, G. PADELETTI, AND J. NAGLE, 5th ECASIA, Catania, Italie, (1993).
- [183] M. E. OVERBERG, B. P. GILA, C. R. ABERNATHY, S. J. PEARTON, N. A. THEODOROPOULOU, K. T. MCCARTHY, S. B. ARNASON, , AND A. F. HEBARD, Appl. Phys. Lett., **79**, p. 3128, (2001). **"Magnetic properties of P-type GaMnP grown by molecular-beam epitaxy"**.
- [184] M. E. OVERBERG, B. P. GILA, G. T. THALER, C. R. ABERNATHY, S. J. PEARTON, N. A. THEODOROPOULOU, K. T. MCCARTHY, S. B. ARNASON, A. F. HEBARD, S. N. G. CHU, R. G. WILSON, J. M. ZAVADA, AND Y. D. PARK, J. vac. Sci. Technol. B, **20**, p. 969, (2002). **"Room temperature magnetism in GaMnP produced by both io implantation and molecular-beam epitaxy"**.
- [185] S. E. PARK, H.-J. LEE, Y. C. CHO, S.-Y. JEONG, C. R. CHO, AND S. CHO, Appl. Phys. Lett., **80**, p. 4187, (2002). **"Room-temperature ferromagnetism in Cr-doped GaN single crystals"**.
- [186] Y. D. PARK, A. T. HANBICKI, S. C. ERWIN, C. S. HELLBERG, J. M. SULLIVAN, J. E. MATTSON, T. AMBROSE, A. WILSON, G. SPANOS, AND B. T. JONKER, Science, **295**, p. 651, (2002). **"A group-IV ferromagnetic semiconductor : Mn<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub>"**.
- [187] Y. D. PARK, A. T. HANBICKI, J. E. MATTSON, AND B. T. JONKER, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 1471, (2002). **"Epitaxial growth of an n-type ferromagnetic semiconductor CdCr<sub>2</sub>Se<sub>4</sub> on GaAs (001) and GaP (001)"**.

- [188] Y. D. PARK, A. WILSON, A. T. HANBICKI, J. E. MATTSON, T. AMBROSE, G. SPANOS, AND B. T. JONKER, *Appl. Phys. Lett.*, **78**, p. 2739, (2001). **"Magnetoresistance of Mn :Ge ferromagnetic nanoclusters in a diluted magnetic semiconductor matrix"**.
- [189] S. J. PEARTON, C. R. ABERNATHY, M. E. OVERBERG, G. T. THALER, D. P. NORTON, N. THEODOROPOULOU, A. F. HEBARD, Y. D. PARK, F. REN, J. KIM, AND L. A. BOATNER, *J. Appl. Phys.*, **93**, p. 1, (2003). **"Wide band gap ferromagnetic semiconductors and oxides"**.
- [190] S. J. PEARTON, C. R. ABERNATHY, G. T. THALER, R. M. FRAZIER, D. NORTON, F. REN, Y. D. PARK, J. M. ZAVADA, I. A. BUYANOVA, W. M. CHEN, AND A. F. HEBARD, *J. Phys. : Condens. Matter*, **16**, p. R209, (2004). **"Wide bandgap GaN-based semiconductors for spintronics"**.
- [191] S. J. PEARTON, M. E. OVERBERG, C. R. ABERNATHY, N. A. THEODOROPOULOU, A. F. HEBARD, S. N. G. CHU, A. OSINSKY, V. FUFLYGIN, L. ZHU, A. Y. POLYAKOV, AND R. G. WILSON, *J. Appl. Phys.*, **92**, p. 2047, (2002). **"Magnetic and structural characterization of Mn-implanted, single-crystal ZnGeSiN<sub>2</sub>"**.
- [192] S. J. PEARTON, M. E. OVERBERG, G. THALER, C. R. ABERNATHY, N. A. THEODOROPOULOU, A. F. HEBARD, S. N. G. CHU, R. G. WILSON, J. M. ZAVADA, A. Y. POLYAKOV, A. OSINSKY, P. E. NORRIS, P. P. CHOW, A. M. WOWCHACK, J. M. VAN HOVE, AND Y. D. PARK, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **20**, p. 721, (2002). **"Characterization of High dose Mn, Fe, and Ni implantation into p-GaN"**.
- [193] S. J. POTASHNIK, K. C. KU, S. H. CHUN, J. J. BERRY, N. SAMARTH, AND P. SCHIFFER, *Appl. Phys. Lett.*, **79**, p. 1495, (2001). **"Effects of annealing time on defect-controlled ferromagnetism in Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As"**.
- [194] S. J. POTASHNIK, K. C. KU, S. H. CHUN, R. F. WANG, M. B. STONE, N. SAMARTH, AND P. SCHIFFER, *J. Appl. Phys.*, **93**, p. 6784, (2003). **"Coercive Field and Magnetization Deficit in Ga(1-x)Mn(x)As Epilayers"**.
- [195] S. J. POTASHNIK, K. C. KU, R. MAHENDIRAN, S. H. CHUN, R. F. WANG, N. SAMARTH, AND P. SCHIFFER, *Phys. Rev. B*, **66**, p. 012408, (2002). **"Saturated ferromagnetism and magnetization deficit in optimally annealed Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As epilayers"**.
- [196] W. PRELLIER, A. FOUCHET, AND B. MERCEY, *J. Phys. : Condens. Matter*, **15**, p. R1583, (2003). **"Oxide-diluted magnetic semiconductors : a review of the experimental status"**.
- [197] G. A. PRINZ, *J. Magn. Magn. Matter*, **294**, p. 1488, (2001). **"Magnetoelectronics applications"**.

- [198] M. RAMSTEINER, H. Y. HAO, A. KAWAHARAZUKA, H. J. ZHU, M. KASTNER, R. HEY, L. DAWERITZ, H. T. GRAHN, AND K. H. PLOOG, Phys. Rev. B, **66**, p. 081304, (2002). **"Electrical spin injection from ferromagnetic MnAs metal layers into GaAs"**.
- [199] E. I. RASHBA, Phys. Rev. B., **62**, p. R16267, (2000). **"Theory of electrical spin injection : Tunnel contacts as a solution of the conductivity mismatch problem"**.
- [200] M. L. REED, N. A. EL-MASRY, H. H. STADELMAIER, M. K. RITUMS, M. J. REED, C. A. PARKER, J. C. ROBERTS, AND S. M. BEDAIR, Appl. Phys. Lett., **79**, p. 3473, (2001). **"Room temperature ferromagnetic properties of (Ga,Mn)N"**.
- [201] K. RODE, A. ANANE, R. MATTANA, J.-P. CONTOUR, O. DURAND, AND R. LEBOURGEOIS, J. Appl. Phys., **93**, p. 7676, (2003). **"Magnetic semiconductors-based on cobalt substituted ZnO"**.
- [202] P. ROUSSIGNOL, P. ROLLAND, R. FERREIRA, C. DELALANDE, G. BASTARD, A. VINTTIERI, J. MARTINEZ-PASTOR, L. CARRARESI, M. COLLOCCI, J. F. PALMIER, AND B. ETIENNE, Phys. Rev. B, **46**, p. 7292, (1992). **"Hole polarization and slow hole-spin relaxation in a n-doped quantum-well structure"**.
- [203] J. SADOWSKI, R. MATHIEU, P. SVEDLINDH, J. Z. DOMAGALA, J. BAK-MISIUK, K. SWIATEK, M. KARLSTEEN, J. KANSKI, L. ILVER, H. ASKLUND, AND U. SODERVALL, Appl. Phys. Lett., **78**, p. 3271, (2001). **"Structural and magnetic properties of GaMnAs layers with high Mn-content grown by migration-enhanced epitaxy on GaAs(100) substrates"**.
- [204] H. SAEKI, H. TABATA, AND T. KAWAI, Solid State communications, **120**, p. 439, (2001). **"Magnetic and electric properties of vanadium doped ZnO films"**.
- [205] H. SAITO, V. ZAYETS, Y. SUZUKI, AND K. ANDO, J. Appl. Phys., **91**, p. 8085, (2002). **"Ferromagnetism in II-VI diluted magnetic semiconductor  $Zn_{1-x}Cr_xTe$ "**.
- [206] H. SAITO, V. ZAYETS, S. YAMAGATA, AND K. ANDO, Phys. Rev. B, **66**, p. 081201, (2002). **"Magneto-optical studies of ferromagnetism in the II-VI diluted magnetic semiconductor  $Zn_{1-x}Cr_xTe$ "**.
- [207] ———, Phys. Rev. Lett., **90**, p. 207202, (2003). **"Room-temperature ferromagnetism in II-VI diluted magnetic semiconductor  $Zn_{1-x}Cr_xTe$ "**.
- [208] L. M. SANDRATSKII AND P. BRUNO, Phys. Rev. B, **66**, p. 134435, (2002). **"Exchange interactions and Curie temperature in (Ga,Mn)As"**.

- [209] S. SANVITO AND N. A. HILL, Appl. Phys. Lett, **78**, p. 3493, (2001). **"Influence of the local As antisite distribution on ferromagnetism in (Ga,Mn)As"**.
- [210] S. SANVITO, P. ORDEJON, AND N. A. HILL, Phys. Rev. B, **63**, p. 165206, (2001). **"First-principle study of the origin and nature of ferromagnetism in  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ "**.
- [211] S. SANVITO, G. THEURICH, AND N. A. HILL, (cond-mat/0111300) Journal of Superconductivity : Incorporating Novel Magnetism, **15**, p. 85, (2002). **"Density functional calculations for III-V diluted ferromagnetic semiconductors : A Review"**.
- [212] K. SATO, G. A. MEDVEDKIN, T. NISHI, Y. HASEGAWA, R. MISAWA, K. HIROSE, AND T. ISHIBASHI, J. Appl. Phys., **89**, p. 7027, (2001). **"Ferromagnetic phenomenon revealed in the chalcopyrite semiconductor  $\text{CdGeP}_2$  :Mn"**.
- [213] M. SAWICKI, F. MATSUKURA, T. DIETL, G. M. SCHOTT, C. RUESTER, G. SCHMIDT, L. W. MOLENKAMP, AND G. KARCZEWSKI, Journal of Superconductivity : Incorporating Novel Magnetism, **16**, p. 7, (2003). **"Temperature peculiarities of magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As : The role of the hole concentration"**.
- [214] G. SCHMIDT, D. FERRAND, L. W. MOLENKAMP, A. T. FILIP, AND B. J. VAN WEES, Phys. Rev. B, **62**, p. R4790, (2000). **"Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor"**.
- [215] G. SCHMIDT AND L. W. MOLENKAMP, Semincond. Sci. Techno., **17**, p. 310, (2002). **"spin injection into semiconductors, physics and experiments"**.
- [216] J. SCHNEIDER, U. KAUFMANN, W. W. M. BAEUMLER, AND F. KOHL, Phys. Rev. Lett, **59**, p. 240, (1987). **"Electronic structure of the neutral manganese acceptor in gallium arsenide"**.
- [217] G. M. SCHOTT, W. FASCHINGER, AND L. W. MOLENKAMP, Appl. Phys. Lett., **79**, p. 1807, (2001). **"Lattice constant variation and complex formation in zinblende gallium manganese arsenide"**.
- [218] G. M. SCHOTT, G. SCHMIDT, G. KARCZEWSKI, L. W. MOLENKAMP, R. JAKIELA, A. BARCZ, AND G. KARCZEWSKI, Appl. Phys. Lett., **82**, p. 4678, (2003). **"Influence of growth conditions on the lattice constant and composition of (Ga,Mn)As"**.
- [219] S. A. SCHWARTZ, C. HELMS, W. SPICER, AND N. TAYLOR, Report NBS.SP.400.67, **Nat. B. Stand.**, (1981).
- [220] P. SENEOR, Thèse de l'Ecole Polytechnique, (2000). **"Jonction tunnel à base d'oxydes magnétiques demi-métalliques"**.



- [221] A. SHEN, F. MATSUKURA, S. P. GUO, Y. SUGAWARA, H. OHNO, M. TANI, H. ABE, AND H. C. LIU, *J. Cryst. Growth*, **201/202**, p. 679, (1999). "**Low-temperature molecular beam epitaxy growth of GaAs and (Ga,Mn)As**".
- [222] A. SHEN, H. OHNO, F. MATSUKURA, Y. SUGAWARA, N. AKIBA, T. KUROIWA, A. OIWA, A. ENDO, S. KATSUMOTO, AND Y. IYE, *J. Cryst. Growth*, **175/176**, p. 1069, (1997). "**Epitaxy of (Ga,Mn)As, a new diluted magnetic semiconductor based on GaAs**".
- [223] H. SHIMIZU, T. HAYASHI, T. NISHINAGA, AND M. TANAKA, *Appl. Phys. Lett.*, **74**, p. 398, (1999). "**Magnetic and transport properties of III-V based magnetic semiconductor (GaMn)As : Growth condition dependence**".
- [224] R. SHIODA, K. ANDO, T. HAYASHI, AND M. TANAKA, *Phys. Rev. B*, **58**, p. 1100, (1998). "**Local structures of III-V diluted magnetic semiconductors Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As studied using extended x-ray absorption fine structure**".
- [225] J. SLONCZEWSKI, *J. Magn. Magn. Mater.*, **159**, pp. 1–L1, (1996). "**Current-driven excitation of magnetic multilayers**".
- [226] S. SONODA, H. HORI, Y. YAMAMOTO, T. SASAKI, M. SATO, S. SHIMIZU, K. ICHI SUGA, AND K. KINDO, (cond-mat/0205560) *IEEE T. Magn.*, **38**, p. 2959, (2002). "**Properties of Ferromagnetic Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>N Films Grown by Ammonia-MBE**".
- [227] S. SONODA, S. SHIMIZU, T. SASAKI, Y. YAMAMOTO, AND H. HORI, *Journal of Crystal Growth*, **237**, p. 1358. "**Molecular beam epitaxy of wurtzite (Ga,Mn)N films on sapphire (0001) showing the ferromagnetic behaviour at room temperature**".
- [228] B. S. SORENSEN, P. E. LINDELOF, J. SADOWSKI, R. MATHIEU, AND P. SVEDLINDH, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, p. 2287, (2003). "**Effect of annealing on carrier density and Curie temperature in epitaxial (Ga,Mn)As thin films**".
- [229] P. A. STAMPE, R. J. KENNEDY, Y. XIN, AND J. S. PARKER, *J. Appl. Phys.*, **92**, p. 7114, (2002). "**Investigation of the cobalt distribution in TiO<sub>2</sub>:Co thin films**".
- [230] R. P. V. STAPELE, "**Sulphospinel**", *Ferromagnetic materials : A handbook on the properties of magnetically ordered substances*, E. P. WOHLFARTH, ed., **Vol. 3**, p. 603, North-Holland, 1982.
- [231] M. STELLMACHER, R. BISARO, P. GALTIER, J. NAGLE, AND K. KHIROUNI, *Semicond. Sci. Technol.*, **16**, p. 440, (2001). "**Defects and defect behaviour in GaAs grown at low temperature**".

- [232] M. B. STONE, K. C. KU, S. J. POTASHNIK, B. L. SHEU, N. SAMARTH, AND P. SCHIFFER, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, p. 4568, (2003). "**Capping-induced suppression of annealing in Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As Epilayers**".
- [233] R. STRATTON, *J. Phys. Chem. Solids*, **23**, p. 1177, (1962). "**Volt-Current characteristics for tunneling through insulating films**".
- [234] J. SZCZYTKO, W. MAC, A. TWARDOWSKI, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, *Phys. Rev. B*, **59**, p. 12935, (1999). "**Antiferromagnetic p-d exchange in ferromagnetic Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As epilayers**".
- [235] J. SZCZYTKO, A. TWARDOWSKI, K. SWIATEK, M. PALCZEWSKA, M. TANAKA, T. HAYASHI, AND K. ANDO, *Phys. Rev. B*, **60**, p. 8304, (1999). "**Mn impurity in Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As epilayers**".
- [236] S. TAKAHASHI AND S. MAEKAWA, *Phys. Rev. B*, **67**, p. 052409, (2003). "**Spin injection and detection in magnetic nanostructures**".
- [237] K. TAKAMURA, F. MATSUKURA, D. CHIBA, AND H. OHNO, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 2590, (2002). "**Magnetic properties of (Al,Ga,Mn)As**".
- [238] M. TANAKA AND Y. HIGO, *Phys. Rev. Lett.*, **87**, p. 026602, (2001). "**Large Tunneling Magnetoresistance in GaMnAs/AlAs/GaMnAs Ferromagnetic Semiconductor Tunnel Junctions**".
- [239] ———, *Physica E*, **10**, p. 292, (2001). "**Tunneling magnetoresistance in GaMnAs/AlAs/GaMnAs ferromagnetic semiconductor heterostructure**".
- [240] M. TANAKA, H. SHIMIZU, T. HAYASHI, H. SHIMADA, AND K. ANDO, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **18**, p. 1247, (2000). "**Ferromagnetic semiconductor heterostructures based on (Ga,Mn)As**".
- [241] G. T. THALER, M. E. OVERBERG, B. GILA, R. FRAZIER, C. R. ABERNATHY, S. J. PEARTON, J. S. LEE, S. Y. LEE, Y. D. PARK, Z. G. KHIM, J. KIM, AND F. REN, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, p. 3964, (2002). "**Magnetic properties of n-GaMnN thin films**".
- [242] N. THEODOROPOULOU, A. F. HEBARD, S. N. G. CHU, M. E. OVERBERG, C. R. ABERNATHY, S. J. PEARTON, R. G. WILSON, J. M. ZAVADA, AND Y. D. PARK, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **20**, p. 579, (2002). "**Magnetic and structural properties of Fe, Ni and Mn-implanted SiC**".
- [243] N. THEODOROPOULOU, A. F. HEBARD, S. N. G. CHU, M. E. OVERBERG, C. R. ABERNATHY, S. J. PEARTON, R. G. WILSON, AND J. M. ZAVADA, *Electrochemical and Solid-State Letters*, **4**, p. 119, (2001). "**Magnetic properties of Fe- and Mn-implanted SiC**".
- [244] N. THEODOROPOULOU, A. F. HEBARD, M. E. OVERBERG, C. R. ABERNATHY, S. J. PEARTON, S. N. G. CHU, AND R. G. WILSON, *Phys. Rev. Lett.*, **89**, p. 107203, (2002). "**Unconventional Carrier-Mediated**".

- Ferromagnetism above Room Temperature in Ion-Implanted (Ga, Mn)P :C".**
- [245] C. TIMM, F. SCHAFER, AND F. VON OPPEN, Phys. Rev. Lett., **89**, p. 137201, (2002). **"Correlated Defects, Metal-Insulator Transition, and Magnetic Order in Ferromagnetic Semiconductors"**.
- [246] T. TSURUOKA, N. TACHIKAWA, S. USHIODA, F. MATSUKURA, K. TAKAMURA, AND H. OHNO, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 2800, (2002). **"Local electronic structures of GaMnAs observed by cross-sectional scanning tunneling microscopy"**.
- [247] E. Y. TSYMBAL, O. N. MRYASOV, AND P. R. LECLAIR, J. Phys. : Condens. Matter, **15**, p. 109, (2003). **"Spin-dependent tunnelling in magnetic tunnel junctions"**.
- [248] K. UEDA, H. TABATA, AND T. KAWAI, Appl. Phys. Lett, **79**, p. 988, (2001). **"Magnetic and electric properties of transition-metal-doped ZnO films"**.
- [249] S. UEDA, S. IMADA, T. MURO, Y. SAITOH, S. SUGA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, Physica E, **10**, p. 210, (2001). **"Magnetic circular dichroism in Mn 2p core absorption of Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As"**.
- [250] T. UENOYAMA AND L. J. SHAM, Phys. Rev. B, **42**, p. 7114, (1990). **"Carrier relaxation and luminescence polarization in quantum wells"**.
- [251] T. VALET AND A. FERT, Phys. Rev. B, **48**, p. 7099, (1993). **"Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers"**.
- [252] P. VAN DORPE, Z. LIU, W. VAN ROY, V. F. MOTSYNYI, G. BORGHS, AND J. DEBOECK, **"50% electron spin polarization in GaAs by injection from (Ga,Mn)As Zener diode"**, in Spintech II International Conference and School, 2003.
- [253] P. VAN DORPE, V. F. MOTSYNYI, M. NIJBOER, E. GOOVAERTS, V. I. SAFAROV, J. DAS, W. VAN ROY, G. BORGHS, AND J. DE BOECK, Jpn. J. Appl. Phys, **52**, p. L502, (2003). **"Highly efficient room temperature spin injection in a metal-insulator-semiconductor light emitting diode"**.
- [254] A. VAN ESCH, L. VAN BOCKSTAL, J. DE BOEK, G. VERBANCK, A. S. VAN STEENBERGEN, P. J. WELLMANN, B. GRIETENS, R. BOGAERTS, F. HERLACH, AND G. BORGHS, Phys. Rev. B, **56**, p. 13103, (1997). **"Interplay between the magnetic and transport properties in the III-V diluted magnetic semiconductors Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As"**.
- [255] L. VINA, J. Phys. : Condens. Matter, **11**, p. 5929, (1999). **"Spin relaxation in low-dimensional systems"**.

- [256] P. WACHTER, *Critical Reviews in Solid State Sciences*, p. 189, (July 1972). **"The optical electrical and magnetic properties of the europium chalcogenides and the rare earth pnictides"**.
- [257] X. WAN AND R. N. BHATT, *cond-mat/0009161*, (2000). **"Ferromagnetism in Insulating, Doped Diluted Magnetic Semiconductors"**.
- [258] K. Y. WANG, K. W. EDMONDS, R. P. CAMPION, L. X. ZHAO, A. C. NEUMANN, C. T. FOXON, B. L. GALLAGHER, P. C. MAIN, AND C. H. MARROWS, *cond-mat/0211697*, **2002**. **"Anisotropic Magnetoresistance in  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  films"**.
- [259] T. WEIL AND B. VINTER, *Appl. Phys. Lett.*, **50**, p. 1281, (1987). **"Equivalence between resonant tunneling and sequential tunneling in double-barrier diodes"**.
- [260] U. WELP, V. K. VLASKO-VLASOV, X. LIU, J. K. FURDYNA, AND T. WOJTOWICZ, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, p. 167206, (2003). **"Magnetic domain structure and magnetic anisotropy in  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ "**.
- [261] R. WESSEL AND M. ALTARELLI, *Phys. Rev. B*, **39**, p. 12802, (1989). **"Resonant tunneling of holes in double-barrier heterostructures in the envelope-function approximation"**.
- [262] T. WIRTH, Thèse de l'Ecole Polytechnique, (2000). **"Étude du transport d'électrons polarisés en spin dans des hétéro-structures métal ferromagnétique/semi-conducteur pour l'obtention de nouveaux composants électroniques"**.
- [263] S. A. WOLF, D. D. AWSCHALOM, R. A. BUHRMAN, J. M. DAUGHTON, S. VON MOLNAR, M. L. ROUKES, A. Y. CHITCHELKANOVA, AND D. M. TREGER, *Science*, **294**, p. 1488, (2001). **"Spintronics : A Spin-Based Electronics Vision for the Future"**.
- [264] S. Y. WU, H. X. LIU, L. GU, R. K. SINGH, L. BUDD, M. VAN SCHILFGAARDE, M. R. MCCARTNEY, D. J. SMITH, AND N. NEWMAN, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, p. 3047, (2003). **"Synthesis, characterization, and modeling of high quality ferromagnetic Cr-doped AlN thin films"**.
- [265] Y. YAFET, *Solid State Physics*, Academic, New York, **Vol. 14**, pp. 1–98, 963.
- [266] M. YAMADA, K. ONO, M. MIZUGUCHI, J. OKABAYASHI, M. OSHIMA, M. YURI, H. J. LIN, H. H. HSIEH, C. T. CHEN, AND H. AKINAGA, *J. Appl. Phys.*, **91**, p. 7908, (2002). **"Growth of ferromagnetic semiconductor :  $(\text{Ga,Cr})\text{As}$ "**.
- [267] S. G. YANG, A. B. PAKHOMOV, S. T. HUNG, AND C. Y. WONG, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, p. 2418, (2002). **"Room-temperature magnetism in Cr-doped AlN semiconductor films"**.

- [268] D. K. YOUNG, E. JOHNSTON-HALPERIN, D. D. AWSCHALOM, Y. OHNO, AND H. OHNO, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, p. 1598, (2002). "**Anisotropic electrical spin injection in ferromagnetic semiconductor heterostructures**".
- [269] K. M. YU, W. WALUKIEWICZ, T. WOJTOWICZ, I. KURLISZYN, X. LIU, Y. SASAKI, AND J. K. FURDYNA, *Phys. Rev. B*, **65**, p. 201303, (2002). "**Effect of the location of Mn sites in ferromagnetic Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As on its Curie temperature**".
- [270] S. YUASA, T. SATO, E. TAMURA, Y. S. H. YAMAMORI, K. ANDO, AND T. KATAYAMA, *Europhys. Lett*, **52**, p. 344, (2000). "**Magnetic tunnel junctions with single-crystal electrodes : A crystal anisotropy of tunnel magneto-resistance**".
- [271] M. ZAJAC, R. DORADZINSKI, J. GOSK, J. SZCZYTKO, M. LEFELD-SOSNOWSKA, M. KAMINSKA, A. TWARDOWSKI, M. PALCZEWSKA, E. GRZANKA, AND W. GEBICKI, *Appl. Phys. Lett.*, **78**, p. 1276, (2001). "**Magnetic and optical properties of GaMnN magnetic semiconductor**".
- [272] C. ZENER, *Phys. Rev.*, **81**, p. 440, (1951). "**Interaction between the d shells in the transition metals**".
- [273] ———, *Phys. Rev.*, **83**, p. 299, (1951). "**Interaction between the d shells in the transition metals. III. Calculations of the Weis factor in Fe, Co, and Ni**".
- [274] K. ZERROUATI, F. FABRE, C. JACQUET, J. BANDET, AND J. FRANDON, *Phys. Rev. B*, **37**, p. 1334, (1988). "**Spin lattice relaxation in p-type gallium arsenide single crystals**".
- [275] S. ZHANG, P. M. LEVY, A. C. MARLEY, AND S. S. P. PARKIN, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, p. 3744, (1997). "**Quenching of magnetoresistance by hot electrons in magnetic tunnel junctions**".
- [276] Y.-J. ZHAO, W. GENG, K. PARK, AND A. FREEMAN, *Phys. Rev. B*, **64**, p. 035207, (2001). "**Electronic and magnetic properties of Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As : Role of Mn defect bands**".
- [277] Y. J. ZHAO, S. PICOZZI, A. CONTINENZA, W. T. GENG, AND J. FREEMAN, *Phys. Rev. B*, **65**, p. 094415, (2002). "**Possible impurity-induced ferromagnetism in II-Ge-V<sub>2</sub> chalcopyrite semiconductors**".
- [278] Y.-J. ZHAO, T. SHISHIDOU, AND A. J. FREEMAN, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, p. 047204, (2003). "**Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida-like Ferromagnetism in Mn<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub>**".
- [279] H. J. ZHU, M. RAMSTEINER, H. KOSTIAL, M. WASSERMEIER, H.-P. SCHÖNHERR, AND K. H. PLOOG, *Phys. Rev. Lett.*, **87**, p. 016601, (2001). "**Room-Temperature Spin Injection from Fe into GaAs**".

- [280] M. ZIESE, (cond-mat/0111263) Rep. Prog. Phys., **65**, pp. 143–249, (2002).  
**"Extrinsic Magnetotransport Phenomena in Ferromagnetic Oxides"**.







### **Transport polarisé en spin dans des nanostructures semiconductrices**

Cette thèse s'inscrit dans la thématique de l'électronique de spin à base de semiconducteurs. L'intégration de matériaux magnétiques dans des structures semiconductrices représentent actuellement un axe de recherche en plein essor qui amènera probablement une nouvelle génération de composants électroniques où seront associés deux degrés de liberté : la charge et le spin des porteurs. La finalité de ce travail est la détection électrique d'une injection de spins dans un puits de GaAs.

Pour cela nous avons préalablement étudié des couches minces du semiconducteur ferromagnétique GaAs substitué Mn et des jonctions tunnel magnétiques GaMnAs/AlAs/GaMnAs. L'étude des couches minces de GaMnAs a permis de mettre en évidence la corrélation entre les propriétés magnétiques et électroniques et les jonctions tunnel ont permis de quantifier la polarisation en spin des porteurs du GaMnAs. Nous avons ensuite élaboré des structures où deux électrodes de GaMnAs sont séparées par un puits quantique AlAs/GaAs/AlAs. La première électrode permet de polariser les porteurs et la seconde d'analyser le courant polarisé en spin injecté dans le puits.

La magnétorésistance (MR) dans ces structures est attribuée à un transport tunnel séquentiel avec accumulation de spins dans le puits de GaAs. La forte MR obtenue (40%) est la signature de la conservation du spin dans le puits et traduit ainsi que le temps de vie du spin des trous est supérieur au temps de séjour des trous dans ce puits. Les études de la MR en fonction de ces deux temps caractéristiques ont permis d'établir les conditions nécessaires afin de détecter une injection de spins dans un puits quantique semiconducteur. Ces expériences entièrement électriques ont aussi permis d'estimer le temps de vie du spin des trous dans ces puits de GaAs à la centaine de picosecondes à 4K.

### **Spin polarized transport in semiconductor nanostructures**

In the field of spin-electronic, the integration of magnetic materials in semiconductor heterostructures is promising for a new generation of electronic devices where two degrees of freedom will be associated : spin and charge of carriers. The outcome of this thesis is an electrical detection of spin injection into a GaAs quantum well. In order to do so, we have first studied thin films of the ferromagnetic semiconductor GaAs doped Mn and GaMnAs-based magnetic tunnel junctions.

Magnetic and transport studies on GaMnAs thin films have shown that the magnetic and electronic properties are intimately connected. The spin polarization of carriers (40%) has been established from the magnetoresistance (MR) of the magnetic tunnel junction. Then we have elaborated heterostructures where two GaMnAs electrodes are separated by an AlAs/GaAs/AlAs quantum well. The first GaMnAs ferromagnetic electrode is used to polarize the carriers and the second to analyze the spin-polarized current injected in the quantum well.

The MR, in these structures, is attributed to a sequential tunneling with a spin accumulation in the GaAs well. The high MR obtained (40%) is the signature of the spin conservation in the well. The spin lifetime is therefore longer than the particle dwell time (time spent by the hole in the well). We have studied the influence of these two times on the MR. These studies have allowed us to establish required conditions to achieve an electrical detection of spins injected in a semiconductor quantum well. These all-electrical experiments have also allowed us to determine the spin lifetime of holes in a GaAs quantum well. Hole spin lifetime in these GaAs quantum well is longer than hundred picoseconds at 4K.