HAL
open science

Magnétorésistances et transfert de spin dans des hétérostructures tunnel à base de (Ga,Mn)As

Marc Elsen

To cite this version:

Marc Elsen. Magnétorésistances et transfert de spin dans des hétérostructures tunnel à base de (Ga,Mn)As. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2007. Français. NNT : . tel-00151311

HAL Id: tel-00151311

https://theses.hal.science/tel-00151311

Submitted on 3 Jun 2007

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.

THESE

présentée
pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITE PARIS VI

Discipline : Sciences des matériaux

PAR

Marc Elsen

Sujet de la thèse :

Magnétorésistances et transfert de spin dans des hétérostructures tunnel à base de (Ga,Mn)As

soutenue le 30 janvier 2007 devant le jury composé de :

Mr Joël Cibert	rapporteur
Mr Henri-Jean Drouhin	
Mr Albert Fert	directeur de thèse
Mr Jean-Marie George	
Mr William Sacks	président du jury
Mr Georg Schmidt	
Mr Michel Viret	rapporteur

Remerciements

Tout d'abord, je remercie Joel Cibert et Michel Viret d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse, William Sacks d'en avoir assuré la présidence et Henri-Jean Drouhin et Georg Schmidt d'avoir participé au jury.

Je remercie Alain Friederich, directeur de l'Unité Mixte de Physique CNRS THALES-UMR 137, de m'avoir accueilli dans son laboratoire et de m'avoir permis de faire cette thèse. A ce propos, je tiens à remercier le CNRS et THALES d'avoir soutenu financièrement ce travail de thèse.

Après une introduction à la résonance paramagnétique de spin par Philippe Monod (ESPCI) lors de mon stage de magistère et un stage bibliographique sur les processus de relaxation de spin dans les semiconducteurs avec Robson Ferreira (ENS), choisir l'électronique de spin comme thème de recherche s'avérait comme une évidence. La rencontre avec Albert Fert et toute l'équipe du laboratoire lors du stage de DEA Sciences des Materiaux a conforté mon souhait de m'engager dans cette thèse.

Pour avoir accepté d'être mon directeur de thèse, pour tous ses conseils durant ces 3 derniers ans, pour sa sympathie et pour son aide à l'écriture d'articles, je tiens à adresser un énorme merci à Albert Fert.

Pour avoir co-encadré ma thèse, j'aimerai particulièrement remercier Jean-Marie George. Sa porte de bureau étant toujours grande ouverte, il a été d'un énorme soutien. Nombreuses furent les discussions tant à la machine à café que devant des tableaux barbouillés d'équations et de protocoles expérimentaux. Je pouvais toujours compter sur lui : mes premiers pas en lithographie, les courbes expérimentales incompréhensibles, la correction de cette thèse. . .MERCI.

Et puis, ce manuscrit a profité du talent et de la relecture attentive de Henri Jaffrès, brillant " terreuricien ", Il a été mon maître quand j'ai basculé du côté espace réciproque pour me battre contre les surfaces de Fermi. J'ai également partagé de nombreux souvenirs avec mon voisin durant ces trois dernières années en dehors du travail : des discussions en voiture (surtout lors du trajet Paris-Banyuls), le Movie's Pub à Zaghreb, Giovanni Mirabassi, les quelques soirées foot (en première année) en compagnie de Manolo et Vincent C. J'en profite pour saluer ces deux derniers et les

remercier pour les soirées qu'ils m'ont fait vivre tant à l'extérieur que chez eux.

Cette thèse de (Ga,Mn)As n'aurait sûrement pas été la même sans les conseils judicieux de Richard Mattana. J'espère que les bonnes soirées de la Butte aux Cailles continueront et que son nouvel appartement restera situé dans le quartier.

A mon plus grand désarroi, j'ai été contraint de prendre l'avion durant cette thèse pour parcourir un peu le monde et, Dieu sait à quel point je n'aime pas ça ! Seul Vincent peut comprendre ce que j'ai enduré ! Ayant finalement survécu aux décollages et aux atterrissages, j'ai heureusement ramené des souvenirs inoubliables de ces voyages :

- La conférence MMM à San José, suivie d'un court séjour à San Francisco et d'un périple à Yosemite avec Olivier, Gervasi et Anne. Je me souviendrai longtemps de la recherche d'un hotel par internet en voiture avec l'ordinateur portable de Gervasi et de la difficulté de capter un signal Wifi...

- La conférence PASPS IV à Sendai, en compagnie de la spécialiste niponne du laboratoire, Anne. La découverte de Tokyo fût impressionnante : marché de poissons, quartiers de Shibuya et Shinjuku, cérémonie de thé vert (excellentissime).

- Le séjour de deux semaines à l'université de Zagreb dont j'aimerai remercier l'équipe toute entière pour son hospitalité : Amir, Emil et Mario. J'ai fait l'expérience qu'il est effectivement possible de travailler un samedi soir dans un laboratoire.

Pour avoir réalisé la croissance des échantillons mesurés dans cette thèse, un énorme merci à Aristide Lemaitre. Pour les recuits des différents échantillons, je tiens à remercier Laura Thevenard. Enfin, même si les échantillons n'ont pas donné de résultats, je tiens à remercier Bruno Lépine et Denis Scalbert qui m'ont très bien accueilli pour un court séjour dans leur laboratoire respectif.

Tous mes remerciements s'adressent également à tous les autres membres du laboratoire qui ont su répondre à mes questions et qui contribuent à la bonne ambiance de l'équipe : Pierre, Madjid, Agnès, Cyril, Annie, Jean-Pierre, Karim, Stef, Eric, Javier, Denis, Jean-Luc, Yuan, Rozenn et Julie. Je les remercie pour leurs conseils, Frédéric Petroff et Frédéric N'Guyen Van Dau (je n'ai pas oublié le petit verre offert dans l'avion Paris-Nice).

Bien sûr, je n'oublie pas tous les autres jeunes du labo avec qui j'ai passé la totalité ou une partie de ma thèse : Vincent (quel plaisir de travailler avec toi en salle litho), Karsten, Martin, Guillemin, Nathalie, Hélène (merci pour les mille articles que tu m'as envoyés), Sana, Sabrina. Pour ceux qui viennent tout juste de commencer leur thèse, je leur souhaite bonne réussite dans leur travaux : Benoît, Michael (héritier de

(Ga,Mn)As) et Olivier.

Finalement je remercie les deux femmes les plus importantes de l'Unité Mixte de Physique : Danièle pour tous ses conseils en lithographie et Nelly pour avoir fait face à tous nos caprices.

Durant ces trois dernières années je n'ai pas seulement campé au labo. Je tenais donc à remercier tous ceux qui m'ont rendu les soirées et les week-ends plus agréables : Laurent et Luc, Yves, Philippe, Fabrice, Kim, Michèle ainsi que ceux qui ont croisé ma route à la Fondation Biermans-Lapôtre, je pense notamment à Jean-Paul, Stéphanie, Yaelle et Cédric.

Enfin je voudrai dire un énorme merci à ma famille : mes parents John et Maya pour m'avoir inculqué la valeur du travail et pour m'avoir laissé toutes les portes ouvertes tout en me soutenant financièrement et moralement, mes frères et sœur Danny, Claude et Georges pour leur soutien et leurs encouragements.

And last but not least, Emmanuelle, qui m'a accompagné ces deux dernières années dans les grands moments de bonheur, mais aussi dans les moments de doute. Quelle chance d'avoir croisé ta route !

Table des matières

1 Introduction au semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As : Interactions, structure électronique et propriétés magnétiques **7**
1.1 Le semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As 8
1.1.1 Structure cristalline du (Ga,Mn)As 8
1.1.2 (Ga,Mn)As : de l'atome de Mn isolé à la phase ferromagnétique 10
1.1.2.1 Impureté paramagnétique de manganèse (sans terme d'échange) 10
1.1.2.2 L'interaction anti-ferromagnétique p-d : inclusion du terme d'échange 12
1.1.2.3 Origine de la phase ferromagnétique 13
1.1.2.4 Description de la phase ferromagnétique 14
1.1.3 Structure de bandes du (Ga,Mn)As 17
1.1.3.1 Quelques notions de structure de bandes 17
1.1.3.2 Niveau de Fermi en fonction de la concentration de porteurs 18
1.1.3.3 Surfaces de Fermi du (Ga,Mn)As 18
1.2 Les propriétés magnétiques de (Ga,Mn)As en couche mince 23
1.2.1 Influence du recuit sur les couches minces de (Ga,Mn)As . . . 23
1.2.1.1 Influence de l'épaisseur et proximité de surface . . 24
1.2.1.2 Influence de la concentration de manganèse et de porteurs 25
1.2.2 Les effets d'anisotropie dans (Ga,Mn)As 27
1.2.2.1 Les champs d'anisotropie et dépendence en fonction de la densité 27
1.2.2.2 Evolution du champ coercitif 28
1.2.2.3 Une contribution d'anisotropie uniaxiale selon [110] supplémentaire 28
1.3 Propriétés de transport de (Ga,Mn)As en couche mince 30
1.3.1 Résistivité en fonction de la température 30
1.3.2 Détermination de la concentration des trous 31
1.3.3 Magnétorésistance anisotrope 33
1.4 Conclusion 34

2 Transport dépendant du spin dans des jonctions et hétérostructures tunnel : de la bande de conduction à la bande de valence 37
2.1 Effet tunnel dans la bande de conduction 38
2.1.1 Effet tunnel dépendant du spin 38
2.1.2 Modèle de Jullière 40
2.1.3 Modèle de Slonczewski 41
2.2 Effet tunnel dans la bande de valence 42
2.2.1 Modélisation d'une hétérostructure en théorie k.p 43
2.2.1.1 Définition et continuité de l'opérateur courant en théorie k.p 43
2.2.1.2 Méthode des matrices de transfert 45
2.3 Application au cas de jonctions tunnel intégrant (Ga,Mn)As 48
2.3.1 Effet de magnétorésistance tunnel (TMR) 48
2.3.2 Effet de magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR) 51
2.3.2.1 TAMR dans le plan 51
2.3.2.2 TAMR hors plan 53
2.3.2.3 Coexistence entre effet de TMR et de TAMR 56
2.3.3 Les limites du modèle 58

3 Transport de spin dans des jonctions tunnel GaMnAs/InGaAs/GaMnAs 61
3.1 Hétérostructures non recuites 62
3.1.1 Propriétés magnétiques 62
3.1.2 Caractéristiques des jonctions tunnel 64
3.1.3 La magnétorésistance tunnel (TMR) 67
3.1.3.1 Dépendance en température de la polarisation de spin 68
3.1.3.2 Dépendance en tension de la polarisation de spin . . 69
3.1.4 La magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR) 71
3.1.5 Effet du dopage dans (In,Ga)As 72
3.2 Hétérostructures recuites 73
3.2.1 Propriétés magnétiques 73
3.2.2 Spectroscopie Auger 76
3.2.3 Transport tunnel 77
3.2.3.1 Influence du recuit sur la magnétorésistance tunnel . 77
3.2.3.1.1 Dépendance de la magnétorésistance tunnel en température 78
3.2.3.1.2 Dépendance de la magnétorésistance tunnel en tension 80
3.2.3.2 Influence du recuit sur la magnétorésistance tunnel anisotrope 81
3.3 Modélisation des hétérostructures recuites et non-recuites 82
3.4 Conclusion 89

4 Magnétorésistance tunnel anisotrope dans des structures résonantes à barrière d'AlAs **93**
4.1 Simple barrière tunnel d'AlAs 94
4.1.1 Barrière élaborée à froid 94
4.1.2 Barrière élaborée à chaud 95
4.2 Double barrière tunnel résonante à barrière d'AlAs 96
4.2.1 Quelques rappels sur l'effet tunnel résonant 97
4.2.2 Résonance et conductance différentielle 100
4.2.3 Mesures de TAMR résonante 105
4.2.3.1 Expériences 105
4.2.3.2 Origine et modélisation 106

5 Transfert de spin dans des jonctions tunnel GaMnAs/InGaAs/GaMnAs **113**
5.1 Etat de l'art 115
5.1.1 Concept du transfert de spin 115
5.1.2 Les piliers de type CPP-GMR 116
5.1.3 Les piliers de type magnétorésistance tunnel 119
5.2 Les structures tunnel à base de (Ga,Mn)As 119
5.2.1 Renversement d'aimantation par transfert de spin 120
5.2.2 Signe et ordre de grandeur du courant critique 124
5.2.3 Comportement du courant critique en fonction du champ magnétique 127
5.3 Conclusion 129

A Introduction à la théorie k.p **135**
A.0.1 Absence de couplage spin-orbite 136
A.0.2 Présence de couplage de spin orbite 137
A.0.3 Couche simple de (Ga,Mn)As 139

B La lithographie optique **141**

Introduction

L'électronique de spin, à l'interface entre le magnétisme, la micro-électronique et la nanophysique est un domaine très prometteur de la physique d'aujourd'hui. Contrairement à l'électronique conventionnelle où l'information est transportée par la charge de l'électron, en électronique de spin, l'information est portée par le spin des porteurs. De nos jours ce concept est largement utilisé à travers les vannes de spin (de type CPP-GMR) pour les têtes de lecture de disque dur. Ces dernières années, l'activité de recherche s'est dirigée en grande partie vers l'étude de jonctions tunnel magnétiques. Celles-ci sont composées de deux couches ferromagnétiques, séparées par une couche isolante, suffisamment fine pour permettre le transport par effet tunnel. A l'écriture de ce manuscrit, Freescale annonce la commercialisation d'une première application de ce type de structures : les mémoires d'accès rapide non-volatiles ou MRAM (Magnetoresistive random-access memory) [1]. Actuellement le principe de MRAM se base sur l'écriture des informations par application d'un champ magnétique et donc une consommation en énergie encore assez grande. Afin de diminuer cette dernière, les premiers prototypes de STT-MRAM (Spin Transfer Torque-MRAM) de 4 kbits ont été développés par Sony : les informations sont alors écrites par l'application d'un courant polarisé en spin à travers un élément de mémoire de type magnétorésistance tunnel.

Un des enjeux majeurs dans l'électronique de spin du futur consiste à associer des matériaux magnétiques (ou de structures magnétorésistives) et de semiconducteurs classiques ayant la capacité de traiter des signaux électriques ou optiques. Cette idée n'est pas complètement nouvelle : Datta et Das ont proposé le modèle du transistor à précession de spin Spin FET (*Spin Field Effect Transistor*) en 1990, où les contacts de source et de drain ferromagnétiques sont destinés à injecter et détecter respectivement les porteurs polarisés en spin dans un canal semiconducteur [30]. Dans ce cas l'information du spin est manipulée à travers une tension de grille par effet Rashba. Au début les tentatives d'injection de spin à travers les contacts métal ferromagnétique/semiconducteur ont donné des résultats peu convaincants non seulement à cause des difficultés d'élaboration de telles structures, mais également parce que l'injection de spin dans un semi-conducteur à partir d'un métal se heurte à la différence des densités d'états et de longueur de diffusion de spin à l'interface des deux matériaux. Sur une structure latérale avec des contacts ferromagnétiques de type Schottky Fe/(Al,Ga)As, Crooker et al. [28] ont détecté récemment une accumulation de spin et l'injection de spin (5 à 10 %) dans le canal semiconducteur par imagerie Kerr [Fig. 1]. Dans le même type de structures (contact Schottky Fe/GaAs), Lou et al. ont mesuré électriquement une accumulation de spin de quelques 10 μV à l'interface [85]. Ces dernières

[1] Même si elle a une capacité de stockage très limitée, la MRAM MR2A16A (en technologie 180 nm) est en 4 Mbits [1], elle remplacera dans un premier temps la RAM statique (SRAM) (Imprimante, serveur,..), mémoire volatile et gourmande en consommation d'énergie. Pour remplacer la mémoire FLASH (téléphone portable, appareil photonumérique,...), sur laquelle la MRAM a l'avantage d'être illimitée en nombre de cycle écriture/lecture et un temps d'accès plus rapide, il faudra attendre le passage à la technologie de 90 nm.

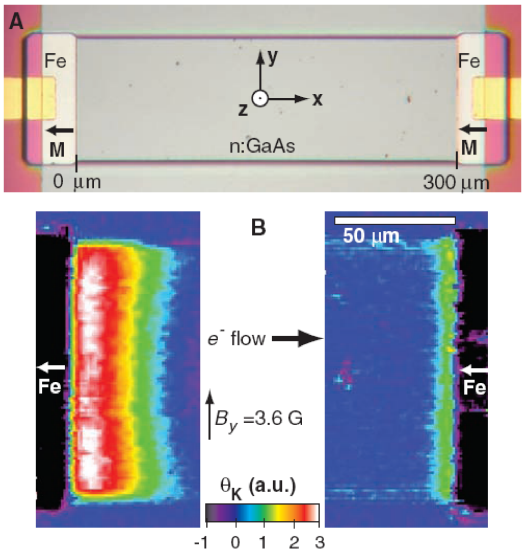


FIG. 1 – (A) Photomicrographie de la structure latérale métal ferromagnétique/semiconducteur utilisée pour l'injection, le transport et la détection de spin. Les contacts de la barrière Schottky Fe/GaAs (à l'émetteur et au collecteur) sont orientés selon l'axe de facile aimantation du fer [011]. Les dimensions du canal n-GaAs sont de 300μm x 100μm. (B) Image de l'angle de rotation Kerr θ_K ($\propto S_Z$) proche de l'émetteur et du collecteur mettant en évidence l'accumulation de spin aux interfaces. D'après Crooker et al. [28].

années les conditions d'injection de spin dans un semiconducteur ont été notamment étudiées sur des SPIN-LED (*Spin Light Emitting Diode*) : des polarisations de spin (optiques) autour de 32 % (à température ambiante) ont pu être mesurées dans des diodes (Al,Ga)As/GaAs pour des contacts Schottky (p.ex. Fe [51]) et barrière tunnel (p. ex. CoFe/MgO [60]).

Une autre voie intéressante pour injecter un courant polarisé en spin dans un semiconducteur est l'utilisation de semiconducteurs magnétiques. Dans ce cas une proportion des atomes du semiconducteur est remplacée par des atomes magnétiques comme le Mn. Ceux-ci peuvent être ordonné périodiquement, comme dans les chalcogénures d'europium ou de chrome ou dans les manganites, mais également être disposés aléatoirement dans le réseau cristallographique. Ceci est notamment le cas des semiconducteurs classiques II-VI [e.g. (Zn,Mn)Te,(Cd,Mn)Te], IV [e.g. Mn_xGe_{1-x}] et III-V [e.g. (In,Mn)As, (Ga,Mn)As]. L'origine de la phase ferromagnétique reste cependant sujet à débat pour un certain nombre de semiconducteurs, comme (Ga,Mn)N ou (Zn,Co)O par exemple. Ces matériaux possèdent l'avantage que la conductivité de l'injecteur est similaire à celle du semiconducteur nonmagnétique actif (utilisé dans les applications) et contournent l'obstacle de réactivité chimique à l'interface. L'obstacle majeur pour ces matériaux reste la température de Curie, souvent inférieure à la température ambiante. Pour le semiconducteur ferromagnétique

de type p (Ga,Mn)As, au coeur de l'étude de ce manuscrit, les plus fortes polarisations de spin optiques ont été mesurées sur une diode Esaki ((Ga,Mn)As/GaAs n^+) intégrée sur une Spin-LED avec des valeurs de 32% à 10 K [73].

D'un point de vue fondamental, l'aspect particulièrement attrayant des semiconducteurs est de mettre en jeu des effets de quantification d'énergie pour des dimensions facilement accessibles avec les outils de nano-fabrication d'aujourd'hui. Le confinement des porteurs dans des structures de dimensions réduite a permis de nouvelles applications en micro-et optoélectronique, par exemple le transistor à haute mobilité d'électrons ou le laser à puits quantique. Le semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As dans ces hétérostructures devrait permettre en principe d'aborder de nouveaux effets de transport dépendant du spin. Malgré une température de Curie nettement inférieure à la température ambiante, et donc une intégration peu probable dans des composants électroniques, ce matériau fournit un excellent banc d'essai pour des nouveaux concepts de dispositifs de l'électronique de spin.

Ce manuscrit est organisé en 5 chapitres. Les 3 premiers chapitres sont dédiés aux propriétés de transport polarisé en spin dans des heterojunctions (Ga,Mn)As/barrière III-V/(Ga,Mn)As. Le premier chapitre est un rappel des propriétés magnétiques et des interactions entre moment localisé et porteurs délocalisé, à l'origine du ferromagnétisme du (Ga,Mn)As. Il sera complété par la description en théorie *k.p* de la structure de bande du (Ga,Mn)As tel que proposé par Dietl et al. [32]. Cette description sera illustrée par les calculs qu'il nous a fallu développer pour aborder le calcul de la magnétorésistance tunnel (TMR) et de la magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR). Ces calculs de transport dépendant du spin dans des hétérostructures à base de (Ga,Mn)As où la conduction est assurée par la bande de valence seront explicités dans le chapitre 2. Deux paramètres importants, le spin splitting B_G et le nombre de porteurs p permettent d'ajuster l'amplitude de TMR. Ce sont ces paramètres que nous avons fait varier expérimentalement à l'aide du recuit sur une série de jonctions avec une barrière tunnel d'(In,Ga)As afin de confronter nos mesures de TMR et TAMR au modèle. Nous verrons que la théorie *k.p* donne un bon accord qualitatif et que notre description des propriétés de transport permet de capturer l'essentiel de la physique mise en jeu.

Le chapitre 4 est dédié à l'étude de la magnétorésistance tunnel anisotrope sur des niveaux résonnants d'un puits de GaAs. Nous verrons qu'il est ainsi possible d'observer des effets de conductance négative différentielle associés à une modulation de la TAMR. Là encore, la modélisation en théorie *k.p* permet d'obtenir un bon accord qualitatif avec les expériences. Associés à une description théorique, elles nous permettent d'affiner notre compréhension de la structure de bande du (Ga,Mn)As et des effets de transport polarisé en spin relatifs à cette structure.

Enfin dans le chapitre 5 nous aborderons de nouveaux effets de l'électronique de

spin, la manipulation de l'aimantation d'une fine couche par injection d'un courant polarisé en spin. Nous verrons que le transfert de spin (STT), actuellement très étudié dans les structures métalliques, peut se généraliser dans le cas de nos jonctions tunnels à base de (Ga,Mn)As. Ces expériences préliminaires ouvrent un nouveau champ d'investigation et permettent de poser un certain nombre de questions sur les mécanismes intrinsèques mis en jeu durant le transfert de spin. Dans le futur de nouvelles expériences devront certainement être menées pour tenter d'apporter des réponses (comme par exemple sur la longueur d'absorption de la composante transverse). Il n'en reste pas moins que de cette première expérience un certain nombre d'enseignements peuvent être déduits. Un exemple frappant est l'analyse du signe du courant, favorisant les renversements parallèle ou antiparallèle qui nous permet de remonter au signe du couplage entre porteurs délocalisés et moments localisés. Nous confirmerons ainsi le couplage anti-parallèle entre les trous et les ions Mn dans le (Ga,Mn)As.

Chapitre 1

Introduction au semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As : Interactions, structure électronique et propriétés magnétiques

L'épitaxie par jets moléculaires permet de contourner le problème de basse solubilité des impuretés de manganèse dans le semiconducteur III-V connu sous les conditions d'équilibre thermodynamique[1]. Le premier semiconducteur ferromagnétique synthétisé ainsi était (In,Mn)As (de type p) en 1992 [109]. Cependant, pouvant être de type p ou n (selon la température du substrat lors de la croissance), la température de Curie n'a jamais excédé 35 K. En 1996, H. Ohno et al. [110] ont réalisé la première couche de (Ga,Mn)As. Depuis, un large spectre de techniques de caractérisation et de modélisation sont utilisées afin de mieux comprendre les propriétés de ce semiconducteur ferromagnétique. Nous nous focaliserons ici sur les résultats les plus importants.

Nous décrirons tout d'abord l'origine du ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As. Afin d'interpréter les propriétés magnétiques et électroniques, le modèle de Zener que nous exposerons est généralement invoqué. Nous compléterons cette première partie par la modélisation de la structure de bandes du (Ga,Mn)As.

Dans la section suivante nous discuterons des propriétés magnétiques du (Ga,Mn)As. Elles nous permettent de mettre en évidence le rôle important du manganèse interstitiel dans nos structures. Le comportement de la température de Curie en fonction de l'épaisseur de la couche, de la concentration en manganèse ainsi que du recuit sera également reporté.

La dernière partie de ce chapitre exposera brièvement les propriétés de transport. Nous insisterons plus particulièrement sur la concentration de porteurs p obtenus à l'aide de différentes techniques de mesures et qui apparaîtra comme un paramètre particulièrement pertinent pour la suite. L'ensemble de ces observations nous serviront ultérieurement pour une meilleure compréhension de nos résultats dans les hétérostructures tunnel à base de (Ga,Mn)As.

1.1 Le semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As

1.1.1 Structure cristalline du (Ga,Mn)As

L'arséniure de gallium (GaAs) est un semiconducteur de type zinc-blende où les sous-réseaux des atomes de gallium et des atomes d'arsenic (décalés d'un vecteur (1/4 ;1/4 ;1/4)) occupent les sites d'un réseau cubique face centré. Dans le cas du (Ga,Mn)As, l'ion de gallium est substitué par l'ion de manganèse [140]. Avec des températures de croissance traditionnelles, il est impossible d'introduire une forte densité d'atomes de manganèse sans former des agrégats de MnAs [Fig. 1.1 (a)] [2]. La croissance réalisée à basse température (Température de substrat T_S=230 °C) entraîne

[1] Les flux incidents sur le substrat dans ce cas sont différents des flux à l'équilibre, elle est encore caractérisée comme une technique de croissance hors équilibre thermodynamique.

[2] Nous rappelons que la croissance du GaAs est habituellement réalisée à une température proche de 600°C.

l'apparition de plusieurs types de défauts [Fig. 1.1 (b)] :

- Antisites d'arsenic As_{Ga} : ils agissent en tant que double donneur et compensent donc les trous. Il est stable jusqu'à 450 °C et ne pourra pas être éliminé de la structure sans former des agrégats de MnAs [14, 149].

- Lacune de gallium V_{Ga} : élaboré à basse température les antisites d'arsenic sont en général dominant par rapport à ce type de défaut dans GaAs [149].

Il existe aussi d'autres défauts liés cette fois-ci à la limite de solubilité :

- Manganèse interstitiel Mn_I : la première mise en évidence expérimentale des ions de manganèse en site interstitiel a été fournie en combinant des mesures en canalisation de rétrodiffusion Rutherford (RBS-C) et des mesures d'émission de rayons X induite par des particules chargées (PIXE-C) [178]. Ces défauts, agissant en tant que double donneur, joueront un très grand rôle dans les propriétés observées dans (Ga,Mn)As.

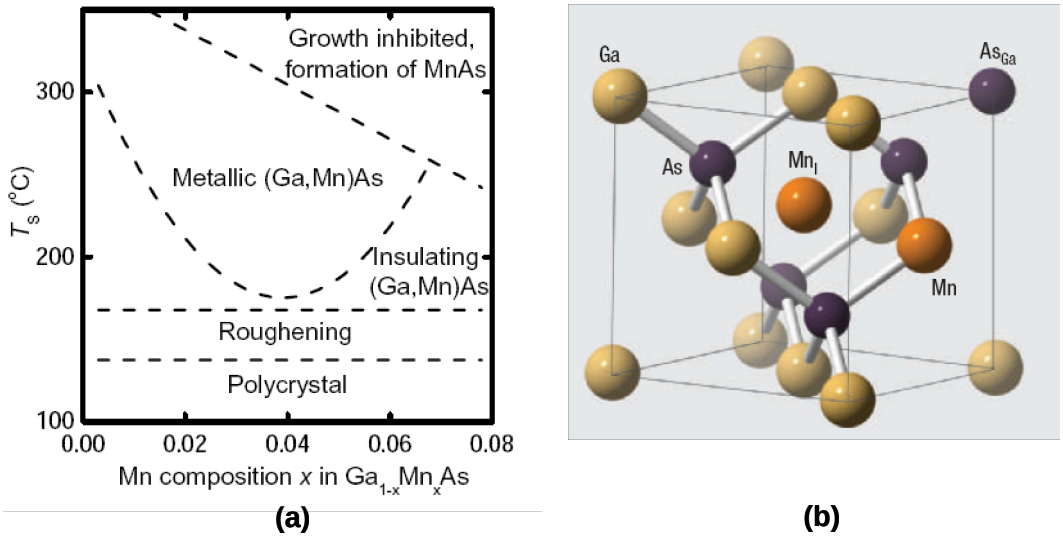


FIG. 1.1 – (a) Diagramme schématique des propriétés des couches de (Ga,Mn)As en fonction de la température de croissance et de la concentration de manganèse [104]. (b)Structure cristalline du (Ga,Mn)As, de type blende de zinc, avec les défauts de manganèse interstitiel et d'antisite d'arsenic [87].

La variation du paramètre de maille de (Ga,Mn)As en fonction de la concentration de manganèse peut s'exprimer en fonction de la loi de Végard [110]. Plus la concentration en manganèse augmente, plus le paramètre de maille du (Ga,Mn)As augmente, ce qui a comme conséquence de mettre (Ga,Mn)As en compression sur un substrat de

GaAs et d'induire un axe de facile aimantation dans le plan des couches (ε_{xx}=ε_{yy}≃0 et ε_{zz}≃0,006 [95]). Sur un substrat de (In,Ga)As [105], (Ga,Mn)As est en tension, et l'axe de facile aimantation est orienté alors selon la direction de croissance.

1.1.2 (Ga,Mn)As : de l'atome de Mn isolé à la phase ferromagnétique

Dans le composé (Ga,Mn)As où le dopage en Mn introduit à la fois les porteurs de type p (trous) et les spins localisés du Mn, deux interactions magnétiques distinctes, décrites dans cette partie, sont à l'origine de la phase ferromagnétique : une interaction antiferromagnétique entre les trous itinérants et les spins localisés du Mn par l'intégrale d'échange *p-d* et le couplage ferromagnétique entre porteurs. Nous décrirons, en ce sens, le modèle de Zener largement explicité dans les calculs théoriques de Dietl et al., qui permet de modéliser les propriétés magnétiques et la structure de bandes du semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As.

1.1.2.1 Impureté paramagnétique de manganèse (sans terme d'échange)

Lorsque l'atome de manganèse substitue l'ion de gallium, il est soumis à un potentiel tétraédrique par ses plus proches voisins. Ce dernier induit une levée de dégénérescence des orbitales *3d* par le champ cristallin pour former des niveaux d'énergie différente t_{2g} et e_g. Trois configurations électroniques sont alors possibles pour le manganèse substituant l'atome de gallium [92] : A^0(d^4 pour Mn^{3+} ou A^0(d^5+h) et A^-(d^5) pour Mn^{2+}, A^0 désignant une configuration neutre et A^- une configuration portant une charge électrique négative. Les résultats expérimentaux obtenus, entre autres, grâce à la résonance paramagnétique électronique [156] et la spectroscopie infrarouge [80] ont permis de déterminer que l'état fondamental de l'impureté dans GaAs correspond à la configuration A^0(d^5+h). Dans la configuration électrique neutre A^0(d^5+h), le caractère du manganèse en site de gallium résulte des électrons *d* localisés (avec un moment cinétique de spin S=$\frac{5}{2}$ et orbital L=0, et par conséquent un facteur de Landé g=2) et d'un trou faiblement lié. Szczytko et al. [155] ont déterminé un facteur de Landé g de 2,77 pour cette configuration à travers des mesures de résonance paramagnétique électronique (RPE).

L'énergie de liaison de l'état accepteur dans la matrice de GaAs est de 113 meV. La fonction d'onde du trou liée à l'impureté de manganèse isolé a été sondée spatialement par microscopie à effet tunnel [Fig. 1.2]. Les états accepteurs dans un semiconducteur peuvent être décrits à travers la théorie de masse effective pour une structure de bandes dégénérées[3]. Les premiers calculs de la forme de la fonction d'onde enveloppe sur

[3]Dans ce cas l'équation de l'hamiltonien total s'écrit sous la forme

$$[H(r)+U(r)]\chi(r)=E\chi(r),$$

où H(r) est l'hamiltonien pour le cristal parfait proche du point Γ_8 et U(r) la perturbation créée par l'ion accepteur. $\chi(r)$ est le vecteur colonne dont ces éléments χ_j(r) caractérisent la fonction enveloppe,

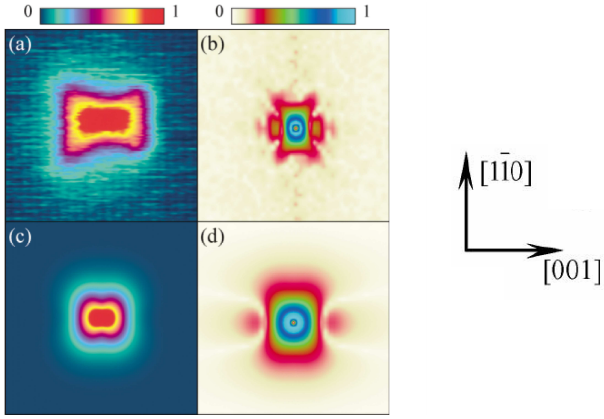


FIG. 1.2 – Image en microscopie à effet tunnel de l'impureté de manganèse dans la matrice de GaAs dans l'espace réel (a) et dans l'espace réciproque (b). L'image simulé de l'état accepteur de Mn $1S_{3/2}$ dans l'espace réel (c) et dans l'espace réciproque (d). D'après Yakunin et al. [176]

ces états accepteurs ont été réalisés dans les années 70 par Baldereshi et Lipari [8,9,81].

L'anisotropie de la fonction d'onde du trou, introduite par la symétrie cubique, est représentée par une forme spécifique en croix. Yakunin et al. [176] ont pu démontrer expérimentalement que la fonction d'enveloppe du trou possède un caractère S+D. Alors que l'extension de la fonction d'onde (dans l'espace réel) est de l'ordre de 5 nm par microscopie à effet tunnel, à travers le modèle de masse effective par une fonction enveloppe (en considérant l'hamiltonien *k.p* de Kohn-Luttinger), l'extension de la fonction d'onde est légèrement inférieure [Fig. 1.2 (a) et (c)]. Le caractère S+D de la fonction enveloppe a été confirmé par le modèle de liaisons fortes dans cette même référence.

---

modulant les fonctions de Bloch ϕ_j(r) du cristal non perturbé à k$\simeq$0.

Par conséquent, en se plaçant en théorie *k.p* à 6 bandes (Hamiltonien de Kohn-Luttinger), la fonction d'onde de l'état accepteur est décrite par

$$\psi(r) = \sum_{j=1}^{6} \chi_j(r)\phi_j(r)$$

En résumé, la fonction d'onde résulte d'un produit de la fonction de Bloch proche du point Γ_8 et de la fonction enveloppe χ(r) (agissant seul sur l'hamiltonien total). Les fonctions enveloppes sont développées sous forme d'harmoniques sphériques avec une combinaison linéaire de fonctions radiales

$$\chi_j(r) = \sum_{l,m} R_l^j(r) Y_{l,m}(\theta,\phi)$$

1.1.2.2 L'interaction anti-ferromagnétique p-d : inclusion du terme d'échange

Les mesures de dichroïsme magnétique circulaire [7], de magnéto-absorption [155] et de transport [40] ont démontré une interaction d'échange anti-ferromagnétique *p-d* entre le trou et le moment local de Mn de symétrie *d*. D'après les mesures de photoémission de Okabayashi et al. [114], l'énergie d'échange Nβ entre les ions de manganèse et les trous de la bande de valence est de l'ordre de -1,2 eV (N étant la concentration en cations et β l'intégrale d'échange *p-d*) [4].

En tenant compte de ce terme d'échange lié à l'hybridation *p-d* et de l'interaction spin-orbite dans un modèle de liaisons fortes, Tang et Flatté [159] ont calculé la surface de densité locale de spin pour différentes orientations du spin de Mn : elle possède une forme applatie selon l'orientation du spin de Mn [Fig. 1.3]. Une conséquence principale est un recouvrement entre orbitales *p* voisines (trous) anisotrope, plus important lorsque les 2 spins de Mn sont perpendiculaires à la direction de liaison. Ils ont démontré notamment que la densité locale de spin sur un site de Ga localisé à 8 Å de l'impureté de Mn peut changer de 90 % en réorientant le spin de Mn de 90°.

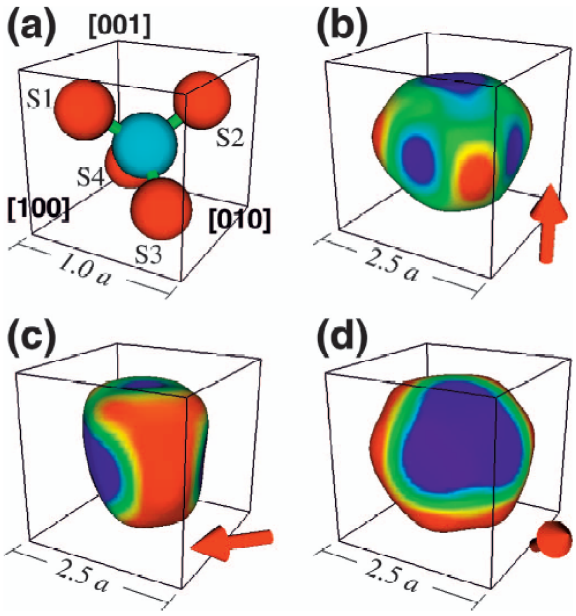


FIG. 1.3 – (a) Structure atomique proche d'un atome de Mn en substitution dans la matrice hôte de GaAs. Les atomes d'As sont indiqués par S1, S2, S3 et S4. Les surfaces de densité locale de spin avec le spin de Mn aligné selon [001] (b), [1$\bar{1}$0] (c) et [111] (d). D'après Tang et al. [159].

[4] Contrairement à l'intégrale d'échange β, l'intégrale d'échange α entre les électrons *s* et *d* est positive et est responsable d'une interaction ferromagnétique. Dans (Ga,Mn)As l'intégrale d'échange *p-d* domine.

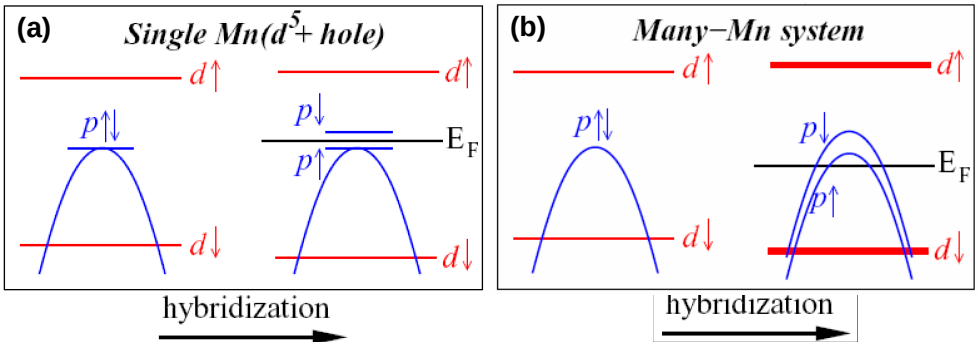


FIG. 1.4 – (a) Suite à l'hybridation entre les orbitales p et d, il y a levée de dégénérescence du niveau accepteur de l'atome de manganèse isolé. (b) En présence d'un grand nombre d'impuretés de manganèse le niveau de Fermi se retrouve dans la bande de valence. D'après Jungwirth et al. [63]

1.1.2.3 Origine de la phase ferromagnétique

Lorsque la concentration de dopants de Mn augmente, la fonction d'onde du trou se délocalise dans l'espace et une phase ferromagnétique peut s'établir. Les moments locaux des impuretés de manganèse sont alors couplés à travers les porteurs de type p. Plusieurs expériences ont mis en évidence un état ferromagnétique dans les semiconducteurs (III,Mn)V induits par les trous. Nous en citerons deux ici :

- A l'aide d'une tension de grille (dans une structure de type transistor à effet de champ), Ohno et al. [107] ont réussi la déplétion des trous dans le canal du semiconducteur ferromagnétique (In,Mn)As et de réduire ainsi l'interaction ferromagnétique induit par les porteurs.

- Thevenard et al. [163] ont montré une diminution de la température de Curie en réduisant, par méthode d'hydrogénation, la concentration des porteurs dans (Ga,Mn)As. En réalisant des recuits, les atomes d'hydrogène ont été soustraits de la matrice et les propriétés de ferromagnétisme ont été reconstituées.

L'interprétation de Jungwirth et al. [63] servira de point de départ pour expliquer l'origine de cette phase ferromagnétique. Dans une image d'électrons, les états $d\downarrow$ seront en dessous du niveau de Fermi, alors que les états $d\uparrow$ vides au-dessus du niveau de Fermi [Fig. 1.4 (a)]. Dans le cas d'un atome de manganèse individuel, l'hybridation entre les orbitales p et d, par répulsion entre niveaux de même spin, sépare en énergie les états de la bande de valence de spin $\uparrow$ et de spin $\downarrow$. Il en résulte une interaction anti-ferromagnétique p-d [Fig. 1.4 (a)].

Dans le cas de plusieurs atomes de manganèse, il s'agit de déterminer si les porteurs seront localisés autour de l'impureté (état anti-liant de type d) ou délocalisés dans la structure cristalline (caractère de type p de la bande de valence) [Fig. 1.4

(b)]. Pour de faibles concentrations de manganèse dans la matrice hôte (< 3 %), la formation de polarons magnétiques est souvent évoquée [32, 33]. Le trou reste alors lié à l'impureté [5]. Dans ce cas, suite à la percolation et donc un recouvrement entre polarons, une phase ferromagnétique peut s'établir [66].

Pour des concentrations plus fortes de manganèse (> 3%), les états accepteurs des ions de manganèse dans le gap de GaAs se recouvrent pour former une bande d'impuretés. Cette dernière devra être assez large pour fusionner avec la bande de valence. Le comportement métallique est alors souvent expliqué par la délocalisation des états électroniques de la bande d'impuretés dans la bande de valence [6] : l'origine du ferromagnétisme peut alors être décrite par le modèle de Zener [Fig. 1.4].

1.1.2.4 Description de la phase ferromagnétique

Plusieurs approches théoriques ont été proposées pour décrire le semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As : il est admis que le modèle de Zener, dans la limite des fortes concentrations d'ions de manganèse, décrit assez bien les différents résultats expérimentaux. Nous essaierons à la fin de ce paragraphe de faire le lien avec les calculs ab-initio.

Modèle de Zener en théorie k.p L'existence d'une phase ferromagnétique dans une bande d'impuretés, à forte concentration de dopants, peut être traitée dans le cadre du modèle de Zener [182] en utilisant la théorie du champ moyen. Dietl et al. [33, 32] ainsi que Abolfath et al. [2] ont ainsi décrit les propriétés du (Ga,Mn)As dans le cadre de la théorie *k.p* à 6 bandes de Kohn-Luttinger en incluant un terme supplémentaire d'échange.

Pour tenir compte du couplage anti-ferromagnétique entre le trou faiblement lié et le spin local du manganèse, un hamiltonien d'échange H_{p-d} est introduit (approche semi-phénoménologique). En utilisant l'approximation du champ moyen et du cristal virtuel (la distribution des manganèses en site substitutionnel est remplacée par un moment moyen), celui-ci s'exprime sous la forme :

$$H_{p-d} = -xN_0\beta\vec{s}\cdot\vec{S} = 6B_G\vec{s}\cdot\vec{m} \tag{1.1}$$

où xN_0 constitue la concentration en ions de manganèse, β l'intégrale d'échange *p-d* (lié directement à la constante d'échange J_{p-d}), s et S les spins des porteurs délocalisés et localisés. Dans ce modèle, le terme d'échange peut s'écrire en fonction du vecteur

[5] La distance entre trous (liés à l'ion de manganèse), caractérisée par $r_c = (\frac{3}{4}\pi N_{Mn})^{-\frac{1}{3}}$, est plus grande que la distance entre trou et ion de manganèse, caractérisée par le rayon de Bohr effectif. N_{Mn} représente le nombre d'impuretés de manganèse par unité de volume.

[6] Cette description a été rélisée par Van Esch et al. [41] en termes de limite de mobilité

unitaire de l'orientation de l'aimantation $\overrightarrow{m}$ et du paramètre de spin splitting

$$B_G = \frac{A_F \beta M}{6 g \mu_B} \tag{1.2}$$

où A_F est le paramètre du liquide de Fermi, fixé à 1,2 [32]. B_G est donc directement lié à l'aimantation à saturation. Un hamiltonien effectif total pourra alors être considéré sous la forme suivante :

$$H_{tot} = H_{k.p} + H_{p-d} + H_{BS} \tag{1.3}$$

où H_{BS} (*Biaxial Strain*) représente l'hamiltonien des contraintes, introduit par le substrat. Les propriétés de cet hamiltonien total seront analysées plus en détail au prochain paragraphe.

Le modèle de Zener permet de décrire les interactions d'échange à longue échelle entre les porteurs et les ions de manganèse localisés. Dans la limite où la distance moyenne entre les porteurs est plus grande que celle entre ions de manganèse, les modèles de Zener et RKKY sont équivalents [33]. Le modèle introduit la fonction d'énergie libre de Ginzburg-Landau F[M(r)] où M(r) désigne l'aimantation local des spins de manganèse. F[M(r)] est considéré comme étant la somme de l'énergie libre des spins de Mn localisés en absence de porteurs F_S[M(r)] et de l'énergie libre des porteurs en présence des spins de Mn localisés F_C[M(r)]. Dans ce modèle, F_C[M(r)] est obtenu à travers la diagonalisation de H_{tot} (1.3). Ainsi, en mimimisant la fonction d'énergie libre F[M(r)], la température de Curie devient proportionnelle à la concentration d'ions de manganèse x et de porteurs $p^{\frac{1}{3}}$:

$$T_C \sim x.N_0.\beta^2.p^{\frac{1}{3}} \tag{1.4}$$

Pour une concentration de 5% de manganèse, la température de Curie est estimée à 110K. Nous verrons par la suite que le modèle de Zener prédit assez bien les valeurs de la température de Curie en fonction de la concentration de manganèse pour (Ga,Mn)As.

Le mécanisme de Zener n'est cependant pas accepté par la totalité de la communauté scientifique travaillant dans le domaine des semiconducteurs ferromagnétiques. Dans l'autre cas extrême de fonction d'onde localisée, l'hypothèse que les porteurs (pour des fortes concentrations de manganèse) restent confinés dans la bande d'impuretés de manganèse est parfois évoquée [115, 129, 130]. Dans ce cas le ferromagnétisme dans (Ga,Mn)As est décrit par le mécanisme de double échange, présentant un couplage entre le trou et l'impureté magnétique plus fort que dans le cas du modèle de Zener. Expérimentalement, les mesures d'absorption par spectroscopie infrarouge sur les couches de (Ga,Mn)As peuvent être expliquées par les deux approches [141].

Calculs ab initio Les calculs ab-initio réalisés sur (Ga,Mn)As ont montré récemment un bon accord avec le modèle de Zener. Les calculs ab-initio donnent accès aux propriétés électroniques, magnétiques et déterminent l'état fondamental du système. Contrairement au modèle de Zener, il n'y a pas d'approximation de paramètre phénoménologique. D'après la théorie de la densité fonctionnelle (DFT), l'énergie d'un système électronique peut s'exprimer en fonction de sa densité . Cette dernière prend en compte certaines interactions, comme par exemple les interactions coulombiennes entre deux porteurs de spin opposé (n'intervenant pas dans l'approximation de Hartree-Fock). La première fonctionnelle de la DFT est l'approximation de la densité locale de spin (LSDA). Cependant les études menées en LSDA surestiment l'hybridation Mn *d*-As *p* et suppriment l'énergie de Coulomb intra-site [89]. Comme l'a montré récemment Schultless et al. [138], l'approximation SIC(self interactions corrections)-LSD donne un bon accord avec les paramètres obtenus par le modèle de Zener.

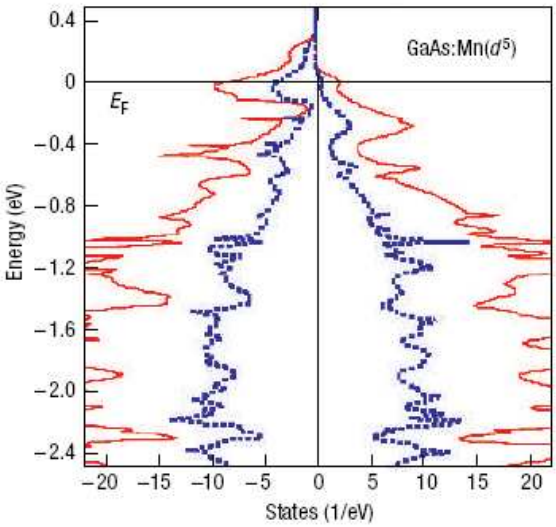


FIG. 1.5 – Densité d'états totale résolue en spin proche du haut de la bande de valence (en rouge) et de la densité locale de l'atome de manganèse et de ses voisins d'arsenic (en bleu). Cette figure témoigne de la très forte hybridation entre l'état d'impureté (présente en configuration Mn(d^4)) et la bande de valence de la matrice hôte, mais également de la délocalisation du trou au-délà de l'atome de manganèse localisé. D'après Schulthess et al. [138].

Dans ce cas la température de Curie pour 5% de manganèse est calculée étant inférieure à 200 K, et le paramètre $N_0\beta$, égal à -1.49, ce qui est en accord avec les expériences d'Okabayashi et al. [114]. Pour une concentration de 3 % d'ions de manganèse la bande d'impuretés serait assez large pour fusionner avec la bande de valence [Fig. 1.5].

1.1.3 Structure de bandes du (Ga,Mn)As

A partir des énergies et fonctions propres obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien total (Eq. 1.3), nous avons modélisé, en théorie *k.p*, la structure de bande du (Ga,Mn)As, les différentes surfaces de Fermi correspondantes, ainsi que le nombre de porteurs en fonction de l'énergie de Fermi. Cette modélisation est en tout point identique à celle réalisée par Dietl et al. en 2001 [32]. Ils serviront, alors, de base pour le calcul des coefficients de transmission dans les hétérostructures tunnel à base de (Ga,Mn)As. A ce titre, une introduction à la théorie *k.p* peut être retrouvée en annexe.

1.1.3.1 Quelques notions de structure de bandes

Dans le cas du GaAs, en absence de contraintes, les bandes de trous lourds ($m_J=\pm\frac{3}{2}$ selon la direction de propagation des trous) et trous légers ($m_J=\pm\frac{1}{2}$ selon la direction de propagation des trous) sont quatre fois dégénérées au centre de zone de Brillouin, i.e. au point Γ correspondant à $\overrightarrow{k}=\overrightarrow{0}$.

Nous prenons comme convention la position d'énergie nulle correspondant à l'énergie du haut de la bande Γ_8 du (Ga,Mn)As paramagnétique (sans terme d'échange). L'écart en énergie positif (offset de bande) entre les points Γ du (Ga,Mn)As et GaAs correspond au potentiel coulombien positif introduit par les centres Mn de type *p* jouant le rôle de puits de potentiel local pour les trous. Cette circonstance explique, en outre, que le GaAs peut jouer le rôle de barrière tunnel pour les trous injectés depuis (Ga,Mn)As.

En théorie *k.p* que nous utilisons tout au long de cette thèse, les paramètres de bandes γ_1, γ_2 et γ_3 de (Ga,Mn)As, désignés encore comme paramètres de Luttinger, sont ceux correspondant à la matrice hôte du semiconducteur GaAs (voir Annexe A). Dans le cas d'une approximation sphérique, γ_2 est alors égal à γ_3. Les masses effectives des trous peuvent s'écrire en fonction de ces deux paramètres selon $m_{HH}=\frac{m_o}{\gamma_1-2\gamma_2}$ (pour les trous lourds) et $m_{LH}=\frac{m_o}{\gamma_1+2\gamma_2}$ (pour les trous légers). L'introduction d'une anisotropie cubique fait différer les deux paramètres γ_2 et γ_3.

L'introduction du terme d'échange permet une levée de dégénérescence au point Γ. Nous avons calculé les courbes de dispersion pour un spin splitting $B_G=\frac{A_F\beta M}{6g\mu_B}$ de 20 meV en considérant deux cas [7] : les vecteurs d'onde k_z positifs sont parallèles à l'aimantation (selon [0 0 1]) et les vecteurs d'onde k_z négatifs sont perpendiculaires à l'aimantation (selon [1 0 0]) [Fig. 1.6]. Rappelons que la levée de dégénérescence entre les deux bandes de trous lourds $m_J=\frac{3}{2}$ et $m_J=-\frac{3}{2}$ (au point Γ) est de 6 B_G. Cette figure s'identifie à celle de Matsukura et al. [92]. Dans le cas où l'aimantation est

[7] 2 B_G correspond à la différence d'énergie entre 2 bandes consécutives au point Γ. Nous verrons plus loin que ce choix de B_G de 20 meV permet d'expliquer qualitativement nos résultats de transport tunnel

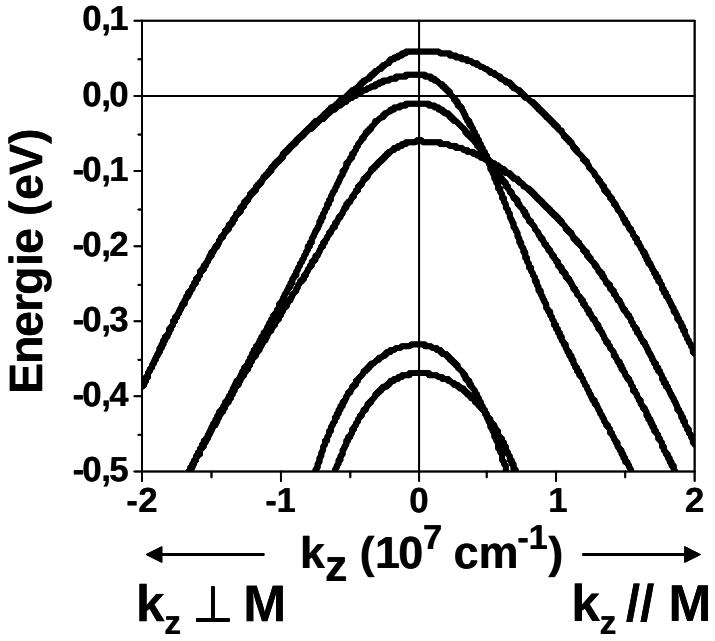


FIG. 1.6 – Calcul de la courbe de dispersion en fonction du vecteur d'onde k_z en absence de contraintes. Le spin splitting est égal à -20 meV.

perpendiculaire au vecteur d'onde k_z, les bandes deviennent dégénérées pour des forts k_z : les trous lourds prennent un caractère léger et inversement. Notons que dans le cas où l'aimantation se situe selon la direction du vecteur d'onde, les trous gardent leur caractère lourd ou léger. La prise en compte des contraintes a, notamment, pour effet de modifier légèrement les énergies propres autour du point Γ.

1.1.3.2 Niveau de Fermi en fonction de la concentration de porteurs

Nous représentons sur la figure 1.7 l'énergie de Fermi en fonction de la concentration de porteurs calculée ici pour 2 valeurs différentes du paramètre de spin-splitting B_G, -10 meV et -30 meV. Remarquons que la valeur de l'énergie de Fermi de -195 meV calculée pour une concentration en porteurs de $3{,}5 \cdot 10^{20}$ cm^{-3} et un spin splitting -30 meV correspond bien à celle donnée par Dietl et al. [32] [Fig. 1.7].

Inversement la détermination de la concentration de trous dans des couches minces de (Ga,Mn)As nous permet ainsi d'estimer l'énergie de Fermi mise en jeu.

1.1.3.3 Surfaces de Fermi du (Ga,Mn)As

La forme des surfaces de Fermi (à trois dimensions) en absence d'échange (cas du semiconducteur GaAs) et en présence d'échange (cas du semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As) peut être facilement extraite. La surface de Fermi décrit la surface à énergie constante (désignée par E_F) dans l'espace des vecteurs d'onde k.

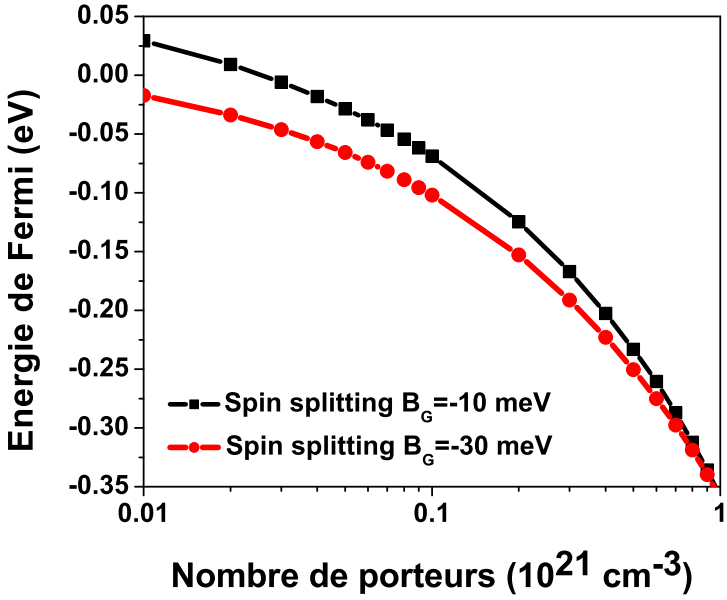


FIG. 1.7 – Niveau de Fermi en fonction de la densité de porteurs pour deux spin splitting B_G de -10 meV et de -30meV évalué par notre méthode de calcul. La position d'énergie nulle correspond au point Γ du (Ga,Mn)As paramagnétique.

Dans le cas isotrope où l'énergie est proportionnelle à k^2, les surfaces de Fermi sont décrites simplement par les sphères de rayon k_F. Dans le cas où un ou plusieurs termes d'anisotropie interviennent dans l'Hamiltonien du système, la forme de la surface de Fermi devient plus complexe. Ceci est d'autant plus vrai pour (Ga,Mn)As contenant des termes d'échange, de spin-orbite, de contraintes, ainsi qu'une contribution cubique de part la symétrie du réseau.

En absence d'échange : L'énergie de Fermi est fixée à -75 meV (à partir du point Γ de GaAs). Les surfaces de Fermi des trous lourds [Fig. 1.8 (a)] et des trous légers [Fig. 1.8 (b)] sont ici deux fois dégénérées. Il faut noter, toutefois, que la présence des contraintes dans le plan introduit une légère dissymétrie entre l'axe z et les composantes planaires (non représentée ici).

En présence d'échange : Nous considérons ici respectivement un terme d'échange de B_G=-20 meV et une énergie de Fermi de -75 meV correspondant à n≅$1\cdot10^{20}$ cm^{-3} ce qui semble approprié pour nos échantillons. Les quatre surfaces de Fermi obtenues qui s'apparentent à celles données par Dietl et al. [32], acquièrent généralement des formes plus complexes qu'une simple symétrie sphérique ou cubique. Pour exemple, nous avons représenté sur la figure 1.9 les quatre surfaces de Fermi obtenues lorsque l'aimantation est dirigée selon z [001].

Rappelons également que les trous étant polarisés selon leur direction de propagation (vrai en symétrie sphérique), le terme d'échange contribue principalement selon les $\vec{k}$ // $\vec{M}$. De plus le terme d'échange introduit principalement selon les directions de propagation orthogonale à l'aimantation ($\vec{k} \perp \vec{M}$) des termes non diagonaux dans la matrice de l'Hamiltonien H_{p-d}. Cette circonstance à pour objet d'introduire, dans ce cas ($\vec{k} \perp \vec{M}$), un caractère léger (lourd) aux trous lourds (légers) dans un matériau exempt d'échange (GaAs par exemple). Ce terme a donc pour effet de mélanger, dans le cas général, les 2 populations de trous lourds et légers à priori états purs de spin avant couplage d'échange.

Donnons ici quelques indications simples permettant de mieux comprendre leur forme spécifique en considérant que l'énergie totale E=E_F est la somme de l'énergie cinétique E_{cin} et de l'énergie d'échange E_{ech} [E_F=E_{cin} + E_{ech}].

Première bande [1.9(a)] : l'énergie d'échange est négative et admet ses plus fortes valeurs (en absolu) ce qui a comme conséquence d'augmenter l'énergie cinétique à E_F donnée. Il en résulte de fortes valeurs du vecteurs d'onde (k_F=3 nm^{-1}) correspondant à une grande énergie cinétique des porteurs. Dans ce cas, les termes d'échange sont bien inférieurs aux termes d'énergie cinétique et n'introduisent donc pas d'anisotropie notable de la surface de Fermi entre les directions de propagation $\vec{k}$ parallèle à l'aimantation ou perpendiculaire à l'aimantation.

Deuxième bande [1.9(b)] : les trous conservent plutôt un caractère léger selon l'axe d'aimantation z et acquièrent une composante lourde non négligeable selon les deux directions orthogonales. La conséquence est donc une déformation de la surface de Fermi, en accord avec une augmentation sensible du vecteur d'onde dans le plan des couches associé à une masse effective plus importante selon ces 2 mêmes directions.

Troisième bande [1.9(c)] : les arguments donnés pour la deuxième bande s'appliquent également pour la troisième bande. Cependant, nous observons qu'elle admet plutôt une symétrie proche de la symétrie sphérique. Cette circonstance est en partie due au fort couplage de cette troisième bande avec les bandes de split-off.

Quatrième bande [1.9(d)] : à faible taux de remplissage, les termes d'énergie d'échange de l'Hamiltonien sont ici supérieurs aux termes d'énergie cinétique ce qui a pour conséquence de "fixer" un caractère principalement lourd aux trous ($\vec{k}$ proche de $\vec{M}$) dans leur direction de propagation et de "fixer" un caractère léger dans les directions de propagation perpendiculaires à $\vec{M}$. Il en est de même pour les masses effectives mesurées selon chaque direction : masse effective de trou lourd selon z et masse effective réduite dans le plan. Il en résulte à énergie cinétique constante, des vecteurs d'onde plus grands selon z comparés à ceux obtenus dans les directions perpendiculaires x et y.

En absence d'échange

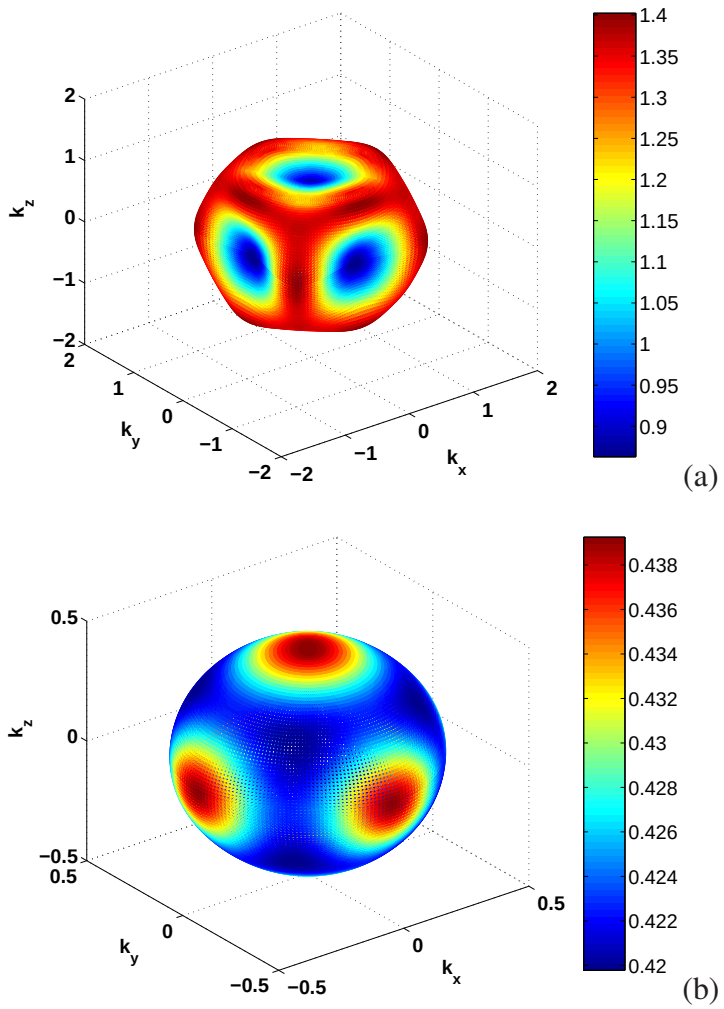


FIG. 1.8 – Surfaces de Fermi (dégénérées 2 fois) pour GaAs pour une énergie de Fermi de E_F de -0.075 eV en absence de contraintes. Le code couleurs représente l'amplitude du vecteur d'onde de Fermi selon la direction considérée. L'échelle est en nm^{-1}.

En présence d'échange

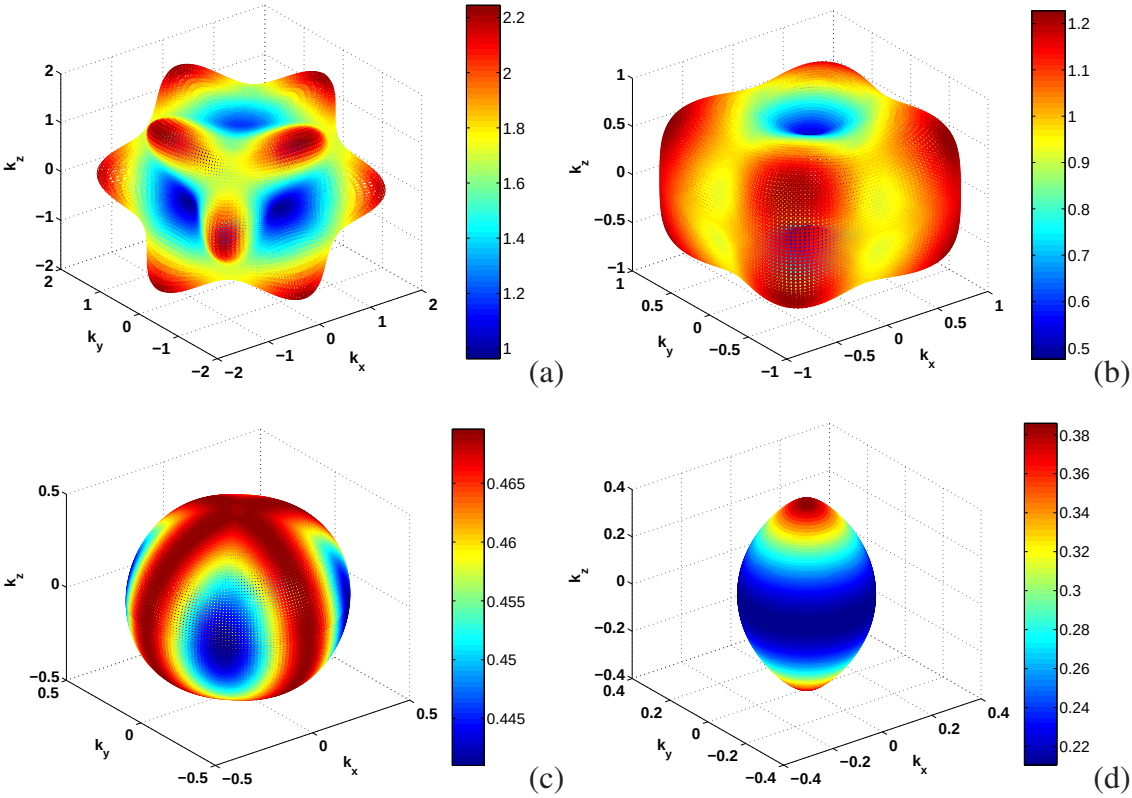


FIG. 1.9 – Surfaces de Fermi pour (Ga,Mn)As pour un spin splitting B_G de -20 meV et une énergie de Fermi E_F de -0.075 eV (en absence de contraintes). L'aimantation est dirigée selon la direction de croissance [001]. Le code couleurs représente l'amplitude du vecteur d'onde de Fermi selon la direction considérée. L'échelle est en nm^{-1}.

1.2 Les propriétés magnétiques de (Ga,Mn)As en couche mince

1.2.1 Influence du recuit sur les couches minces de (Ga,Mn)As

Le record actuel de la température de Curie est détenu par l'université de Nottingham : la valeur est de 173 K sur une couche recuite de 25 nm avec une concentration de manganèse de 8% [Fig. 1.10] [167]. Il est important de noter que les recuits changent les propriétés magnétiques d'une couche, telle que la température de Curie ou l'anisotropie. Ces modifications sont associées à un changement de la concentration de porteurs. Initialement attribuée à la diffusion d'antisite d'arsenic [54, 120], il est aujourd'hui admis que l'augmentation de T_C est due à la diffusion et à la réduction des manganèses en site interstitiel dans la couche mince [178, 179].

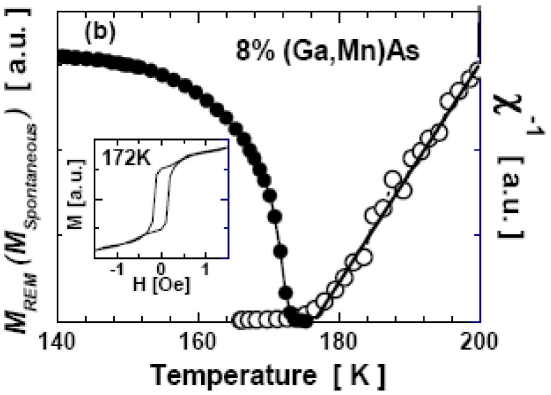


FIG. 1.10 – Evolution de l'aimantation rémanente et de la susceptibilité en fonction de la température. La température de Curie est égale à 173 K [167].

Le manganèse interstitiel est considéré comme un double donneur, compensant les trous introduits par le manganèse en substitution (du site de gallium). Comme ses orbitales *d* ne s'hybrident pas avec les états *p*, ce défaut ne participe pas au ferromagnétisme et se couple antiferromagnétiquement par super-échange de proche voisinage avec le manganèse en substitution, entraînant un moment magnétique nul du couple Mn_I-Mn_{Ga} [13]. En réalisant des recuits, les paires de manganèses en substitution et en interstitiel sont brisées, menant à une plus forte concentration de spins de manganèses actifs et une augmentation de la concentration en trous [178, 179]. En combinant les mesures de résistivité et de spectroscopie Auger avec les calculs ab-initio, Edmonds et al. [35] ont reporté que, lors des recuits, les manganèses interstitiels diffusent complètement de la couche plutôt que de rentrer en site de substitution[8]. Ce processus est associé à une passivation des ions de manganèse à la surface : formation d'une couche

[8] La barrière d'énergie pour que les manganèses interstitiel diffusent en surface est de 0,7 eV.

de MnO à l'air [35, 37, 177], d'une couche de MnN dans une atmosphère d'azote [69] ou d'une couche de MnAs en recouvrant avec de l'arsenic in situ [4].

Pour finir, le recuit a comme rôle d'augmenter les valeurs de l'aimantation à saturation ainsi que la concentration de porteurs et par conséquent la température de Curie, en accord avec le modèle de Zener de Dietl et al. [32]. Nous discuterons ci-dessous plus en détail du rôle de l'épaisseur et de la concentration en ions de manganèse de la couche mince de (Ga,Mn)As sur la température de Curie.

1.2.1.1 Influence de l'épaisseur et proximité de surface

Les effets du recuit en fonction de l'épaisseur de la couche de (Ga,Mn)As sur les températures de Curie seront présentés dans ce paragraphe, en comparant les couches "as-grown" et les couches recuites.

Les couches "as-grown" : Yu et al. [177] ont étudié la concentration des manganèses interstitiels pour différentes épaisseurs de couches de (Ga,Mn)As as-grown. Pour des faibles épaisseurs de couches (dans le cas présent 15 nm)[9], le manganèse interstitiel diffuse à la surface lors de la croissance et s'y oxyde pour former une couche de MnO. En efet aucune différence de température de Curie n'a été mise en évidence après gravure chimique (enlevant 2 nm de la couche), alors que la concentration totale des ions de manganèse est réduite de 25%. L'absence des manganèses interstitiels dans les couches très minces de (Ga,Mn)As (as-grown) peut expliquer les températures de Curie plus élevées (de 110 K), en accord avec Ku et al. [76][Fig. 1.11 (b)].

Pour des couches minces épaisses de (Ga,Mn)As (> 50 nm), une plus forte concentration de manganèse interstitiel est mesurée par différentes techniques en canalisation (C-RBS et C-PIXE) [177]. Les températures de Curie sont par conséquent plus faibles [76][Fig. 1.11 (b)]. La diffusion du manganèse interstitiel à la surface est limitée par l'accumulation d'une monocouche de manganèse. En effet Yu et al. [177] démontrent que la densité d'atomes de manganèse en surface est indépendante en fonction de l'épaisseur de la couche de (Ga,Mn)As et proche de celle des atomes de gallium. Ce résultat est confirmé par les mesures de réflectométrie [69], mettant en évidence une couche magnétique morte à la surface.

Les couches recuites : Aujourd'hui il est admis que les plus fortes températures de Curie sont obtenues pour des couches magnétiques recuites inférieures à 50 nm [Fig. 1.11] [76, 146, 167], l'élimination des manganèses interstitiels étant plus faciles. Une limite inférieure pour l'existence d'une phase ferromagnétique (après recuit) a été trouvée pour une épaisseur de couche de 5 nm. [146].

[9] Pour les très faibles épaisseurs (<10 nm) des couches as-grown de (Ga,Mn)As, une diminution, voir une disparaition, de la température de Curie a été observé par Hamaya et al. [50] et par Mathieu et al. [91].

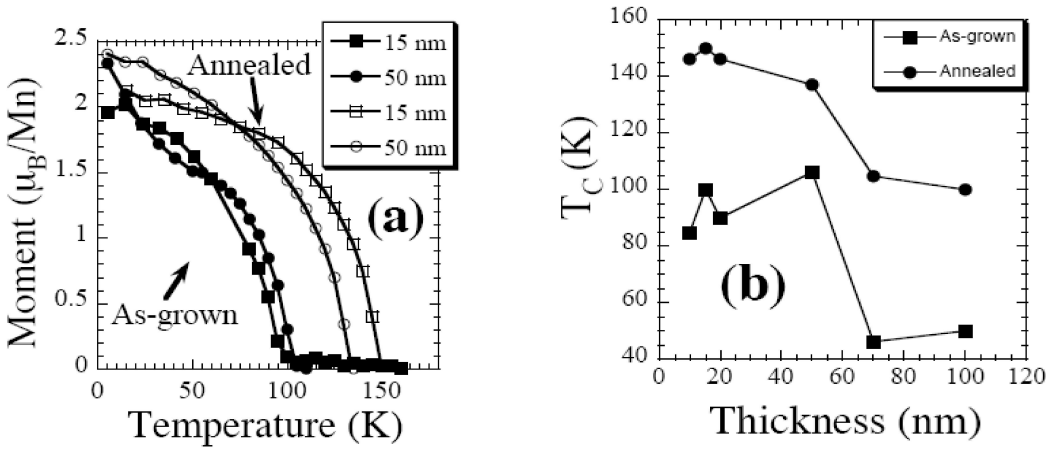


FIG. 1.11 – (a) Température de Curie avant et après recuit pour des épaisseurs de couches de $Ga_{0,915}Mn_{0,085}As$ de 15 et de 50 nm. (b) Evolution de la température de Curie en fonction de l'épaisseur de la couche de $Ga_{0,915}Mn_{0,085}As$. D'après Ku et al. [76].

Kirby et al. [68] a montré enfin qu'une surface recouverte avec une couche fine de GaAs de 9 nm a tendance à diminuer la température de Curie et montre donc que la surface a un rôle important sur la température de Curie. Une étude plus approfondie en fonction de l'épaisseur du GaAs recouvrant la couche mince de (Ga,Mn)As a été réalisée par Stone et al. [153]. A partir de 5 nm de GaAs on n'améliore plus les propriétés ferromagnétiques après recuit, en accord avec les mesures de Mathieu et al. [91]. La formation d'une jonction *p-n* évite la migration du manganèse interstitiel. En effet le manganèse interstitiel migrant dans la couche recouverte de GaAs va doper cette couche n. L'amélioration des propriétés ferromagnétiques sera donc directement liée à la nature de la surface de (Ga,Mn)As.

1.2.1.2 Influence de la concentration de manganèse et de porteurs

Lors des premières expériences de recuits sur des couches de (Ga,Mn)As, les résultats n'ont pas semblé converger pour expliquer les températures de Curie obtenue par le modèle du champ moyen de Dietl et al. [32]. Ainsi Potashnik et al. [121] ont mis en évidence que pour des fortes concentrations de manganèse, une fraction élevée des ions de manganèse ne participe pas au ferromagnétisme et que la température de Curie et la conductivité saturent. Yu et al. [178, 179] ont précisé que pour des couches de (Ga,Mn)As supérieures à 50 nm, la température de Curie de 110 K est due à une limite supérieure des porteurs dans (Ga,Mn)As [10]. Pour une augmentation de la concentration

[10]Pour démontrer cette hypothèse un codopage en Be de la couche de (Ga,Mn)As a été utilisé, (comme dans les expériences de Lee et al. [78]). D'autres codopages ont été utilisés et des diminutions de la température de Curie ont été observées en fonction de l'élément substituant, comme le carbone ou l'azote [136, 116].

en manganèse au-delà de cette limite, il est plus favorable de créer des manganèses en site interstitiel (compensants) et de conserver ainsi le produit x·p maximum.

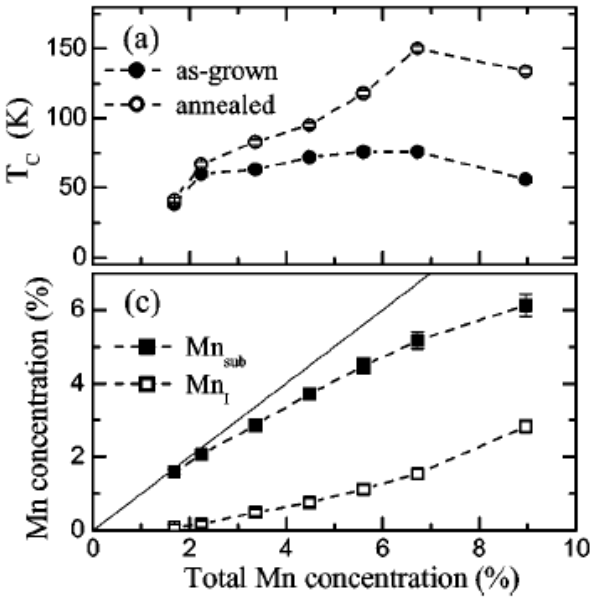


FIG. 1.12 – Température de Curie en fonction de la concentration totale de manganèse pour des couches (Ga,Mn)As as-grown et recuites de 50 nm (Figure du haut). Pourcentage de manganèse en site de substitution et en site interstitiel (Figure du bas). D'après Wang et al. [168]

A l'heure actuelle, l'étude des conditions de recuits se focalise sur des couches plus fines, de sorte à augmenter les valeurs des températures de Curie, se rapprochant ainsi du modèle du champ moyen de Dietl et al. [32]. Selon ce dernier la variation de la température de Curie devrait être proportionnelle à $xp^{\frac{1}{3}}$. La variation de la température de Curie en fonction de la concentration d'ions de manganèse a été analysée récemment par plusieurs groupes [Fig. 1.12] [90,167,168]. Pour des fortes concentrations de manganèse les T_C sont relativement faibles pour des échantillons as-grown . La proportion de manganèses en site interstitiel est estimée être de l'ordre de 20 à 30% [Fig. 1.11] [90,168]. La diminution de celle-ci après recuit entraîne une augmentation de T_C.

Plus récemment, Ku et al. [76] ont mis en évidence une dépendance directe en $p^{\frac{1}{3}}$ de la température de Curie. Il précise qu'une température de Curie à l'ambiante exige 10^{22} porteurs par cm^{-3} et donc un ordre de grandeur plus grand que concentrations actuelles.

1.2.2 Les effets d'anisotropie dans (Ga,Mn)As

Comme l'énergie d'anisotropie dépend des contraintes, une croissance sur un substrat de GaAs fait en sorte que l'axe de facile aimantation se trouve dans le plan des couches alors que, pour une croissance sur un substrat de (In,Ga)As, il est orienté perpendiculaire aux couches [82]. Nous nous intéressons par la suite exclusivement au substrat de GaAs (001).

1.2.2.1 Les champs d'anisotropie et dépendence en fonction de la densité

L'énergie d'anisotropie dans une simple couche de (Ga,Mn)As dépend de la contrainte, de la concentration des trous, mais également de la température[11]. L'origine de l'énergie d'anisotropie est le couplage spin-orbite dans la bande de valence. En effet, comme l'interaction entre les ions de manganèse localisés est transmis par les trous itinérants ayant un moment orbital non nul (l=1) [31], les effets de couplage spin-orbite doivent être considérés. Le modéle de Zener permet de déterminer les énergies et les champs d'anisotropie en fonction de différents paramètres, comme par exemple la concentration des trous [32].

L'énergie magnétique totale d'une couche de (Ga,Mn)As peut s'écrire généralement sous la forme [100]

$$E_{magn} = K_u \cos^2\theta + K_c(\sin^4\theta \sin^2\phi \cos^2\phi + \sin^2\theta \cos^2\theta) \tag{1.5}$$

Dans cette expression, les coefficients d'anisotropie cubique planaire K_c et uniaxial K_u (dû au champ démagnétisant et aux contraintes) sont considérés. θ et ϕ représentent les angles en coordonnées cylindriques entre la direction de l'aimantation et les axes [001] et [100] respectivement. En supposant que $4K_u$ > -K_c, les axes de facile aimantation se trouve dans le plan, soit [100] ou [110] selon le signe de K_c. Le champ d'anisotropie cubique est estimé à 0,1 T pour des concentrations de manganèse autour de 3 à 4%. [82, 100]. Le champ d'anisotropie uniaxial (hors plan) est estimé par Liu et al. et Moore et al. [82, 100] autour de 0,3 T, en accord avec Dietl et al. [32]. Une augmentation du champ d'anisotropie uniaxial est observée après recuit par Liu et al. [82].

Le semiconducteur ferromagnétiques (Ga,Mn)As possède des propriétés d'anisotropie magnétique intéressantes : il est par exemple possible de modifier l'anisotropie en changeant la concentration des porteurs. Pour des faibles concentrations de trous (autour de quelques 10^{19} porteurs par cm^{-3}), on prévoit d'un point de vue théorique que l'axe de facile aimantation est perpendiculaire à la couche, alors que pour des concentrations plus fortes, l'axe de facile aimantation se trouve dans le plan des

[11] Dans un cristal ferromagnétique, il existe une énergie qui oriente l'aimantation le long de certaines axes cristallographiques définis appelés directions d'aimantation facile. Cette énergie est appelée énergie magnétocristalline ou énergie d'anisotropie [71].

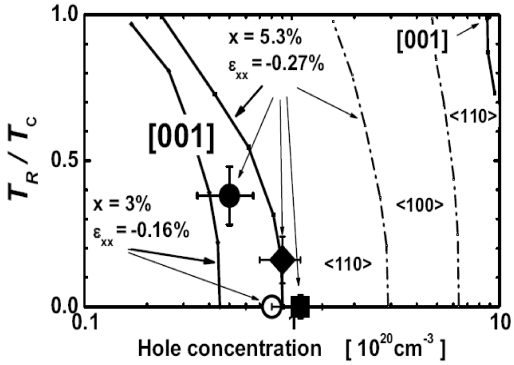


FIG. 1.13 – Rapport de la température de réorientation et de la température de Curie en fonction de la concentration de porteurs [134]. Une réorientation de l'axe de facile aimantation de hors plan dans le plan peut être observée.

couches [32]. La preuve expérimentale de cette réorientation a été fournie par Sawicki et al. [Fig. 1.13] [132, 133, 134]. Une réorientation de [100] vers [110] (dans le plan de la couche) en fonction de la concentration ou de la température n'a pas encore été observée.

1.2.2.2 Evolution du champ coercitif

Wojtowicz et al. [175] ont mis en évidence sur une couche de $Ga_{0,91}Mn_{0,09}As$ de 110 nm une diminution du champ coercitif après recuit [Fig. 1.14]. Ceci résulte bien évidemment d'un changement des propriétés magnétiques dans la couche de (Ga,Mn)As : Potashnik et al. [122] émettent l'hypothèse d'un affaiblissement de l'accrochage des parois sur les défauts et donc un retournement d'aimantation pour des champs coercitifs plus petits. Ce résultat est en accord avec les mesures effectuées par Kuryliszyn et al. [77].

Comme Potashnik et al. [122], Wang et al. [171] ont observé que le champ coercitif diminue en augmentant la température de Curie (et par conséquent la concentration de porteurs). L'augmentation du champ coercitif dans certains échantillons est attribuée à la formation de clusters de MnAs dans la couche de (Ga,Mn)As. Ceux-ci servent comme centre d'accrochage des parois réduisant l'efficacité du renversement d'aimantation.

1.2.2.3 Une contribution d'anisotropie uniaxiale selon [110] supplémentaire

A travers des mesures de résonance ferromagnétique, Liu et al. [82] ont montré l'existence d'un champ d'anisotropie uniaxial supplémentaire, entraînant une différence entre les deux axes [110] et [$\bar{1}$10]. Welp et al. [172, 173] ont démontré que cette contribution uniaxiale est indépendante de l'épaisseur de la couche et est probablement le résultat de l'anisotropie de la surface de substrat GaAs(001) reconstruite, se propa-

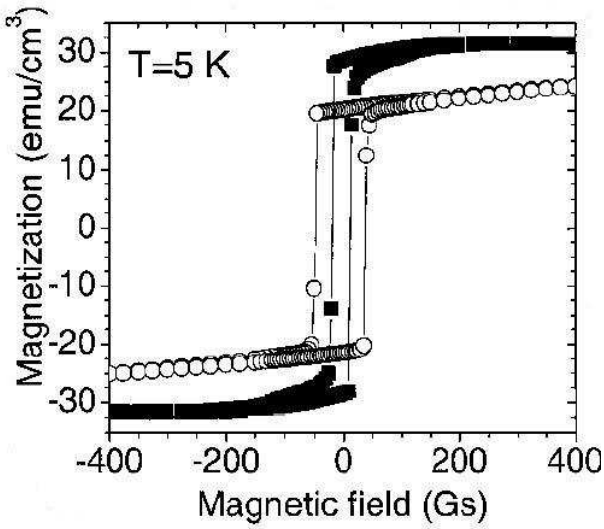


FIG. 1.14 – Courbe d'aimantation avant recuit (○) et après recuit (■) sur une couche de $Ga_{0,91}Mn_{0,09}As$ de 110 nm. D'après Wojtowicz et al. [175].

geant à travers toute la couche de (Ga,Mn)As lors de la croissance. Par conséquent il en résulte une compétition dans le plan des couches entre l'anisotropie cubique selon $\langle 100 \rangle$ par couplage d'échange et l'anisotropie uniaxial de croissance selon $\langle 110 \rangle$.

A basse température l'anisotropie cubique domine la contribution uniaxiale alors qu'à plus forte température cette dernière devient dominante [82, 134, 147, 173]. Wang et al. [170] a modélisé pour un mono-domaine de (Ga,Mn)As la variation des constantes d'anisotropie en fonction de la température. Alors que l'anisotropie cubique varie en M^4 et l'anisotropie uniaxiale en M^2, cette dernière devient plus forte à haute température où l'aimantation est plus faible. Les deux constantes d'anisotropie deviennent ainsi équivalentes à plus forte température (généralement autour de 30 K).

Lors du recuit d'une simple couche de (Ga,Mn)As, une réorientation de cette contribution uniaxiale (à forte température, où elle est dominante) est observée [135, 147]. L'axe de facile aimantation passe ainsi de $[\bar{1}10]$ à [110] et le comportement a été expliqué par un changement de la concentration de trous dans la couche de (Ga,Mn)As. Il s'intègre bien dans le modèle de Zener en prenant en tenant compte d'une distorsion trigonale dans l'hamiltonien de contraintes (équation 1.3).

1.3 Propriétés de transport de (Ga,Mn)As en couche mince

Parallèlement aux propriétés de résistivité en température, nous détaillerons les différentes méthodes permettant de déterminer la concentration des trous dans les couches de (Ga,Mn)As. Nous conclurons ce chapitre par les mesures de magnétorésistance anisotrope que nous étendrons au prochain chapitre à l'effet tunnel dans diverses hétérostructures.

1.3.1 Résistivité en fonction de la température

Quand l'énergie cinétique des trous dans (Ga,Mn)As est assez élevée pour que ceux-ci se délocalisent, on se situe à la transition métal-isolant (de Mott). Ceci nous donnera les courbes de résistivités largement étudiées. Une augmentation de la résistivité à partir de la température ambiante jusqu'à la température de Curie (correspondant au début de la mise en ordre magnétique), puis une diminution de la résistivité jusqu'à 4K (correspondant à une mise en ordre magnétique de plus en plus importante) [Fig. 1.15]. Ce comportement en fonction de la température a été décrit explicitement par Van Esch et al. en termes de seuil de mobilité [41]. En dessous d'une valeur de résistivité minimum (à laquelle on associe une température minimum) la resistivité possède un comportement logarithmique, attribué à l'effet Kondo. Ce dernier tire son origine dans le couplage anti-ferromagnétique de superéchange entre les ions de manganèse interstitiel et en substitution et diminue après recuit [57].

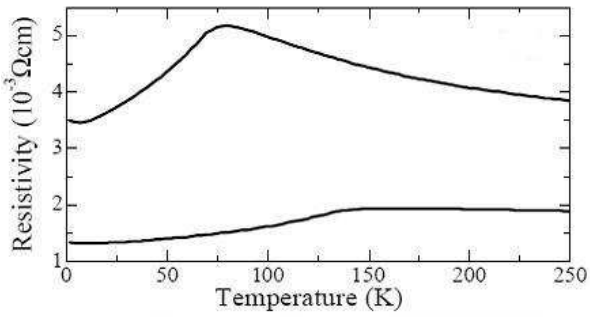


FIG. 1.15 – Mesures de résistivité en fonction de la température avant et après recuit sur une couche de 45 nm de $Ga_{0,94}Mn_{0,06}As$. Une augmentation de T_C et une diminution de la résistivité sont observées. D'après Edmonds et al. [38].

L'influence du temps de recuit sur la résistivité a été étudiée par Edmonds et al. [38] et Potashnik et al. [120]. Une augmentation de la conductivité est mise en évidence après recuit, reliée directement à une augmentation de la concentration de porteurs [Fig. 1.15] [38, 39, 54].

1.3.2 Détermination de la concentration des trous

La détermination de la concentration des porteurs est normalement effectuée par des mesures d'effet Hall. En appliquant le champ magnétique perpendiculairement au plan des couches, la résistivité de Hall s'exprime par la somme d'une contribution normale et anormale [39] :

$$\rho_{xy} = \rho_{xy}^{0} + \rho_{xy}^{a} = R_0 B + R_a M \tag{1.6}$$

où la résistance R_0, égale à $\frac{1}{pe}$, est inversément proportionnelle à la concentration de porteurs. Précisons que la dépendance linéaire de la résistivité de Hall en fonction du champ magnétique B est valable pour les matériaux non-magnétiques dans la limite d'un champ magnétique faible. L'effet Hall anormal domine pour de faibles champs magnétiques et ne sature pas en fonction du champ magnétique dans le cas du (Ga,Mn)As. Pour expliquer cet effet à plus fort champ magnétique, une diminution de localisation faible est souvent évoquée [36, 93]. Ceci compliquera la mesure du coefficient de Hall normal (et donc de la concentration des porteurs), dominant à fort champ magnétique. La concentration des porteurs ne sera alors mesurée qu'approximativement. Edmonds et al. [36, 39, 168] estiment ainsi la densité de porteurs entre 2 à $5{\cdot}10^{20}$ porteurs par cm^3 avant recuit pour des concentrations de manganèse entre 2% à 8%. Une augmentation de la concentration des porteurs jusqu'à $1{\cdot}10^{21}$ cm^{-3} est observée après recuit pour une concentration de 6% de Mn et une épaisseur de couche de 50 nm. Par champ magnétique pulsé à 50 T, Malfait et al. [90] ont déterminé la concentration des porteurs à travers des mesures d'effet Hall sur une couche de (Ga,Mn)As de 40 nm dont les résultats sont en très bon accord avec Edmonds et al. [36, 168] [Fig. 1.16].

D'autres méthodes de mesures ont été utilisées afin d'estimer la concentration des porteurs :

- Méthode capacité-tension de Yu et al. [180] pour une concentration de manganèse de 9% et une épaisseur de couche de 110 nm. Pour la couche as-grown la concentration de porteurs est estimée à $6{\cdot}10^{20}$ porteurs par cm^3 pour une température de Curie de 67 K. Une augmentation de la concentration de porteurs à $1{\cdot}10^{21}$ cm^{-3} et de T_C à 111 K est observée pour un recuit "non-optimisé".

- Méthode par effet Raman de Seong et al. [139] : Pour une forte concentration en manganèse de 8,3 % et une épaisseur de couche de 120 nm, la température de Curie reste faible (70 K après recuit). La concentration des porteurs est estimée à $7{\cdot}10^{20}$ porteurs par cm^{-3}.

On précise que dans ces deux dernières méthodes de mesures, les couches sont relativement épaisses et les concentrations de manganèse élevées. Ceci explique une plus forte incorporation d'ions de manganèse en site interstitiel et par conséquent une

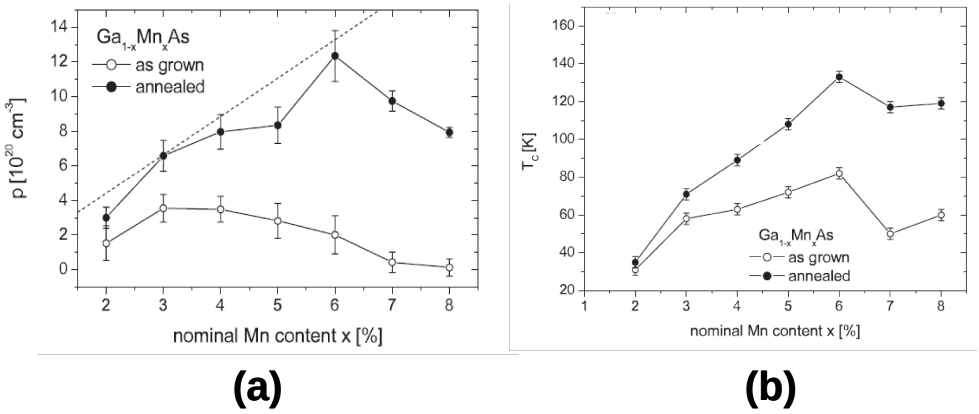


FIG. 1.16 – (a) La concentration des trous p en fonction de la concentration de manganèse. Les valeurs pour les échantillons as-grown sont obtenus par des champs magnétiques en DC à 12 T, et celles pour le recuit par des mesures Hall en champ pulsé à 50 T. (b) La température de Curie associée à ces concentrations de manganèse. D'après Malfait et al. [90].

T_C et une concentration de porteurs moins élevées.

Il est, toutefois, utile de souligner que le profil de la concentration de porteurs n'est pas forcément homogène et uniforme dans les couches minces de (Ga,Mn)As : Limmer et al. [79] ont ainsi mis en évidence que, pour une couche de $Ga_{0,949}Mn_{0,051}As$, la concentration de trous est plus importante en surface (de l'ordre de $8{\cdot}10^{20}$ cm^{-3}) qu'à l'interface couche magnétique/substrat (de l'ordre de $4{\cdot}10^{20}$ cm^{-3}) [Fig. 1.17]. L'origine de ce profil de concentration de trous est due à une augmentation de température de la surface (et donc d'un effet de recuit) suite aux jets moléculaires provenant des cellules d'effusion lors de la croissance par MBE.

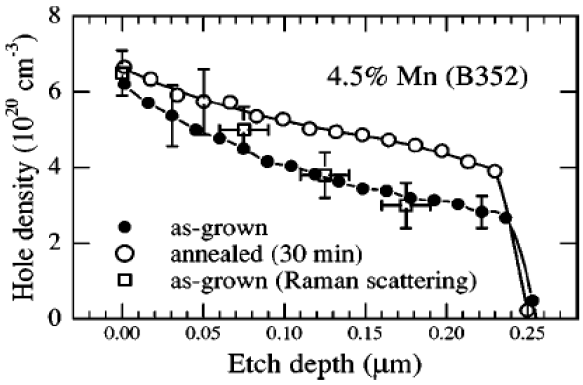


FIG. 1.17 – Profil de concentration de trous en fonction de l'épaisseur de la couche magnétique obtenue à partir des mesures capacité-tension et de spectroscopie Raman. D'après Limmer et al. [79].

1.3.3 Magnétorésistance anisotrope

L'effet de magnétorésistance anisotrope classique, tirant son origine dans le couplage spin-orbite, entraîne une dépendance de la résistance suite à une variation de l'angle entre le courant et le champ magnétique. Dans le semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As, l'effet de magnétorésistance anisotrope possède un comportement complexe (à faible champ) lié aux anisotropies cubique et uniaxiale [93, 62, 64]. A fort champ, les conséquences sur le comportement de la résistance ont été déjà exposées auparavant à travers les mesures d'effet Hall.

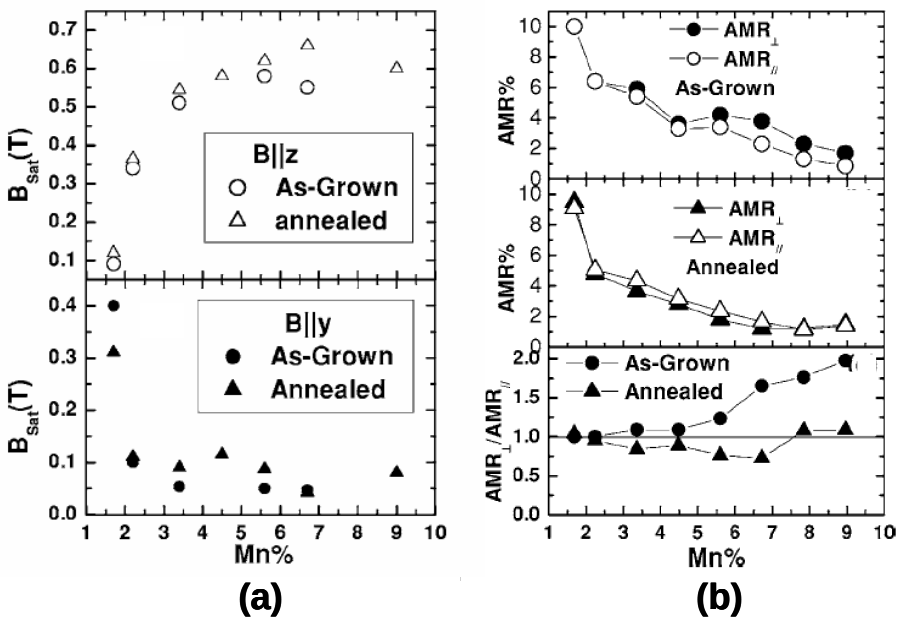


FIG. 1.18 – (a) Le champ magnétique à saturation en fonction de la concentration de manganèse avec un champ magnétique appliqué selon l'axe z [001] et selon l'axe y [1$\bar{1}$0] pour les couches as-grown et recuites. (b) Variation de la magnétorésistance anisotrope dans le plan et perpendiculaire au plan de la couche mince en fonction de la concentration de manganèse. D'après Wang et al. [169].

Wang et al. [169] ont effectué une étude détaillée sur des simples couches de (Ga,Mn)As : l'influence de la concentration de manganèse et du recuit donnent une meilleure compréhension du transport. L'étude a mis en évidence deux résultats auxlesquels on s'intéressera pour les mesures de magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR) :

1) Une augmentation du champ de saturation hors plan des couches en fonction de la concentration de manganèse et du recuit est mise en évidence [Fig. 1.18 (a)]. Des faibles variations de ce premier sont relevées pour les concentrations de manganèse de

nos échantillons (de 5% à 7%).

2) Pour des concentrations supérieures à 4%, la variation de la magnétorésistance anisotrope, dans le plan des couches ($AMR_{//}$) ou hors plan ($AMR_{\perp}$), est inférieure à 4% [Voir Fig. 1.18 (b)], en accord avec les mesures de Baxter et al. [10]. Ici on définit :

$$AMR_{//} = 100 \cdot \frac{R_{//[110]} - R_{//[1\bar{1}0]}}{R_{//[110]}}$$

$$AMR_{\perp} = 100 \cdot \frac{R_{//[110]} - R_{//[001]}}{R_{//[110]}}$$

où $R_{//i}$ sont les valeurs de résistance pour l'aimantation parallèle à l'axe i=([110],[1$\bar{1}$0] et [001]).

1.4 Conclusion

D'un point de vue expérimental, l'interaction entre les porteurs libres et les moments localisés décrite dans le cadre du modèle de Zener, a aujourd'hui été démontrée à travers différentes expériences. En particulier l'influence de la densité de porteurs sur les propriétés magnétiques, comme par exemple la température de Curie ou l'aimantation à saturation, a été étudiée en modifiant la densité de porteurs par application d'une tension de grille ou en réalisant des recuits. Dans ce dernier cas la modification du nombre de porteurs provient de l'élimination du Mn en site interstitiel. La vision communément adoptée aujourd'hui est que sous l'action d'une température de recuit relativement basse (250 °C), les interstitiels de Mn incorporés lors de la croissance à basse température migrent vers la surface libre. L'élimination de ces défauts, de type double donneurs et couplés anti-ferromagnétiquement avec les Mn en substitution, a pour effet d'augmenter la concentration de trous p et le paramètre de spin splitting B_G (suite à l'augmentation du moment à saturation et de la concentration effective x de Mn en substitution). On comprend donc, tout au moins qualitativement, que les recuits ont pour effet d'augmenter la température de Curie, variant qualitativement, dans un modèle de champ moyen, en $x.p^{\frac{1}{3}}$. C'est la variation de ces grandeurs caractéristiques, i.e. le nombre de porteurs et le paramètre de spin splitting, que nous mettons à profit à travers les recuits au cours de l'étude du transport de trous polarisés en spin (Chapitre 3).

On se heurte aujourd'hui au problème d'une forte incorporation de densité de porteurs pour atteindre une température de Curie supérieure à l'ambiante. Dans le modèle de Zener, celle-ci devrait être atteinte pour une concentration de 10 % de Mn en absence d'auto-compensation (par les manganèses interstitiels) [65].

L'interaction entre un dopage δ en Mn dans une couche de GaAs et un gaz 2D formé à une interface GaAs/p-(Al,Ga)As, "approvisionnant" en trous cette première, a été proposée comme méthode alternative [103]. Le dopage δ possède l'avantage d'introduire localement un dopage très fort en Mn et une concentration de trous élevés, conditions nécessaire pour obtenir des fortes températures de Curie. Le recuit de ces structures a permis d'atteindre des températures de Curie de 250 K [102].

Chapitre 2

Transport dépendant du spin dans des jonctions et hétérostructures tunnel : de la bande de conduction à la bande de valence

Les premières mesures de magnétorésistance tunnel (TMR) à température ambiante ont été publiées par Moodera et al. [99] en 1995 pour une barrière d'alumine Al_2O_3. Une valeur de TMR de 12% a alors été mesurée pour les électrodes de CoFe et Co. A ce jour, Wang et al. [166] ont reporté la plus forte valeur de TMR qui est de 70% pour cette barrière. Depuis 2004, certains groupes utilisent l'oxyde de magnésium comme barrière isolante afin de remplacer l'alumine. Bien que Bowen et al. n'aient mesuré que 27% à température ambiante pour des jonctions Fe/MgO/FeCo(100) en 2001 [16], l'amélioration et la mise au point des conditions de croissance a permis d'atteindre plusieurs centaines de pourcents de magnétorésistance tunnel à température ambiante. Ainsi, pour les jonctions Fe/MgO/Fe [181], CoFe/MgO/CoFe [118], CoFeB/MgO/CoFeB [52] des valeurs de respectivement 180%, 220% et 472% ont été décrites. Dans le cas de la jonction Fe/MgO/Fe, les fortes valeurs de magnétorésistance tunnel sont expliquées par la nature épitaxiale de la barrière tunnel et plus généralement de la structure entière. Les fortes magnétorésistances obtenues s'expliquent alors par des arguments de symétrie de la fonction d'onde se propageant dans la structure tunnel. Cette hypothèse n'explique cependant pas le résultat obtenu à l'aide des électrodes de CoFeB de nature amorphe [34].

Dans ce chapitre, nous nous intéressons donc à l'effet tunnel dépendant du spin dans les solides et plus particulièrement dans des jonctions tunnel et hétérostructures. Nous décrirons tout d'abord l'effet tunnel dépendant du spin entre deux couches ferromagnétiques séparées par un isolant pour les électrons de conduction. Les observations expérimentales ont entrainé l'élaboration d'un certain nombre de modèles : nous exposerons ici en détail celui de Jullière [61] et celui de Slonczewski [145]. Dans un deuxième temps, nous nous intéresserons à la modélisation du transport tunnel au niveau de la bande de valence (cas des trous). Nous appliquerons le formalisme au cas d'hétérostructures tunnel à base de (Ga,Mn)As qui sont au coeur de cette thèse. Nous confronterons les résultats de ce modèle avec les résultats expérimentaux de la littérature.

2.1 Effet tunnel dans la bande de conduction

2.1.1 Effet tunnel dépendant du spin

En 1970, Meservey et Tedrow ont réalisé les premières mesures d'effet tunnel dépendant du spin sur une structure de type Ferromagnétique/Isolant/Supraconducteur, plus précisément Ni/Al_2O_3/Al [161]. En présence d'un fort champ magnétique les pics de densités d'états du supraconducteur Al sont décalés de $2\mu_B$H par effet Zeeman pour les deux directions de spin. Par définition, un métal ferromagnétique possède une densité d'états différente pour chaque direction de spin (suite à l'interaction d'échange qui lève leur dégénérescence). En alignant alors le niveau de Fermi de la couche ferromagnétique de nickel avec les pics du supraconducteur, il est possible d'extraire la

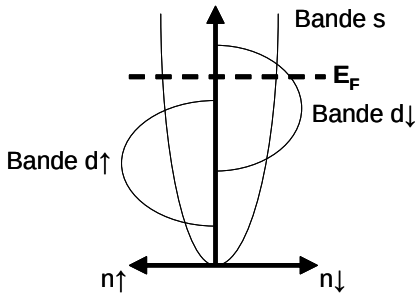


FIG. 2.1 – Structure de bandes simplifiée du Co, issues des niveaux électroniques 3d et 4s des atomes et participant au transport dans les métaux de transition. Les bandes d sont décalées par le couplage d'échange de Heisenberg.

polarisation du métal ferromagnétique. Le supraconducteur joue donc ici le rôle de détecteur de spin. En considérant que la densité d'états au niveau de Fermi pour les électrons de spins majoritaires est égale à $n_\uparrow$ et celle des spins minoritaires à $n_\downarrow$, on peut définir la polarisation du matériau ferromagnétique selon

$$P = \frac{n_\uparrow - n_\downarrow}{n_\uparrow + n_\downarrow} \tag{2.1}$$

Les polarisations positives mesurées expérimentalement pour les métaux de transition $3d$, indiquent que le courant tunnel provient essentiellement des électrons de spins majoritaires (polarisation positive). Or, pour le cobalt et le nickel, la densité d'états au niveau de Fermi des spins majoritaires étant inférieure à celle des spins minoritaires [Fig. 2.1] : une polarisation négative est attendue pour ces deux métaux. En 1970, M. Stearn a souligné qu'il faudrait également tenir compte de la structure de bande réelle [148] : comme ce sont les bandes dispersives qui vont dominer l'effet tunnel, la majorité du courant tunnel devrait provenir des électrons d (possédant un caractère d'électron libre à la surface de Fermi). La densité d'états de ces bandes au niveau de Fermi devient ainsi proportionnelle au vecteur d'onde de Fermi :

$$P = \frac{k_{F\uparrow} - k_{F\downarrow}}{k_{F\uparrow} + k_{F\downarrow}} \tag{2.2}$$

Le signe de la polarisation est cette fois-ci en accord avec les données expérimentales. Même si la nature exacte des électrons participant à l'effet tunnel est toujours en discussion, M. Stearn a montré que l'étude de la structure électronique des matériaux ferromagnétiques devient incontournable pour une bonne compréhension du transport tunnel.

Après les premières mesures de la polarisation de spin, Jullière remplaçait en 1975 le détecteur de spin supraconducteur par une deuxième électrode ferromagnétique [61]. Les champs coercitifs des deux électrodes de cobalt et de fer, séparées par une barrière tunnel de germanium, étant différents, le courant tunnel dépend de l'orientation relative

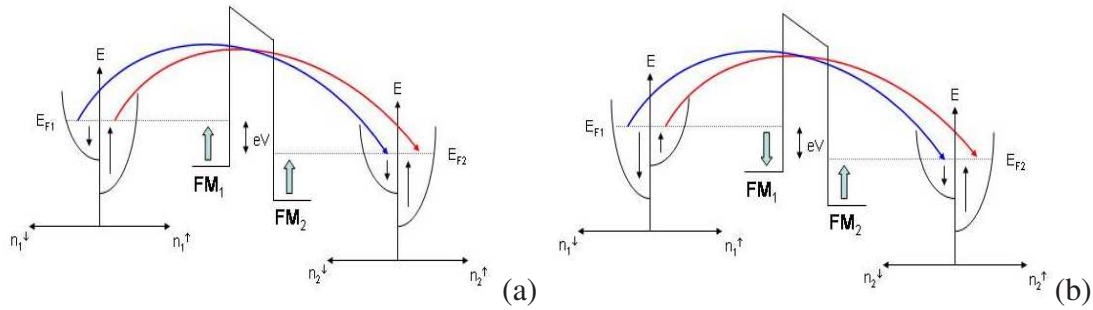


FIG. 2.2 – Schémas de la densité d'états pour les deux électrodes ferromagnétiques dans les configurations parallèles (a) et anti-parallèles (b). Les flèches symbolisent la conduction du courant de spin par deux canaux indépendants

des deux électrodes magnétiques. Afin d'expliquer les variations de résistance de 14% à 4,2K, Jullière a introduit un modèle basé sur deux hypothèses : conservation du spin lors de l'effet tunnel et conduction du courant de spin par deux canaux indépendants.

2.1.2 Modèle de Jullière

Dans la limite des faibles tensions et d'après la règle d'or de Fermi, la densité de courant pour un canal de spin devient proportionnelle au produit des densités d'états des deux électrodes. Les densités de courant pour la configuration où les aimantations des deux couches sont parallèles et anti-parallèles s'écrivent alors :

$$j_P \sim n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) \tag{2.3}$$

$$j_{AP} \sim n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) \tag{2.4}$$

Ainsi dans une configuration d'état parallèle, à une forte (faible) densité d'états pour une direction de spin dans la première électrode correspond une forte (faible) densité d'états dans la deuxième électrode : la densité de courant est forte [Fig. 2.2a]. Dans l'état anti-parallèle, à une densité d'états importante pour une direction de spin va correspondre une densité d'états faible dans l'autre électrode : la densité de courant est faible [Fig. 2.2b]. On introduit alors la magnétorésistance tunnel sous la forme :

$$TMR = \frac{j_P - j_{Ap}}{j_{AP}} \tag{2.5}$$

qui s'écrit donc en détail

$$TMR = \frac{n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) - n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) - n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F)}{n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F)} \tag{2.6}$$

ou encore en fonction des polarisations des électrodes

$$TMR = \frac{2P_1P_2}{1-P_1P_2} \tag{2.7}$$

P_1 et P_2 sont équivalents aux polarisations de Meservey et Tedrow (Eq. 2.1.1). La magnétorésistance tunnel apparaît ici comme une propriété intrinsèque des électrodes sans tenir compte de la nature de la barrière. Le module de la valeur de la magnétorésistance tunnel ne dépendra alors que du choix des électrodes [1].

2.1.3 Modèle de Slonczewski

En 1989, Slonczewski donne une approche théorique plus rigoureuse du problème de l'effet tunnel dépendant du spin [145]. Dans son modèle les deux directions de spin "up" et de spin "down" de l'électrode ferromagnétique, séparées par le champ d'échange, sont décrites par deux bandes paraboliques. La continuité de la fonction d'onde ainsi que la dérivée de cette dernière nous permettent de calculer le coefficient de transmission. En ne prenant en compte que les vecteurs d'onde en incidence normale (limite des barrières épaisses), la conductance est définie par

$$G_{P/AP} = G_0(1 \pm P_{eff}^2) \tag{2.8}$$

où le signe dépend de l'orientation relative des aimantations des deux couches identiques. En posant

$$G_0 = \frac{\kappa}{\hbar d}\left[\frac{e\kappa(\kappa^2+k_\uparrow k_\downarrow)(k_\uparrow+k_\downarrow)}{\pi(\kappa^2+k_\uparrow^2)(\kappa^2+k_\downarrow^2)}\right]^2 \exp^{-2\kappa d} \tag{2.9}$$

et la polarisation de spin effective du couple électrode ferromagnétique-barrière.

$$P_{eff} = \frac{\kappa_0^2 - k_\uparrow k_\downarrow}{\kappa_0^2 + k_\uparrow k_\downarrow}\frac{k_\uparrow - k_\downarrow}{k_\uparrow + k_\downarrow} \tag{2.10}$$

où κ définit le vecteur d'onde évanescent dans la barrière et $k_\uparrow$ et $k_\downarrow$ les vecteurs d'onde propagatifs pour les deux canaux de spin dans les électrodes ferromagnétiques.

Le pré-facteur tient compte des propriétés entre l'interface et le métal ferromagnétique et limite la variation de la polarisation effective entre P et -P. Ce modèle de Slonczewski a été étendu par Bratkowsky en 1997 [17]. La masse effective des électrons à l'intérieur de la barrière change la polarisation effective :

$$P_{eff} = \frac{\kappa_0^2 - m_B^2 k_\uparrow k_\downarrow}{\kappa_0^2 + m_B^2 k_\uparrow k_\downarrow}P \tag{2.11}$$

[1] L'intérêt pour les matériaux demi-métalliques, comme la perovskite $La_{1-x}S_xMnO_3$, devient alors évident. Pour la structure LSMO/STO/LSMO, une très forte valeur de magnétorésistance de 1800 % a ainsi pu être mise en évidence par Bowen et al. [15]. Dans le cadre du modèle de Jullière, les auteurs ont déduit une polarisation de spin de 95 % à 4 K.

Contrairement à celui de Jullière, ce modèle tient compte de l'interface entre le métal ferromagnétique et la barrière. Bien que le modèle de Slonczewski (dans l'approximation des électrons libres) soit nettement plus élaboré que celui de Jullière, il ne tient pas compte de la structure de bandes exacte du matériau ferromagnétique [88].

En général, le choix de la barrière et de l'électrode ferromagnétique influencera le comportement du transport polarisé en spin dans ces structures. L'influence directe de la barrière sur l'effet de magnétorésistance tunnel a été mise en évidence par DeTeresa et al. [162] : En comparant les deux barrières de $SrTiO_3$ et de Al_2O_3, séparant les électrodes de LSMO et de Co, un changement de signe de la valeur de magnétorésistance tunnel a été observé. L'explication de ce changement de signe a été donnée en termes de liaisons à l'interface entre l'électrode ferromagnétique de cobalt et les différentes barrières.

Bien qu'ils permettent d'aborder assez rapidement la notion d'effet tunnel dépendant du spin, les modèles de Jullière et de Slonczewski restent toutefois assez sommaires pour aborder le rôle de la nature des liaisons à l'interface entre électrode ferromagnétique et la barrière. Dans la suite du chapitre, nous nous intéresserons au transport tunnel au niveau de la bande de valence (cas des trous) pour des jonctions tunnel et hétérostructures III-V et II-VI épitaxiées. Dans ce cas, ce sont des structures dont les effets pourront être comparés au cas des jonctions épitaxiées Fe/MgO/Fe.

2.2 Effet tunnel dans la bande de valence

Comme la structure de bande du semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As a été traitée en théorie *k.p*, nous nous plaçons dans ce cadre pour traiter le transport tunnel polarisé en spin dans des jonctions et hétérostructures tunnel intégrant (Ga,Mn)As. Il semble alors évident qu'une telle modélisation apparaisse nettement plus complexe que dans le cas des électrons de conduction, telle qu'elle a été proposée par Slonczewski (description à deux bandes). En se plaçant dans un système unidimensionnel par conservation de la composante parallèle du vecteur d'onde dans le plan des couches ($k_{//}$) du fait de l'invariance par translation, la continuité de la fonction d'onde et la conservation du courant nous permettra de calculer la conductance par la formule de Landauer en utilisant la méthode de transfert de matrices (appliquée aux six bandes). Dans un premier temps, nous donnerons les outils mathématiques nécessaires avant de fournir quelques exemples particuliers de calculs concernant (Ga,Mn)As. Nous confronterons ces résultats avec les résultats expérimentaux de la littérature. Nous terminerons ce chapitre en discutant des limites de notre modèle et en le comparant au modèle des liaisons fortes développées par Sankowski et al. [128].

2.2.1 Modélisation d'une hétérostructure en théorie k.p

Par suite des discontinuités introduites par la barrière de potentiel, deux conditions aux interfaces doivent être satisfaites : continuité de la fonction d'onde et continuité de l'opérateur courant. Avant de démontrer la continuité de ce dernier, nous établirons tout d'abord son expression qui est l'extension d'un courant tunnel tel que donné par Wessel et al. [174] aux couches magnétiques [119].

2.2.1.1 Définition et continuité de l'opérateur courant en théorie k.p

En mécanique quantique la fonction d'onde (ou vecteur d'état) ψ(r,t) évoluant au cours du temps est gouvernée par l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$i\hbar\frac{\partial\Psi(r,t)}{\partial t} = \widehat{H}\Psi(r,t) \tag{2.12}$$

En multipliant l'équation (2.12) par le complexe conjuguée de la fonction d'onde Ψ(r,t), on obtient l'équation suivante :

$$i\hbar\Psi^*(r,t)\frac{\partial\Psi(r,t)}{\partial t} = \Psi^*(r,t)\widehat{H}\Psi(r,t) \tag{2.13}$$

De même l'équation complexe conjuguée de (2.12) multipliée par -Ψ(r,t) s'écrit sous la forme :

$$i\hbar\Psi^*(r,t)\frac{\partial\Psi(r,t)}{\partial t} = \Psi^*(r,t)\widehat{H}\Psi(r,t) \tag{2.14}$$

En faisant alors la somme de chaque membre de l'équation (2.13) et de (2.14), nous obtenons :

$$\frac{\partial\psi^*(r,t)\psi(r,t)}{\partial t} + \frac{i}{\hbar}\left[\psi^*(r,t)\widehat{H}\psi(r,t) - \psi(r,t)\widehat{H^*}\psi^*(r,t)\right] = 0 \tag{2.15}$$

En écrivant l'hamiltonien *k.p* incluant également le terme d'échange et de contrainte sous la forme [2]

$$\widehat{H_{k.p}} = \sum_{ij}\widehat{h_{ij}}k_ik_j = \sum_{ij}\widehat{h_{ij}}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right) \tag{2.16}$$

avec

$$\widehat{h_{ij}} = \widehat{h^*_{ji}},$$

Le deuxième terme de l'équation

$$\psi^*(r,t)\widehat{H}\psi(r,t) - \psi(r,t)\widehat{H^*}\psi^*(r,t)$$

s'exprimera alors sous la forme

$$\psi^*(r,t)\sum_{ij}\widehat{h_{ij}}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi(r,t) - \psi(r,t)\sum_{ij}\widehat{h^*_{ij}}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi^*(r,t)$$

[2] Attention : les indices se réfèrent ici aux composantes d'espace x, y et z.

$$= \sum_i \left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\left[\psi^* \sum_j \widehat{h_{ij}}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi\right] - \left(\sum_i \left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\psi^*\right)\left(\sum_j \widehat{h_{ij}}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi\right)$$

$$-\sum_i \left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\left[\psi \sum_j \widehat{h_{ij}^*}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi^*\right] + \left(\sum_i \left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\psi\right)\left(\sum_j \widehat{h_{ij}^*}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi^*\right)$$

Or

$$\sum_i \widehat{h_{ij}}\left(\left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\psi^*\right)\left(\sum_j \left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi\right)$$

$$= \sum_j \widehat{h_{ji}}\left(\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi^*\right)\left(\sum_i \left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\psi\right)$$

$$= \sum_j \widehat{h_{ij}^*}\left(\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi^*\right)\left(\sum_i \left(-i\frac{\partial}{\partial x_i}\right)\psi\right)$$

L'équation 2.13 peut ainsi s'écrire sous la forme

$$\frac{d\Psi^*\Psi}{dt} + \sum_i \frac{1}{\hbar}\frac{\partial}{\partial x_i}\left(\left[\psi^* \sum_j \widehat{h_{ij}}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi\right] - \left[\psi \sum_j \widehat{h_{ij}^*}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi^*\right]\right) = 0 \tag{2.17}$$

Par comparaison avec la conservation locale de la charge locale

$$\frac{d\widehat{\rho}}{dt} + \sum_i \frac{\partial}{\partial x_i} j_i = 0 \tag{2.18}$$

on identifiera la composante du courant selon l'axe i :

$$j_i = \frac{1}{\hbar}\left(\left[\psi^* \sum_j \widehat{h_{ij}}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi\right] - \left[\psi \sum_j \widehat{h_{ij}^*}\left(-i\frac{\partial}{\partial x_j}\right)\psi^*\right]\right)$$

Si on définit l'opérateur $\widehat{\zeta_i}$ comme

$$\widehat{\zeta_i} = \frac{1}{\hbar}\sum_j \widehat{h_{ij}} k_j = \frac{1}{2\hbar}\frac{\partial \widehat{H_{k.p}}}{\partial k_i}$$

$$j_i = < \psi^* \mid \widehat{\zeta_i} \mid \psi > + < \psi \mid \widehat{\zeta_i}^* \mid \psi^* >$$

$$\Longleftrightarrow j_i = < \psi^* \mid \widehat{\zeta_i} \mid \psi > + [< \psi \mid (\widehat{\zeta_i^*})^\dagger \mid \psi^* >]^*$$

$$\Longleftrightarrow j_i = < \psi^* \mid \widehat{\zeta_i} \mid \psi > + [< \psi \mid \widehat{\zeta_i} \mid \psi^* >]^*$$

$$\Longleftrightarrow j_i = 2Re[< \psi^* \mid \zeta_i \mid \psi >]$$

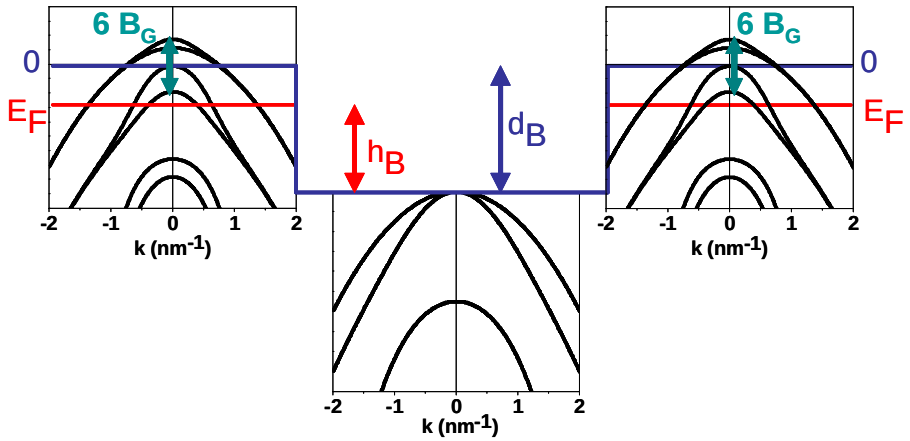


FIG. 2.3 – Schéma utilisé pour la modélisation d'une simple jonction tunnel.

L'opérateur de courant peut donc s'écrire

$$\widehat{J}_i = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial \widehat{H_{k.p}}}{\partial k_i} \tag{2.19}$$

Comme le premier terme dans l'équation 2.18 est indépendant du temps, on doit avoir continuité de l'expression $< \psi^* \widehat{J}_z \psi >$ (z étant la direction de croissance de l'hétérostructure et $\frac{\partial}{\partial x}$=0 et $\frac{\partial}{\partial y}$=0, traduisant la symétrie par translation) . Or les fonctions d'onde ψ et ψ^* étant continues, $\widehat{J}_z \psi$ est continu. Cette condition de continuité se rajoute à la condition de continuité de la fonction d'onde.

2.2.1.2 Méthode des matrices de transfert

Dans des jonctions de type tunnel [Fig. 2.3], chaque couche est gouvernée par les paramètres suivants : les paramètres de Luttinger (hamiltonien *k.p*), le spin splitting B_G (hamiltonien d'échange) et les contraintes Q (hamiltonien de contraintes). La modélisation du transport dans un empilement de couches de la jonction tunnel nécessite de pouvoir ajuster l'énergie de Fermi et le spin splitting dans les électrodes ferromagnétiques ainsi que l'épaisseur des différentes couches et les offsets de bandes respectifs (ou hauteur de barrière dans le cas de la jonction tunnel).

Dans cette partie, la méthode des matrices de transfert sera exposée pour une structure tunnel avec n=6 fonctions d'ondes incidentes *i* (et donc 6 fonctions réfléchies *r*).

Les hétérostructures étudiées dans ce manuscrit sont réalisées par épitaxie par jets moléculaires. Suite au caractère épitaxial, cela entraîne la conservation de la composante parallèle du vecteur d'onde $k_{//}$ par invariance par translation dans le plan des couches. Dans une couche mince (à potentiel constant), la fonction d'enveloppe selon

la direction z peut s'écrire sous la forme générale [119]

$$\psi = \sum_{n=1}^{6} i_n \phi(k_n) \exp\,(ik_n z) + r_n \phi(-k_n) \exp\,(-ik_n z),$$

où n est le nombre de bandes. Les valeurs k_n sont les valeurs propres de k_z dans la couche considérée et $\phi(k_n)$ les vecteurs propres associés qu'il est possible de déduire de l'équation 1.3. En prenant en compte la continuité des vecteurs propres ϕ ainsi que celle de $J_z\Phi$, les conditions pour la première interface électrode(L)-barrière(B) peuvent être écrites sous forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} \phi_{L,1}(k_1) & \dots & \phi_{L,1}(k_{12}) \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ \phi_{L,6}(k_1) & \dots & \phi_{L,6}(k_{12}) \\ J_z\phi_{L,1}(k_1) & \dots & J_z\phi_{L,1}(k_{12}) \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ J_z\phi_{L,6}(k_1) & \dots & J_z\phi_{L,6}(k_{12}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} i_{L,1} \\ \vdots \\ i_{L,6} \\ r_{L,1} \\ \vdots \\ r_{L,6} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \phi_{B,1}(k_1) & \dots & \phi_{B,1}(k_{12}) \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ \phi_{B,6}(k_1) & \dots & \phi_{B,6}(k_{12}) \\ J_z\phi_{B,1}(k_1) & \dots & J_z\phi_{B,1}(k_{12}) \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ J_z\phi_{B,6}(k_1) & \dots & J_z\phi_{B,6}(k_{12}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} i_{B,1} \\ \vdots \\ i_{B,6} \\ r_{B,1} \\ \vdots \\ r_{B,6} \end{pmatrix} \tag{2.20}$$

Cette condition peut s'écrire de manière simplifiée

$$M_L \begin{pmatrix} i_L \\ r_L \end{pmatrix} = M_B \begin{pmatrix} i_B \\ r_B \end{pmatrix} \tag{2.21}$$

Pour la deuxième interface barrière(B)-électrode(R) la condition s'écrit :

$$M_B.Q_B \begin{pmatrix} i_B \\ r_B \end{pmatrix} = M_R \begin{pmatrix} i_R \\ r_R \end{pmatrix} \tag{2.22}$$

où Q_B est l'élément de matrice diagonale qui tient compte du passage de l'interface I vers l'interface II.

$$Q_B = \begin{pmatrix} \exp(-ik_1 d) & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & \dots & \exp(-ik_{12} d) \end{pmatrix} \tag{2.23}$$

Dans le cas d'une jonction tunnel simple, on peut alors écrire

$$\begin{pmatrix} i_L \\ r_L \end{pmatrix} = M_L^{-1}.M_B.Q_B^{-1}.M_B^{-1}.M_R \begin{pmatrix} i_R \\ r_R \end{pmatrix} \tag{2.24}$$

Si on considère que seules les ondes incidentes et refléchies se trouvent dans la région I et que seules les ondes transmises se trouvent dans la région III, on écrit

$$\begin{pmatrix} i \\ r \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} t \\ 0 \end{pmatrix} \quad avec \quad M = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} \tag{2.25}$$

On peut alors écrire que

$$t_{n,n'} = [M_{11}]^{-1} i \qquad r_{n,n'} = M_{21}[M_{11}]^{-1} i$$

Les coefficients de transmission et de réflexion sont alors donnés par

$$R_{n,n'} = r^*_{n,n'}.r_{n,n'} \qquad T_{n,n'} = t^*_{n,n'}.t_{n,n'}.\frac{< J_R >_{n'}}{< J_L >_n}$$

Après avoir calculé les différents coefficients de transmission, on peut calculer la conductance totale par unité de surface par la formule de Landauer

$$G = \frac{e^2}{h} \sum_{n,n',k_{//}} T^{k_{//}}_{n,n'}(E_F)$$

2.3 Application au cas de jonctions tunnel intégrant (Ga,Mn)As

Nous nous intéresserons ici aux deux phénomènes de transports suivants : la magnétorésistance tunnel (TMR) et la magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR) de jonction tunnel magnétique incluant (Ga,Mn)As comme électrodes. La magnétorésistance tunnel (TMR), déjà abordée précédemment dans le cas de la bande de conduction, exprime la différence de résistance entre la configuration parallèle et antiparallèle. La magnétorésistance tunnel anisotrope traduit quant à elle une variation de résistance tunnel selon la direction des aimantations des électrodes. Ainsi, le courant qui, dans le cas classique, ne dépend que de l'angle entre les deux directions d'aimantations [59], peut, en présence du couplage spin-orbite, dépendre de l'angle entre courant et aimantation.

Dans cette partie, nous allons particulièrement insister sur les barrières d'AlAs et de ZnSe et nous confronterons nos résultats avec les résultats expérimentaux qui ont été extraits de la littérature récente. Tous les résultats présentés ci-dessous ont été obtenus sur des hétérostructures à base de (Ga,Mn)As non-recuites.

2.3.1 Effet de magnétorésistance tunnel (TMR)

La première mise en évidence expérimentale du tunnel direct polarisé en spin dans les hétérostructures incluant les électrodes de (Ga,Mn)As a été reportée par Tanaka et al. en 2001 [157] sur des jonctions tunnel à base d'AlAs. Une dépendance exponentielle de la résistance tunnel en fonction de l'épaisseur de la barrière a pu être notamment observée traduisant une conductance par effet tunnel.

Considérons des épaisseurs de barrière particulières d'AlAs de 1,5 nm et de 3 nm et un offset de bande de -0,67 eV [157]. Nous avons représenté sur la figure 2.4 la variation de la magnétorésistance en fonction de deux paramètres caractéristiques de l'électrode ferromagnétique : le spin splitting B_G et l'énergie de Fermi E_F. Nous y avons également fait figurer les courbes donnant E_F et B_G en fonction de la concentration de porteurs pour p=$1\cdot10^{20}$, p=$3{,}5\cdot10^{20}$ et p=$5\cdot10^{20}$ (bien que le spin splitting B_G varie généralement en fonction de la concentration de porteurs p).

De façon triviale la magnétorésistance tunnel s'annule sans spin splitting (B_G=0). Le remplissage de la première bande, et donc à faible concentration de porteurs (Attention : en pratique le système peut s'avérer paramagnétique !), entraîne en théorie de fortes valeurs de magnétorésistance tunnel, supérieures à 400%. Ceci traduit le caractère demi-métallique du (Ga,Mn)As à faible concentration de porteurs. A spin splitting fixé (par exemple 30 meV), la TMR décroît assez rapidement lorsque les sous-bandes inférieures commencent à être remplies : la contribution de la seconde sous-bande donne une contribution bien moindre que la première. Une dernière tendance à relever est l'augmentation monotone de la magnétorésistance tunnel à

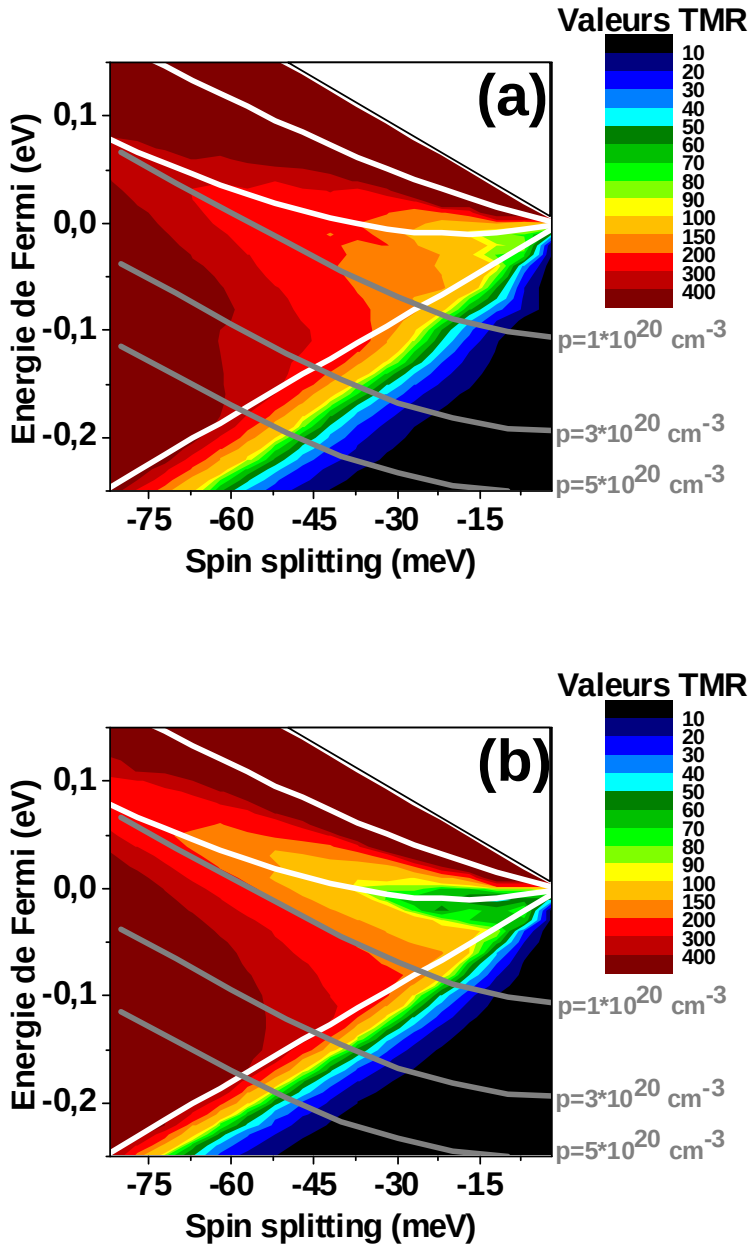


FIG. 2.4 – Variation de la magnétorésistance tunnel (en code couleurs) en fonction de l'énergie de Fermi donnée à partir de Γ_8 et le spin splitting B_G pour une barrière d'AlAs de 1,5 nm (a) et de 3 nm (b). Les lignes blanches indiquent les quatre sous-bandes successives au point Γ.

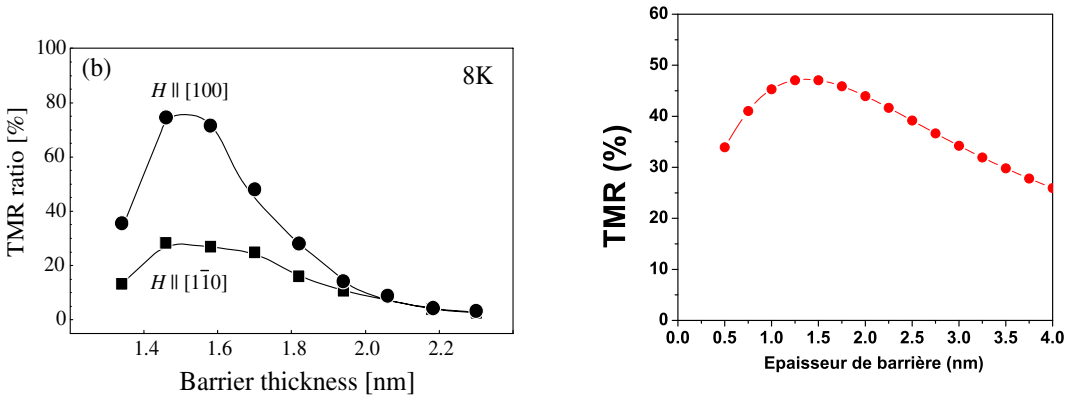


FIG. 2.5 – A gauche : Variation de magnétorésistance tunnel en fonction de l'épaisseur de la barrière d'AlAs selon les deux orientations d'aimantation. A droite : Magnétorésistance modélisée en fonction de l'épaisseur de la barrière d'AlAs selon la direction [100].

énergie de Fermi E_F fixée (mais également à nombre de porteurs fixés) ce qui n'est certes pas très étonnant. Toutefois il apparaît à la vue de ce diagramme assez difficile de déduire une relation simple de la TMR en fonction de B_G et de la concentration de porteurs p.

Concernant les expériences de TMR obtenues avec des barrières d'AlAs de Tanaka et al. [157] et Mattana et al. [95, 96], le spin splitting est attendu assez faible (12 meV) en raison des températures de Curie relativement modestes relevées sur ces échantillons non recuits (de l'ordre de 50 K). Des densités de porteurs autour de 10^{20} cm^{-3} sont à comparer avec les valeurs expérimentales dans des couches minces de (Ga,Mn)As. Les valeurs de TMR calculées alors pour ces paramètres sont de l'ordre de 40-50 %, assez voisines des valeurs expérimentales.

Dans le même article cité précédemment, Tanaka et al. ont reporté une décroissance de la magnétorésistance en fonction de l'épaisseur de la barrière (d>1,5 nm), la valeur maximale de magnétorésistance tunnel étant située autour de 70 % pour d=1.45 nm (Fig. 2.5) [157]. Nous avons modélisé la variation de la magnétorésistance tunnel obtenue en fonction de l'épaisseur de la barrière pour une valeur de spin splitting de -12 meV et un niveau de Fermi de -75 meV (Fig. 2.4). Bien qu'elle ne soit pas aussi rapide que celle donnée par les expérience, on constate bien une décroissance en fonction de l'épaisseur d. Une explication de cette décroissance de la magnétorésistance tunnel a été donnée par Tanaka et al. [157] à travers un modèle à deux bandes : les porteurs avec des vecteurs d'onde $k_{//}$ (dans le plan des couches) élevés sont à l'origine des fortes valeurs de magnétorésistance tunnel. Ainsi, pour des barrières épaisses ces dernières s'atténuent plus vite, comme seuls les porteurs à vecteur d'onde k_z élevé sont transmis. De nombreux travaux théoriques ont suivi : modèle dans l'approximation de

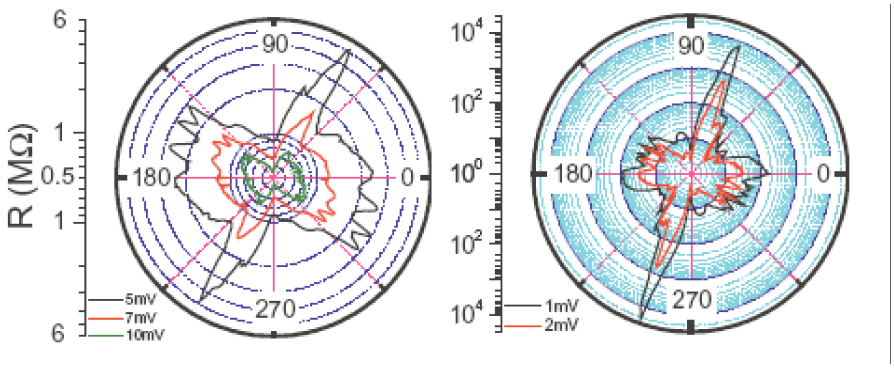


FIG. 2.6 – Variation angulaire de la résistance sur une structure tunnel de type (Ga,Mn)As (100 nm)/GaAs(2 nm)/(Ga,Mn)As(10 nm), à champ magnétique fixé. D'après Rüster et al. [125].

deux bandes paraboliques (majoritaire et minoritaire) pour les électrons libres [160] et modèle basé sur la théorie *k.p* de Kohn-Luttinger (comme dans notre cas) [75]. Dans aucun de ces modèles, une décroissance rapide de la TMR en fonction de l'épaisseur de la barrière n'a pu être expliquée. Une prise en compte des impuretés magnétiques dans la barrière pourraient expliquer une décroissance plus rapide en fonction de l'épaisseur de la barrière lors des expériences [86].

2.3.2 Effet de magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR)

Nous focalisons cette étude sur des jonctions tunnel magnétiques, bien que l'effet de TAMR a aussi été reporté dans des nanoconstrictions à base de (Ga,Mn)As [44].

2.3.2.1 TAMR dans le plan

Les effets de TAMR ont été tout d'abord introduits et explorés par Gould et al. [46, 124] sur une structure de type (Ga,Mn)As/AlO/Au afin de décrire les variations de conductivité tunnel lorsque l'aimantation du (Ga,Mn)As est orientée successivement selon deux directions cristallines dans le plan. Deux états de résistance ont été observés suite à un renversement en deux étapes à travers la nucléation et propagation des parois à 90°. Entre ces deux étapes des variations de résistance positives et négatives de 3% ont été observées (avec un état de haute résistance selon [100] et basse résistance [010]). Le comportement des champs coercitifs dans cette expérience est en bon accord avec les mesures d'effet Hall planaire de Tang et al. [158].

Le même type d'effet peut être obtenu toutefois sur des jonctions tunnel magnétiques (Ga,Mn)As/Isolant/(Ga,Mn)As en régime saturée (où les deux aimantations des couches minces sont maintenues parallèles par application d'un champ magnétique).

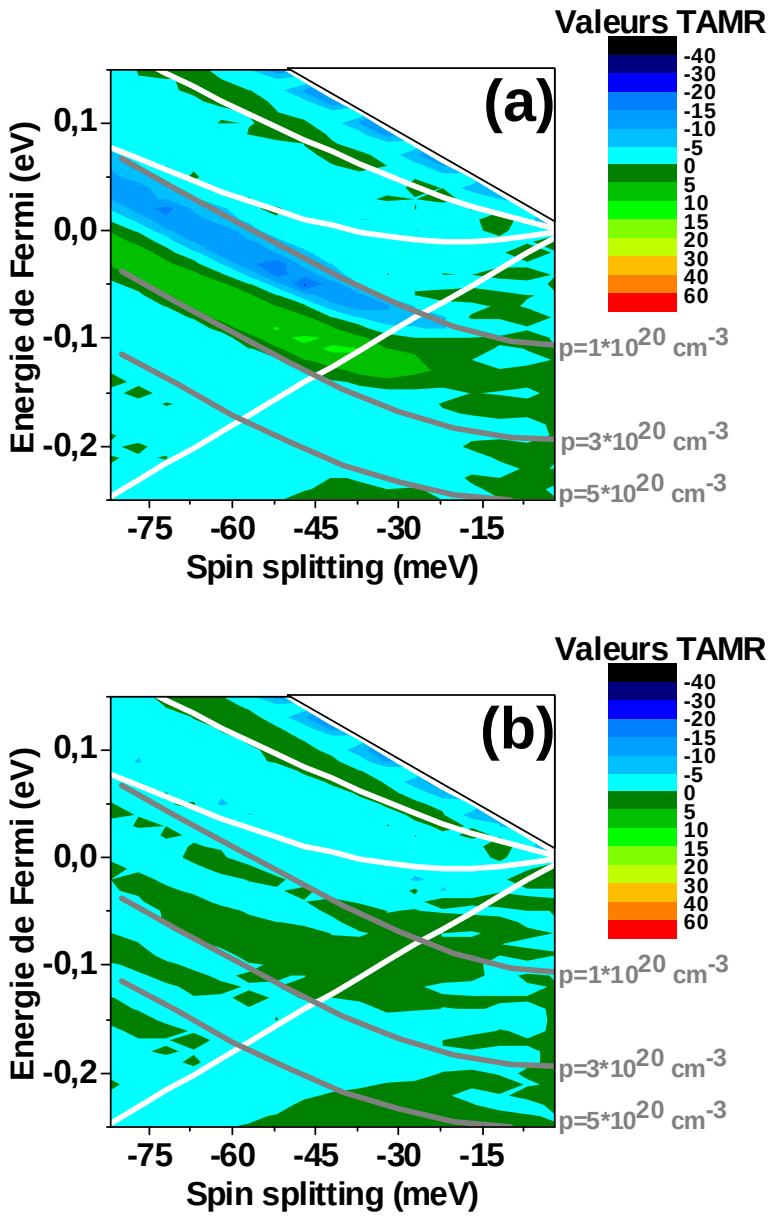


FIG. 2.7 – Variation de la magnétorésistance tunnel anisotrope (en code couleurs) dans le plan des couches en fonction de l'énergie de Fermi et le spin splitting B_G pour une barrière d'AlAs de 1,5 nm (a) et de 3 nm (b). Les lignes blanches indiquent les quatre sous-bandes au point Γ.

Nous avons calculé la TAMR dans le plan en fonction des paramètres matériaux de (Ga,Mn)As selon :

$$TAMR_{//} = \frac{G_{[100]} - G_{[110]}}{G_{[110]}}$$

Sur le diagramme de phase correspondant Fig. 2.7, nous observons que pour les épaisseurs de barrière d'AlAs de 1,5 et 3 nm, la TAMR reste assez modeste, inférieure à 10% en valeur absolue. Notons de plus que selon le taux de remplissage des bandes et l'amplitude du spin splitting, elle peut changer également de signe.

Sur des structures tunnel de type (Ga,Mn)As (100nm)/GaAs(2 nm)/(Ga,Mn)As (10 nm) [125], le groupe de l'université de Würzburg a reporté plus récemment des variations de résistance de 150 000 % en géométrie planaire à des tensions de l'ordre du meV et à très basse température (1,7 K) [Fig. 2.6]. On peut noter dans ce cas une résistance surfacique R.S élevée de l'ordre de 50 $\Omega.cm^{-2}$. Ces effets importants disparaissent à plus forte tension et peuvent être expliqués par l'ouverture d'un gap au niveau de Fermi à basse température , dit gap d'Efros-Shklovskii. Ce gap dépendant de la densité d'états au niveau de Fermi, peut être modulé par l'orientation de l'aimantation comme décrit dans le modèle de Tang et Flatté pour une impureté de manganèse isolée [159]. Il est clair que pour décrire un tel phénomène de transition métal isolant au niveau des électrodes, la théorie *k.p* est complètement inadaptée. *De tels effets géants doivent donc être pris avec une certaine précaution, s'établissant dans un domaine particulier du diagramme de phase de (Ga,Mn)As (transition métal-isolant) [117] et en ce sens ne constituent pas un phénomène intrinsèque sur l'anisotropie de conduction tunnel dans ce type d'hétérostructures.*

2.3.2.2 TAMR hors plan

Les effets de TAMR intrinsèque, en dehors de la transition de phase métal-isolant, sont attendus plus significatifs en géométrie perpendiculaire lorsque l'aimantation pivote de l'axe [100] (dans le plan des couches) vers l'axe [001] (direction du courant tunnel). Brey et al. [19] ont considéré cette géométrie spécifique pour traiter théoriquement les effets des TAMR hors plan dans un modèle *k.p* à 6 bandes. En considérant une barrière de AlGaAs de 1,5 nm, Brey et al. prévoit une variation de -6% entre la configuration magnétique perpendiculaire et parallèle (au plan des couches) correspondant ici à une TAMR négative.

L'effet de magnétorésistance tunnel anisotrope hors plan a été testé aussi à travers une interface d'une diode tunnel Esaki p^{++}-(Ga,Mn)As/n^{+} par Giraud et al. [45]. Des valeurs de 40% pour des tensions très faibles et à basse température ont été mesurées. Une transition du régime tunnel vers le régime ohmique a pu être identifiée en injectant à partir de l'électrode ferromagnétique. En injectant à partir d'une électrode de GaAs de type *n*, il est possible de faire une spectroscopie du mécanisme de TAMR en sondant les différentes sous-bandes : Ainsi pour la quatrième (troisième) sous-bande

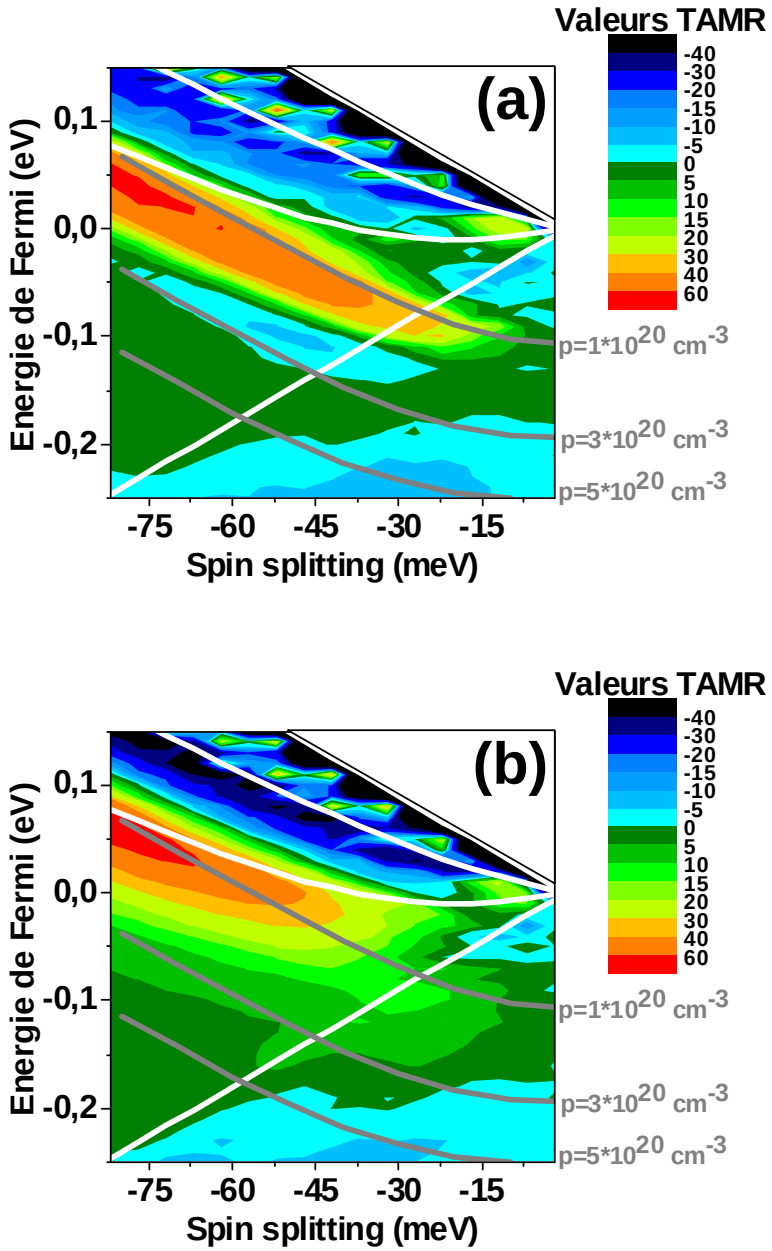


FIG. 2.8 – Variation de la magnétorésistance tunnel anisotrope (en code couleurs) hors plan des couches en fonction de l'énergie de Fermi et le spin splitting B_G pour une barrière d'AlAs de 1,5 nm (a) et de 3 nm (b). Les lignes blanches indiquent les quatre sous-bandes au point Γ.

une contribution positive (négative) à la TAMR est rapportée. Le changement de signe de la TAMR en passant d'une sous-bande à l'autre est également observé sur notre modélisation de la barrière d'AlAs.

Modélisation

Pour exemple, nous avons calculé la TAMR hors plan en fonction des paramètres matériaux de (Ga,Mn)As selon :

$$TAMR_{\perp} = \frac{G_{[001]} - G_{[100]}}{G_{[100]}}$$

Nous reportons sur la figure 2.8 les résultats obtenus avec notre modèle en anticipant les résultats expérimentaux de cette thèse pour les épaisseurs de barrière d'AlAs de 1,5 et 3 nm. Nous mettons d'ores et déjà en évidence que selon l'énergie de Fermi et le spin splitting, i.e. le remplissage des diverses bandes, la TAMR peut devenir alternativement positive ($G_{[001]} > G_{[100]}$) ou négative ($G_{[001]} < G_{[100]}$), en accord qualitatif avec les résultats de Giraud et al. [45] obtenus sur des jonctions Esaki. Nous avons calculé les contributions pour chaque sous-bande et les conclusions sont les suivantes.

Nous pouvons observer que la première bande de trous lourds au point Γ donne une contribution largement négative à la TAMR pour des relatives faibles concentrations de porteurs. Il est cependant à noter que, tout comme pour la magnétorésistance tunnel, en présence de très faibles concentrations de porteurs, le ferromagnétisme dans les couches minces de (Ga,Mn)As n'est toutefois plus assuré, ce qui rend la vérification expérimentale impossible à ce jour.

Nous remarquons également que le signe de TAMR change lorsque la deuxième bande commence à être peuplée de façon significative. Selon des arguments établis à partir du calcul des coefficients de transmission correspondant à chaque bande, la zone de TAMR négative semble plutôt provenir de la contribution de la première bande à fort taux de remplissage.

La TAMR positive de la troisième sous-bande provient de la large contribution de la deuxième sous-bande. La troisième sous-bande quant à elle affiche un comportement plus compliqué de la TAMR, pouvant être positive ou négative à cause du couplage avec les bandes de split-off. La quatrième sous-bande donne une contribution plutôt négative, mais peut cependant devenire positve à forte énergie.

Nous concluons ici qu'à l'exception d'un transport de trous impliquant uniquement les deux premières bandes, les effets de TAMR restent assez modestes et inférieurs à la TMR.

Quelques arguments simples

A partir de ces considérations et outre le résultat du calcul donné par la théorie *k.p*, nous pouvons donner quelques arguments sommaires pour expliquer les mécanismes sous-jacents de la TAMR. Selon l'expression de la conductance donnée par la formule de Landauer, toute variation du courant tunnel doit provenir d'une variation des coefficients de transmission, pilotée en outre par l'énergie des trous et leur caractère respectif lourd ou léger, lié à l'anisotropie de l'énergie d'échange. La transmission des trous légers est favorisée en raison de leur masse effective plus faible.

Rappelons que les masses effectives des trous se propageant selon l'axe de quantification z du moment cinétique total J sont différentes de celles se propageant perpendiculairement à cet axe. Dans le cas de l'approximation sphérique du semiconducteur GaAs les masses effectives seront équivalentes à $\frac{m_o}{\gamma_1 \pm 2\gamma_2}$ *et* $\frac{m_o}{\gamma_1 \pm \gamma_2}$ *respectivement. Les trous qui ont un caractère lourd (léger) selon l'axe de quantification possèdent majoritairement un caractère léger (lourd) perpendiculaire à cet axe. Les termes non-diagonaux dans l'hamiltonien k.p de Luttinger-Kohn (à* $k_{//} \neq 0$*) sont responsables de cette inversion des masses effectives des trous.*

Nous avons calculé les coefficients de transmission discrétisés sur chaque surface de Fermi dans le cas de la barrière d'AlAs de 3 nm, pour les directions d'aimantation [001] et [100] [Fig. 2.9]. Nous avons choisi un paramètre de spin splitting B_G de -20 meV et une énergie de Fermi E_F de -75 meV. On peut alors donner quelques hypothèses grossières en fonction des diverses sous-bandes qui prédominent dans le transport tunnel pour les fortes épaisseurs ou hauteurs de barrière.

Pour la première sous-bande, lorsque le taux de remplissage est important, la surface de Fermi correspondante admet une symétrie quasiment cubique sans différences notables pour des directions équivalentes de l'espace réciproque. Lorsque l'aimantation se situe dans le plan des couches, les trous admettent un caractère principalement léger pour les directions normales, i.e. dans la direction du courant tunnel [Fig. 2.9 (b)]. La transmission des trous légers est favorisée en raison de leur masse effective réduite dans la barrière. La TAMR devient négative pour la première sous-bande [Fig. 2.9 (a) et (e)]. Pour la deuxième sous-bande, ce critère est inversé, donnant une contribution positive à la TAMR [Fig. [Fig. 2.9 (b) et (f)]. En partie suite au couplage avec les bandes de split-off, la troisième et quatrième sous-bande affichent un comportement plus complexe et il semble difficile d'en déduire le signe de TAMR à partir des coefficients de transmission sur les surfaces de Fermi [[Fig. 2.9] (c), (d), (g) et (h)].

2.3.2.3 Coexistence entre effet de TMR et de TAMR

Le cas de la barrière ZnSe ((Ga,Mn)As/ZnSe/(Ga,Mn)As) [126] est, à ce jour, outre les résultats présentés dans cette thèse (chapitre suivant), le seul cas où les effets de

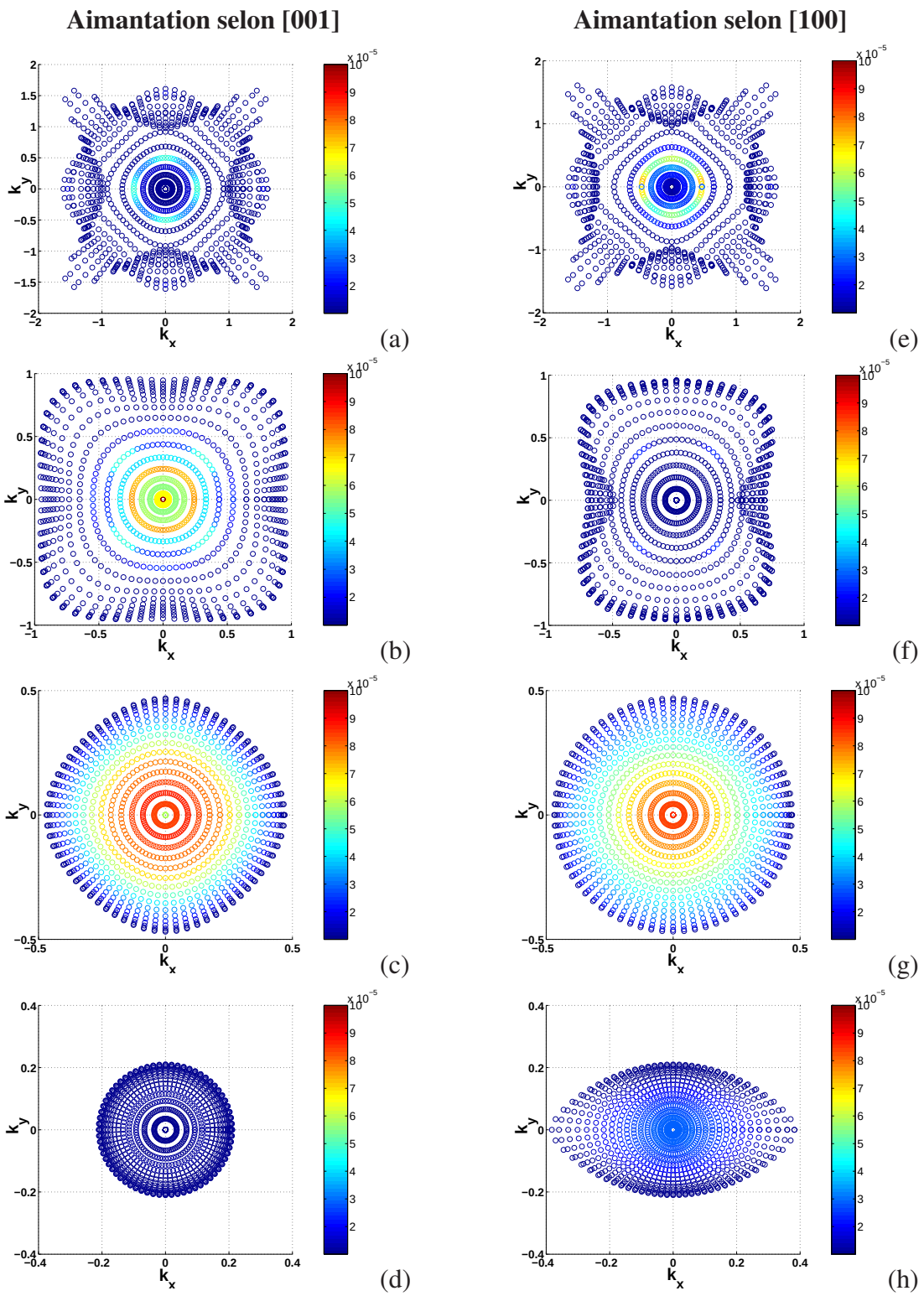


FIG. 2.9 – Coefficients de transmission à travers une barrière d'AlAs de 3 nm, discriminés sur chaque surface de Fermi de (Ga,Mn)As [4 bandes] pour une aimantation perpendiculaire au plan des couches (M//[001]) [Figures (a),(b),(c) et (d)] et dans le plan des couches (M//[100]) [Figures (e),(f),(g) et (h)]. Le paramètre de spin splitting B_G est de -20 meV et l'énergie de Fermi E_F de -75 meV (p$\simeq 1{\cdot}10^{20}$cm^{-3}).

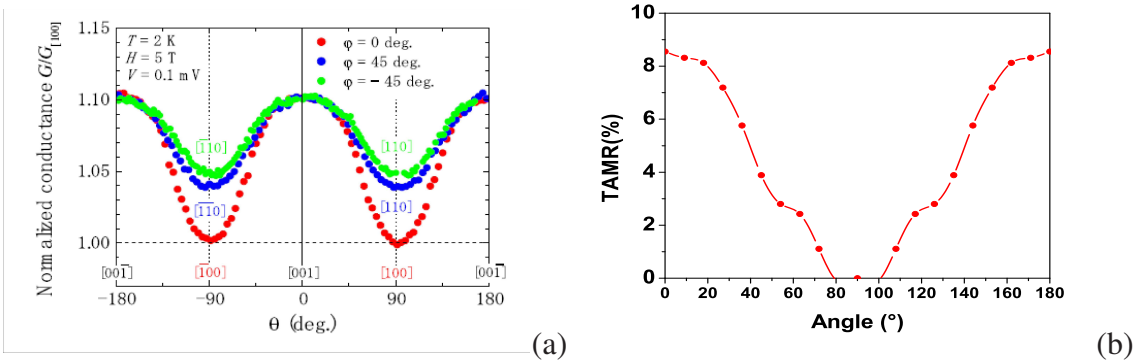


FIG. 2.10 – (a)Variation de la conductance entre la direction [001] et la direction [100] pour une jonction tunnel (Ga,Mn)As/ZnSe/(Ga,Mn)As [126]. (b) Modélisation de la variation de résistance relative en fonction de l'angle entre la direction [001] (θ=0°) et la direction [100] (θ=90°) pour cette simple jonction tunnel.

TMR et TAMR ont été mis en évidence sur un même échantillon sans considérer les résultats présentés dans cette thèse et non publiés à ce jour. Alors que la magnétorésistance tunnel obtenue est égale à 100%, la TAMR hors plan est de 10% [Fig. 2.10(a)] et de 4% dans le plan. Les mesures de résonance ferromagnétique ont démontré que la magnétorésistance tunnel anisotrope et l'anisotropie magnétique proviennent de l'anisotropie de la densité d'états au niveau de Fermi. Dans ces échantillons, malgré une forte concentration d'ions de manganèse dans les électrodes, une température de Curie (T_C=60 K) peu élevée est le signe d'une incorporation importante d'ions de manganèse en site interstitiel.

Dans ce cas, les auteurs ont estimé l'épaisseur de barrière à 2,3 nm par un ajustement graphique de l'équation de Simmons. La déplétion ainsi que l'interdiffusion aux interfaces ont été proposées afin d'expliquer une épaisseur de barrière plus élevée que l'épaisseur nominale. Dans ce cadre, nous avons élaboré le diagramme de phase TAMR et représenté la courbe de TAMR en angle pour un spin splitting de -25 meV, une énergie de Fermi de -100 meV et une épaisseur de la barrière de 2,3 nm. Les valeurs de TMR et de TAMR sont respectivement égales à 130% et 9 % [Fig. 2.10(b)], en très bon accord avec les expériences. L'influence de l'anisotropie de la surface de Fermi devient clairement visible dans le cas du transport tunnel direct (à basse température et très faible tension).

2.3.3 Les limites du modèle

Bien que le formalisme *k.p* soit relativement bien approprié pour décrire la conduction tunnel directe (cohérente) des trous dans les hétérostructures, le modèle à 6 bandes développé ci-dessus possède certaines limites par rapport à d'autres formalismes plus élaborés comme celui des liaisons fortes [128].

Sankowski et al. [128] ont combiné le formalisme des liaisons fortes de la structure de bandes des semiconducteurs et l'expression de Landauer-Büttiker de la conductance tunnel afin de décrire le transport tunnel de trous dans le même type de jonctions tunnel que celles décrites précédemment. Ce formalisme possède d'une part l'avantage par rapport à la théorie *k.p* de tenir compte de la structure électronique des semiconducteurs à une hétérointerface (et non seulement de la fonction enveloppe dans la théorie *k.p*). D'autre part, il traite proprement des vecteurs d'onde éloignés du centre de zone dans le cas d'un semiconducteur fortement dégénéré. Il est alors assez surprenant de constater que la théorie *k.p* donne les tendances essentielles pour la TMR et la TAMR : l'ordre de grandeur et le signe de la TAMR hors plan sont corrects ainsi que leurs variations en fonction des paramètres du matériau, tels que le spin splitting B_G, l'énergie de Fermi E_F ou la concentration de porteurs p.

Chapitre 3

Transport de spin dans des jonctions tunnel GaMnAs/InGaAs/GaMnAs

Ce chapitre est consacré à l'étude d'hétérostructures tunnel à barrière de (In,Ga)As comprise entre deux électrodes magnétiques de (Ga,Mn)As. A l'origine, ce choix résulte de la volonté d'obtenir de faible hauteur de barrière offrant la possibilité d'injecter des densités de courant les plus fortes afin d'étudier les mécanismes de renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin (Chapitre 5). Nous nous intéressons tout d'abord à l'influence de l'épaisseur de la barrière sur la magnétorésistance tunnel (TMR) et la magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR). Dans une deuxième partie nous analysons l'effet du recuit sur des tri-couches à base de (Ga,Mn)As avec différentes concentrations de manganèse : les propriétés magnétiques et électriques sont particulièrement détaillées, en utilisant les résultats du premier chapitre où l'influence du recuit sur des couches minces a été détaillée. Dans la troisième et dernière partie, la modélisation du transport tunnel en théorie *k.p* nous permet de donner des valeurs quantitatives raisonnables aux différents paramètres, énergie de Fermi, concentration de porteurs et spin splitting B_G, avant et après recuit.

Toutes les hétérostructures présentées dans ce chapitre ont été élaborées par Aristide Lemaitre au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN) à Marcoussis[1].

3.1 Hétérostructures non recuites

Dans cette partie nous étudions l'influence de l'épaisseur de la barrière de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be sur le transport dépendant en spin dans les hétérostructures. En distinguant deux épaisseurs de barrière différentes, 4,1 nm et 6,2 nm [Fig.3.1 (a) et Fig.3.2 (a)], nous analysons tout d'abord les propriétés magnétiques et les caractéristiques structurales des jonctions tunnel avant d'aborder les propriétés de transport proprement dites.

3.1.1 Propriétés magnétiques

Dans les hétérostructures tunnel, les deux électrodes ferromagnétiques de $Ga_{0,952}Mn_{0,048}As$ ont été élaborées avec des épaisseurs différentes, respectivement 30 nm (couche supérieure) et 300 nm (couche inférieure), afin d'obtenir deux champs coercitifs distincts. Nous reportons ici un moment à saturation total des deux couches magnétiques autour de 30 emu.cm^{-3} pour les deux échantillons [Fig.3.3 et Fig.3.4].

Concernant la barrière de 6,2 nm, le cycle d'hystérésis effectué à 10 K pour un champ magnétique aligné selon la direction [100] possède deux sauts correspondant au renversement successif des deux couches magnétiques [Fig. 3.3]. Le rapport des moments magnétiques entre les deux sauts est en bon accord avec celui des épaisseurs des couches. La figure 3.3 représente également la variation de l'aimantation en

[1] La croissance du (Ga,Mn)As est réalisée à 250°C avec une faible pression d'arsenic, soit un ratio As/Ga de pression équivalente de l'ordre de 6.

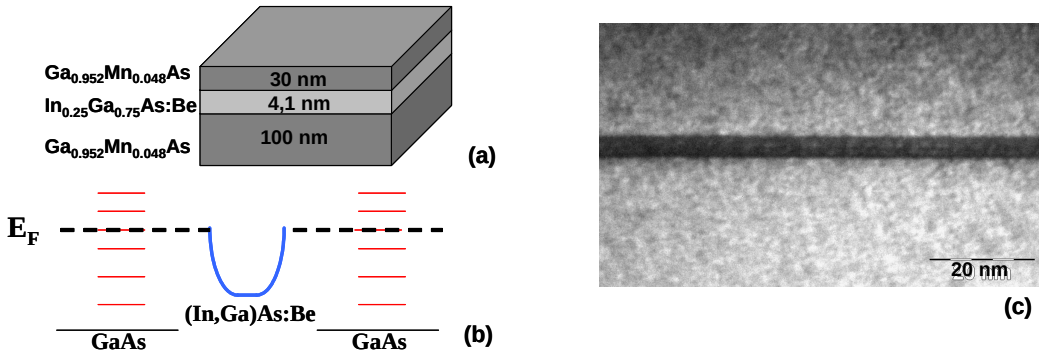


FIG. 3.1 – Structure (a) et profil de la bande de valence (b) de l'échantillon étudié avec barrière $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be de 4,1 nm. (c) Cliché de microscopie électronique en transmission haute résolution (réalisé par Gilles Patriarche, Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN)).

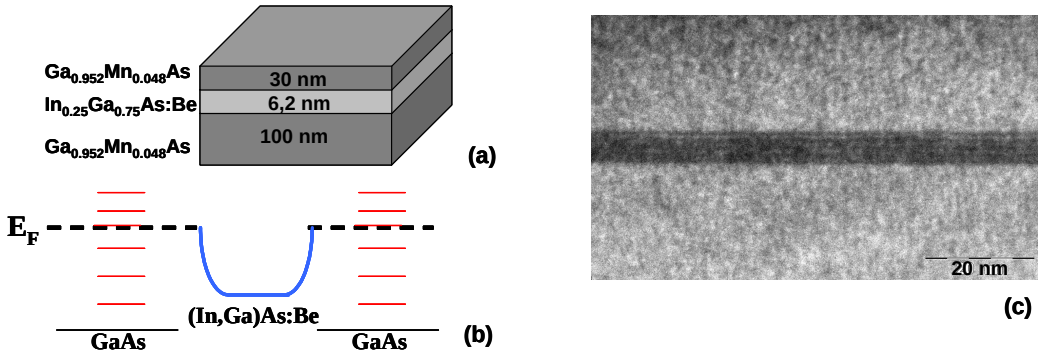


FIG. 3.2 – Structure (a) et profil de la bande de valence (b) de l'échantillon étudié avec barrière $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be de 6,2 nm. (c) Cliché de microscopie électronique en transmission haute résolution (réalisé par Gilles Patriarche, Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN)).

fonction de la température (entre 4 et 350 K). Les températures de Curie sont sensiblement les mêmes pour les deux couches de (Ga,Mn)As (non recuites) se situant autour de 75K, en bon accord avec les résultats de Wang et al. [168]. L'absence d'aimantation rémanente au-dessus de cette température nous indique l'absence de formation de clusters de MnAs (T_C(MnAs)=330 K). En s'appuyant sur les travaux de Dietl et al. [32], le comportement de l'aimantation en température, avoisine la fonction de Brillouin et indique donc la présence d'une concentration assez élevée de porteurs (nous estimons dans le cas présent la concentration autour de $1{\cdot}10^{20}$ porteurs par cm^3).

Pour la barrière de 4.1 nm, les deux renversements successifs n'ont pas pu être identifiés [Fig. 3.4]. Ceci est en accord avec les mesures expérimentales de Sato et al. [131] prévoyant que, pour des épaisseurs inférieures à 6 nm, aucun état anti-parallèle ne peut être stabilisé. Les auteurs invoquent l'existence d'un couplage ferromagnétique entre les deux couches. Deux températures de Curie différentes (de 70 K et de 90 K) peuvent cependant être observées dans la courbe M(T) [Fig. 3.4].

3.1.2 Caractéristiques des jonctions tunnel

Rappelons que le niveau accepteur de manganèse en site unique se situe à 113 meV au-dessus du haut de la bande de valence du GaAs. A plus forte concentration de Mn, au-delà de la transition métal-isolant du (Ga,Mn)As, GaAs demeure une barrière tunnel pour (Ga,Mn)As en raison du décalage positif d'offset de bande introduit par le Mn. Une marche de potentiel de l'ordre de grandeur de 100 meV a pu être ainsi mise en évidence entre (Ga,Mn)As et GaAs élaboré à chaud à travers un modèle d'émission thermo-ionique [111]. Récemment Adell et al. ont mis en évidence un offset de bandes de 450 meV entre (Ga,Mn)As et une couche de GaAs (de plus de 3 nm) élaboré à froid par des mesures de photoémission [3]. La présence d'antisites As dans (Ga,Mn)As joue le rôle de dopant de type n qui a pour effet de compenser une fraction importante de trous introduits par le manganèse en substitution. Cette compensation peut entraîner généralement une variation notable de la hauteur de barrière [Fig.3.1b et Fig.3.2b]. Afin de diminuer la hauteur de barrière effective, nous avons remplacé la barrière de GaAs par une barrière de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be. Le dopage *p* introduit par le béryllium (à $1{,}4{\cdot}10^{19}$ cm^{-3}) dans la barrière a pour objet de compenser une certaine proportion des donneurs profonds d'antisites d'arsenic. Toutefois, comme démontré par Bliss et al. sur du GaAs élaboré à basse température [14], la concentration totale en antisites d'arsenic ne varie guère[2]. Nous précisons ici que le niveau de Fermi, déterminé par les antisites d'arsenic, est situé proche du milieu de la bande interdite du GaAs [84].

[2]Nous avons également étudié un échantillon sans dopage de béryllium de la barrière d'$In_{0,25}Ga_{0,75}As$ (6 nm). Le produit R.S, les valeurs de TMR ainsi que le comportement de TMR en fonction de la tension ne montraient pas de différence par rapport à l'échantillon étudiée dans le cas présent.

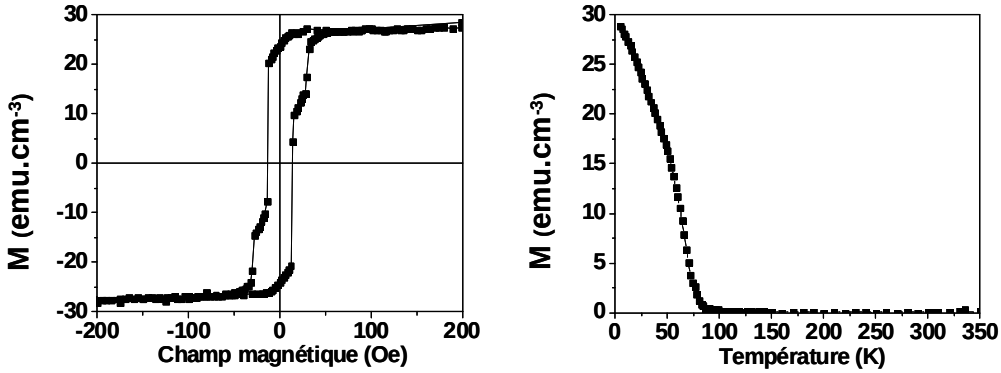


FIG. 3.3 – Mesures d'aimantation pour la barrière $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be de 6,2 nm. A gauche : cycle d'hystérésis effectué à 10 K selon l'axe cristallographique [100]. A droite : variation de l'aimantation en fonction de la température sous un champ magnétique de 500 Oe.

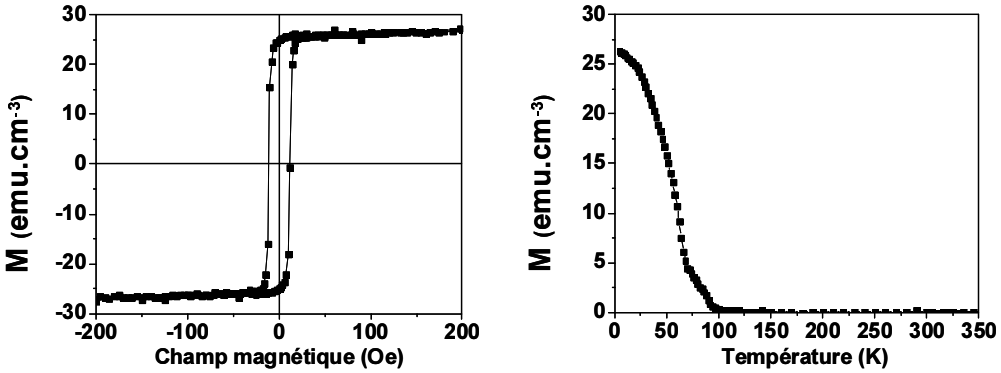


FIG. 3.4 – Mesures d'aimantation pour la barrière $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be de 4,1 nm. A gauche : cycle d'hystérésis effectué à 10 K selon l'axe cristallographique [100]. A droite : variation de l'aimantation en fonction de la température sous un champ magnétique de 500 Oe.

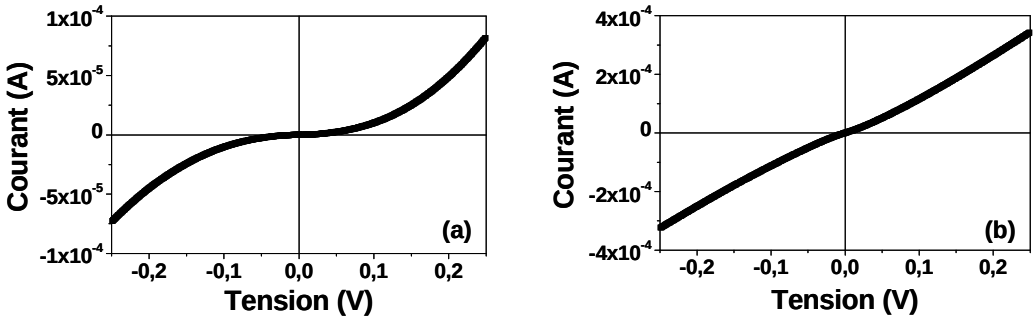


FIG. 3.5 – Courbes de courant en fonction de la tension pour la barrière $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be de 6,2 nm (a) et de 4,1 nm (b). La mesure est réalisée à 3 K et en absence de champ magnétique.

La qualité structurale des structures est représentée par les images de microscopie électronique en transmission sur la figure 3.1 (c) et la figure 3.2 (c) (réalisées par Gilles Patriarche au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures). La barrière des deux hétérostructures épitaxiées est entièrement continue.

Quelles sont les caractéristiques courant-tension ?
Les mesures de courant tunnel sont réalisées en géométrie dite CPP (Courant Perpendiculaire au Plan) : les trous sont alors injectés perpendiculairement à la surface de la jonction. Pour définir les jonctions de forme carrée et de taille microscopique (entre 8 μm^2 et 128 μm^2), nous utilisons un procédé technologique de lithographie optique (U.V) en 4 étapes bien maîtrisé au laboratoire (Annexe B).

Alors que pour la barrière de (In,Ga)As :Be à 6,2 nm, un comportement fortement non-linéaire est mis en évidence, nous constatons une variation presque linéaire pour l'épaisseur de barrière plus faible (4,1 nm) [Fig. 3.5]. Ceci est en bon accord avec les mesures de transport sur une barrière de GaAs de 4 nm [26] et les mesures de photoémission [3] : En dessous d'une certaine épaisseur de barrière (autour de 3-4 nm), les trous se propagent à travers la couche non-magnétique. La résistance surfacique R.S diminue de 1.10^{-2} $\Omega.cm^2$ (à 3K sous 1mV) pour la barrière de 6,2 nm à 3.10^{-4} $\Omega.cm^2$ (à 3K sous 1mV) pour la barrière de 4,1 nm. Rappelons, pour comparaison, que le produit R.S correspondant à une barrière d'AlAs de 1,7 nm (1.10^{-1} $\Omega.cm^2$) (compris entre deux couches de GaAs de 1 nm) reste un ordre de grandeur plus grand que celui de la barrière de (In,Ga)As :Be de 6,2 nm sans doute en raison d'une hauteur de barrière singulièrement plus grande. Du fait des effets de charge, des masses effectives différentes dans le semiconducteur ferromagnétique et la barrière, de la forme et de la faible hauteur de barrière de potentiel, nous considérons que le modèle de Brinkmann et al. [20] n'est pas adapté pour une obtention précise de la hauteur de barrière.

3.1.3 La magnétorésistance tunnel (TMR)

La magnétorésistance tunnel est mesurée comme la différence normalisée de courant tunnel entre les configurations parallèles et antiparallèles :

$$\mathrm{TMR} = \frac{\mathrm{I_P} - \mathrm{I_{AP}}}{\mathrm{I_{AP}}} \tag{3.1}$$

Nous avons mesuré la TMR à basse température (à 3 K) et à basse tension (à 1 mV) pour les deux hétérostructures selon l'axe cristallographique [100] [Fig. 3.6]. Nous constatons que la TMR est nettement plus élevée dans le cas de la barrière de 6,2 nm. La valeur de 40 % est du même ordre de grandeur que nos résultats sur les premières générations à barrière de AlAs [96], mais reste cependant en-dessous des résultats de TMR (de 105% à 4,7 K) obtenus sur la barrière de GaAs par Chiba et al. [25]. La différence des champs coercitifs mesurée en transport en comparaison avec les mesures magnétiques s'expliquent par un effet de taille : les champs magnétiques de fuite correspondant aux plus petites tailles favorisent en effet un état anti-ferromagnétique (champ dipolaire). Dans le cas de la barrière de 4,1 nm, la faible valeur de magnétorésistance mesurée de 4% doit sans doute être relié au couplage entre les deux électrodes ferromagnétiques par échange indirect (provenant du recouvrement des fonctions d'onde associées aux trous dans chaque électrode). Un rapprochement des deux champs coercitifs dans le cas de la barrière de 4,1 nm est constaté [Fig.3.6] par rapport à la barrière de 6,2 nm.

Dans un modèle simplifié, la valeur de la polarisation de spin des trous P peut être déduite à partir de la magnétorésistance tunnel. Selon le modèle de Jullière adapté à la bande de conduction (2 sous-bandes) :

$$\mathrm{TMR} = \frac{2\mathrm{P}^2}{1-\mathrm{P}^2} \Leftrightarrow \mathrm{P} = \sqrt{\frac{\mathrm{TMR}}{2+\mathrm{TMR}}} \tag{3.2}$$

Il faut préciser que P représente ici une polarisation moyenne effective des deux interfaces supposées identiques. Dans le cas de la barrière de 6,2 nm et de 4,1 nm, nous obtenons ainsi des valeurs de polarisation de 40% et de 15 %, respectivement. Nous allons étudier par la suite le comportement de la magnétorésistance tunnel et de la polarisation en fonction de la température et de la tension.

Remarque : *Comme plusieurs facteurs (la concentration de porteurs, l'anisotropie de forme et l'anisotropie cristalline) interviennent sur la détermination de l'axe de facile aimantation, nous avons étudié le comportement en angle de la TMR. A partir des cycles de résistance en fonction du champ magnétiques, nous avons vérifié en premier lieu que l'axe de facile aimantation se situait dans le plan des couches. Les renversements d'aimantation les plus nets associés à une optimisation des valeurs de magnétorésistance correspondent aux axes cristallographiques [100].*

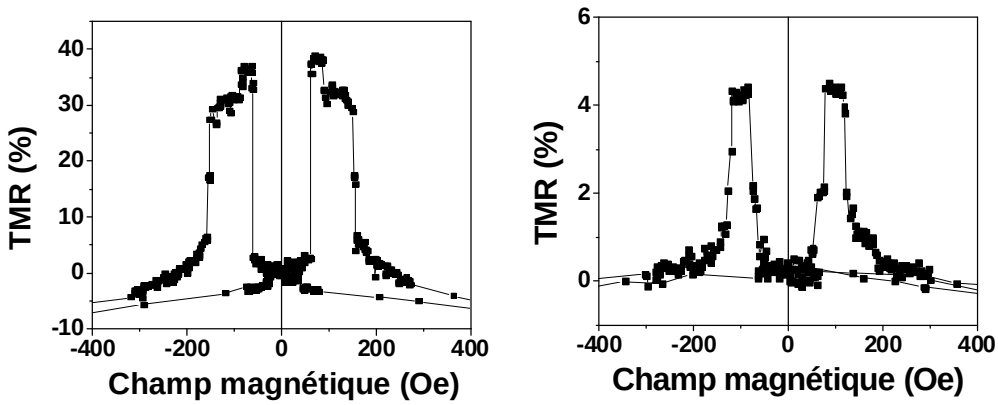


FIG. 3.6 – Magnétorésistance tunnel à 1 mV et à 3 K pour la barrière $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be de 6,2 nm (à gauche) et pour la barrière $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be de 4,1 nm (à droite).

3.1.3.1 Dépendance en température de la polarisation de spin

Nous avons représenté sur la figure 3.7 la variation de la polarisation en fonction de la température pour les deux types de barrière. La polarisation moyenne s'annule lorsque la température excède la température de Curie la plus faible des 2 couches, correspondant en l'occurrence à la couche épaisse inférieure. Nous en déduisons que ceci est la signature d'un transport tunnel direct [95]. On observe que l'aimantation et la polarisation tunnel accusent la même chute en température pour la barrière de 6,2 nm. La polarisation des trous est directement liée à l'aimantation à travers le paramètre d'échange du spin splitting par Dietl et al. [32]. Comme la polarisation ne sature pas aux plus faibles températures (correspondant à une augmentation du spin splitting), la concentration des trous est estimée dans le cas présent autour de 10^{20} cm^{-3}. Nous retrouvons un bon accord entre la température de Curie et la concentration des porteurs à travers les résultats de Malfait et al. [90]. De même pour l'épaisseur de barrière de 4,1 nm, la TMR s'annule à la température de Curie la plus faible des 2 couches.

Des mesures de résistance et de magnétorésistance tunnel ont été réalisées sur la barrière de 6,2 nm à très basse température (50 mK) selon l'axe de difficile aimantation [110]. Aucune variation de résistance ou de magnétorésistance tunnel entre 4K et 50 mK n'a pu être décelée, éliminant ainsi l'hypothèse d'un effet tunnel assisté par défauts. Ce dernier doit en effet être associé à une très forte activité thermique de la conductivité ce qui va à l'encontre de nos observations.

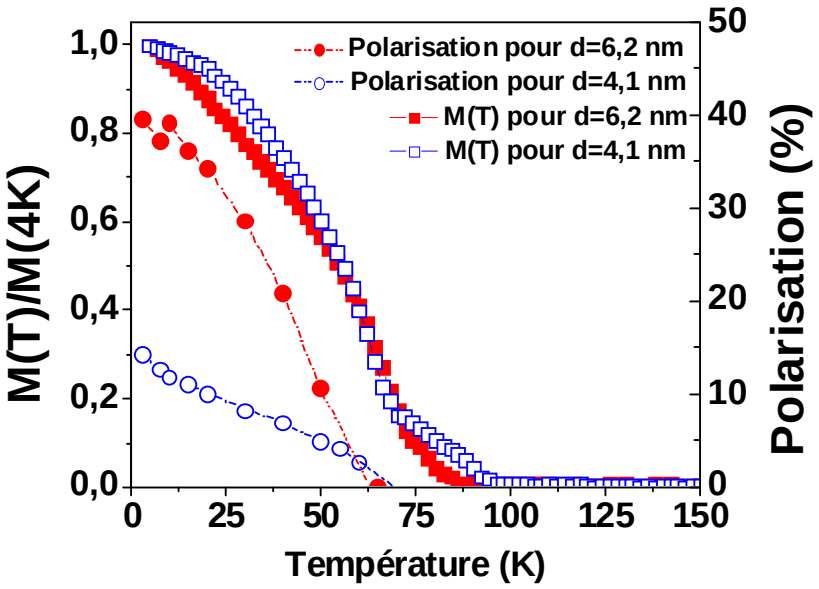


FIG. 3.7 – Variation de la polarisation et de l'aimantation (normalisée à 4K) en fonction de la température pour les deux barrières d'épaisseur différente.

3.1.3.2 Dépendance en tension de la polarisation de spin

Le comportement de la TMR en tension est reporté sur la figure 3.8. La valeur caractéristique $V_{1/2}$, représentant la valeur de tension pour laquelle la magnétorésistance est réduite de moitié, est de 75 mV pour la barrière de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ de 6,2 nm [Fig. 3.8 a]. Elle est nettement inférieure aux valeurs établies dans des structures métalliques, e.g. 200 mV pour la jonction tunnel $Co/Al_2O_3/Ni_{80}Fe_{20}$ [99]. Plusieurs facteurs peuvent être à l'origine de cette dépendance particulière en tension [94] : les excitations d'ondes de spin et la structure de bande électronique. Nous faisons ici quelques commentaires.

• *Tunnel inélastique* : Lors de leur transport tunnel de la première à la seconde électrode à travers la barrière, les trous possèdent une énergie plus élevée que le bain thermique et relaxent dans la seconde électrode. Ce processus de relaxation des trous chauds peut se réaliser en émettant des magnons à l'interface entre la barrière et l'une des deux électrodes [183]. On peut associer à ce type d'effet tunnel inélastique assisté par magnon une perte de polarisation de spin rendant compte de la décroissance de TMR observée. Par conséquent, plus la chute de tension appliquée est élevée, plus la différence entre les deux niveaux de Fermi est grande et plus le réservoir de magnons disponibles pour le transport inélastique favorise un mécanisme de spin-flip. D'après Zhang et al. [183], l'énergie des magnons mise en jeu ici est de l'ordre de k_BT_C et donc dans notre cas autour quelques meV ; elle est donc nettement plus petite dans

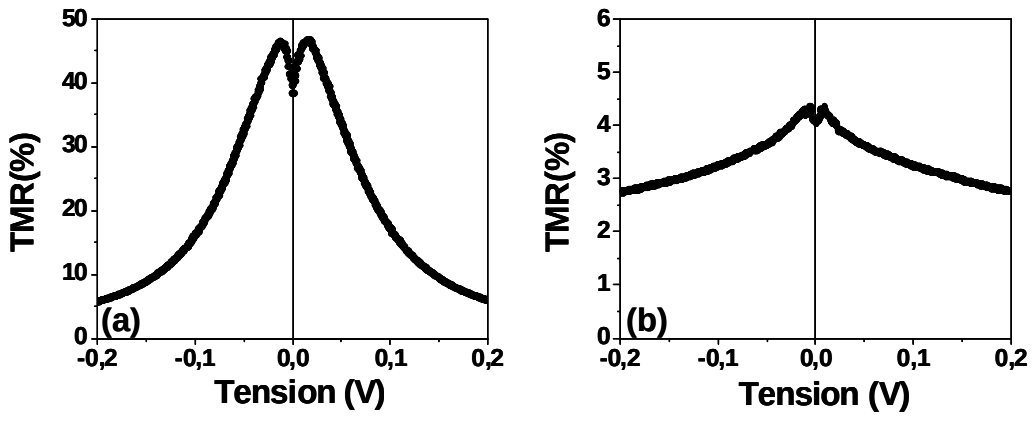


FIG. 3.8 – Variation de la TMR en fonction de la tension à 4 K, obtenue à partir des deux courbes I(V) dans les configurations magnétiques parallèles et antiparallèles, pour la barrière de 6,2 nm (a) et de 4,1 nm (b).

notre cas que dans le cas des électrodes métalliques, d'où une décroissance plus rapide de TMR en tension pour le semiconducteur ferromagnétique.

Qu'en est-il des excitations de phonons ? Elles correspondent à des températures au-dessus de la température ambiante, l'effet des phonons interviennent donc essentiellement dans la dépendance de la tension. Bratkovsky a démontré que l'émission ou l'absorption de phonons peuvent être responsables d'une décroissance moins rapide de la magnétorésistance [18].

• *Structure de bandes* : Selon Sankowski et al. [127], dans les hétérostructures à base de (Ga,Mn)As, la décroissance de la magnétorésistance tunnel en fonction de la tension peut être directement liée à la structure de bandes : Alors qu'elle influe sur le comportement en fonction de la tension, la concentration de trous ne joue pratiquement pas sur la valeur de tension où la TMR devient nulle. Cette valeur exprimerait en même temps la hauteur de barrière réelle et dépendrait directement de la concentration de manganèse dans l'électrode ferromagnétique. Pour relier alors ce résultat théorique à nos expériences, la hauteur de barrière est attendue autour de 300 mV dans le cas de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ (6,2 nm). Vue les résultats récents de photoémission de Adell et al. [3], cette valeur peut paraître acceptable.

Actuellement, il s'avère toutefois assez difficile de discriminer chacun de ces effets contribuant sans doute à une telle décroissance de la TMR en tension.

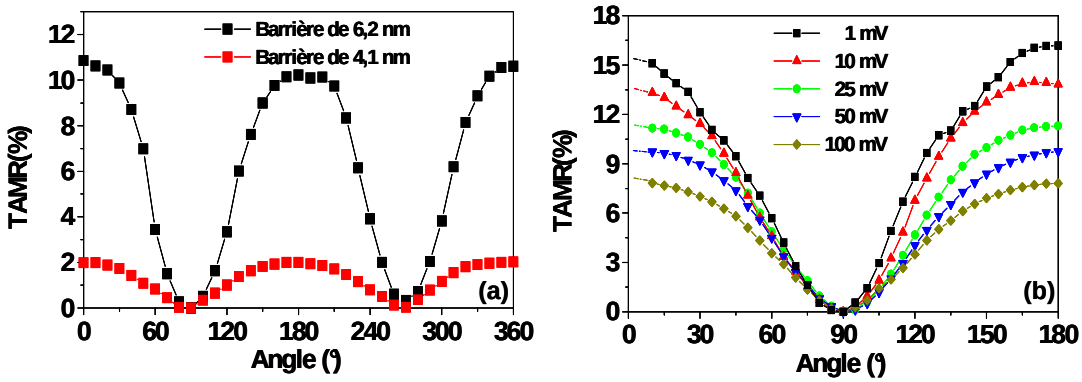


FIG. 3.9 – (a) Variation de la magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR) en fonction de l'angle à 1 mV et à 3 K pour les deux types de barrière. L'angle nul correspond à un champ magnétique dans le plan des couches ; l'angle 90° correspond au champ magnétique perpendiculaire au plan des couches. (b) Variation de la TAMR en fonction de l'angle pour différentes tensions pour la barrière de 6,2 nm à 3 K.

3.1.4 La magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR)

Dans ce paragraphe, nous nous consacrons aux propriétés de TAMR hors plan mesurée sous un champ saturant de 6 kG. On rappelle que la TAMR est définie comme :

$$\mathrm{TAMR}(\theta) = \frac{R_\theta - R_{\theta=90^\circ}}{R_{\theta=90^\circ}} \tag{3.3}$$

où θ=90° représente la direction perpendiculaire au plan des couches (selon la direction du courant I). Nous constatons qu'en orientant le champ magnétique dans la direction normale du plan des couches, la résistance diminue pour les deux structures et atteint un minimum lorsque l'aimantation est parallèle à la direction du courant tunnel, i.e. dans la direction normale au plan des couches. Les valeurs de TAMR hors plan sont égales à 11 % pour la barrière de 6,2 nm et à 4% pour la barrière de 4,1 nm. Un deuxième échantillon de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ (6,2 nm) élaboré dans les mêmes conditions, donnant les mêmes valeurs de TMR, montrait des valeurs de TAMR de 16 % à basse tension et à basse température [Fig. 3.9]. Nous lions la faible valeur de TAMR de la barrière de 4 nm à un régime de conduction s'écartant du régime tunnel.

Par contraste avec les premiers résultats obtenus par le groupe de Würzburg, nous précisons ici que les valeurs de TAMR dans le plan sont toujours inférieures à 4% pour les deux hétérostructures. Nous reviendrons plus explicitement sur le phénomène de TAMR dans le chapitre suivant de ce manuscrit.

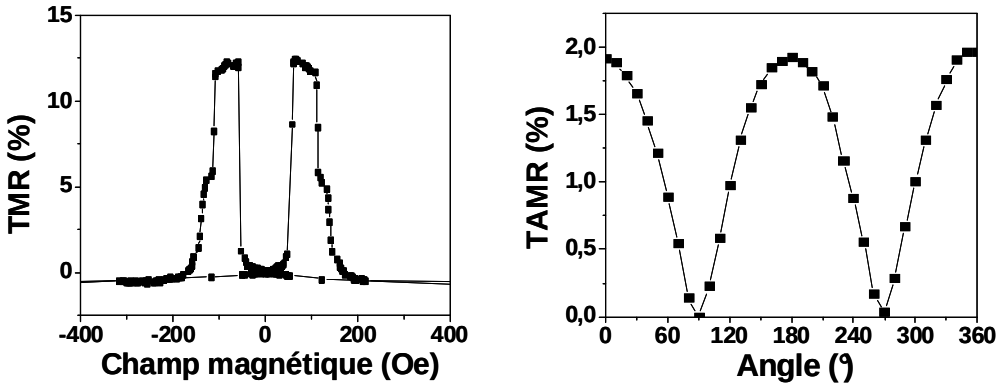


FIG. 3.10 – (A gauche) Magnétorésistance tunnel pour la barrière de $In_{0,33}Ga_{0,67}As$ de 6 nm à 3K et à 1mV. (A droite) Magnétorésistance tunnel anisotrope en fonction de l'angle pour la barrière de $In_{0,33}Ga_{0,67}As$ de 6 nm à 3K et à 1mV.

3.1.5 Effet du dopage dans (In,Ga)As

Q'en est-il de l'effet de la concentration d'In dans la barrière ? En ce sens, nous avons étudié 2 échantillons différents. En modifiant la concentration d'indium de 25% à 33%, il est possible de changer la hauteur de barrière. La bande interdite diminue de 1.1 eV pour $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ à une valeur de 0.95 eV pour $In_{0,33}Ga_{0,67}As$[3].

Nous observons que l'augmentation de la concentration d'indium à 33% dans une barrière d'épaisseur de 5,8 nm s'accompagne d'une nette diminution de TMR. A 3 K et sous 1 mV la TMR atteint 12% [Fig. 3.10]. Le comportement en tension et en température est identique à celui de la barrière de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be. Le produit R.S, égal à 0,003 $\Omega.cm^{-2}$ (à 3K sous 1mV), décroît, quant à lui, d'un ordre de grandeur. Une diminution est attendue i) de la variation exponentielle du courant tunnel en fonction de la hauteur de barrière ou ii) d'un transport tunnel inélastique par des défauts dans la barrière.

La valeur de magnétorésistance tunnel anisotrope devient égale à 2 % à 3K et à 1 mV [Fig. 3.10], du même ordre de grandeur que celle la barrière de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$:Be à 4,1 nm. Cette diminution de TMR et de TAMR associée à une diminution de hauteur de barrière nous indique que le régime tunnel devient moins dominant. Il est difficile de faire, à ce jour, des commentaires plus précis sur la nature du transport pour la barrière à 33 % d'In.

[3]Nous rappelons ici que l'énergie de bande interdite du GaAs est de 1,4 eV et de InAs de 0,33 eV.

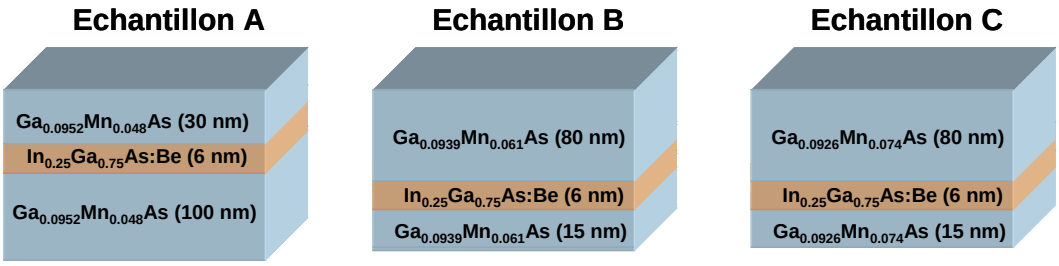


FIG. 3.11 – Variation de la concentration de manganèse à l'intérieur des couches de $Ga_{1-x}Mn_xAs$: x=4,8 % (Echantillon A), x=6,1 % (Echantillon B), x=7,4 % (Echantillon C). Les deux électrodes de (Ga,Mn)As sont séparées d'une barrière de $In_{0.25}Ga_{0.75}As$ de 6 nm.

3.2 Hétérostructures recuites

Il est maintenant admis qu'un recuit améliore nettement la température de Curie et influe sur les paramètres d'une couche mince de (Ga,Mn)As, tels que la concentration de porteurs p ou le spin splitting B_G. Qu'en est-il du transport tunnel polarisé en spin ? Nous avons étudié pour cela les effets du recuit sur trois hétérostructures différentes. Afin de modifier les propriétés de transport et les propriétés magnétiques, trois concentrations différentes de manganèse ont été testées : x=4,8 %, x=6,1 % et x=7,4 %. Les 3 échantillons étudiés avec une barrière $In_{0.25}Ga_{0.75}As$:Be (6 nm) sont schématisés sur la figure 3.11.

Les recuits ont été réalisés par Laura Thevenard au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN). Ils sont effectués pendant une heure sous une atmosphère d'azote à la température de croissance de 250°C. Concernant les mesures d'aimantation (au SQUID), les recuits sont réalisés sur des échantillons pleine plaque avec la couche supérieure de (Ga,Mn)As en contact direct avec l'extérieur. Dans le cas des mesures de transport, l'étude a porté sur des échantillons déjà lithographiés (la couche supérieure de (Ga,Mn)As est enterrée sous 200 nm d'Au). Il existe donc une différence de procédure de recuit entre les mesures d'aimantation et les mesures de transport.

3.2.1 Propriétés magnétiques

Rappelons qu'avant recuit, le renversement en deux étapes selon l'axe de facile d'aimantation (à 10K), montre que les deux couches de (Ga,Mn)As possèdent deux champs coercitifs différents. Le moment rémanent représente environ 80% du moment de l'aimantation à saturation pour les trois échantillons avant recuit. Après recuit, une nette diminution du champ coercitif de la couche supérieure est mise en évidence pour les trois structures. L'élimination des défauts, tels que les manganèses en site interstitiel, jouant le rôle de centre d'accrochage, est généralement invoquée pour expliquer cette variation [122] (Voir chapitre 1).

Nous détaillerons maintenant les effets du recuit pour les trois échantillons spécifiés :

• Echantillon A(x=4,8%) : sur les cycles d'hystérésis mesurés selon l'axe [100], on constate, qu'après recuit, le champ de retournement de la couche (supérieure) de 30nm est maintenant inférieur à celui de la couche (inférieure) de 300 nm [Fig. 3.12(a)]. Notons, toutefois, que le moment magnétique total de l'hétérostructure n'a pratiquement pas varié après recuit et que l'aimantation rémanente a augmenté.

• Echantillon B(x=6,1%) : l'axe de facile aimantation de la couche épaisse a tourné par rapport à l'échantillon A. En effet, en orientant le champ magnétique selon [100] (selon [110]) l'aimantation de la couche supérieure se retourne en deux sauts (en un seul saut) [Fig. 3.13(a)]. Le même moment rémanent est mesuré selon ces deux axes cristallographiques. Selon Dietl et al. [32], l'axe de facile aimantation dépend du signe du coefficient d'anisotropie cubique, lié au remplissage des différentes sous-bandes. Il est alors possible d'observer un changement d'axe de facile aimantation en fonction de la concentration des porteurs qui dépend, en outre, de la fraction de manganèses interstitiels, doubles donneurs. Notons par ailleurs que l'aimantation à saturation de la couche supérieure a augmenté de 20 % après recuit. Les valeurs de l'aimantation à saturation avant et après recuit sont en excellent accord de celles de Potashnik et al. [121], obtenues sur une couche simple de $Ga_{0,943}Mn_{0,0597}As$ de 125 nm (Avant recuit : M_S=27 emu·cm^{-3} et après recuit : M_S=30 emu·cm^{-3}).

• Echantillon C(x=7,4%) : l'axe de facile aimantation se situe de nouveau selon l'axe [100] [Fig. 3.14(a)]. L'aimantation à saturation de la couche supérieure a augmenté de 35% après recuit. Notons également cette forte valeur de 41,8 emu·cm^{-3} après recuit (à 10 K) pour la couche magnétique supérieure, en bon accord avec les valeurs expérimentales de Kirby et al. [69] (48 emu·cm^{-3} à 13 K pour une concenration de manganèse de 7,3% et une température de Curie de 125 K).

Pour résumer, *avant recuit*, on observe que l'augmentation du dopage en Mn des électrodes de (Ga,Mn)As a de façon surprenante tendance à diminuer la température de Curie en raison sans doute d'une incorporation massive des manganèses interstitiels qui lui est associée. En accord avec les valeurs obtenues sur les couches minces de (Ga,Mn)As, la température de Curie n'excède pas 100 K avant recuit (Chapitre 1). *Après recuit*, on constate sur les courbes M(T) seulement un changement des propriétés magnétiques de la couche supérieure. Ces résultats sont en accord avec les mesures de température de Curie des couches de (Ga,Mn)As séparées d'une barrière de GaAs [27]. Ainsi pour l'échantillon A, deux températures critiques apparaissent, l'une à 87 K correspondant à la couche inférieure, et l'autre à 127 K correspondant à la couche supérieure [Fig. 3.12(b)]. Concernant les deux échantillons B et C, en raison du moment magnétique plus important de la couche supérieure possédant une température de Curie de 120 K, l'aimantation de la couche inférieure ne peut

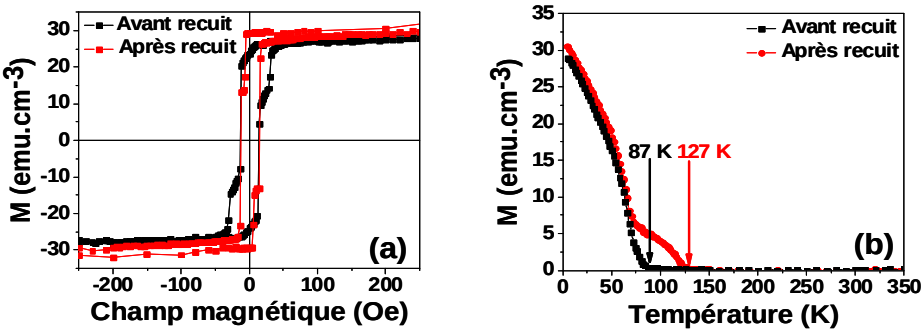


FIG. 3.12 – Mesures d'aimantation pour l'échantillon A (x=4,8 %). (a) Cycle d'hystérésis effectué à 10 K selon l'axe cristallographique [100] avant et après recuit. (b) Variation de l'aimantation en fonction de la température sous un champ magnétique de 500 Oe avant et après recuit.

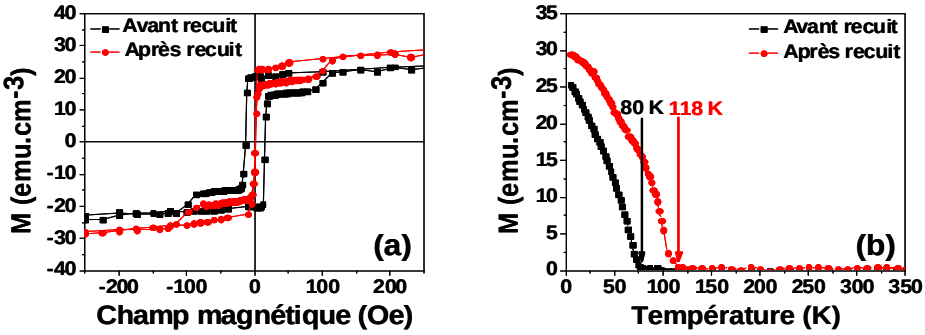


FIG. 3.13 – Mesures d'aimantation pour l'échantillon B (x=6,1 %). (a) Cycle d'hystérésis effectué à 10 K selon l'axe cristallographique [110] avant et après recuit. (b) Variation de l'aimantation en fonction de la température sous un champ magnétique de 500 Oe avant et après recuit.

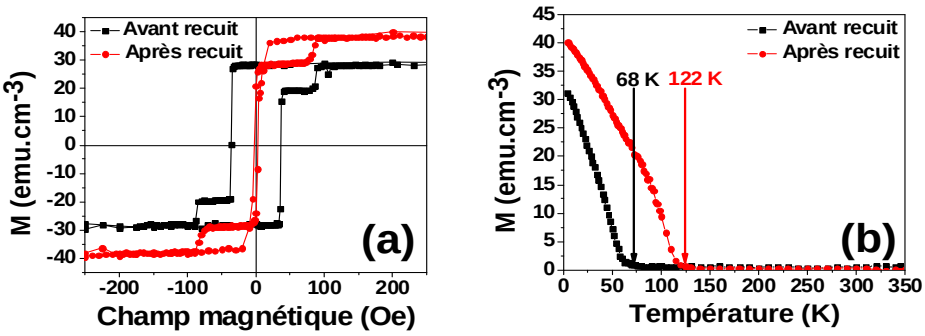


FIG. 3.14 – Mesures d'aimantation pour l'échantillon C (x=7,4 %). (a) Cycle d'hystérésis effectué à 10 K selon l'axe cristallographique [100] avant et après recuit. (b) Variation de l'aimantation en fonction de la température sous un champ magnétique de 500 Oe avant et après recuit.

pas être discriminée [Fig. 3.13(b) et Fig. 3.14(b)]. Cependant en se basant sur la courbe d'aimantation en température avant recuit, il devient possible de discriminer la température de Curie de la couche inférieure après recuit (se situant autour de 80 K pour l'échantillon B et autour de 68 K pour l'échanillon C).

Nous observons donc une augmentation de l'aimantation à saturation des électrodes supérieures pour les échantillons à plus forte concentration de Mn et en particulier pour l'échantillon C dopé à 7,4 %. Or les températures de Curie des ces deux échantillons B et C étant à peu près identiques ($T_C \simeq 120$ K), nous pouvons d'ores et déjà affirmer que le nombre de porteurs dans l'échantillon B est plus important que celui présent dans l'échantillon C en raison de la correspondance entre la température de Curie et x et p. Ceci rejoint la conclusion de Yu et al. [179] selon laquelle pour des couches épaisses de (Ga,Mn)As (> 50 nm), la température de Curie doit saturer : l'augmentation de la concentration de Mn x au-delà de la limite supérieure de la concentration de porteurs p, favorise la formation des manganèses interstitiels, de sorte à garder le produit $x.p$ au maximum [178, 179].

L'invariance des propriétés de la couche magnétique inférieure peut être reliée directement aux expériences de Stone et al. [153]. Ces derniers ont en effet montré que recouvrir la couche de (Ga,Mn)As d'une couche de plus de 5 nm de GaAs, n'améliorait pas les propriétés ferromagnétiques du (Ga,Mn)As après recuit. Le tableau ci-dessous dresse quelques propriétés magnétiques de la couche supérieure avant et après recuit.

Mn(%)	T_C(Avant recuit)	T_C(Après recuit)	M_S(Avant recuit)	M_S(Après recuit)
4,8 %	87 K	127 K	28,9 emu·cm^{-3}	35,7 emu·cm^{-3}
6,1 %	80 K	118 K	25,3 emu·cm^{-3}	30,3 emu·cm^{-3}
7,4 %	68 K	122 K	31,1 emu·cm^{-3}	41,8 emu·cm^{-3}

TAB. 3.1 – Résumé des températures de Curie et de l'aimantation à saturation de la couche magnétique supérieure avant et après recuit.

3.2.2 Spectroscopie Auger

L'accumulation de manganèse à la surface et l'augmentation de la température de Curie sont deux conséquences directes du recuit pour la couche magnétique supérieure. A partir des mesures de spectroscopie d'électrons Auger (AES) associée à une gravure ionique, il est possible de mesurer la variation de concentration d'un élément chimique au sein d'une hétérostructure. Sur l'échantillon C(x=7,4%), nous constatons ainsi que le profil de concentration de manganèse est inhomogène au sein des deux couches avant recuit [Fig.3.15]et qu'il chute jusqu'à la surface pour la couche magnétique su-

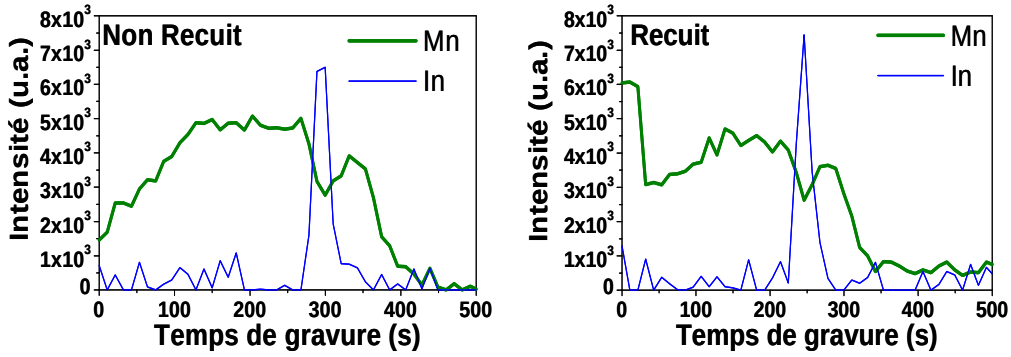


FIG. 3.15 – Mesures de spectroscopie d'électrons Auger associée à une gravure ionique avant recuit (à gauche) et après recuit (à droite) pour l'échantillon C (x=7,4%).

périeure[4]. Après recuit on peut identifier une ségrégation de manganèse en surface. Notons que le signal du manganèse double d'intensité en surface sur une épaisseur estimée à environ 5 nm. Aucune redistribution évidente des ions de manganèse n'a pu être constatée aux interfaces après recuit.

3.2.3 Transport tunnel

3.2.3.1 Influence du recuit sur la magnétorésistance tunnel

L'influence du recuit a été testée sur plusieurs hétérojonctions de chaque échantillon. Pour les trois échantillons à différentes concentrations de manganèse, on observe une augmentation de la magnétorésistance tunnel et une nette diminution du produit R.S après recuit. Ainsi, il est possible d'améliorer très nettement la TMR de 30% à des valeurs nettement plus élevées (autour de 120% pour tous les échantillons). Pour l'échantillon A (x=4,8%), montrant les plus fortes valeurs de TMR, l'élimination des atomes de Mn en site interstitiel de la couche supérieure de 30 nm est probablement plus efficace [76].

Une concentration de trous plus faible est à l'origine d'un produit R.S. plus élevé si l'on compare l'échantillon C(x=7,4%) à l'échantillon B(x=6,1%). Il faut souligner que le nombre de porteurs, et donc le produit R.S, suit bien la même évolution en fonction de la concentration de manganèse, connu dans les simples couches ferromagnétiques de (Ga,Mn)As (Voir figure 1.16-Chapitre 1). La plus forte concentration de porteurs est alors obtenue pour une concentration de manganèse autour de 6%, ce qui confirme

[4]Comme la concentration de manganèse ne peut être appréciée qu'à 30% près sans étalonnage, nous représenterons le profil de manganèse en unités arbitraires. La profondeur d'échappement des électrons Auger, estimée à 3 nm, ainsi que l'interdiffusion des éléments chimiques peuvent expliquer que le signal de manganèse ne chute pas complètement dans la couche de (In,Ga)As de 6 nm.

notre hypothèse de départ : le produit de la fraction d'atomes de manganèse en substitution et de la concentration de porteurs p est maximum.

Comme déjà évoqué précédemment, Sankowski et al. [127] ont décrit le comportement de la TMR à différentes concentrations de porteurs et différentes fractions de Mn à travers un modèle de liaisons fortes. Dans leur modélisation, de plus fortes valeurs de TMR sont attendues soit pour des concentrations de manganèse plus élevées, soit pour de plus faibles concentrations de porteurs. Afin de relier nos résultats expérimentaux à cette théorie, l'influence du paramètre de spin splitting devrait dominer celle de la concentration des porteurs pour observer une augmentation de TMR après recuit. Nous verrons à la fin de ce chapitre comment il est possible de trouver un bon accord entre la modélisation de l'hétérostructure en théorie $k.p$ et nos expériences.

Le comportement des champs coercitifs des trois échantillons peut paraître surprenant par rapport aux mesures d'aimantation (au SQUID). Pour l'échantillon A (x=4,8%), après recuit, le champ dipolaire anticipe le retournement de la couche ferromagnétique épaisse de 300 nm, contrairement à l'échantillon pleine plaque. L'axe de facile aimantation est aligné selon [110] (ou équivalent) après recuit, alors qu'avant recuit l'axe de facile aimantation est selon [100] (ou équivalent). Pour les échantillons B (x=6,1%) et C (x=7,4 %), le champ magnétique est appliqué selon l'axe [100] avant et après recuit.

Finalement il reste une différence d'axes de facile aimantation entre les mesures d'aimantation au SQUID et les mesures de transport. Cette différence peut s'expliquer par des effets de taille pour les jonctions lithographiées.

3.2.3.1.1 Dépendance de la magnétorésistance tunnel en température Les propriétés de TMR après recuit sont représentées sur la figure 3.19. Nous constatons que la température effective (autour de 50 K) pour laquelle la TMR s'annule reste inchangée après recuit. Cette occurrence provient des propriétés magnétiques de l'électrode inférieure de (Ga,Mn)As qui ne sont pas modifiées après recuit et à laquelle correspond la plus faible T_C.

Les échantillons B et C possèdent cependant une particularité par rapport à l'échantillon A. Une nette variation du champ coercitif en fonction de la température est mise en évidence sur la couche magnétique de 15 nm. Nous avons représenté la variation des deux champs coercitifs après recuit à partir des mesures de TMR en fonction de la température pour l'échantillon C [Fig. 3.19 (a) et (c)]. Le croisement des champs coercitifs des deux couches magnétiques explique la plus forte diminution de TMR autour de 20 K [Fig. 3.19 (b)]. Les mesures d'aimantation au SQUID confirment les observations des mesures de transport [Fig. 3.19 (d)]. Un comportement identique est mise en évidence (avant et après recuit) pour l'échantillon B, ayant les mêmes épaisseurs d'électrodes magnétiques. Cette dépendance du champ coercitif en fonction de la température a déjà été constatée par plusieurs équipes [25] et résulte d'une

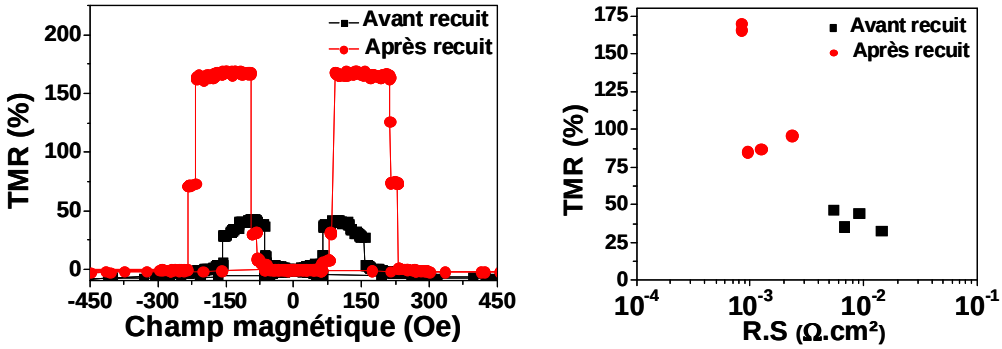


FIG. 3.16 – A gauche : magnétorésistance tunnel pour l'échantillon A (x=4,8 %) à 3K et à 1mV avant recuit selon [100] et après recuit selon [110]. A droite : variation de la magnétorésistance tunnel en fonction du produit R.S. à 3 K et à 1mV.

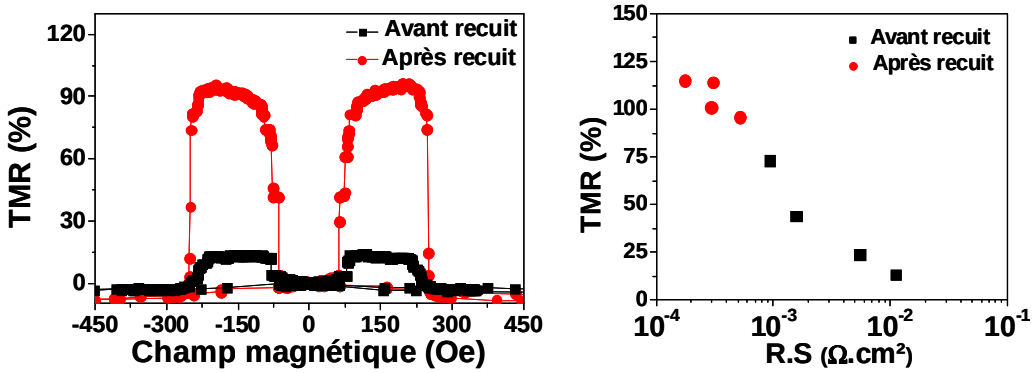


FIG. 3.17 – A gauche : magnétorésistance tunnel pour l'échantillon B (x=6,1 %) à 3K et à 1mV avant recuit selon [100] et après recuit selon [100]. A droite : variation de la magnétorésistance tunnel en fonction du produit R.S. à 3 K et à 1mV.

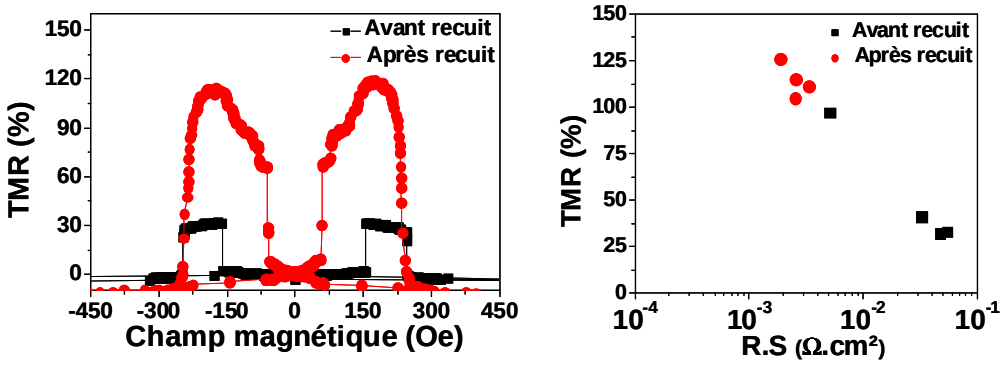


FIG. 3.18 – A gauche : magnétorésistance tunnel pour l'échantillon C (x=7,4 %) à 3K et à 1mV avant recuit selon [100] et après recuit selon [100]. A droite : variation de la magnétorésistance tunnel en fonction du produit R.S. à 3 K et à 1mV.

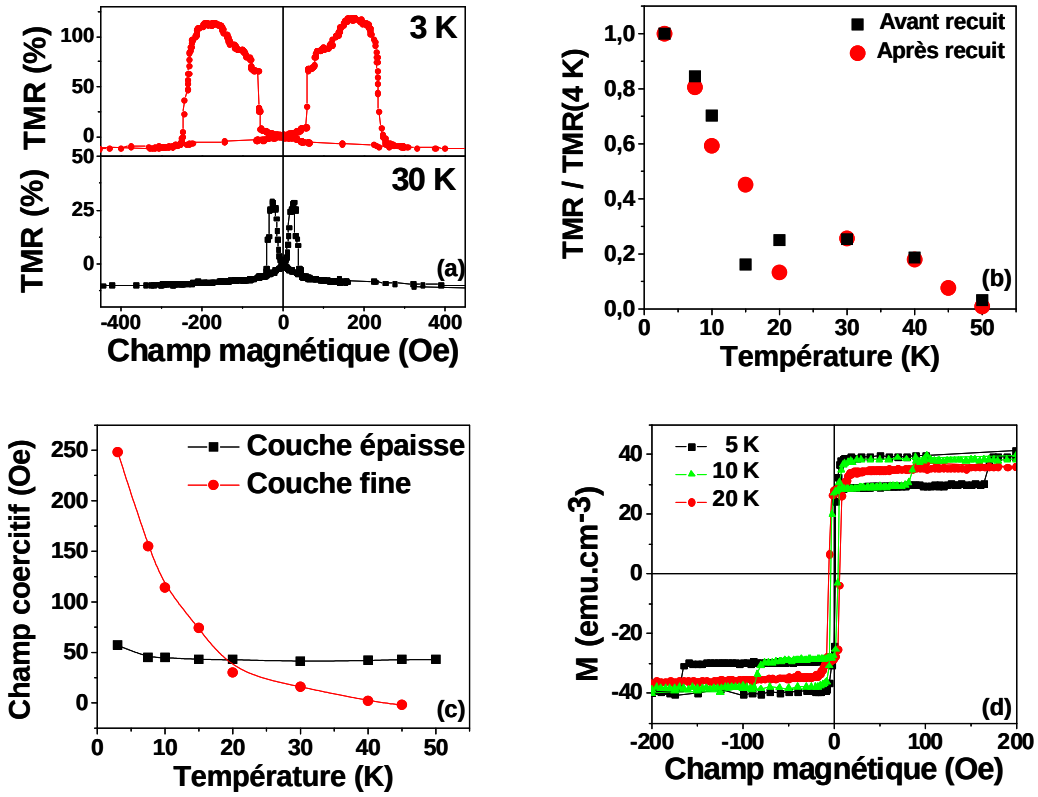


FIG. 3.19 – Influence du recuit sur la variation de la magnétorésistance tunnel en fonction de la température pour l'échantillon C (x=7,4%). (a) Courbes de TMR à 3K et à 30K obtenues pour une tension de 1mV. (b) Variation de la TMR normalisée (par rapport à 4K) en fonction de la température. (c) Variation du champ coercitif (après recuit) en fonction de la température, obtenue à partir des cycles de TMR à 1mV. (d) Cycles d'hystérésis effectués à différentes températures (5K,10K et 20K) où le champ magnétique est appliqué selon l'axe cristallographique [100].

compétition entre l'anisotropie cubique et l'anisotropie uniaxiale dans le plan des couches (voir § 1.2.2.3).

En conclusion, l'évolution qualitative de la TMR en température reste inchangée après recuit. Toutefois, pour les couches minces de (Ga,Mn)As, nous constatons une nette diminution du champ coercitif en température. Nous reviendrons sur ce point lors du renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin.

3.2.3.1.2 Dépendance de la magnétorésistance tunnel en tension Pour tous les 3 échantillons nous ne constatons aucun comportement assymétrique de la TMR en fonction de la tension avant et après recuit. Nous soulignons que les propriétés magnétiques découlent d'un effet de volume, alors que les propriétés électriques sont liées

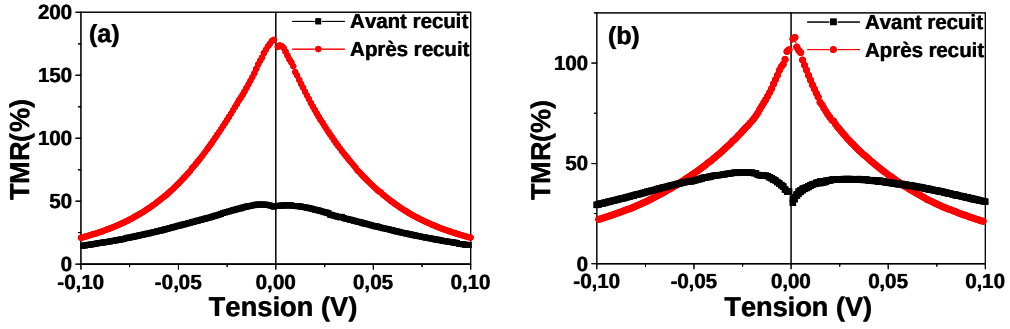


FIG. 3.20 – Variation de la TMR en fonction de la tension à 4 K, obtenue à partir des deux courbes I(V) dans les configurations magnétiques parallèles et antiparallèles pour l'échantillon A (a) et l'échantillon C (b).

directement à l'interface entre la barrière et l'électrode magnétique. Sur la figure 3.20 nous avons représenté la variation de la TMR en fonction de la tension à 3 K pour les échantillons A (x=4,8%) et C (x=7,4%). En se référant au modèle simple de Jullière où la TMR résulte directement du produit de la polarisation des deux couches magnétiques, il devient alors impossible de dissocier la polarisation des deux électrodes ; un comportement symétrique de la TMR en fonction de la tension est attendu. Une autre explication possible réside dans l'invariance du niveau de Fermi dans l'hétérostructure de sorte que les trous voient la même hauteur de part et d'autre de la barrière.

Pour les trois échantillons à concentration de manganèse différente, la TMR après recuit décroît rapidement en fonction de la tension appliquée de sorte que $V_{1/2}$ diminue ($\sim$ 40 meV) et qu'à 100 meV les valeurs avant et après recuit sont pratiquement identiques. Dans un modèle de bandes paraboliques, Montaigne et al. [98] ont démontré qu'une diminution de hauteur de barrière tunnel entraîne une valeur de $V_{1/2}$ plus faible.

3.2.3.2 Influence du recuit sur la magnétorésistance tunnel anisotrope

Pour les trois échantillons, nous faisons figurer la TAMR sur les figures 3.21, 3.22 et 3.23. Nous avons mesuré tout d'abord la variation angulaire de la résistance sous un champ de 6 kG et 1 mV. Aucun des trois échantillons ne possède une TAMR excédant 15 % et une faible diminution de TAMR après recuit est relevée pour chacune des jonctions. Comme démontré par Wang et al. [169] sur des simples couches de (Ga,Mn)As, l'aimantation à saturation hors plan augmente après recuit de sorte que des mesures de résistance ont été réalisées à plus fort champ.

Nous remarquons qu'un champ saturant de 6 kG est suffisant pour observer la diminution de TAMR après recuit. Au-dessus de cette valeur la TAMR diminue continue-

ment en fonction du champ magnétique appliqué. Par rapport à la barrière de AlAs qui possède une magnétorésistance à fort champ de plusieurs centaines de pour-cents [94], la résistance sature ici nettement plus vite dans les 3 échantillons. La magnétorésistance entre champ nul et un champ à 5 T n'est alors que de quelques dizaines de pour-cents. Cet effet à fort champ magnétique a été attribué à des effets de localisation, avec l'observation d'une magnétorésistance faible pour une forte conductivité métallique [36].

3.3 Modélisation des hétérostructures recuites et non-recuites

Afin d'acquérir une compréhension plus complète et approfondie du transport mis en jeu, nous avons modélisé le transport tunnel polarisé en spin dans les hétérostructures en utilisant les paramètres matériau de $In_{0.25}Ga_{0.75}As$. L'offset de bandes d_B est défini comme la différence entre les hauts de bande de valence (point Γ) de (In,Ga)As et de (Ga,Mn)As. La hauteur de barrière h_B dépend alors directement de la position du niveau de Fermi selon $|h_B|=|d_B-E_F|$ (Voir Fig. 2.3). En faisant varier les paramètres du niveau de Fermi et du spin splitting B_G, les valeurs de TMR et de TAMR hors plan ont été calculées en théorie *k.p* à l'aide de la méthode de transfert de matrices développée dans le chapitre 2. Le résultat du calcul numérique est représenté en fonction de ces deux paramètres. Dans un premier temps, nous avons fixé l'épaisseur de barrière à 6 nm et l'offset de bandes entre (Ga,Mn)As et $In_{0.25}Ga_{0.75}As$ à -0,45 eV. D'après les résultats récents de photoémission, obtenus sur des jonctions (Ga,Mn)As/GaAs-BT, ce choix apparaît assez adéquat [3]. Il correspond en effet à une hauteur de barrière effective de 0,35 eV ($E_F \cong$-100 meV), i.e. 100 meV inférieure à celle obtenue avec GaAs. Cet offset de bande peut paraître néanmoins surprenant. La raison provient du fait qu'à forte concentration de Mn, le niveau accepteur dans le cas isolé se situant à 113 meV au-dessus de la bande de GaAs s'élargit pour former une large bande d'impuretés. Le haut de bande correspondant aux états liants (pour les trous) entre niveaux fondamentaux accepteurs peut donc se situer assez haut dans le gap de GaAs. Dans un souci de simplification de la modélisation, nos calculs intègrent le même paramètre de spin splitting et la même concentration de porteurs pour les deux électrodes magnétiques supposées identiques.

Décrivons dans un premier temps les deux diagrammes de TMR et de TAMR [Fig. 3.24] : Comme lors de la modélisation de la barrière d'AlAs, pour des concentrations de porteurs assez fortes (> 10^{20} cm^{-3}), la TMR augmente en fonction du spin splitting B_G. Cependant à une concentration de Mn fixée, la variation du nombre de porteurs entraîne une dépendance de la TMR plus compliquée. Ainsi, pour un paramètre de spin splitting de -30 meV par exemple, excepté pour la première sous-bande, la TMR devient maximum pour une concentration de porteurs avoisinant $1 \cdot 10^{20} cm^{-3}$. En accord avec Sankowski et al. [128], pour des concentrations de porteurs trop élevées la

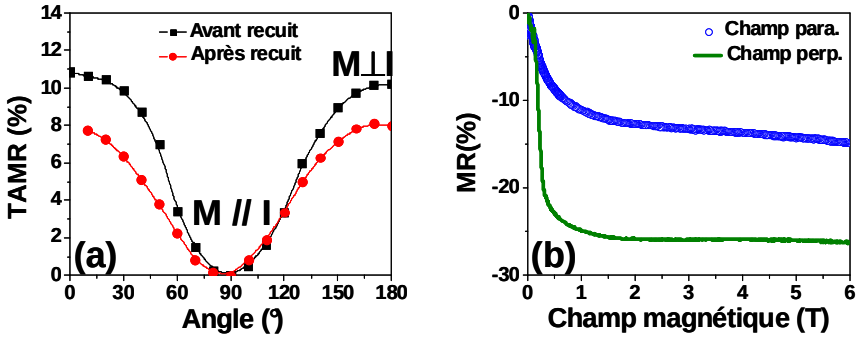


FIG. 3.21 – (a)Variation angulaire de la TAMR, sous 6 kG, à 1 mV et à 3K avant et après recuit pour l'échantillon A (x=4,8 %). (b) Mesures de la variation de résistance selon que le champ magnétique est appliqué parallèle ou perpendiculaire au plan des couches. La mesure est réalisée à 10mV et à 2K.

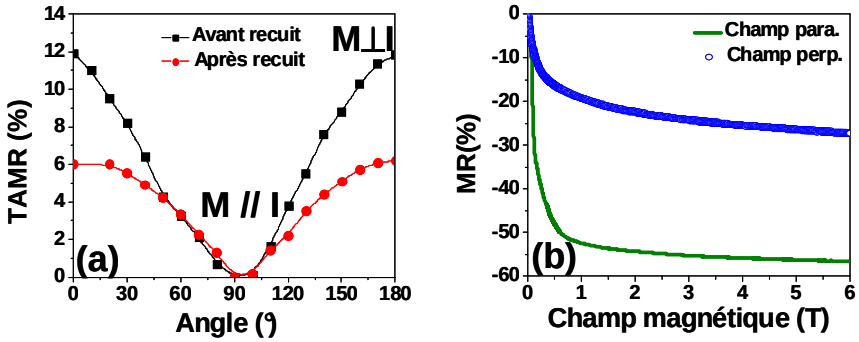


FIG. 3.22 – (a)Variation angulaire de la TAMR, sous 6 kG, à 1 mV et à 3K avant et après recuit pour l'échantillon B (x=6,1 %). (b) Mesures de la variation de résistance selon que le champ magnétique est appliqué parallèle ou perpendiculaire au plan des couches. La mesure est réalisée à 10mV et à 2K.

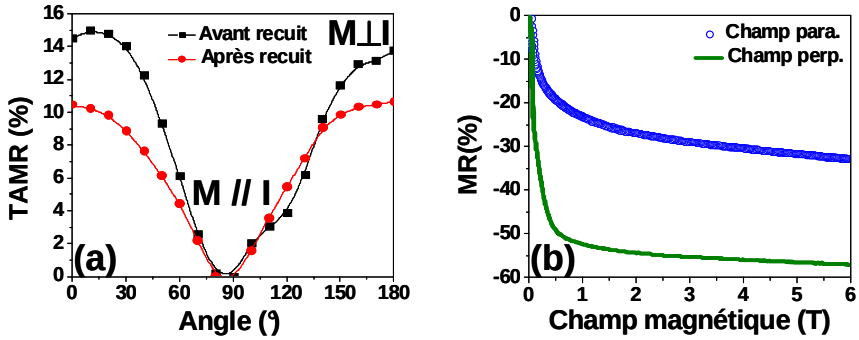


FIG. 3.23 – (a)Variation angulaire de la TAMR, sous 6 kG, à 1 mV et à 3K avant et après recuit pour l'échantillon C (x=7,4 %). (b) Mesures de la variation de résistance selon que le champ magnétique est appliqué parallèle ou perpendiculaire au plan des couches. La mesure est réalisée à 10mV et à 2K.

magnétorésistance tunnel s'estompe assez rapidement. Comme dans le cas de AlAs, la valeur de TAMR reste bien inférieure à celle de la TMR, mais peut cependant changer de signe. Au voisinage des troisièmes et quatrièmes sous-bandes, il existe une vaste région où la TAMR possède de faibles valeurs. Ainsi pour des faibles valeurs de spin splitting B_G et des concentrations de porteurs avoisinant $1{\cdot}10^{20}$ cm^{-3}, la TAMR se situe entre 0 et 10 %.

Quels sont les différents paramètres avant et après recuit ?

Avant recuit, en raison de la présence de Mn en site interstitiel, le spin splitting et la concentration de porteurs sont attendus relativement faibles. A partir du moment magnétique mesuré à saturation, nous avons déterminé une valeur approximative de spin splitting avoisinant 15 meV [5] pour les trois échantillons. Nous avons résumé dans le tableau 3.25 les différents paramètres des trois échantillons. Les bons ordres de grandeurs de TMR ($\simeq$50%) et de TAMR ($\simeq$10%) peuvent être retrouvés sur nos diagrammes [Fig. 3.24] en considérant une troisième sous-bande totalement remplie ($E_F \simeq$-75 meV) et un paramètre de spin splitting B_G de l'ordre de 15 meV. La concentration de porteurs est alors estimée légèrement inférieure à 10^{20} cm^{-3}, ce qui correspond approximativement à la valeur expérimentale extraite de Malfait et al. [90] [Fig. 1.16].

Après recuit, expérimentalement, nous pouvons associer l'augmentation de TMR obtenue (après recuit) à i) l'augmentation du paramètre d'échange B_G tirée de l'aimantation à saturation [cf Tab. 3.25] et ii) l'augmentation de la concentration de trous liée à la diminution du produit R.S. L'évolution de TMR (50 % $\mapsto$ 150 %) et de TAMR (12 % $\mapsto$ 6 %) par le recuit peut être retrouvée sur nos diagrammes en considérant une augmentation i) du paramètre B_G de 15 à 25 meV et ii) de la concentration de porteurs de $\lesssim 10^{20}$ cm^{-3} à $1{,}7.10^{20}$ cm^{-3} sans que ces derniers puissent toutefois être mesurés expérimentalement.

Il est clair que les valeurs de concentration de trous extraites de notre modélisation pour les structures recuites apparaissent plus faibles par rapport à celles données dans la littérature en général mesurées expérimentalement à partir des données d'effet Hall [Fig. 1.16]. A ce stade nous pouvons faire deux commentaires :

[5] Le paramètre de spin splitting dans le modèle de Zener s'écrit sous la forme $B_G = \frac{A_F \beta M}{6 g \mu_B}$. Le couplage d'échange est de 54 meV nm^3 ($N_o\beta$=-1,2 eV) pour une concentration de manganèse de 7,4 % avant recuit (T_C=55-60 K) [114]. D'après la référence de Dietl et al. [32], le paramètre A_F (traduisant l'augmentation de densité d'états de spin à travers les interactions entre porteurs), est estimé à 1,2. Pour une aimantation à saturation de 51,7 emu·cm^{-3}, les auteurs ont déterminé un spin splitting B_G de -30 meV. Il faut noter ici que l'obtention du paramètre réel de spin splitting est probablement plus complexe en raison de la dépendance du couplage d'échange en fonction de la concentration de manganèse et des porteurs qui reste équivoque.

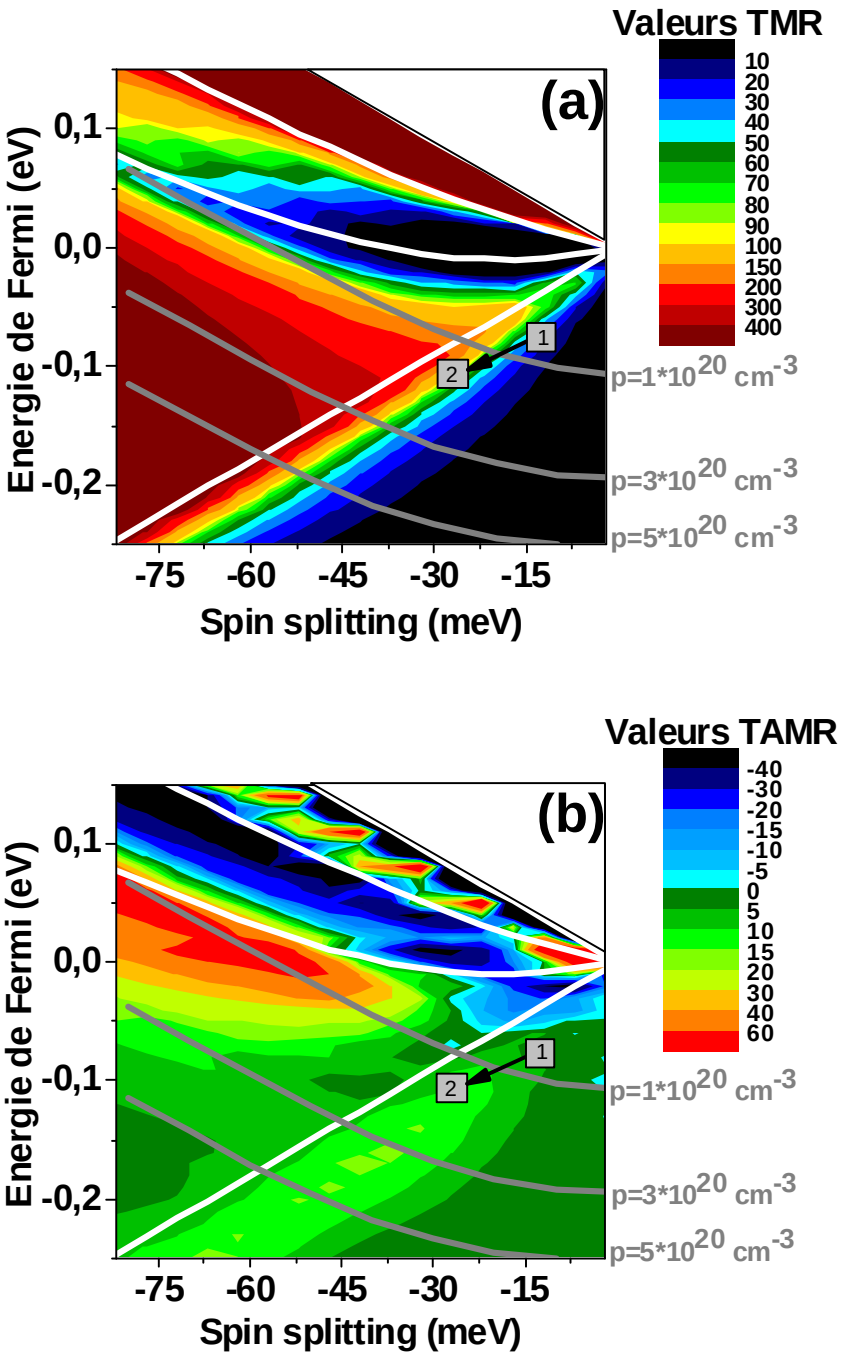


FIG. 3.24 – Variation de la TMR (a) et de la TAMR (b) pour une épaisseur de barrière de 6 nm de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ en fonction des deux paramètres de spin splitting et de l'énergie de Fermi. L'offset de bandes est fixé à -450 meV. Les courbes en blanc indiquent l'énergie des différentes bandes au point Γ en fonction du spin splitting.

	Avant recuit			Après recuit		
	B_G (meV)	R.S. (Ω.cm²)	TMR (%)	B_G (meV)	R.S. (Ω.cm²)	TMR (%)
Echantillon A	17	1×10^{-2}	40	21	1×10^{-3}	160
Echantillon B	15	5×10^{-3}	25	18	3×10^{-4}	100
Echantillon C	18	4×10^{-2}	30	24	3×10^{-3}	110

FIG. 3.25 – Valeurs du paramètre de spin splitting et du produit R.S pour les 3 échantillons, avant et après recuit.

i) Il faut en premier lieu souligner comme nous l'avons envisagé au chapitre 1, que le profil de concentration de porteurs est en général inhomogène dans l'épaisseur et caractérisé par une concentration réduite de trous dans l'épaisseur de la couche (et notamment à l'interface avec la barrière) [72].

ii) La concentration effective des trous dans les électrodes de (Ga,Mn)As au voisinage direct de la barrière tunnel d'(In,Ga)As est en général réduite en raison du transfert de charges entre (Ga,Mn)As de type *p* et d'(In,Ga)As de type *n* en raison de l'incorporation (en excès) d'antisites d'As.

Cependant, nous pouvons noter une différence notable (de 2 ordres de grandeurs) entre les produits R.S calculés pour les paramètres matériaux et les résistances spécifiques mesurées expérimentalement sur nos jonctions à barrière d'$In_{0,25}Ga_{0,75}As$. Afin d'identifier l'origine de telles différences, nous avons calculé la résistance surfacique attendue en fonction de l'offset de bandes entre (Ga,Mn)As et (In,Ga)As qui demeure un paramètre inconnu expérimentalement [Fig. 3.26]. Nous faisons figurer également la résistance surfacique R.S pour des barrières de GaAs. En analysant les courbes R.S ainsi calculées, nous pouvons en déduire que les bons ordres de grandeur sont obtenus pour les barrières de GaAs 6 nm [25], en prenant en compte un offset de bandes d'environ 500 meV entre (Ga,Mn)As et GaAs (ce qui correspond à une hauteur de barrière d'environ 450 meV). C'est une valeur proche de celle mesurée par photoémission [3]. Concernant les échantillons de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$, l'ajustement entre valeurs expérime expérimentales et valeurs théoriques de R.S ($\cong 10^{-3}$ Ω.cm^2) nous indiquent un offset de bandes plus important de l'ordre de 0,7 eV. Cet offset de bandes correspondant à une hauteur de barrière d'environ 600 meV, peut paraître surprenant dans le sens où il est attendu légèrement plus faible (du même ordre de grandeur) que dans le cas du GaAs.

Afin de poursuivre dans notre démarche, nous avons tracé les diagrammes 3.27 de TMR et TAMR en fonction des paramètres matériaux du (Ga,Mn)As, B_G et E_F, pour un offset de bandes d_B de 0,7 eV entre (Ga,Mn)As et $In_{0,25}Ga_{0,75}As$. Nous constatons, de façon surprenante, que les comportements de la TMR et TAMR demeurent peu différents de ceux dressés pour d_B=0,45 eV.

A titre d'exemple, nous avons relevé la variation de TMR attendue en fonction du produit R.S à partir des 2 diagrammes précédents (d_B=0,45 eV et d_B=0,7 eV [Fig.

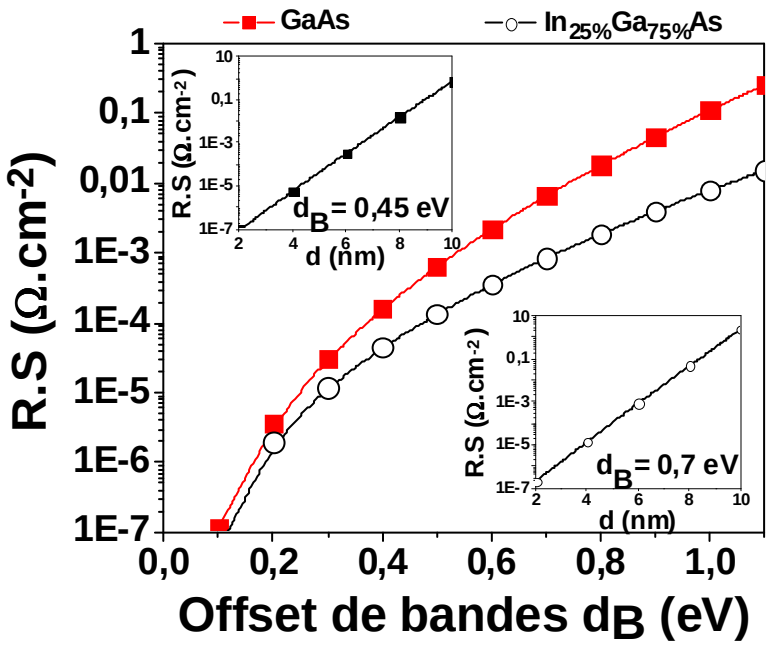


FIG. 3.26 – Variation du produit R.S(Ω.cm^2) en fonction de l'offset de bandes d_B pour GaAs (6 nm) et pour $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ (6nm). En figure insérée, variation du produit R.S en fonction de l'épaisseur de barrière pour GaAs (haut) et pour $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ (bas).

3.28 (b)]) en suivant un chemin linéaire sur les diagrammes correspondants entre les points [1] (avant recuit) et [2] (après recuit) [Fig. 3.28 (a)]. Nous pouvons comparer une telle évolution de TMR aux valeurs relevées expérimentalement sur les figures [Figures 3.16, 3.17 et 3.18]. Nous constatons ainsi un bon accord qualitatif entre les 2 figures sans toutefois trancher sur la valeur de l'offset de bandes réel s'établissant entre (Ga,Mn)As et $In_{0,25}Ga_{0,75}As$.

Il est clair que l'augmentation possible de l'offset de bandes dans le cas d'hétérojonction à barrière d'$In_{0,25}Ga_{0,75}As$ nécessite toutefois quelques commentaires :

i) La détermination de l'offset de bande à l'interface entre deux semiconducteurs dépend en général de leur température de croissance en raison de la nature et de la densité des liaisons pendantes aux interfaces.

ii) La hauteur de barrière moyenne entre (Ga,Mn)As et (In,Ga)As dépend également de la courbure de bande moyenne directement liée à la densité volumique de défauts ionisés dans la barrière. Or, il est bien connu qu'une croissance à basse température est associée à l'incorporation de défauts de type antisite d'arsenic dont la densité et la position en énergie dans le gap peut modifier les profils de bandes réelles de l'hétérostructure et en particulier la hauteur de barrière réelle [47].

En conclusion, la modélisation du transport dans ce type d'hétérostructure nous a permis de comprendre qualitativement l'influence des différents paramètres de spin

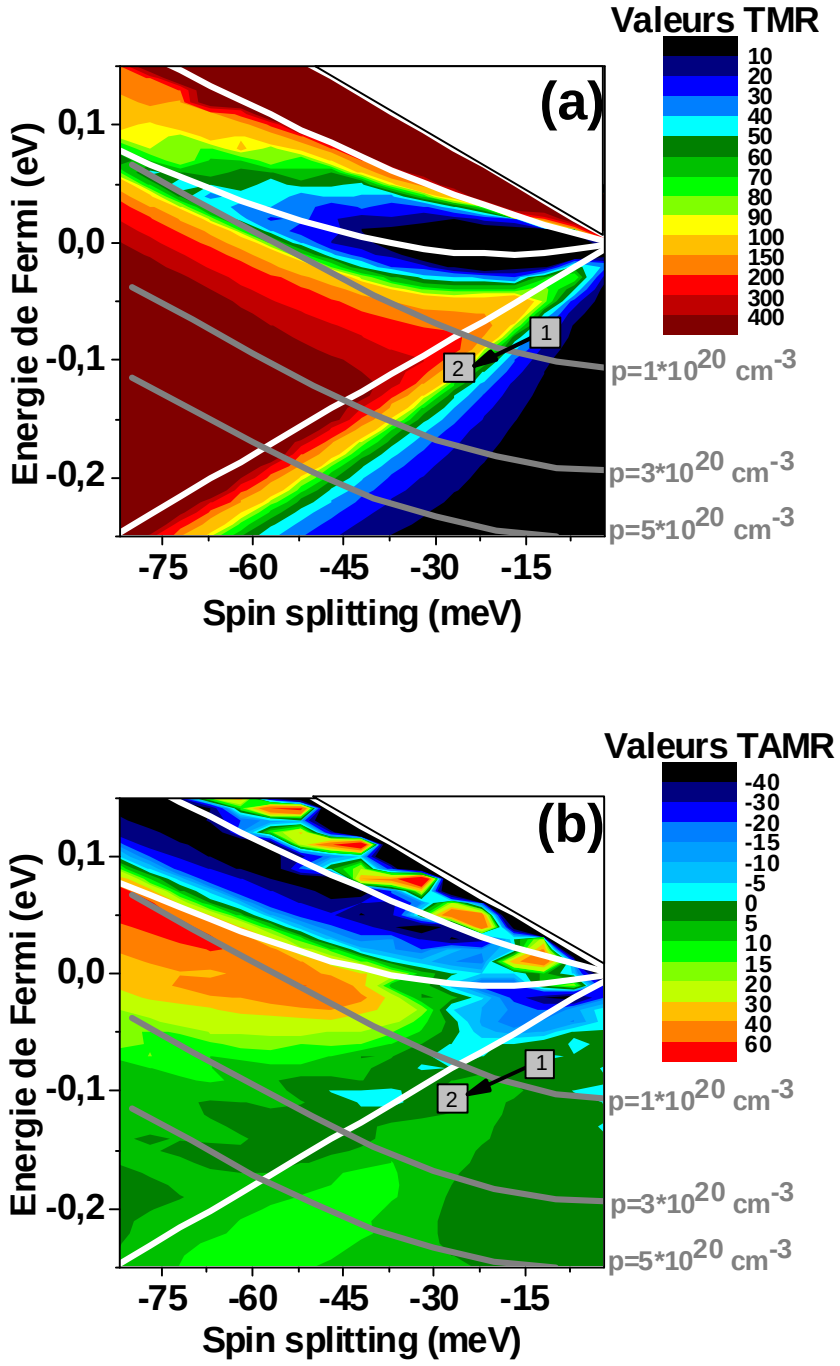


FIG. 3.27 – Variation de la TMR (a) et de la TAMR (b) pour une épaisseur de barrière de 6 nm de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ en fonction des deux paramètres de spin splitting et de l'énergie de Fermi. L'offset de bandes est fixé à -0,70 eV. Les courbes en blanc indiquent l'énergie des différentes bandes au point Γ en fonction du spin splitting.

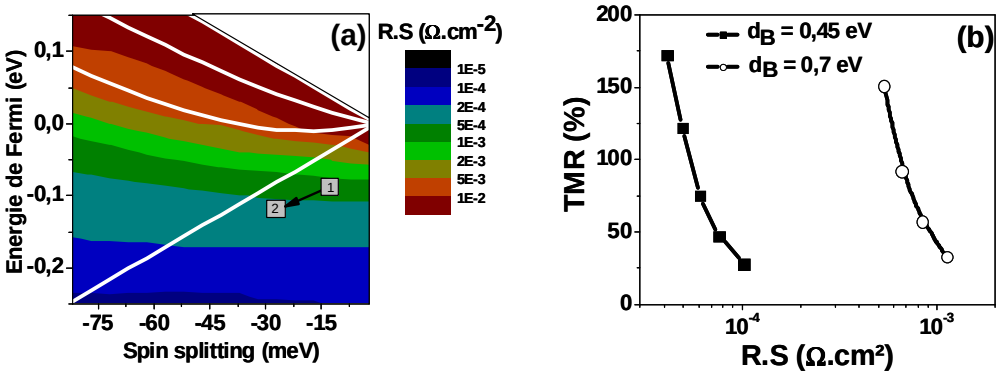


FIG. 3.28 – (a) Variation du produit R.S(Ω.cm^2) en code couleurs pour une épaisseur de barrière de 6 nm de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ en fonction des deux paramètres de spin splitting et de l'énergie de Fermi. L'offset de bandes est fixé à -0,7 eV. (b) TMR en fonction du produit R.S pour une barrière de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ avec des offsets de bande de 0,45 eV et 0,7 eV.

splitting et d'énergie de Fermi sur l'amplitude de TMR et de TAMR. Afin d'avoir une meilleure compréhension des effets mis en jeu au cours des recuits pratiqués, il s'avère important de pouvoir corréler nos mesures d'aimantation et de transport aux propriétés structurales. Des mesures de microscopie à transmission sont en cours afin de permettre de caractériser les manganèses en site interstitiels ainsi que les antisites d'As.

3.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons étudié le comportement de jonctions tunnel à barrière d'(In,Ga)As 6 nm sur lesquelles nous avons mis en évidence une augmentation de magnétorésistance tunnel notable (jusqu'à 175 %) après recuit. Cette observation s'intégre qualitativement bien dans la modélisation de l'hétérostructure en théorie *k.p*, en prenant en compte une augmentation de la concentration de porteurs et du spin splitting B_G. Il nous semble dorénavant possible d'augmenter les effets de TMR obtenus dans la littérature sur les barrières de GaAs (6nm) (105 % à 4 K) [25] et de ZnSe (100 % à 2 K) [126] par des recuits effectués à température de croissance. Cependant nous avons observé expérimentalement que l'obtention de TMR à plus forte température est limité par deux facteurs prépondérants : i) l'homogénisation de la température de Curie dans la couche magnétique supérieure, autour de 120 K après recuit, pour les différentes concentrations de manganèse résulte d'une limite d'incorporation de porteurs et favorise la création de manganèses en site interstitiel. ii) La limitation de la faible température de Curie de la couche magnétique inférieure de (Ga,Mn)As qui empêche l'observation des effets de TMR à des températures

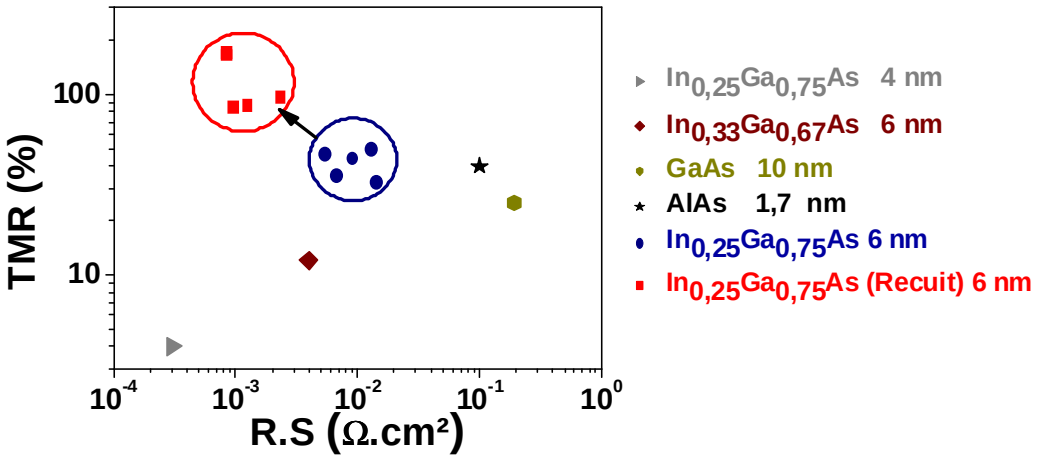


FIG. 3.29 – Variation de la magnétorésistance tunnel en fonction du produit R.S pour différentes types de barrières à basse température (à 4 K) et à basse tension (à 1 mV). La même concentration de manganèse a été utilisée dans les deux électrodes de (Ga,Mn)As. L'échantillon à barrière de AlAs provient de la thèse de R. Mattana [94].

supérieures à 60 K.

Dans ce chapitre des TMR élevées ont pu être obtenues correspondant à une concentration de porteurs p relativement modérée à l'interface électrode/barrière, estimée à 2.10^{20} cm^{-3} dans le cadre de notre modèle de conduction tunnel. Pour l'obtention d'une température de Curie à l'ambiante, Ku et al. prédisent des concentrations de porteurs de l'ordre de 10^{22} cm^{-3}. La maximisation de ces effets de TMR nécessite alors *i)* de pouvoir augmenter singulièrement le paramètre de spin splitting B_G en réduisant au maximum la concentration des manganèses interstitiels par recuit, *ii)* l'introduction de barrières plus fines afin de favoriser la transmission des trous lourds, admettant les plus fortes valeurs de TMR. Cependant nous avons observé expérimentalement que pour des épaisseurs de barrière d'(In,Ga)As inférieures à 6 nm, le comportement tunnel n'est plus assuré, ce qui a comme conséquence de réduire assez drastiquement les effets de magnétorésistance. Nous avons résumé les points expérimentaux de TMR en fonction du produit R.S pour des électrodes contenant 5% de Mn dans les électrodes [Fig. 3.29].

Concernant les effets de TAMR hors plan, nous avons mis en évidence des amplitudes pouvant atteindre une fraction de l'unité (plusieurs dizaines de pour-cents), mais restent inférieurs à la TMR : 20% pour la barrière de AlAs (1,7 nm) et 15% pour la barrière de $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ (6nm). Nous reviendrons plus explicitement sur les effets de TAMR dans le chapitre suivant, mais ils nous ont permis ici de tester et de valider le modèle développé dans le deuxième chapitre. Une expérience future intéressante serait de réduire la concentration de porteurs par méthode d'hydrogénation [163] et de tester

ainsi des effets de TAMR hors plan négatifs que nous prévoyons par la méthode *k.p*. En réalisant alors des recuits, les atomes d'hydrogène devraient être soustraits de la matrice donnant alors une inversion prévisible de signe de TAMR.

Chapitre 4

Magnétorésistance tunnel anisotrope dans des structures résonantes à barrière d'AlAs

Dans ce chapitre, nous allons étudier d'un point de vue expérimental et théorique les effets de magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR) résonante. De tels effets sont obtenus sur des doubles barrières résonantes (Ga,Mn)As/AlAs/GaAs/AlAs/GaAs :Be de type *p* constituées d'un puits de GaAs élaboré à chaud dans des conditions optimales de croissance. Pour rappel, les effets de TAMR décrits dans cette thèse sont définis comme les différences de courant tunnel résonant lorsque l'aimantation s'oriente alternativement dans le plan des couches selon l'axe de croissance. Dans le détail, l'apparition des états résonants du puits suite au confinement des porteurs fait apparaître des pics de TAMR lorsque le niveau de Fermi de l'injecteur (Ga,Mn)As s'aligne avec les niveaux d'énergie du puits. Nous discuterons dans une deuxième étape les interprétations possibles. Dans une première partie, toutefois, nous détaillerons les effets de TAMR obtenus avec une barrière unique d'AlAs, signature des effets de TAMR non résonante.

4.1 Simple barrière tunnel d'AlAs

Le transport tunnel à travers une simple barrière d'AlAs a été abordé et modélisé dans le deuxième chapitre de ce manuscrit. Nous abordons ici, plus particulièrement, le phénomène de TAMR obtenue à travers des mesures sur des simples jonctions tunnel.

4.1.1 Barrière élaborée à froid

Dans le même esprit que dans le chapitre précédent, nous avons mesuré la TAMR en régime magnétique saturé sur une simple barrière d'AlAs constituée de deux électrodes de $Ga_{0,95}Mn_{0,05}As$. L'élaboration de jonctions (Ga,Mn)As (300nm)/AlAs (1,7nm)/(Ga,Mn)As (30nm) à basse température a été réalisée par Bruno Lépine de l'équipe de physique des surfaces et des interfaces de l'université de Rennes (R.S $\cong$ 0,1 Ω.cm^2 à 1mV). Les effets de TMR suivant l'axe de difficile aimantation [110] atteignent 20 % à 2K et à 2mV [Fig. 4.1a]. En raison de la relative faible température de Curie des électrodes (de l'ordre de 50 K), la concentration de porteurs est attendue légèrement inférieure à 1.10^{20} porteurs par cm^3 et le spin-splitting de l'ordre de 12 meV. Nous rappelons que les propriétés de TMR obtenues sur de tels échantillons ont été étudiées en détail dans le cadre de la thèse de R. Mattana [96].

Sur ces mêmes jonctions, nous mesurons des TAMR avoisinant 20% à basse tension (5 mV) et à basse température (2 K) [Fig. 4.1b]. Nous observons donc une TAMR légèrement plus élevée que celle obtenue pour des barrières de (In,Ga)As. Ceci est en bon accord avec notre modélisation. Dans le cas de la barrière AlAs, nous calculons en effet des TAMR proches de 20 %, c'est-à-dire du même ordre de grandeur que la TMR pour une concentration de trous de $1{\cdot}10^{20}$ cm^{-3} et un spin splitting $B_G \cong$ 12 meV [Fig.

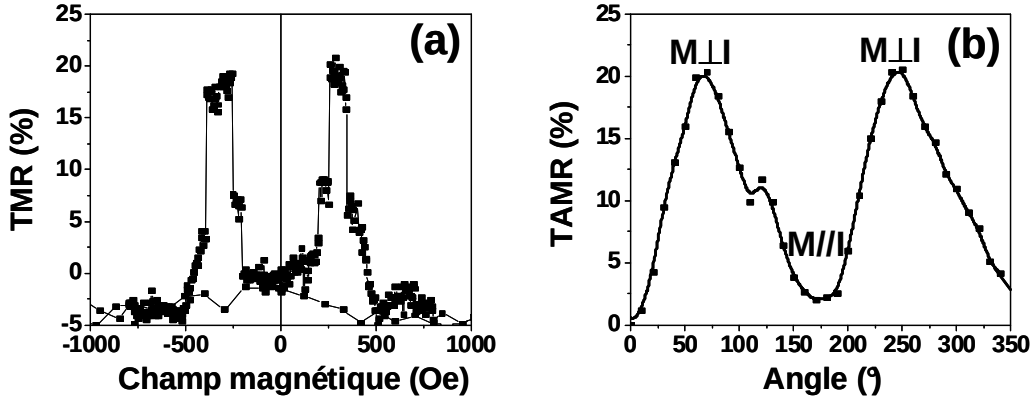


FIG. 4.1 – (a) Mesure de TMR selon l'axe [110] à 2K et à 2 mV pour l'hétérostructure (Ga,Mn)As(300 nm) /AlAs(1,7 nm)/ (Ga,Mn)As(30 nm), élaborée à basse température. (b) Variation angulaire de TAMR à 2 K et à 5 mV pour cette même structure.

2.4].

Toutefois, afin d'analyser en détail les effets de TAMR résonante, nous avons également étudié les propriétés de transport (TAMR) d'une simple barrière AlAs élaborée à chaud dans des conditions optimales de croissance.

4.1.2 Barrière élaborée à chaud

La structure étudiée dans ce paragraphe a été élaborée par épitaxie par jets moléculaires par Aristide Lemaitre (Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, Marcoussis). Elle est composée, à partir de la surface supérieure, de 30nm $Ga_{0,937}Mn_{0,063}As$ / 1nm GaAs / 3nm AlAs / 50nm GaAs :Be ($1{\cdot}10^{17}cm^{-3}$)/ gradient de 50nm GaAs :Be ($1{\cdot}10^{17}cm^{-3} \rightarrow 2{\cdot}10^{19}cm^{-3}$)/ substrat GaAs :Be ($2{\cdot}10^{19}cm^{-3}$). Nous avons représenté sur la figure 4.2 la structure et le profil de la bande de valence de cette hétérostructure. A l'exception de (Ga,Mn)As, la croissance de toutes les couches a été réalisée à une température de 600°C. En raison de l'épaisseur de barrière plus grande et de la zone de déplétion, la résistance surfacique est plus élevée que dans le cas de la barrière d'AlAs élaborée à froid (R.S $\cong$ 200 $\Omega.cm^2$ à -1V).

Nous avons fait figurer sur la figure 4.3 la caractéristique courant-tension obtenue sur cette structure mettant en évidence un comportement de type diode. L'application d'une tension négative correspondant à une injection de trous de l'électrode (Ga,Mn)As vers GaAs :Be, témoigne d'une polarisation en inverse. La raison est la présence d'une forte zone de déplétion constituée de GaAs :Be ($10^{17}cm^{-3}$)(50nm)/GaAs :Be (10^{17}-$10^{19}cm^{-3}$)(50 nm) pour des polarisations négatives. Cette zone de déplétion sera utilisée dans les puits quantiques (de la section suivante) afin de sonder proprement les différents niveaux. Nous verrons que cette zone de déplétion joue également un rôle fondamental sur les caractéristiques I(V) mesurées

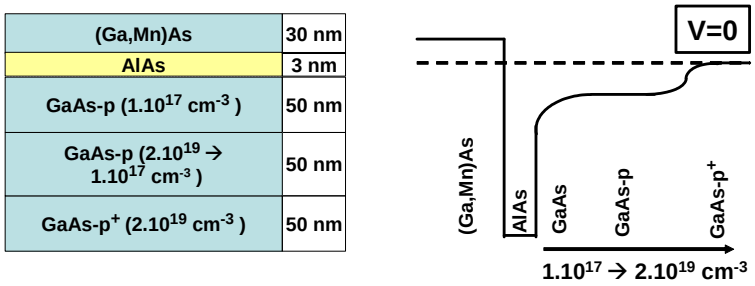


FIG. 4.2 – A gauche : schéma de l'hétérostructure étudiée dans ce chapitre . A droite : profil de la bande de valence de l'hétérostructure en absence de tension.

sur les doubles barrières résonantes. Elle aura en outre comme conséquence d'introduire un bras de levier important entre la tension appliquée sur la double barrière et la tension totale appliquée.

Notons que, en raison des résistances trop élevées, la courbe de TAMR est très bruitée à basse tension [Fig. 4.3]. A 3K, la TAMR est maximum pour une tension de -700 mV et diminue pour s'annuler pour des valeurs au-dessus de -3 V. Nous avons reporté sur la figure 4.3 la variation angulaire de TAMR à -1V. Le signe positif de TAMR témoigne de nouveau d'une transmission moyenne plus élevée lorsque l'aimantation s'aligne parallèlement à la direction du courant tunnel (normal au plan des couches). En injectant des trous à partir de l'électrode GaAs :Be, un changement de signe de TAMR est observé à 0,8 eV. Le même type de comportement a été reporté par Giraud et al. sur une diode Zener-Esaki p^{++}-(Ga,Mn)As/n^{+}-GaAs [45], bien que dans le cas cité, notre modélisation n'est plus valable puisqu'elle nécessite de considérer un hamiltonien *k.p* à 8 bandes afin de tenir compte des 2 bandes de conduction. Le changement de signe que nous analysons ici de façon qualitative s'explique par le fait que les différentes sous-bandes sondées successivement en élevant le niveau de Fermi de la contre-électrode donnent des contributions opposées à la TAMR selon les arguments développés dans le chapitre 2 [Fig. 2.8 - Changement de signe à $E_F \simeq$-0,2 eV].

4.2 Double barrière tunnel résonante à barrière d'AlAs

Nous abordons dans cette section un des résultats marquants de ce chapitre concernant l'effet tunnel dépendant du spin dans des doubles jonctions tunnel. Nous décrirons tout d'abord l'effet tunnel résonant, puis nous étudierons les caractéristiques du courant en fonction de la tension dans des puits quantiques de GaAs de 3 et de 6 nm. Nous constaterons que la discretisation des niveaux dans le puits quantique entraîne des pics de TAMR, signature d'une TAMR 'résonante'.

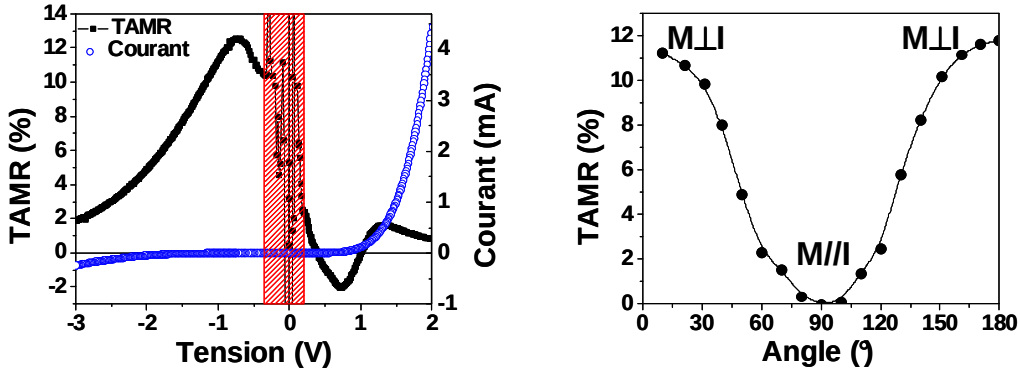


FIG. 4.3 – A gauche : variation de la TAMR et du courant en fonction de la tension appliquée à 3K. Les tensions négatives correspondent à un courant de trous de (Ga,Mn)As vers GaAs :Be. A droite : variation angulaire de la TAMR pour une tension de -1 V.

4.2.1 Quelques rappels sur l'effet tunnel résonant

Une diode tunnel résonante est constituée d'un puits quantique compris entre deux électrodes conductrices. Le puits se compose généralement d'une couche mince de GaAs (ou InAs) confinée entre deux barrières à grand gap d'AlAs (ou $Al_{1-x}Ga_xAs$). Le confinement spatial de la fonction d'onde dans le puits entraîne l'apparition d'états d'énergie discrète : l'observation d'un effet tunnel résonant, associée généralement à une résistance différentielle négative, devient alors possible. Nous rappelons ici brièvement quelques propriétés de transport tunnel résonant. Lorsque le niveau du puits se situe nettement au-dessus du niveau de Fermi, la probabilité de transmission hors résonance est très faible [Fig. 4.4 (a)]. La résistance de la structure est celle correspondant à une épaisseur de barrière double de la simple barrière. Lorsqu'une tension adéquate est appliquée aux bornes de la diode, correspondant à un alignement du niveau de Fermi de l'injecteur sur un niveau résonant du puits, la transmission tunnel est maximale et le courant tunnel augmente très sensiblement [Fig. 4.4 (b)]. C'est le courant résonant. La transmission est donc maximale lorsque l'énergie des porteurs correspond à celle d'un niveau de puits quantique, les porteurs sont directement injectés sur le niveau correspondant. Lorsqu'on augmente la tension, le courant tunnel diminue car la condition de résonance n'est plus satisfaite (transmission hors résonance) [Fig. 4.4 (c)]. Le mécanisme décrit ainsi fait donc apparaître une conductance différentielle négative.

Pour décrire les différents mécanismes de transport tunnel sur des niveaux du puits quantique, on distingue généralement le cas du tunnel résonant cohérent (décrit ci-dessus) de celui du tunnel séquentiel (incohérent). Dans le premier cas, les porteurs transitent par effet tunnel d'une électrode à l'autre de façon élastique sans être diffusés, en conservant notamment la phase de la fonction d'onde durant le temps du transit. Dans le deuxième cas, les porteurs sont diffusés élastiquement

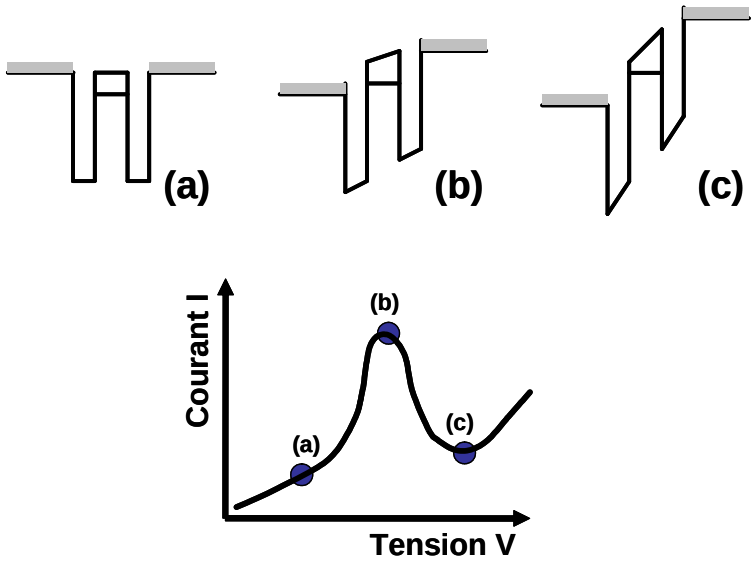


FIG. 4.4 – Schéma de la variation du courant en fonction de la tension à proximité d'un niveau de résonance dans le puits quantique. Le courant est maximum quand l'énergie de Fermi et le niveau sont alignés.

ou inélastiquement (dans le puits notamment) et en conséquence le transport ne peut plus être traité de façon cohérente en admettant une fonction d'onde unique à travers toute la structure. Il en résulte donc un transport tunnel séquentiel selon lequel sont traités successivement les événements (i) d'injection, (ii) de diffusion (avec ou sans maintien de la mémoire de spin), (iii) de détection par la contre-électrode. Pour une lecture et une compréhension plus approfondie des mécanismes de transport dans des doubles jonctions tunnel, nous pouvons nous référer aux proceedings suivants *Resonant Tunneling in Semiconductors : Physics and Applications* [21].

Nous faisons ici une revue sommaire d'expériences marquantes sur les effets résonants qui nous seront utiles dans la suite.

Puits non magnétiques La première mise en évidence expérimentale d'effet tunnel résonant dans la bande de conduction d'un puits quantique de type *n* a été reporté en 1974 par Chang et al. [22]. Les premières expériences d'effet tunnel résonant dans des structures de type *p* qui nous intéressent particulièrement ici ont été reportées par Mendez et al. en 1985 sur des puits quantiques de AlAs(5 nm)/GaAs(5 nm)/AlAs(5 nm) [97]. Pour illustrer le cas spécifique du tunnel résonant au niveau de la bande de valence et d'en analyser les effets intimes, les auteurs ont notamment mis en évidence des différences notables entre les expériences et la modélisation traitant indépendemment le caractère lourd/léger des trous (cas d'un hamiltonien de masse effective de Luttinger-Kohn diagonal). Afin de tenir compte du couplage entre les bandes de trous lourds et trous légers, Wessel et Altarelli ont calculé les coefficients

de transmission à partir de la technique des matrices de transfert dans une description à 4 bandes [174]. L'augmentation du mélange de la nature lourde/légère des trous pour des vecteurs d'onde $k_{//}$ plus élevés impose qu'une importante partie du courant provient de la composante légère acquise par les trous lourds pour des $k_{//}$ non nuls. Ce mélange entre trous lourds et trous légers augmente avec la concentration de porteurs dans l'électrode conductrice [23].

Puits magnétiques Peu de résultats ont été publiés à ce jour dans la littérature traitant de doubles barrières tunnel intégrant une électrode ferromagnétique. Nous distinguons cependant ici trois types d'hétérostructures différentes.

- *Deux électrodes ferromagnétiques* : L'une des premières expériences a été reportée par Mattana et al. [96]. Les structures sont constituées d'un puits de GaAs inséré entre deux électrodes de (Ga,Mn)As. Comme le haut de la bande de valence du puits quantique de GaAs se situe entre 0,1 et 0,45 eV en dessous de l'énergie de Fermi de l'électrode ferromagnétique de (Ga,Mn)As (dans une image de trous), l'observation conjointe du tunnel résonnant et de TMR devient très compliquée. L'utilisation d'un puits quantique de (In,Ga)As a permis de mettre en évidence un comportement oscillatoire de faibles valeurs de TMR en fonction des épaisseurs de barrière, signature d'un tunnel résonnant [113]. Il est clair que l'élaboration à basse température entraîne des difficultés supplémentaires : 1) un transport tunnel inélastique suite à la diffusion du manganèse dans la barrière ou des rugosités aux interfaces ou 2) l'injection du courant tunnel sur des défauts, localisés dans le puits et non sur les niveaux discrets du puits quantique.

D'un point de vue théorique, Petukhov et al. [119] prévoient cependant par un calcul *k.p* une magnétorésistance tunnel très importante dans ce type d'hétérostructures sans toutefois tenir compte de la possibilité d'un effet tunnel assisté par des défauts comme décrit ci-dessus.

- *Une seule électrode ferromagnétique* : Sur des hétérostructures élaborées à haute température, H. Ohno et al. ont identifié les niveaux résonants d'un puits quantique de GaAs utilisant une seule électrode ferromagnétique de (Ga,Mn)As [Fig. 4.5] [106]. En-dessous de la température de Curie une levée de dégénérescence d'un niveau résonant a été mise en évidence et attribuée au spin splitting dans la bande de valence. Toutefois, aucune évidence expérimentale d'effet de TAMR n'a été reportée. C'est l'objet de nos expériences, décrites plus loin.

- *Puits quantique magnétique* : En injectant à travers un puits magnétique de (Ga,Mn)As (à partir d'une électrode de GaAs :Be), une augmentation de TMR sur certains niveaux résonants a pu être mis en évidence par Ohya et al. [112]. De même sur des hétérostructures II-VI, une différence de conductance a été mise en évidence à travers des niveaux polarisés en spin d'un puits quantique paramagnétique de

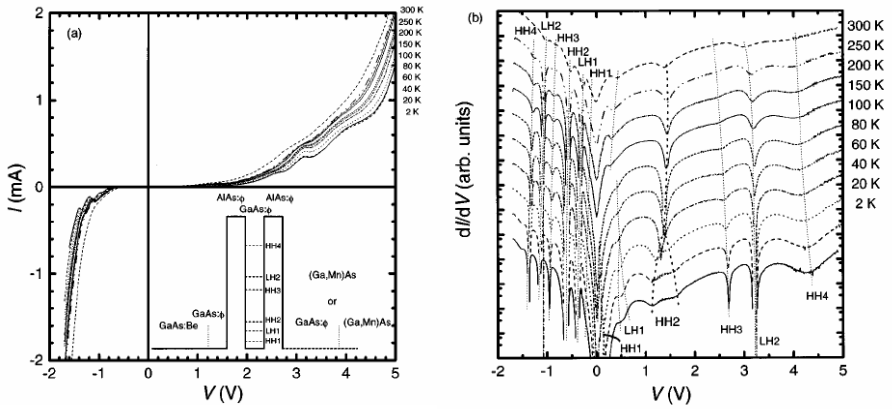


FIG. 4.5 – Courant I (a) et conductance différentielle dI/dV (b) en fonction de la tension V à différentes températures pour la structure (Ga,Mn)As/AlAs/GaAs/AlAs/GaAs :Be. La tension positive correspond à une injection de trous de la part du semiconducteur ferromagnétique (Ga,Mn)As.

(Zn,Mn)Se [143].

Nous nous focaliserons donc sur le deuxième type de mesures et nous étudierons dans un premier temps les caractéristiques I(V) dans des doubles jonctions tunnel élaborés à haute température qui présentent l'avantage d'être exempt de défauts.

4.2.2 Résonance et conductance différentielle

Les deux structures étudiées sont constituées d'un puits d'épaisseur de 3 ou 6 nm. Elles sont respectivement composées depuis la surface de 30nm $Ga_{0,937}Mn_{0,063}As$ / 5nm GaAs / 5nm AlAs / 3 ou 6 nm GaAs /5nm AlAs /5nm GaAs / 50nm GaAs :Be ($1{\cdot}10^{17}$ cm^{-3})/ gradient de 50nm GaAs :Be ($1{\cdot}10^{17}$ cm^{-3} $\rightarrow$ $2{\cdot}10^{19}$ cm^{-3}/ substrat GaAs :Be ($2{\cdot}10^{19}$ cm^{-3}). Nous avons représenté sur la figure 4.6 le schéma de l'hétérostructure ainsi que son profil simplifié de bande de valence.

Injection de trous à partir de GaAs :Be

Suite au faible dopage (de l'ordre de 10^{17} trous par cm^3) dans la couche d'accumulation de l'électrode non-magnétique, un gaz bidimensionnel se forme à l'interface jouant le rôle d'une fine sonde en énergie. Il est alors possible pour les 2 puits quantiques de sonder proprement les différents niveaux ainsi que leur caractère lourd ou léger [Fig. 4.7 (a) et (b)].

Le comportement de la conductance dI/dV-V a été obtenu à partir de la dérivée numérique du courant I(V). Le confinement plus important du puits quantique de 3 nm

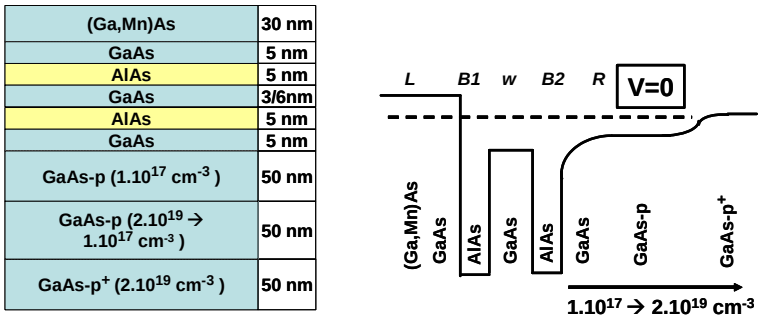


FIG. 4.6 – A gauche : schéma de l'hétérostructure étudiée dans ce chapitre . A droite : profil de la bande de valence de l'hétérostructure à tension nulle.

a pour conséquence d'augmenter l'énergie des niveaux. En effet dans l'approximation d'un puits "infini", l'énergie des états quantifiés varie en $1/d^2$, où d est l'épaisseur du puits. Nous pouvons donc indexer ceux-ci à partir de la courbe de dispersion transverse (dans le plan) des états de trous dans le puits quantique dont la signature peut être obtenue à l'aide de la théorie *k.p* en utilisant la méthode de transfert décrite dans le chapitre 2 [Fig. 4.7 (c) et (d)][1]. Pour le puits quantique de 3 nm, il ne nous a pas été possible d'indexer les 2 niveaux HH3 et LH2, proches en énergie et dont la résonance est très peu visible sur la courbe expérimentale de la figure 4.7 (a).

Injection de trous à partir de (Ga,Mn)As

En injectant à partir de l'électrode ferromagnétique de (Ga,Mn)As, les pics de résonance s'élargissent en raison de la plus forte concentration de porteurs (remplissage de trous plus important au niveau de l'émetteur) [Fig. 4.8 (a) et (b)]. Cette situation complique bien évidemment l'indexation des niveaux. Aussi faut-il s'appuyer davantage sur la modélisation. Nous avons calculé la conductance différentielle de la double jonction selon la formule de Landauer en sommant, à tension donnée, les coefficients de transmission dans l'espace des k et en considérant une épaisseur de sonde élargie en énergie de 30 meV. [Fig. 4.8 (c) et (d)]. Nous observons que les conductances calculées ainsi se rapprochent du comportement des conductances

[1]Dans le cas de double barrière, la matrice liant les amplitudes de fonction d'onde incidente et réfléchie de part et d'autre de la structure s'écrivent ici comme (en remplaçant l'équation 2.24) :

$$\begin{pmatrix} i_L \\ r_L \end{pmatrix} = M_L^{-1}.M_{B1}.Q_{B1}^{-1}.M_{B1}^{-1}.M_W.Q_W^{-1}.M_W^{-1}.M_{B2}.Q_{B2}^{-1}.M_{B2}^{-1}.M_R \begin{pmatrix} i_R \\ r_R \end{pmatrix} \tag{4.1}$$

où Q_{B1},Q_{B2} et Q_W sont les matrices de propagation diagonales dans les barrières d'AlAs et dans le puits quantique. Pour indexer les niveaux dans le puits quantique, nous avons appliqué une tension au bord de la jonction, et non une tension de grille, comme c'est souvent le cas dans la littérature. On peut remarquer ici que notre méthode de calcul du coefficient de transmission dans cette double structure diffère de celle de Wessel et Altarelli par l'offset de bande imposé par GaAs (dans le puits et dans l'électrode non-magnétique) par rapport à l'électrode ferromagnétique.

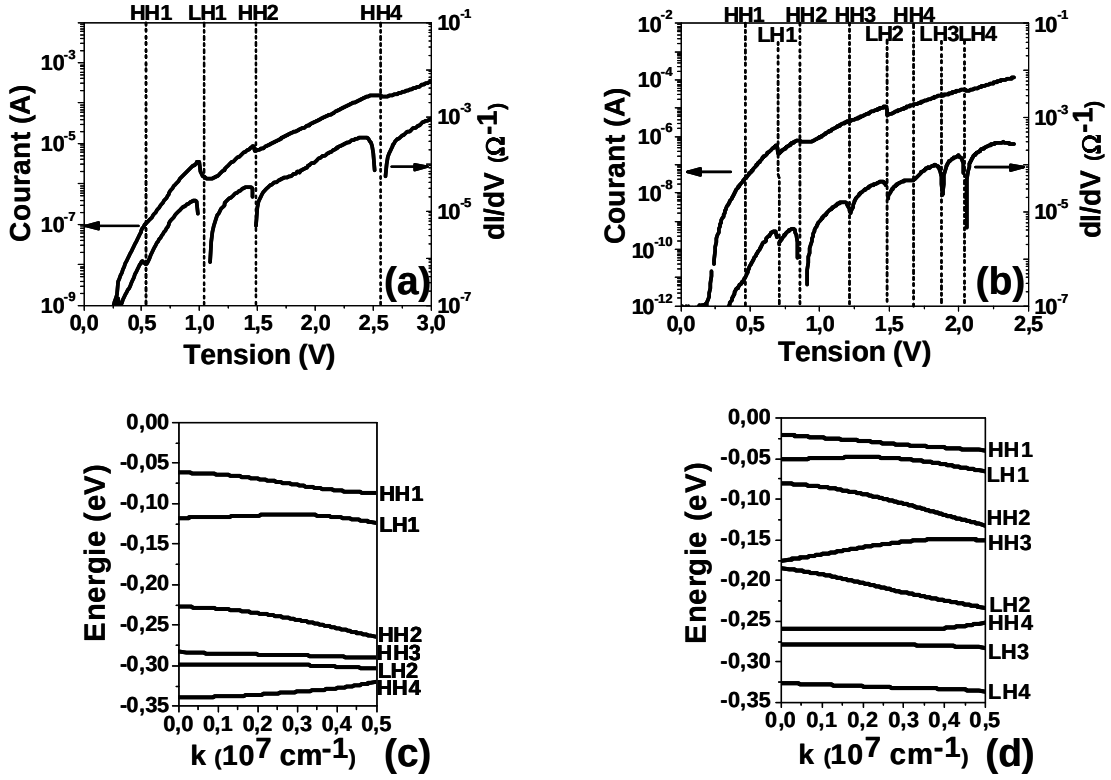


FIG. 4.7 – Mesures de la caractéristique I(V) et dI/dV(V) à 3 K pour un puits quantique de GaAs de 3 nm (a) et de 6 nm (b). Modélisation de la courbe de dispersion des niveaux de résonance dans le puits quantique de 3 nm (c) et de 6 nm (d).

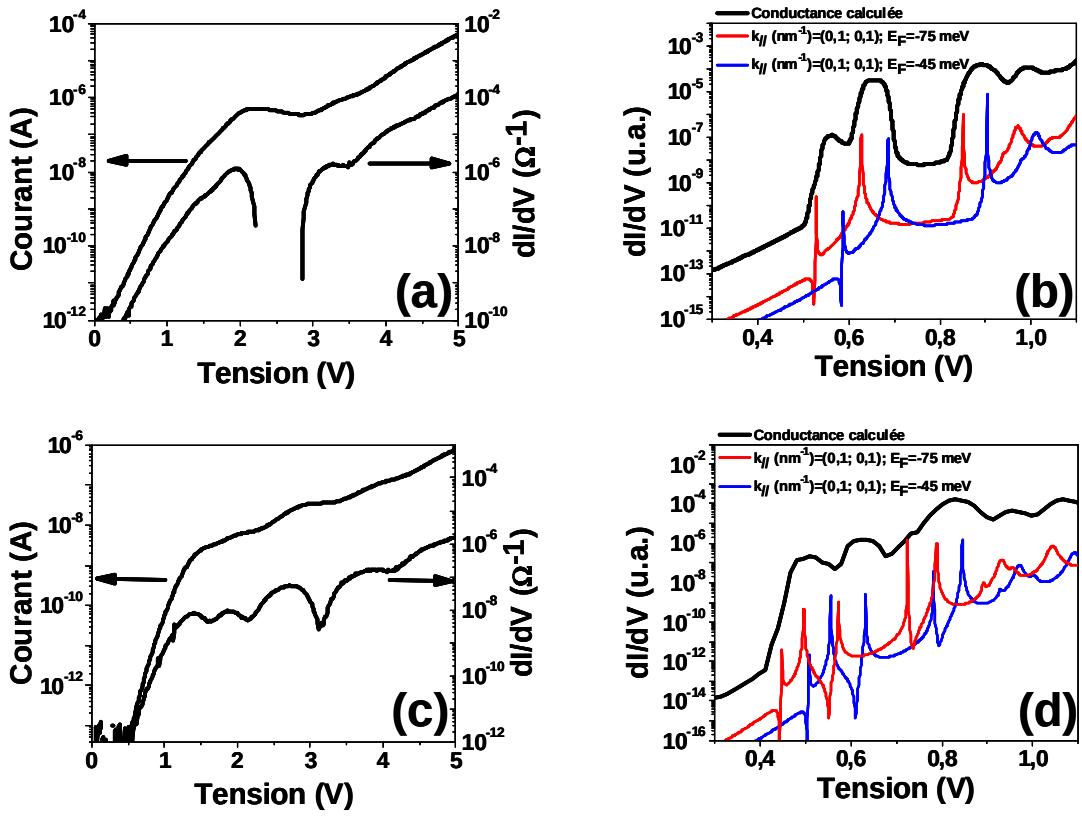


FIG. 4.8 – Courbe du courant I et de dI/dV en fonction de la tension appliquée pour le puits quantique de 3 nm (a) et de 6 nm (c). Modélisation de la conductance pour une épaisseur de sonde de 30 meV à partir d'une énergie de Fermi de -75 meV et un spin splitting de -20 meV pour le puits quantique de 3 nm (b) et de 6 nm (d).

mesurées expérimentalement [2].

A partir des courbes I(V) expérimentales pour les 2 puits de 3 et 6 nm, nous avons tracé, sur la figure 4.9, les tensions expérimentales auxquelles apparaissent les résonances en fonction de l'énergie des niveaux calculée théoriquement. Nous observons que les tensions 'résonantes' mesurées sont bien supérieures à deux fois l'énergie de confinement, en accord avec les mesures de Ohno et al. [106]. Cette occurrence provient de la présence d'une zone de déplétion à l'interface GaAs :Be(10^{17} cm^{-3})/GaAs :Be(10^{17} $\rightarrow 10^{19} cm^{-3}$) (au niveau de l'électrode inférieure) évoquée précédemment. Cette zone de déplétion a pour objet d'introduire, en série avec la double barrière, une résistance (dépendant de la tension et notamment de son signe) non dépendant du spin. Celle-ci renormalise la tension aux bornes de la structure

[2]Dans le cas présent la conductance maximum équivaut à un courant maximum, comme dans la dI/dV de l'expérience la conductance résulte de la somme de la dérivée entre deux points expérimentaux successifs.

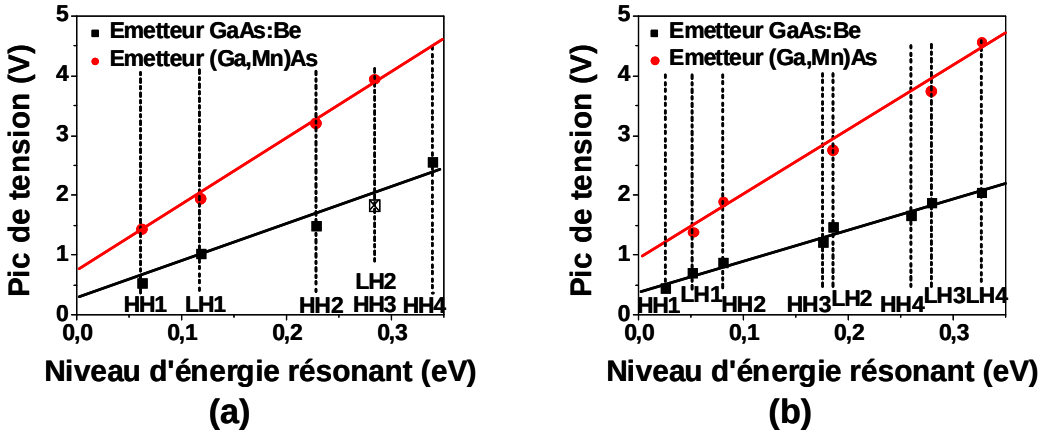


FIG. 4.9 – Les pics de conductance différentielle (mesurés) en fonction de l'énergie du niveau résonant (calculée) pour les puits quantiques de 3 nm (a) et de 6 nm (b). Les mesures sont effectuées à 3 K.

entière vis-à-vis de celle appliquée aux bornes de la double jonction seule. En conséquence, nous observons, sur la figure 4.9, pour le puits de 3 et de 6 nm, que le rapport des tensions entre la structure totale (zone de déplétion comprise) et la double barrière est de $\frac{10}{2}$ dans le cas où (Ga,Mn)As est l'émetteur et de $\frac{4}{2}$ dans le cas où GaAs :Be est l'émetteur.

Nous pouvons observer, de façon assez surprenante, une relation linéaire entre les pics de tensions mesurés et les énergies résonantes correspondantes sur toute la plage de tension explorée. Cette observation expérimentale semble s'écarter un peu des prévisions théoriques [56] donnant une correspondance non-linéaire.

Notons également que l'extrapolation des pics de tensions mesurés à énergie de résonance nulle ne coïncide pas avec une tension nulle mais croise l'abscisse à des énergies de résonance négatives de l'ordre de - 100 meV. Cette valeur correspond à l'offset de bandes supplémentaire introduit par le puits de GaAs, c'est-à-dire correspond à la hauteur de barrière effective du GaAs, élaboré à chaud (ou à la position du fond du puits par rapport au niveau de Fermi) [111].

On peut donner quelques détails supplémentaires sur les conductances différentielles mesurées sur les 2 puits successifs :

Pour le puits quantique de 3 nm, suite à des écarts en énergie plus élevés entre niveaux discrets, la conductance différentielle subit une forte chute entre les niveaux LH1 et HH2 [Fig. 4.8(a)].

Le rapprochement des niveaux dans le cas du puits quantique de 6 nm a pour tendance de lisser la conductance différentielle [Fig. 4.8]. Nous constatons, par exemple, que le troisième pic de conductance se compose des deux niveaux HH3 et

LH2 de sorte qu'il s'avère inexact d'indexer les niveaux au point où la conductance est minimale.

4.2.3 Mesures de TAMR résonante

4.2.3.1 Expériences

Nous abordons désormais les mesures expérimentales de TAMR résonante sur les doubles barrières de type II incluant une seule électrode ferromagnétique (supérieure) de (Ga,Mn)As. Ces expériences vont réveler une différence significative de courant tunnel résonant selon que l'aimantation de l'électrode injectrice de (Ga,Mn)As s'oriente dans le plan des couches ou selon l'axe de croissance, i.e. selon la direction du courant tunnel. Sur les figures 4.10 (a) et (c), nous avons fait figurer les courbes expérimentales des conductances différentielles obtenues sur les puits de 3 et 6 nm (à basse température 4 K et à champ saturant faible de 0,6 T) en fonction de la tension avec M //[100]. Nous avons également tracé dans les deux cas, la courbe expérimentale de TAMR définie comme

$$TAMR(\%) = 100 \cdot \frac{I_{[001]} - I_{[100]}}{I_{[001]}}$$

où les indices [001] et [100] représentent les directions d'aimantation différentes selon le courant tunnel ([001]) et dans le plan des couches ([100]).

Nous observons, dans chaque cas, une variation non monotone de la TAMR admettant successivement des 'pics' et des 'creux', signature d'une TAMR résonante. Cependant il est difficile dans un premier temps, sans modélisation, de corréler une telle modulation de TAMR à la présence d'états résonants du puits. Nous remarquons, toutefois, qu'une diminution de la conductance différentielle est généralement accompagnée d'une diminution de TAMR. Nous avons également étudié le comportement de TAMR en fonction de la température en ce qui concerne le puits quantique de 3 nm et de 6 nm [Fig. 4.11] pour un champ magnétique saturant de 0,6 T. Nous constatons que l'amplitude de TAMR s'atténue progressivement en fonction de la température avant de s'annuler au voisinage de 60 K. Cette température correspond à la température de Curie de l'électrode supérieure de (Ga,Mn)As au-delà de laquelle elle perd son caractère ferromagnétique. Nous pouvons donc conclure que les effets de TAMR mis en jeu dans ce type d'expériences tirent leur origine du caractère ferromagnétique de l'électrode injectrice de (Ga,Mn)As et en particulier de la présence du terme d'échange.

Faisons ici une remarque importante : la TAMR mesurée expérimentalement et donnée sur les figures 4.10 (a) et (c) ne représente pas la TAMR intrinsèque des doubles barrières. La raison est, comme nous l'évoquions précédemment, la présence de la forte

zone d'accumulation au niveau de l'électrode inférieure non magnétique, qui introduit une forte résistance non dépendant du spin en série R_{ZD} avec la double barrière. En conséquence, la TAMR intrinsèque doit être renormalisée, de façon triviale par un modèle simple de résistance en série (résistance du puits quantique R_W et de la zone de dépletion R_{ZD}), par le demi-bras de levier de tension correspondant. La TAMR expérimentale peut alors s'exprimer en fonction de la TAMR intrinsèque selon :

$$TAMR_{exp} = \frac{\Delta R_W}{R_W + R_{ZD}} = TAMR_{int} \cdot \frac{R_W}{R_W + R_{ZD}} \tag{4.2}$$

Le rapport $\frac{R_W}{R_W+R_{ZD}}$ peut être évalué à partir de la figure 4.9 donnant la position des pics de résonance en fonction de l'énergie de quantification. Le demi-bras de levier étant égale à un facteur 5, de sorte que la TAMR intrinsèque renormalisée atteint une amplitude maximale de l'ordre de 40 à 50 % sur la résonance.

Nous avons également mesurée la TAMR pour des tensions négatives correspondant à une injection de trous de l'électrode inférieure non magnétique vers l'électrode supérieure de (Ga,Mn)As sans toutefois obtenir des effets notables. Cette circonstance provient du fait qu'à forte tension d'injection, les trous sont injectés dans les bandes hautes (split-off) du (Ga,Mn)As dont le caractère ferromagnétique est sans doute beaucoup moins marquée que les 4 premières sous-bandes.

4.2.3.2 Origine et modélisation

Nous avons vu précédemment que l'origine de la TAMR provient de l'assymétrie des coefficients de transmission mesurés dans les 2 différentes géométries, aimantation dans le plan et aimantation hors plan. Dans le cas du tunnel résonant d'autres effets peuvent s'ajouter et compliquer les interprétations. On peut citer notamment deux effets possibles :

i) effets de quantification des niveaux de Landau sur des états quantifiés du puits quantique [55, 108, 137].

ii) effets de déflexion du vecteur d'onde dans la direction du plan des couches transverse à l'aimantation due à la force de Lorentz [21, 56].

Toutefois, les expériences étant réalisées à des champs magnétiques saturant relativement modestes (0,6 T), nous pouvons écarter ces 2 hypothèses qui admettent des effets significatifs pour des champs supérieurs à 5 T. Un autre argument important, comme nous l'avons déjà évoqué, est la disparition des effets pour des températures proches de la température de Curie du (Ga,Mn)As qui indique un effet intrinsèque lié au terme d'échange du (Ga,Mn)As.

Nous avons donc calculé en théorie *k.p* la TAMR résonante attendue des différences relatives des coefficients de transmission sommés sur l'ensemble de la surface de Fermi et reporté l'évolution de la TAMR en tension ainsi modélisée sur les

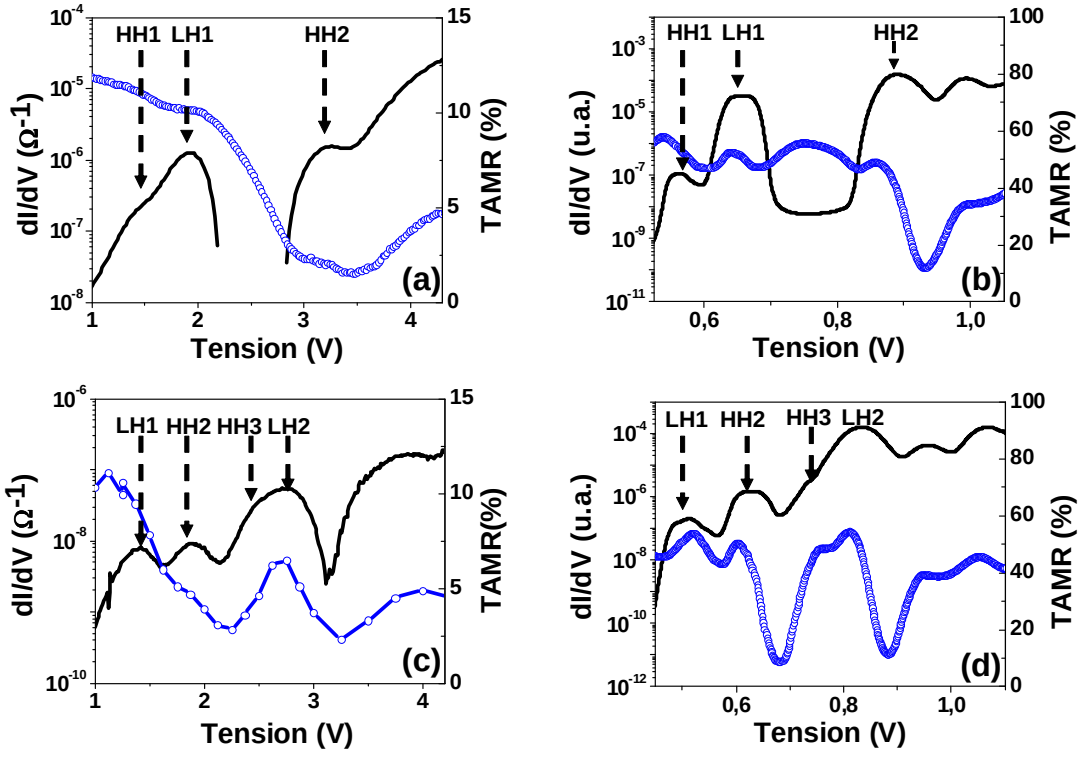


FIG. 4.10 – Courbe de la conductance différentielle dI/dV et de la TAMR en fonction de la tension appliquée pour le puits quantique de 3 nm (a) et de 6 nm (c). Modélisation de la conductance différentielle et de la TAMR pour une épaisseur de sonde de 30 meV à partir d'une énergie de Fermi de -75 meV et un spin splitting de -20 meV pour le puits quantique de 3 nm (b) et 6 nm (d).

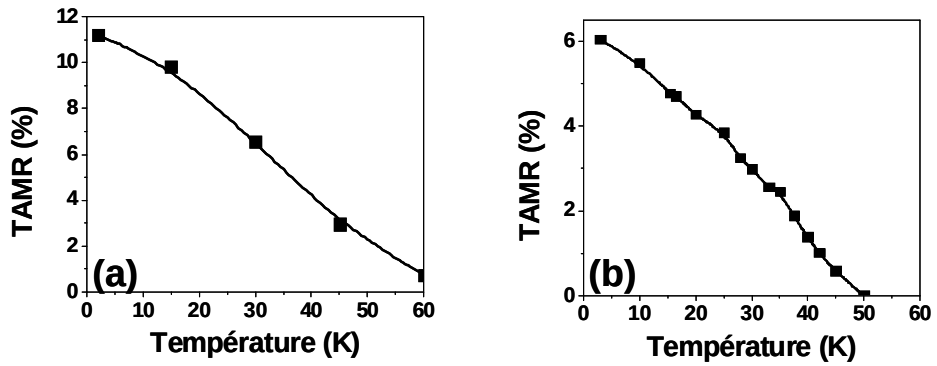


FIG. 4.11 – Comportement de TAMR en fonction de la température pour le pic de LH1 du puits de 3 nm (a) et le pic de LH2 pour le puits de 6 nm (b).

figures 4.10 (b) et (d). L'accord entre courbes expérimentales et courbes théoriques est relativement bon, en ce qui concerne l'amplitude relative des pics ainsi que leur position en énergie (surtout dans le cas du puits de 6nm). Cependant il faut préciser ici que, dans les expériences, les résonances sur les trous lourds semblent moins marquées, notamment pour HH2 dans le cas du puits de 3 nm, et pour HH2 et HH3 dans le cas du puits de 6 nm.

Nous allons donner ici quelques arguments très préliminaires des mécanismes physiques sous-jacents à la TAMR résonante pouvant servir aux perspectives à venir. A cet effet nous nous focalisons désormais sur les résultats obtenus sur le puits quantique de 6 nm.

Nous reportons sur les figures 4.12 et 4.13 les coefficients de transmission discrétisés sur chaque surface de Fermi pour les deux directions d'aimantation différentes (respectivement selon [100] et [001]) dans le cas hors résonant (V=0,675 eV) et sur la résonance LH2 (V=0,81 eV). Nous avons considéré, ici, une énergie caractéristique de - 60meV correspondant à une énergie moyenne se situant entre -75meV (énergie de Fermi réelle) et -45meV (correspondant à une épaisseur de sonde réelle de 30meV). Le paramètre de spin splitting est ici égal à -20meV. Notons alors qu'une énergie différente donnerait les mêmes conclusions qualitatives à une énergie de résonance (tension) légèrement différente.

En comparant alors les valeurs de TAMR inhérentes à chaque sous-bande, normalisées par rapport à leur contribution sur la conduction totale, nous constatons que la somme des deux premières sous-bandes donnent une large contribution positive de l'ordre de 50% ($\pm$10%) dans tous les cas de figure (hors résonance et sur la résonance).

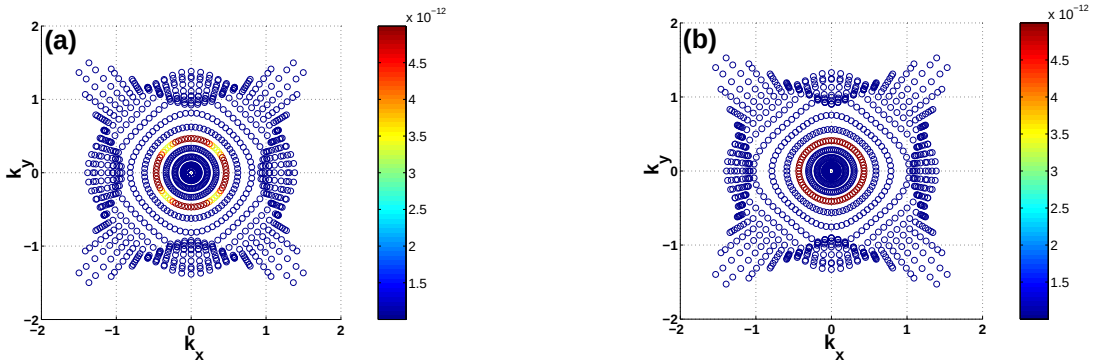
La troisième sous-bande, quant à elle, affiche une forte TAMR négative hors résonance, de l'ordre de -27 % [Fig. 4.12], et une TAMR faible de +12% sur la résonance [Fig. 4.13]. Ainsi on peut noter, dans cet exemple, une forte différence des coefficients de transmission sommée sur la troisième sous-bande dans le cas hors résonant qui n'apparaît pas sur la résonance. En effet on s'aperçoit que dans ce dernier cas les amplitudes des transmissions identifiées sur la troisième surface de Fermi ne dépendent que très peu de l'orientation de l'aimantation. La TAMR totale résulte dans ce cas en grande partie des deux premières sous-bandes.

De plus, en accord avec les arguments précédents, nous relevons, sur la résonance, une nette augmentation (d'un facteur 30) de la conductance concernant la troisième sous-bande en configuration d'aimantation perpendiculaire qui peut être à l'origine de l'amplification de TAMR obtenue. Toutefois, la description élaborée ci-dessus nécessite, dans le futur, une analyse plus fine et plus complète.

Remarque : Nous pouvons constater de façon assez surprenante que l'orientation de l'aimantation dans le plan des couches s'accompagne très généralement d'une assy-

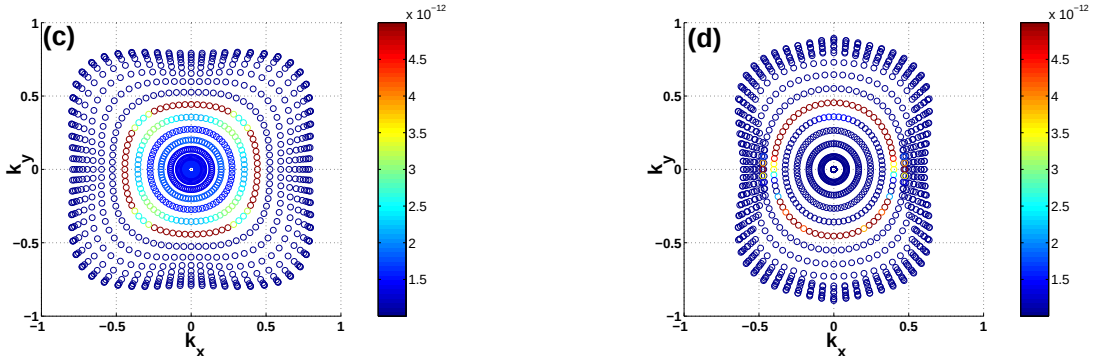
Première sous-bande : TAMR=-11%

Aimantation selon [001] Aimantation selon [100]



Deuxième sous-bande : TAMR=55%

Aimantation selon [001] Aimantation selon [100]



Troisième sous-bande : TAMR=-27%

Aimantation selon [001] Aimantation selon [100]

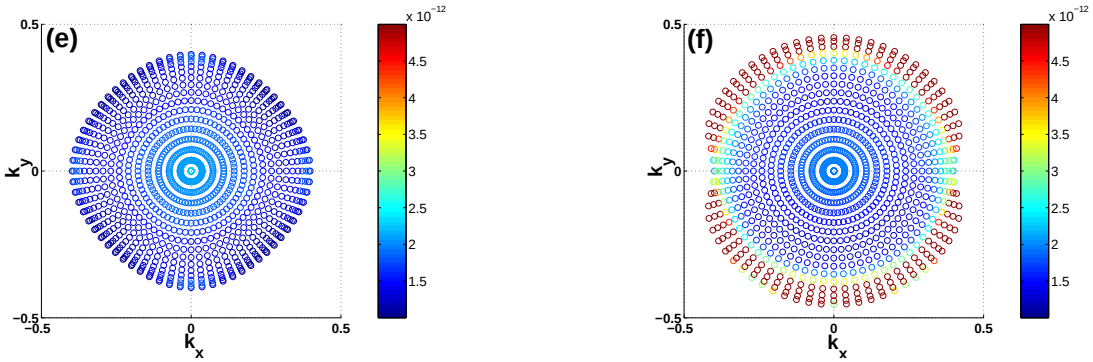


FIG. 4.12 – Coefficients de transmission sur les surfaces de Fermi de GaMnAs (avec B_G=-20 meV et E_F=-0.060 eV) avec une aimantation dans le plan des couches (M//[100]) [Figures (a),(c) et (e)] et perpendiculaire au plan des couches (M//[001]) [Figures (b),(d) et (f)]. La tension imposée est de 0,68 eV, correspondant à une énergie hors résonance. L'échelle des vecteurs d'onde (k_x,k_y) est en nm^{-1}.

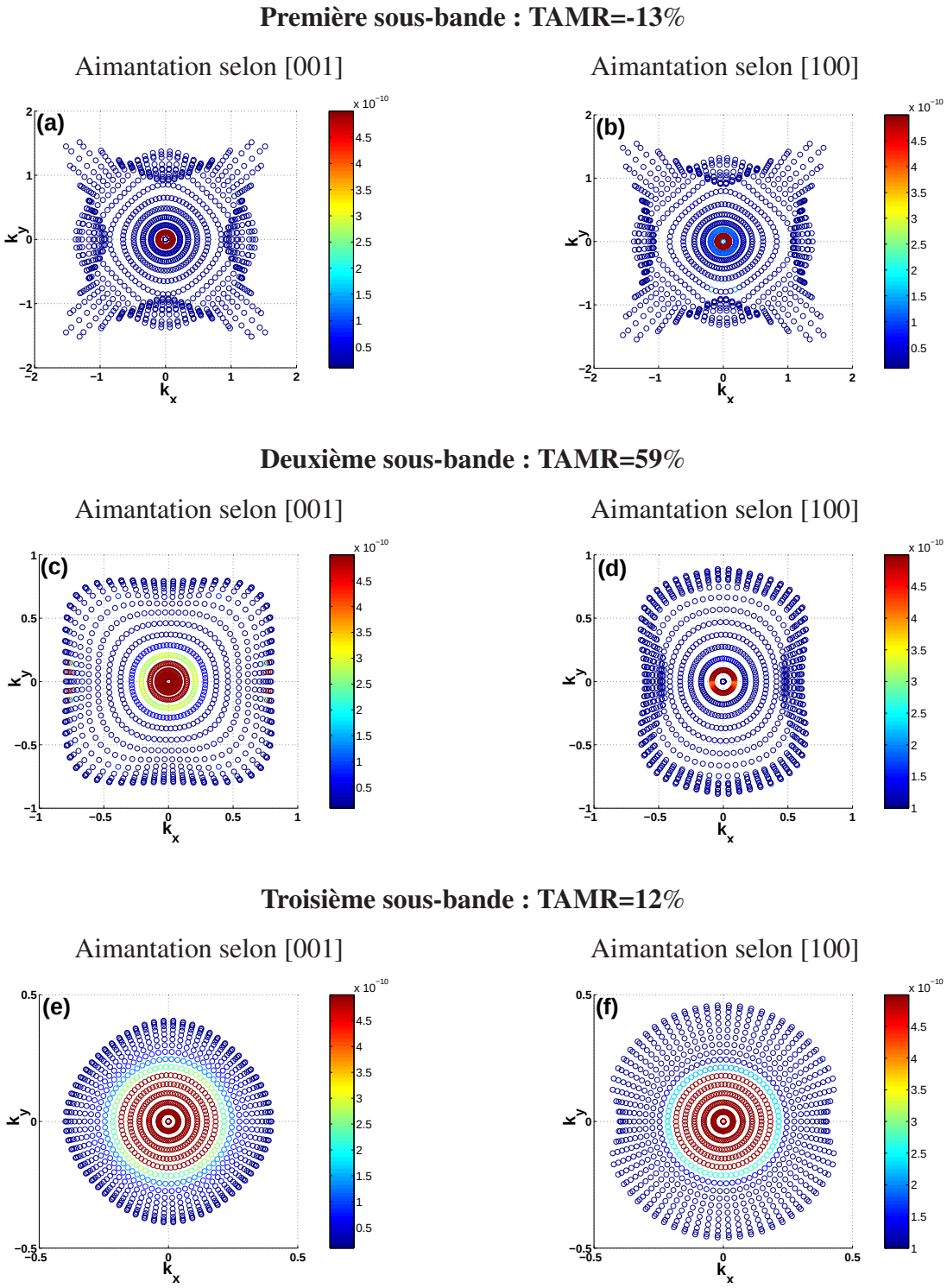


FIG. 4.13 – Coefficients de transmission sur les surfaces de Fermi de GaMnAs (avec B_G=-20 meV et E_F=-0.060 eV) avec une aimantation dans le plan des couches (M//[100]) [Figures (a),(c) et (e)] et perpendiculaire au plan des couches (M//[001]) [Figures (b),(d) et (f)]. La tension imposée est de 0,81 eV, correspondant à l'énergie du niveau résonant de LH2. L'échelle des vecteurs d'onde (k_x,k_y) est en nm^{-1}.

métrie notable des coefficients de transmission dans la direction planaire des vecteurs d'onde normale à l'aimantation (direction y dans notre cas). Cette circonstance provient de l'effet du couplage spin-orbite lors du transfert de porteurs d'une interface à l'autre [113].

En effet le couplage spin-orbite s'écrivant de façon générale $H_{S.O.}$=-$\zeta[\vec{\nabla}V(\vec{r}) \wedge \vec{p}]\cdot\vec{S}$, il apparaît à l'interface entre 2 matériaux différents où $\vec{\nabla}V(\vec{r}) \sim \vec{z} \neq 0$, un terme supplémentaire de la forme $H_{S.O.}$=-$\lambda[\vec{z} \wedge \vec{p}]\cdot\vec{S}$ =-$\lambda[\vec{S} \wedge \vec{z}]\cdot\vec{p}$.

Il advient donc que l'existence d'une composante de l'impulsion dans la direction $[\vec{S} \wedge \vec{z}]$ entraîne l'apparition d'un terme supplémentaire dans l'hamiltonien (et implicitement inclus dans les conditions de continuité des fonctions d'ondes et du vecteur courant), terme impair en p_y. Ce dernier est à l'origine de l'assymétrie des coefficients de transmission ($\pm$ p_y).

Chapitre 5

Transfert de spin dans des jonctions tunnel GaMnAs/InGaAs/GaMnAs

Nous avons vu précédemment qu'il était possible d'injecter une polarisation de spin à partir de (Ga,Mn)As en régime tunnel direct. Dans le cas de l'étude d'effets TMR d'hétérostructures tunnel III-V intégrant le matériau ferromagnétique (Ga,Mn)As, un des avantages concrets est la possibilité d'utiliser des matériaux intercalaires à gap (ou à offset de bande) différent et donc de moduler facilement la hauteur de barrière [AlAs, (Al,Ga)As, GaAs, (In,Ga)As]. Nous avons, à ce titre, montré précédemment que $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ jouait également le rôle de barrière tunnel pour (Ga,Mn)As au niveau de sa bande de valence et démontré l'existence d'un offset de bandes de plusieurs centaines de meV entre les 2 types de matériaux. Dans le cadre de la théorie *k.p*, à partir de la conductance tunnel selon la formule de Landauer, nous pouvons comprendre, tout au moins qualitativement, l'influence des configurations magnétiques (arrangement parallèle et antiparallèle) sur les courants de spin donnant lieu aux effets de TMR.

Il est, dès lors, assez naturel de s'intéresser aux mécanismes "inverses", i.e. à l'influence du courant polarisé en spin sur l'aimantation. Les expériences, dans ce domaine de recherche qui suscite actuellement un très fort engagement, ont déjà démontré que, sous certaines conditions, il est possible de renverser l'aimantation d'une fine couche ferromagnétique sous l'action d'un courant polarisé en spin. Ces expériences ont été principalement menées sur des tricouches métalliques composés de métaux de transition et présentant un effet de magnétorésistance géante (CPP-GMR). Ces travaux font d'ailleurs l'objet de recherche au sein de notre laboratoire [48, 49]. La particularité de notre système à base de (Ga,Mn)As est, d'une part, de présenter des caractéristiques matériaux très différentes des matériaux de transition, comme la température de Curie, le moment à saturation, l'anisotropie ou encore la nature des porteurs (trous). Le deuxième aspect novateur est de posséder une hétérostructure semiconductrice parfaitement epitaxiée en régime de transport tunnel, également sujette à l'observation d'un couple de transfert de spin.

Après une courte introduction sur le principe du transfert de spin nous passerons en revue quelques résultats expérimentaux illustrant cet effet, principalement extraits d'expériences sur des nanopiliers métalliques en régime de transport diffusif. Nous évoquerons enfin les quelques résultats, pour la plupart obtenus pendant ce travail de thèse, dans le régime de transport tunnel. Nous exposerons ensuite nos résultats expérimentaux sur les jonctions à base de (Ga,Mn)As et discuterons notamment des différences observées par rapport aux métaux de transition tel que le Co.

5.1 Etat de l'art

5.1.1 Concept du transfert de spin

En 1996, J. Slonczewski et L.Berger ont prédit qu'il est possible d'exciter des ondes de spin et de renverser une couche magnétique sous l'influence d'un courant polarisé en spin dans des structures métalliques [11, 144]. Les électrons sont injectés perpendiculairement au plan des couches, en géométrie CPP (*Current Perpendicular to Plane*). La première couche ferromagnétique, à aimantation fixée M_1, est épaisse et sert de polariseur de spin. La deuxième couche ferrromagnétique est fine et à aimantation libre M_2 (Fig. 5.1). Les deux aimantations étant supposées non colinéaires, la polarisation de spin injectée à travers la couche non-magnétique possède une composante transverse par rapport au moment magnétique de la deuxième couche ferromagnétique. A cause de l'interaction d'échange, les électrons s'alignent selon la direction de M_2. Par conservation du moment magnétique, la composante transverse du courant polarisé en spin est transférée et absorbée par la deuxième couche ferromagnétique. Ce transfert de moment angulaire de spin est équivalent à un couple s'exercant sur l'aimantation de la couche ferromagnétique libre.

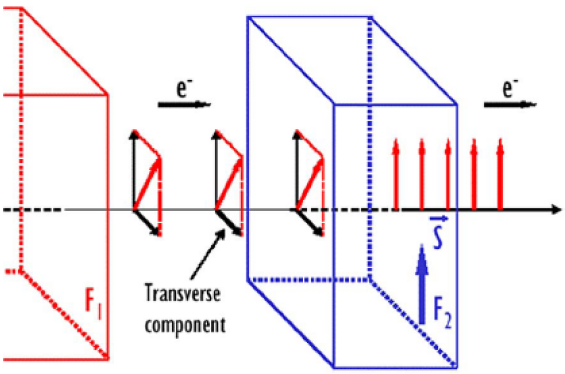


FIG. 5.1 – Schéma d'une tri-couche métallique dans laquelle les deux couches ferromagnétiques F1 et F2 sont séparées par une couche non-magnétique. Le courant polarisé injecté dans la deuxième couche ferromagnétique F2 transfère son moment magnétique transverse à cette dernière [29].

En tenant compte du couple de transfert de spin, la dynamique de l'aimantation de la couche libre $\overrightarrow{m_2}$ (vecteur unitaire selon $\overrightarrow{M_2}$) sous un champ magnétique H [1], est décrite par l'équation de Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG) :

$$\frac{d\overrightarrow{m_2}}{dt} = -\gamma_0 \overrightarrow{m_2} \wedge \overrightarrow{H} + \alpha \overrightarrow{m_2} \wedge \frac{d\overrightarrow{m_2}}{dt} - j\frac{P_i g \mu_B}{etM_S} \wedge (\overrightarrow{m_2} \wedge (\overrightarrow{m_2} \wedge \overrightarrow{m_1})) \tag{5.1}$$

[1] Il résulte de la somme du champ magnétique appliqué, du champ d'anisotropie et du champ dipolaire

où le premier terme décrit la précession de l'aimantation autour du champ effectif H et le deuxième terme l'amortissement de l'aimantation vers la direction du champ magnétique à travers le facteur d'amortissement de Gilbert α. Le dernier terme traduit le couple de transfert de spin s'exercant sur la couche ferromagnétique libre d'épaisseur t. Il s'exprime en fonction de la polarisation du courant P_i à l'interface entre la couche non-magnétique et la couche libre, de l'aimantation à saturation M_S, du facteur de Landé g et des constantes physiques μ_B (magnéton de Bohr) et e (charge de l'électron). Slonczewski déduit de l'équation 5.1 que les densités de courant critique j pour observer le renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin sont de l'ordre de 10^7A.cm^{-2} dans les vannes de spin.

En général trois longueurs caractéristiques interviennent dans la description du transport à travers une multicouche métallique : les deux premières sont le libre parcours moyen λ et la longueur de diffusion de spin l_{sf}, qui correspond à la longueur d'échelle de la perte la composante longitudinale du courant polarisé en spin. Cette dernière est en général grand devant le libre parcours moyen et caractérise la longueur d'échelle des variations du courant polarisé en spin. La troisième longueur est la longueur de décohérence (ou longueur d'absorption) l_{decoh}, décrivant la longueur d'échelle correspondant à la perte de la partie transverse du courant de spin par précession autour du champ d'échange. On peut distinguer deux limites. La première purement balistique ($l_{decoh} < \lambda$) [151, 152] et la seconde de type diffusive ($l_{decoh} > \lambda$) [183]. Dans le cas des interfaces type métal ferromagnétique/non-magnétique, l'amplitude du champ d'échange ainsi que l'intégration sur tous les vecteurs d'onde k de la surface de Fermi, font que la perte de la partie transverse du courant de spin se fait sur un à deux plans atomiques (limite $l_{decoh} < \lambda$). Les temps caractéristiques de la dynamique de l'aimantation ($\cong 10^{-9}$ s) font en sorte que l'on peut traiter séparément l'influence de la partie transverse sur l'aimantation et l'influence de l'aimantation sur la partie longitudinale (temps caractéristique de l'ordre de 10^{-12} s).

5.1.2 Les piliers de type CPP-GMR

Dans le cas des piliers métalliques en régime CPP-GMR (*Current Perpendicular to Plane Giant Magnetoresistance*), une couche métallique non magnétique, comme le cuivre, sépare les deux couches magnétiques. L'effet de magnétorésistance géante tire son origine de l'orientation relative des deux aimantations, anti-parallèle ou parallèle, s'expliquant par un modèle de courant à deux canaux, de spins *up* et *down*, et de conductivité différente.

Dans notre exemple de l'interface Co/Cu, le canal de spin *up* est majoritaire au niveau de Fermi pour la couche de Co, contrairement au cas d'équilibre des deux canaux de spin du métal non-magnétique loin de l'interface. De chaque côté de l'interface, il existe une zone, dite zone d'accumulation de spin et s'étendant sur une

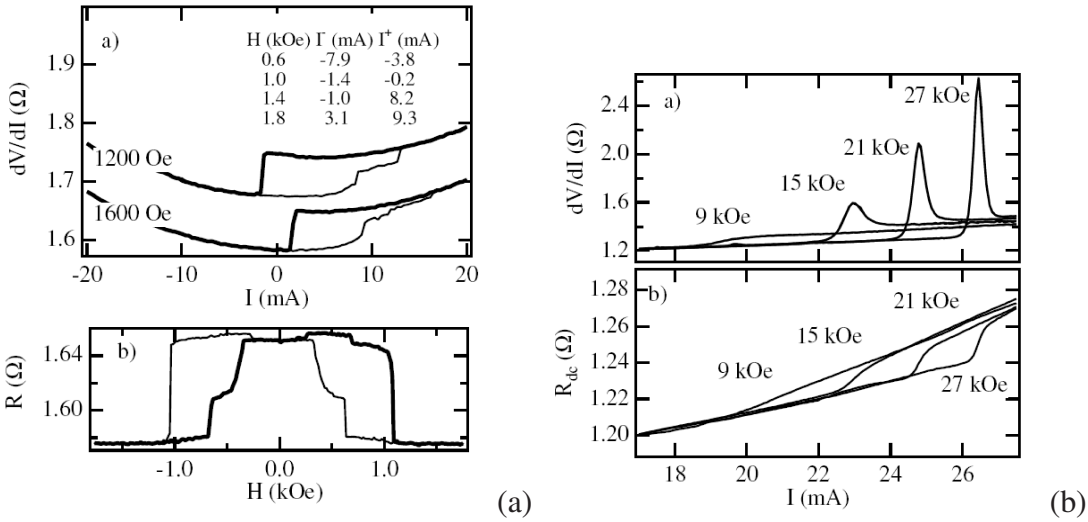


FIG. 5.2 – (a) Régime irréversible : cycle hystérétique entre les deux états de résistance de la tri-couche métallique et courbe de résistance en fonction du champ magnétique. (b) Régime réversible : à fort champ magnétique des pics de précession réversibles apparaissent. D'après Katine et al. [67].

longueur caractéristique de diffusion de spin sur laquelle cette assymétrie décroît. Les profils d'accumulation et de polarisation de spin dans les bicouches sont notamment décrits par le modèle de Valet-Fert [165].

Le principe de renversement d'aimantation sera illustré dans ce paragraphe à l'aide de la structure métallique Co/Cu/Co. Pour une lecture et une compréhension plus approfondies du renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin ainsi que de sa dynamique, on peut se référer à la revue récente de Stiles et Miltat [150]. Nous discutons ci-dessous le cas des nanopiliers et décrivons brièvement le renversement irréversible de l'aimantation en présence de faible champ magnétique ainsi que des variations réversibles en présence d'un fort champ magnétique.

Régime irréversible : Les premières expériences de renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin sur des nanopiliers ont été effectuées en 2000 par Katine et al. à l'université de Cornell aux Etats-Unis [67]. En mesurant la courbe de résistance $\frac{dV}{dI}$ en fonction du courant sur Co/Cu/Co, un comportement hystérétique entre la configuration parallèle et anti-parallèle a pu être mis en évidence [Fig. 5.2 (a)]. Un courant tel que les électrons passent de la couche magnétique fixe vers la couche magnétique libre induisent un état parallèle, alors qu'un courant de signe opposée entraîne un état anti-parallèle. Des densités de courant de l'ordre de 10^7A.cm^{-2} ont été reportées. Ces résultats ont été confirmées peu après par plusieurs autres groupes, dont Grollier et al. (à champ magnétique nul) [48, 49] et Sun et al. [154].

Régime réversible : Pour des champs magnétiques plus forts, des transitions progressives et réversibles ont été mises en évidence sur des nanopiliers [Fig.5.2b], mais également sur des contacts ponctuels [164]. Dans les deux cas le champ magnétique était perpendiculaire au plan des couches. En mesurant la résistance différentielle en fonction d'un courant DC, un pic réversible traduisant la précession entretenue de l'aimantation de la couche fine peut alors être observé. Les configurations de l'état parallèle et de l'état anti-parallèle sont alors instables. Ces variations réversibles en courant ont pu être attribuées à la précession de l'aimantation qui s'accompagne des oscillations de tension aux bornes de l'échantillon dans la gamme des GHz [70, 123], confirmées par des mesures temporelles [74].

La dépendance du renversement d'aimantation en fonction du champ magnétique a été illustrée sur des nanopiliers Co/Cu/Co à travers un diagramme des zones de stabilité [Fig.5.3] [49]. Ce calcul rend bien compte qualitativement des résultats expérimentaux. Nous précisons que dans le cas présent, le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches. La transition entre régime réversible et irréversible est évaluée de l'ordre de α^2 H_{an} et donc autour de l'Oersted pour le cas du cobalt.

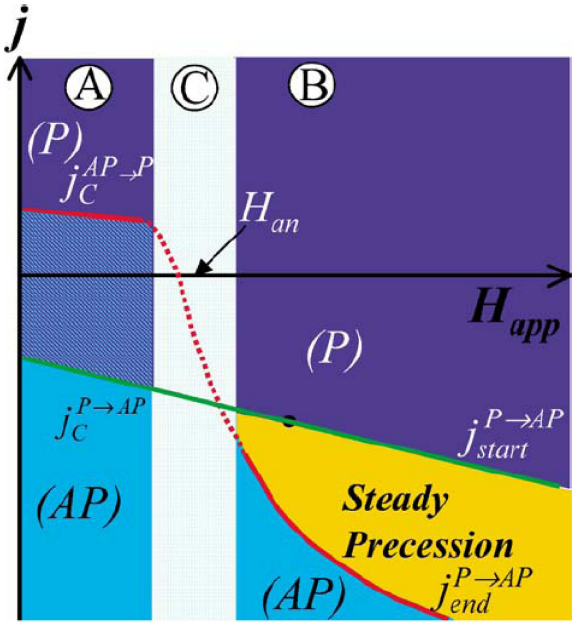


FIG. 5.3 – Diagramme du courant critique en fonction du champ magnétique appliqué. Dans la zone irréversible (A), un cycle d'hystérésis est observable. Dans la zone réversible (B), des états d'excitation de spin sont mesurées. Les deux zones sont séparées par une zone de transition (C) de l'ordre de l'Oersted [49].

5.1.3 Les piliers de type magnétorésistance tunnel

L'influence du courant polarisé en spin sur la configuration magnétique a été observée plus récemment sur des jonctions tunnel magnétiques : elles possèdent un intérêt particulier pour les applications des nouveaux types de mémoires non-volatiles, telle que la STT-MRAM (Spin Transfer Torque). Les premiers résultats de renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin dans le régime tunnel ont été obtenus en 2004 par Huai et al. [58] sur des barrières d'Al_2O_3 avec des électrodes CoFe. Les auteurs ont reporté des densités de courant de 8.10^6 A.cm^{-2} sur des jonctions à faible résistance surfacique (de l'ordre du Ω.um^2) et magnétorésistance tunnel. Les résultats récents sur les barrières de MgO s'avèrent nettement plus prometteurs que sur les barrières d'alumine, en terme de magnétorésistance tunnel et courants critiques. Des densités de courant de 8.10^5 A.cm^{-2} pour des TMR de 73% ont été observées par Hayakawa et al. [53] sur CoFeB/MgO/CoFeB. Une augmentation de TMR à 160% après recuit a été accompagnée de densités de courant critique plus fortes suite à la cristallisation du CoFeB amorphe (et par conséquent d'une augmentation du moment à saturation). Dans le régime réversible, les pics au GHz ont été détectés à la fois sur la barrière de AlO par Fuchs et al. [42] et la barrière de MgO par Nazarov et al. [101].

En ce qui concerne le semiconducteur ferromagnétique de (Ga,Mn)As, le premier résultat concret obtenu sur le renversement d'aimantation par transfert de spin a été reporté en 2004 par le groupe de H. Ohno de l'université de Tohoku à Sendai. Des renversements irréversibles ont été mis en évidence à 30 K sur des jonctions tunnel $Ga_{0,953}Mn_{0,047}As$(80 nm) / GaAs(6 nm) /$Ga_{0,953}Mn_{0,047}As$(15 nm) [26]. Les densités de courant critiques reportées de 1.10^5A.cm^{-2} sont deux ordres de grandeur inférieurs à celles des structures métalliques. Nous précisons qu'ici les états de configuration magnétique P(parallèle) et AP(anti-parallèle) ont été préparées séparément : aucun cycle d'hstérésis complet a été décrit en une seule mesure. Sur une barrière de GaAs plus fine (4 nm), les auteurs ont mesuré des densités de courant critiques de j_C=5.10^4 A.cm^{-2} à 40 K [2] [24].

5.2 Les structures tunnel à base de (Ga,Mn)As

Nous exposerons dans cette partie nos résultats expérimentaux de renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin obtenus pour l'hétérostructure $Ga_{0,939}Mn_{0,061}As$ (80 nm)/ $In_{0,25}Ga_{0,75}As$ (6 nm)/ $Ga_{0,939}Mn_{0,061}As$ (15 nm) [Structure B du chapitre 3]. L'utilisation de faible hauteur de barrière, associée à une faible résistance surfacique, est favorable à l'injection de fortes densités de courants tout en

[2] La durée des pulses de courant entre 10 et 1000 μs ne semble pas influencer la valeur des densités critiques de sorte que la densité critique mesurée est pratiquement équivalente à la densité de courant intrinsèque.

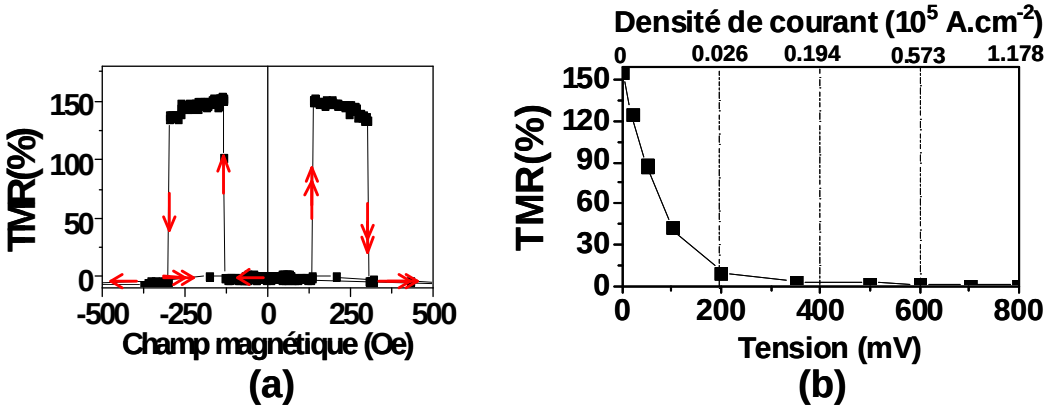


FIG. 5.4 – (a) Courbe de magnétorésistance tunnel à 3 K et à 1 mV. (b) Décroissance de la magnétorésistance tunnel en fonction de la tension appliquée (échelle du bas) et de la densité de courant (échelle du haut). Pour de fortes densités de courant ($\cong 10^5$ A.cm^{-2}), la magnétorésistance tunnel s'annule.

minimisant un certain échauffement thermique. Les jonctions étudiées ici ont été processées par O. Boulle en lithographie électronique en collaboration avec le Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (à Marcoussis). Les résultats présentés dans la section suivante ont été obtenus sur des piliers circulaires d'un diamètre de 700 nm. Le produit R.S de $1{,}1 \cdot 10^{-3}$ Ω.cm^2 et une TMR de 155% à 3 K et à 1 mV [Fig. 5.4 (a)] sont légèrement différents des résultats obtenus sur des jonctions élaborées en lithographie optique (Chapitre 3). Nous l'attribuons à des températures de recuit différentes lors du processus de lithographie électronique et optique.

5.2.1 Renversement d'aimantation par transfert de spin

Contrairement au cas des piliers métalliques dans lesquels la TMR demeure aux tensions d'application du courant critique, la perte rapide de TMR en tension nécessite ici un protocole expérimental un peu particulier. En effet, la magnétorésistance tunnel décroît fortement en fonction de la tension de sorte que pour des fortes densités de courant, la magnétorésistance tunnel est nulle [Fig. 5.4]. Ce protocole nécessite ici de i) appliquer des incréments de tensions successifs jusqu'à obtenir le renversement d'aimantation et ii) de mesurer la résistance à faible tension (20 meV) afin de détecter l'arrangement magnétique parallèle/anti-parallèle. En raison de la disparition de TMR à forte tension, il est évident que ce protocole ne permet pas d'étudier le régime réversible.

Renversement d'aimantation à 3 K

Sur la figure 5.5 nous représentons les courbes de résistance en fonction du champ magnétique R(H) à 20 mV et de résistance en fonction du courant R(I) à + 13 Oe,

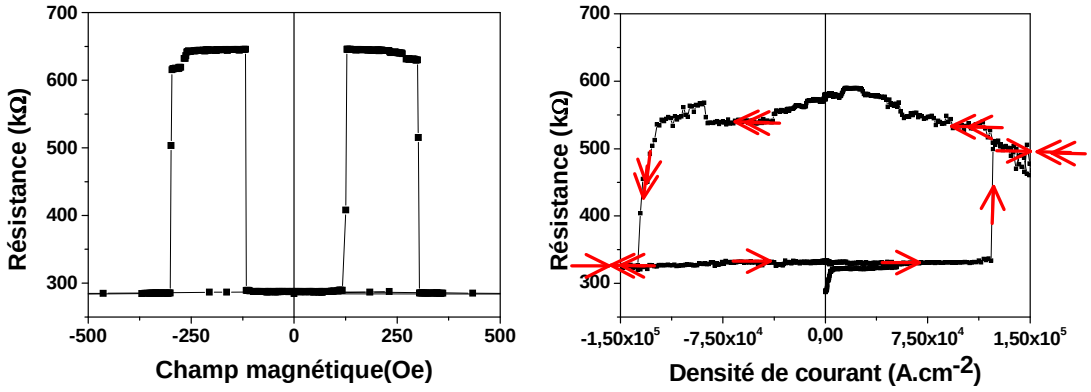


FIG. 5.5 – A gauche : courbe de résistance en fonction du champ appliqué à 3 K et 20 mV. A droite : mesure de la résistance en fonction de la densité de courant dans les mêmes conditions que la figure de gauche, illustrant le renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin sous un champ magnétique de +13 Oe.

les aimantations des deux couches magnétiques étant préalablement saturés dans un champ magnétique positif. Les mesures sont réalisées à 3K. A faible courant positif, i.e. les trous passent de la couche magnétique fixe à la couche magnétique fine, nous observons un saut vers un état intermédiaire proche de la configuration magnétique parallèle. Ensuite, à plus fort courant positif, un deuxième état intermédiaire proche de la configuration magnétique anti-parallèle est atteint. A fort courant négatif nous stabilisons de nouveau le premier état intermédiaire. Nous relions la différence entre les états d'aimantation stabilisés dans les expériences R(H) ou R(I), soit à des états vortex, pouvant se présenter dans des jonctions de l'ordre du μm^2 [83], soit à un retournement partiel de l'aimantation de la couche assez épaisse (15 nm dans le cas présent) par rapport aux couches métalliques (de l'ordre de 2 à 3 nm).

Les densités de courant qui favorisent le passage de l'état P vers AP (courant positif) et de AP vers P (courant négatif) sont pratiquement de même amplitude : j_{C+}=1,25·10^{5}A.cm^{-2} et j_{C-}=-1,37·10^{5}A.cm^{-2}. Ces résultats sont en bon accord avec les valeurs de $j_{C\pm}$=1,2·10^{5}A.cm^{-2} de Chiba et al. [26].

Renversement d'aimantation à 30 K

Sur la figure 5.6 nous représentons les courbes de résistance en fonction du champ magnétique R(H) à 20 mV et de résistance en fonction du courant R(I) à + 13 Oe, les aimantations des deux couches magnétiques étant préalablement saturés dans un champ magnétique positif. Les mesures sont réalisées à 30 K. Les densités de courant mesurées sont de j_{C+}=0,939·10^{5}A.cm^{-2} et j_{C-}=0,986·10^{5}A.cm^{-2} et donc légèrement inférieures aux valeurs mesurées à 3K.

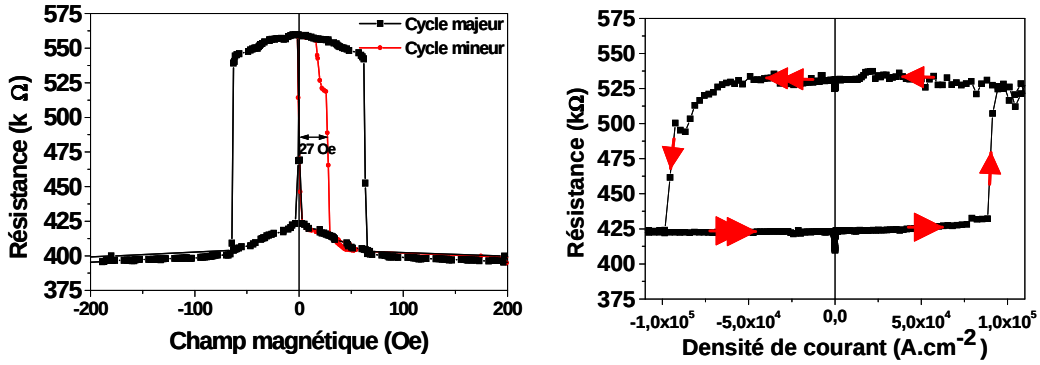


FIG. 5.6 – A gauche : courbe de résistance en fonction du champ appliqué à 30 K et 20 mV. A droite : mesure de la résistance en fonction de la densité de courant dans les mêmes conditions que la figure de gauche, illustrant le renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin sous un champ magnétique de +13 Oe.

Est-ce que les transitions hystérétiques peuvent être attribuées à un autre effet que le renversement par transfert de spin ?

- Etant donné le comportement assymétrique en courant des transitions hystérétiques, le renversement d'aimantation ne peut pas être exclusivement attribué à l'effet Joule (effet pair en courant).

- Nous excluons également le champ d'Oersted comme origine du renversement d'aimantation, le courant entraîne alors l'apparition d'un champ magnétique circulaire. En partant de la même configuration magnétique parallèle, un courant positif et négatif induirait la même configuration magnétique anti-parallèle, ce qui n'est pas le cas ici. Nous soulignons que la saturation des aimantations des deux couches magnétiques dans les deux directions de champ, avant de revenir à faible champ magnétique (de 6000 Oe à 13 Oe ou de - 6000 Oe à -13 Oe), entraîne exactement le même cycle d'hystérésis. Ce dernier est indépendant du sens de courant par lequel le cycle d'hystérésis commence. Nous avons représenté ces mesures pour une température de 30 K [Fig. 5.7].

Nous pouvons également nous assurer que le processus de transfert de spin agit bien sur la couche libre de (Ga,Mn)As. En effet, l'application d'un champ magnétique positif (dans la direction initiale de saturation des aimantations) à 30 K, après stabilisation de l'état AP par le courant polarisé en spin, a pour effet de reconfigurer l'état du sytème en configuration parallèle pour un champ coercitif de 27 Oe [Fig. 5.6]. Cette valeur correspond au champ coercitif de la couche fine à 30 K ajouté du champ dipolaire induite par la couche épaisse de (Ga,Mn)As sur cette dernière. Le conclusion de cette procédure expérimentale est que le transfert de spin s'est opéré sur la couche fine avant l'application du champ magnétique.

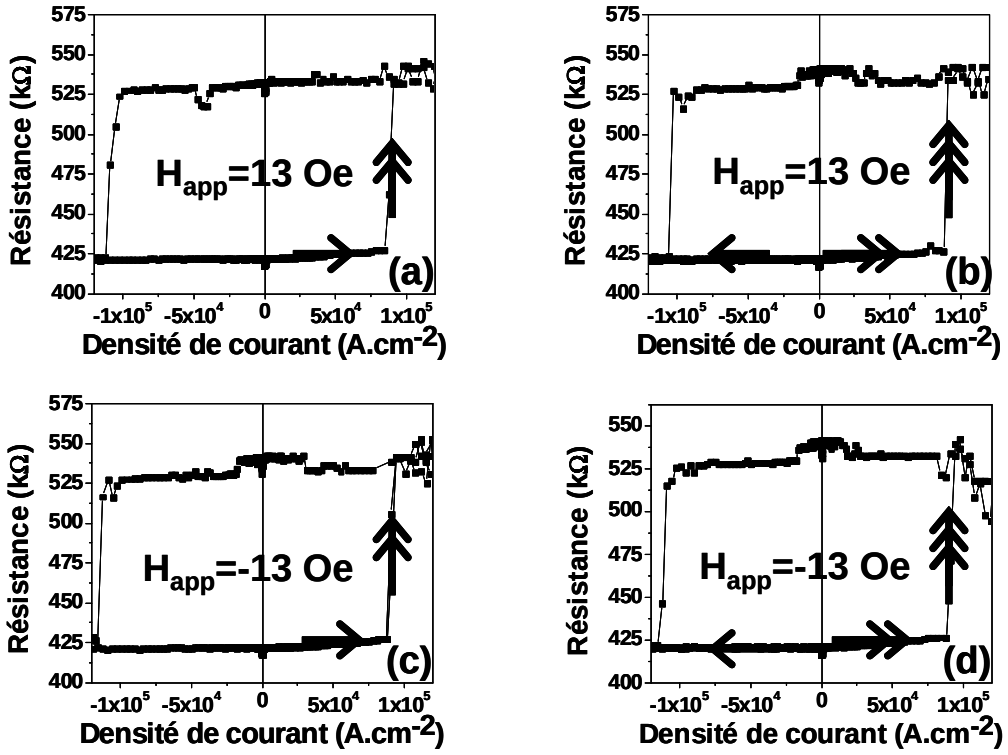


FIG. 5.7 – Cycle d'hsytérésis à 30 K en saturant tout d'abord à 6000 Oe avant de revenir à 13 Oe et en partant avec un courant positif (a) ou un courant négatif (b). Cycle d'hsytérésis à 30 K en saturant à -6000 Oe avant de revenir à -13 Oe et en partant avec un courant positif (c) ou un courant négatif (d).

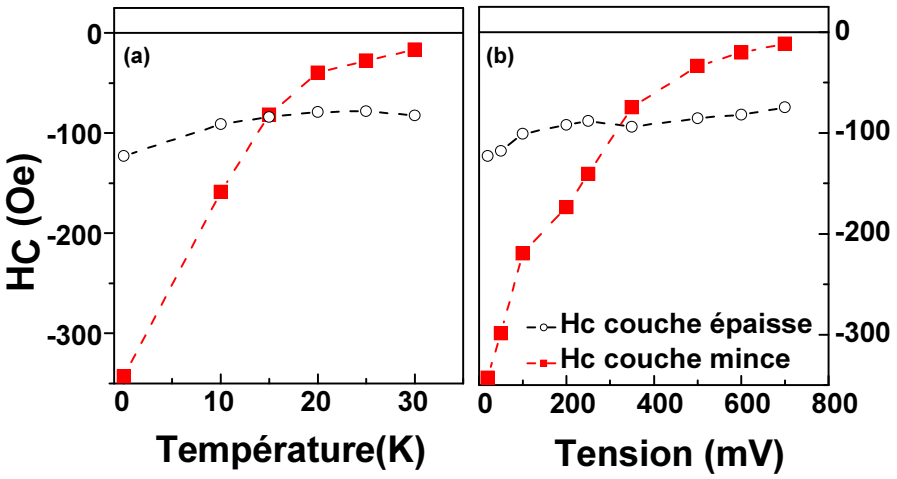


FIG. 5.8 – Champ coercitif des deux couches magnétiques en fonction de la température (a) (à partir des cycles de TMR à 1 mV) et en fonction de la tension (b) (à partir des cycles de TMR à 3 K). Le champ coercitif est corrigé par le champ dipolaire de 13 Oe mesuré à partir du cycle mineur à 30 K.

Quel est l'influence des fortes densités de courant à 3 K et à 30 K ?

Nous pouvons constater sur la figure 5.8 que le champ coercitif (auquel on associe ici le champ d'anisotropie) décroît fortement en tension[Fig. 5.8 (b)]. De la même manière, une augmentation de la température entraîne une diminution du champ coercitif [Fig. 5.8 (a)]. A partir des variations du champ coercitif en fonction de la température et de la tension on peut alors aisément estimer la température effective de la couche fine, de l'ordre de 30 K, au moment du renversement.

En première approximation, on peut considérer qu'un apport de chaleur (par le fort courant) dQ se traduit par une élévation de température dT du système. Les deux variations sont liées à travers le paramètre de capacité calorifique C du système, non constant en fonction de la température. Dans le cas du semiconducteur simple de GaAs, le rapport des chaleurs spécifique c_p (et donc la capacité calorifique par unité de masse) entre 3 et 30 K est de 10^{-5} [12]. L'élévation de la température à 30 K peut alors être complétement négligée par rapport à celle à 3 K.

5.2.2 Signe et ordre de grandeur du courant critique

Le même signe de renversement d'aimantation est observé dans le cas des piliers métalliques Co/Cu/Co et de nos piliers semiconducteurs (Ga,Mn)As/(In,Ga)As/(Ga,Mn)As. L'explication de cette observation réside dans deux changements de signe consécutifs [Fig. 5.9] à savoir :

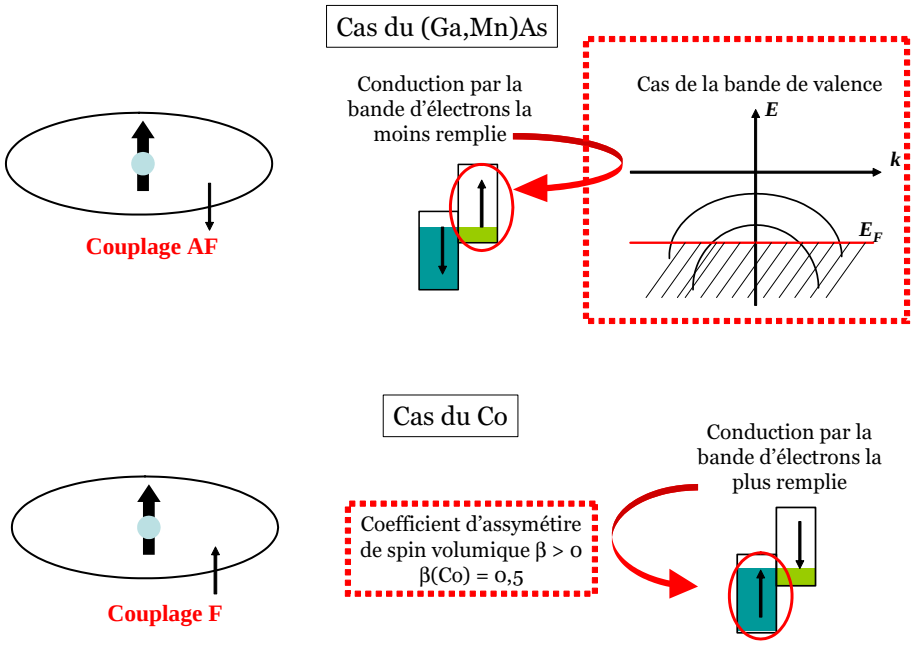


FIG. 5.9 – Le même signe de renversement d'aimantation est observé dans le cas des piliers semiconductrices à base de (Ga,Mn)As que dans le cas des piliers métalliques à base de Co suite à deux changements de signe consécutifs. Le premier provient du couplage entre le porteur et le moment local et le deuxième du type de conduction de bande.

- Le premier est relié à la polarisation négative de la bande de valence du (Ga,Mn)As, opposée à l'aimantation locale des atomes de manganèse, de telle sorte que la sous-bande avec des spins parallèles à l'aimantation des ions de manganèse est moins remplie (contrairement au cobalt).

- Le deuxième changement de signe provient du fait que, dans le cas des trous, la bande la moins remplie en électrons contribue plus à la conduction alors que pour un métal 3d comme le Co, la conduction est assurée par la bande la plus remplie où le coefficient d'assymétrie de spin volumique $\beta(=\frac{\rho_\downarrow-\rho_\uparrow}{\rho_\downarrow+\rho_\uparrow})$ est positif.

En d'autres termes et pour donner peut-être une généralisation un peu plus globale, on stabilise un état P lorsque les porteurs, couplés ferromagnétiquement à l'aimantation locale et à coefficient d'assymétrie de spin volumique β positif (cas du Co/Cu), vont de la couche épaisse vers la couche fine [Fig. 5.10]. Le même état est stabilisé si les porteurs, couplés antiferromagnétiquement (cas du (Ga,Mn)As) ou possédant un β négatif et couplés ferromagnétiquement (cas du Fe/Cr [5,6]), vont de la couche fine vers la couche épaisse [Fig. 5.10]. Le signe du renversement d'aimantation dans le cas présent est alors une preuve indirecte du couplage anti-ferromagnétique entre les porteurs itinérants et les ions de manganèse localisés dans (Ga,Mn)As.

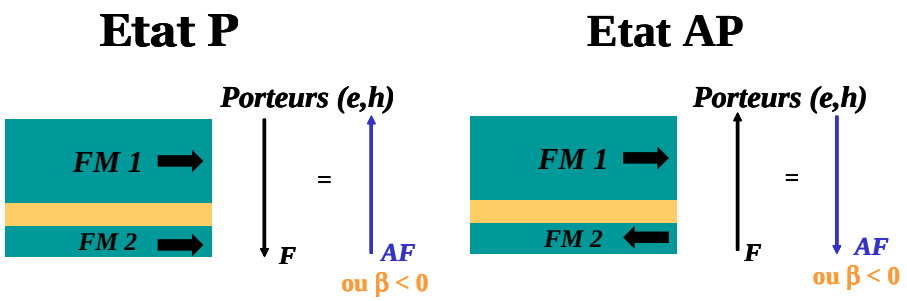


FIG. 5.10 – A gauche : stabilisation de la configuration magnétique parallèle pour les porteurs couplés ferromagnétiquement (et à β>0) qui vont de la couche magnétique épaisse vers la couche magnétique fine. Stabilisation de la même configuration magnétique pour les porteurs couplés antiferromagnétiquement (cas du (Ga,Mn)As) ou couplés ferromagnétiquement et à β<0 qui vont de la couche magnétique fine vers la couche magnétique épaisse. A droite : Stabilisation de l'état AP pour la direction opposée des porteurs.

La densité du courant critique est deux ordres de grandeur inférieure à celle reportée dans les piliers métalliques ($j_C \simeq 10^7$ A.cm^{-2}). L'amplitude du courant critique s'exprime dans les piliers métalliques sous la forme [48, 49] :

$$j_C^{P(AP)} = -(+)\frac{e\alpha t M_S}{hP^{P(AP)}}[2\pi M_S + H_{an}] \tag{5.2}$$

Pour la couche fine de (Ga,Mn)As, les paramètres utilisés dans l'expression ci-dessus sont t égal à 15 nm, une aimantation à saturation M de 0,035T ($\simeq$ 28 emu·cm^{-3})[3] et un champ d'anisotropie négligeable par rapport à M aux densités de courant où les renversements se produisent. Dans le cas de Co/Cu/Co les paramètres utilisés sont de t=2.5 nm, M=1,78 T et H_{an}=0,02T. Le facteur de Gilbert est estimé pratiquement un ordre de grandeur plus grand pour (Ga,Mn)As. D'après Sinova et al. [142], en combinant des mesures de résonance ferromagnétique au coefficient d'amortissement théorique de Gilbert, la valeur de ce dernier est estimé à 0,07 pour des couches non-recuites (à 30 K).

Le rapport de $\alpha t M[2\pi M + H_{an}]$ devient ainsi cinquante fois plus grand dans la structure métallique. Une polarisation plus grande du (Ga,Mn)As (par rapport à 40% du cobalt) et une meilleure efficacité du couple de transfert de spin en présence d'un moment orbital pourrait expliquer le rapport 100 de densité de courant entre la structure métallique et la structure semiconductrice. En effet, la conservation du moment cinétique qui est à la base de l'interprétation du transfert de spin, implique dans le cas du (Ga,Mn)As un transfert du moment cinétique total et donc une efficacité plus grande dans le cas d'un trou lourd J=L+S=$\frac{3}{2}$.

[3] La variation de l'aimantation à saturation entre 4 et 30 K est inférieure à 10 % [Fig. 3.13]. La valeur de M_S de 28 emu·cm^{-3} nous semble tout à fait adaptée pour ce calcul.

5.2.3 Comportement du courant critique en fonction du champ magnétique

A partir d'un cycle mineur réalisé à 30 K [Fig.5.6] et à basse tension (20 mV), nous avons déterminé la présence d'un champ dipolaire de la couche magnétique épaisse agissant sur la couche magnétique libre. La valeur de ce dernier s'élève à 13 Oe de sorte que nous définissons un champ effectif H_{eff}=H_{app}-13 Oe. Vue la discussion précédente, nous estimons que le champ dipolaire lors du renversement d'aimantation est le même pour les températures de 3 et 30 K. Nous décrirons ci-dessous le comportement de la résistance pour différents champs effectifs appliqués.

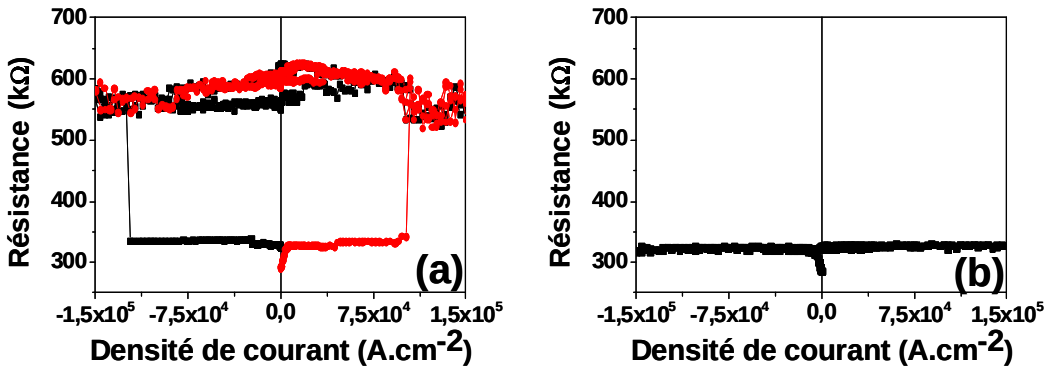


FIG. 5.11 – (a) Pour un champ magnétique effectif de -6 Oe, le passage de l'état P vers l'état AP est observé pour des courants positifs et des courants négatifs. (b) Pour un champ magnétique effectif de 6 Oe, l'état P est stabilisé. Les mesures sont réalisées à 3 K.

Cas $|H_{eff}|>|H_C|$ *et* $H_{eff}<0$*, Stabilisation de l'état AP* : Supposons par exemple que le champ appliqué effectif soit de -4 Oe. Si le courant réduit le champ coercitif à une valeur inférieure à 4 Oe, le courant bascule de l'état d'aimantation P vers l'état d'aimantation AP pour des courants positifs et négatifs [Fig. 5.11 (a)]. L'état AP est stabilisé par activation thermique et est observé plus généralement pour des champs magnétiques appliqués H_{app} inférieures à 13 Oe . Nous rappelons ici que le champ coercitif varie rapidement en fonction de la température [Fig. 5.8].

Cas $|H_C|>|H_{eff}|$*, Comportement hystérétique* : Le renversement d'aimantation décrit dans la partie précédente est observé dans une fenêtre étroite 2 à 3 Oe autour du champ effectif nul.

Cas $|H_{eff}|>|H_C|$ *et* $H_{eff}>0$*, Stabilisation de l'état P* : Supposons par exemple que le champ appliqué effectif soit de 6 Oe. Si le courant réduit le champ coercitif à une valeur inférieure à 6 Oe, l'état d'aimantation reste dans l'état P sans possibilité de transiter vers l'état AP [Fig. 5.11 (b)]. Le fait que le champ appliqué soit supérieur

au champ coercitif et l'absence de magnétorésistance tunnel pourraient indiquer l'existence d'un régime réversible de type précessionnel, bien connu pour les systèmes métalliques.

En conséquence le comportement hystérétique ne peut être observé que dans une fenêtre de champ très étroite. Sur la figure 5.12 un résumé de nos points expérimentaux (à 3 K) a été réalisé en distinguant les zones thermique, irréversible et réversible. Il semble évident que la variation du champ coercitif, observé en général pour des faibles épaisseurs de couches magnétiques de (Ga,Mn)As , pose un problème dans l'observation du renversement magnétique par un courant polarisé en spin dans une plus large gamme de champ magnétique.

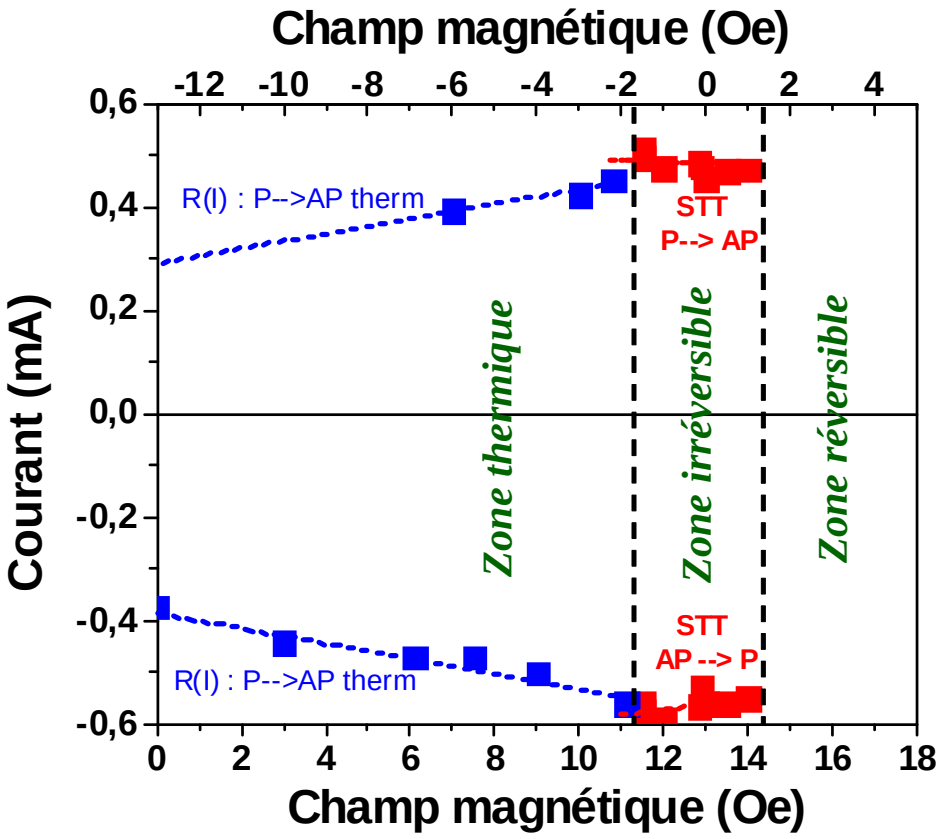


FIG. 5.12 – Courant critique en fonction du champ magnétique appliqué H_{app} et du champ magnétique effectif H_{eff}=H_{app}-13 Oe à une température de 3 K. Nous pouvons distinguer 3 zones sur ce diagramme : zone thermique (état AP est stabilisé), zone hystérétique et zone réversible (suite à l'absence de magnétorésistance, un état P est mesuré).

5.3 Conclusion

La réduction aux tailles submicroniques des jonctions tunnel (avec deux électrodes ferromagnétiques) a permis d'injecter des fortes densités de courant et de limiter en partie les effets Joule. Un retournement d'aimantation par injection d'un courant polarisé en spin pour une densité de courant de 10^5 A.cm^{-2} a pu être mis en évidence en mesurant la TMR à basse tension. La forte réduction du courant critique, comparé au cas des systèmes métalliques, est essentiellement attribuée au faible moment à saturation du (Ga,Mn)As. Suite à la décroissance rapide de la TMR en tension, le régime réversible, étudié dans les systèmes métalliques, n'a malheureusement pas pu être étudié. Un des enjeux du futur sera l'obtention des effets de TMR à plus forte tension et de tester ainsi ce régime-là.

A l'heure actuelle le renversement d'aimantation est très peu étudié dans des matériaux complètement épitaxiés. Ces expériences de renversement d'aimantation par injection d'un courant polarisé en spin dans des jonctions tunnel à base de (Ga,Mn)As (ferromagnétisme induit par les porteurs et conduction par des trous) soulèvent un certain nombre de questions.

A titre d'exemple on peut se demander si le champ d'échange plus faible et la sélectivité en k plus importante en régime tunnel ne vont pas augmenter la longueur d'absorption et comment celle-ci se positionne par rapport au libre parcours moyen ? Des expériences de mesure du courant critique en fonction de l'épaisseur de la couche fine de (Ga,Mn)As devraient permettre d'apporter des éléments de réponse à cette question.

D'autre part quels sont par exemple les mécanismes physiques pouvant expliquer une perte de TMR et le maintien d'un transfert de spin ? Parmi les différents mécanismes de relaxation de spin évoqués dans le chapitre précédent, on peut citer des processus tunnel inélastiques par collisions électrons-magnons bien qu'à forte tension, on s'écarte d'un régime tunnel classique. Les interactions d'échange électrons-magnons, responsables de la chute de TMR, conservent toutefois le spin total du système (composé des porteurs et des moments localisés) ce qui permet de conserver entre autre, la composante transverse du spin et donc l'effet de transfert de spin. Récemment Fuchs et al. [43] ont pu démontrer que, sur des jonctions CoFe/MgO/CoFe, l'amplitude du couple de transfert de spin ne diminuait que de 10% pour une chute de magnétorésistance supérieure à 40%.

Conclusion et perspectives

Au cours de cette thèse nous avons étudié le transport tunnel dans des hétérostructures semiconductrices à base du semiconducteur ferromagnétique de (Ga,Mn)As. Les phénomènes dépendants du spin, magnétorésistance tunnel (TMR) et magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR), ont été mesurés et modélisés en théorie *k.p* dans des jonctions à simple et double barrière.

Dans un premier temps, nous avons étudié le transport tunnel direct avec une simple barrière d'(In,Ga)As, comprise entre deux électrodes de (Ga,Mn)As. A travers des effets de recuit, étudiés dans la littérature essentiellement sur des couches minces de (Ga,Mn)As, une augmentation de température de Curie de la couche magnétique supérieure a pu être mise en évidence. Ces effets de recuits sur les tricouches sont accompagnés d'une augmentation de magnétorésistance tunnel et d'une diminution du produit de résistance surfacique. La confrontation de ces expériences avec la modélisation du transport dépendant du spin en théorie *k.p* à 6 bandes permet de comprendre les mécanismes physiques mis en jeu (augmentation de la concentration de porteurs p et du paramètre de spin splitting B_G). Un bon accord qualitatif a pu être mis en évidence. Pour aller plus loin, la détermination précise de la concentration et de l'homogénéité des porteurs dans des hétérostructures à base de (Ga,Mn)As serait nécessaire.

Le fort couplage spin-orbite dans (Ga,Mn)As implique une dépendance de la conductance en fonction de l'angle entre le courant et l'aimantation, désigné sous le terme de magnétorésistance tunnel anisotrope (TAMR). L'influence des différentes sous-bandes de (Ga,Mn)As sur la TAMR a été abordé et un bon accord entre modélisation et expériences a pu être trouvé. Nous avons démontré ici l'existence de cet effet sur des simples jonctions tunnel, à barrière d'(In,Ga)As et d'AlAs, avec des ordres de grandeur de la dizaine de pour-cents, et donc inférieurs aux effets de TMR. Cet effet possède l'avantage qu'une seule électrode ferromagnétique peut être utilisée de sorte qu'il est possible de tester la polarisation du matériau ferromagnétique en s'affranchissant des problèmes d'élaboration à basse température. Le passage de la simple à la double barrière tunnel a permis d'identifier le phénomène de la résistance différentielle négative. En injectant alors les porteurs à partir de l'électrode ferromagnétique de (Ga,Mn)As avec une large sonde en énergie (concentration de porteurs de l'ordre de $1{\cdot}10^{20}$ cm^{-3}), nous avons observé des variations de conductance et de TAMR avec des maxima sur les niveaux. Ces effets ont pu être modélisés en théorie *k.p* et il nous paraît aujourd'hui tout à fait possible que ces effets peuvent atteindre plusieurs dizaines de pour-cents en évitant la zone de déplétion traditionnelle dans ce type d'hétérostructures.

Nous avons pu mettre à profit notre maîtrise du transport tunnel polarisé en spin dans ces hétérostrucutres pour tester les mécanismes de transfert de spin. Nous avons pu ainsi démontrer la possibilité de manipuler l'aimantation d'une fine couche de (Ga,Mn)As par injection d'un courant polarisé en spin avec un courant critique de

deux ordres de grandeur plus faible (j_C=10^5A.cm^{-2}) que dans le cas des piliers métalliques. Une grande partie de la diminution est attribuée à la faible aimantation du GaMnAs (30 emu·cm^{-3}). Il n'en reste pas moins que ces expériences restent préliminaires et soulèvent un certain nombre de questions intéressantes (longueur d'absorption de la composante transverse, mécanismes de relaxation et variation de la composante longitudinale à forte tension, régime précessionnel....). Des expériences complémentaires devront être menées pour affiner notre compréhension des mécanismes de transfert de spin avec des matériaux semiconducteurs magnétiques dilués de type p. A plus long terme ces matériaux ouvrent aussi la voie à l'étude du renversement d'aimantation par un courant polarisé en spin dans des structures confinées. De récentes expériences semblent en effet indiquer qu'il est possible de réaliser un puits quantique magnétique de (Ga,Mn)As [112].

Finalement, bien que la température de Curie de (Ga,Mn)As (de l'ordre de 170K aujourd'hui [167]) limite sérieusement son potentiel d'application, il reste néanmoins un matériau extraordinaire pour l'étude d'effets dépendant du spin. Le fort couplage spin-orbite et l'échange p-d en font un matériau atypique dans le domaine du magnétisme qui lui confère à la fois sa complexité et sa richesse.

Annexe A

Introduction à la théorie k.p

A.0.1 Absence de couplage spin-orbite

Dans cette première partie, nous exposons brièvement les principes de la méthode *k.p* pour calculer la structure de bande d'un semiconducteur en absence de couplage spin-orbite. L'équation de Schrödinger dans un semiconducteur soumis à un potentiel périodique V(r) s'écrit généralement sous la forme de

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V(r)\right]\Psi(r) = E\Psi(r) \tag{A.1}$$

D'après le théorème de Bloch, les solutions de l'équation de Schrödinger pour un potentiel périodique, connues encore sous le nom de fonctions de Bloch, sont de la forme

$$\Psi_{n,k}(r) = e^{ikr}u_{n,k}(r) \tag{A.2}$$

où n est l'indice de la bande et k le vecteur d'onde appartenant à la première zone de Brillouin. $u_{n,k}$(r) possède la périodicité du réseau cristallin. En appliquant l'hamiltonien de Schrödinger aux fonctions de Bloch, on obtient alors

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + \frac{h}{m}\overrightarrow{k}.\overrightarrow{p} + \frac{\hbar^2k^2}{2m} + V(r)\right]u_{n,k}(r) = E_{n,k}u_{n,k}(r) \tag{A.3}$$

où $\overrightarrow{p}$=-$i\hbar\overrightarrow{\nabla}$ est l'opérateur d'impulsion agissant sur le porteur.

En k=(0,0,0) l'équation se réssout ainsi à

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V(r)\right]u_{n,0}(r) = E_{n,0}u_{n,0}(r) \tag{A.4}$$

où $u_{n,0}$(r) aparaissent comme des fonctions propres de nature atomique.

L'hamiltonien total peut alors se réécrire sous la forme de

$$[H_{k=0} + W(k)]\,u_{n,k}(r) = E_{n,k}u_{n,k}(r) \tag{A.5}$$

L'ensemble des fonctions $u_{n,0}$ forme une base complète. Les deux autres termes en k et k^2 seront traités en théorie de perturbation de sorte que pour un vecteur d'onde k non nul, les fonctions et énergies propres pourront être calculées de façon perturbative.

Dans le cas présent, les fonctions propres $u_{n,0}$ proviennent d'une hybridation sp^3 des différents atomes du semiconducteur. On précise que les orbitales p possède un caractère directionnel : la probabilité de présence de l'électron autour du noyau n'est pas la même selon les trois directions de l'espace. On désignera les fonctions X, Y et Z pour la bande de valence possédant les mêmes propriétés de symétrie que les orbitales p_x,p_y et p_z et la fonction S celles de l'orbitale s. Pour les semiconducteurs à gap direct, la bande de conduction est plutôt du type S et la bande de valence une combinaison linéaire des trois fonctions d'ondes X, Y et Z.

A.0.2 Présence de couplage de spin orbite

Définition des fonctions de base

L'introduction du spin dans le semiconducteur a deux conséquences importantes :

1) l'introduction dans l'hamiltonien total du couplage spin-orbite selon

$$H_{S.O.} = \lambda.L.S$$

où λ représente le couplage spin-orbite et L et S les opérateurs de moments cinétique et orbital.[1]. Pour le composé de GaAs, l'énergie du couplage spin-orbite λ équivaut à 340 meV.

2) Les fonctions propres atomiques, en $\overrightarrow{k}$=0, sont les fonctions propres respectives du moment cinétique total $\overrightarrow{J}=\overrightarrow{L}+\overrightarrow{S}$ de l'hamiltonien total. Elles s'écrivent respectivement :

$$|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(X+iY)\uparrow$$

$$|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\rangle = i\frac{1}{\sqrt{6}}[(X+iY)\downarrow -2Z\uparrow]$$

$$|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{6}}[(X-iY)\uparrow -2Z\downarrow]$$

$$|\frac{3}{2},-\frac{3}{2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(X-iY)\downarrow$$

$$|\frac{1}{2},\frac{1}{2}\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}[(X+iY)\downarrow +Z\uparrow]$$

$$|\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\rangle = i\frac{1}{\sqrt{3}}[-(X-iY)\uparrow +Z\downarrow]$$

Suite à l'interaction spin-orbite, la dégénérescence de ces 6 bandes est partiellement levée au centre de zone $\overrightarrow{k}$=0. Les bandes les plus hautes en énergie au point Γ sont 4 fois dégénérée (J=$\frac{3}{2}$) : 2 bandes dites de trous lourds caractérisées par des masses effectives importantes (en $\overrightarrow{k}\neq 0$) et 2 bandes de trous légers caractérisées par des masses effectives réduites (en $\overrightarrow{k}\neq 0$). Ces 4 bandes sont séparées en énergie, d'une valeur égale au couplage spin-orbite λ(=340 meV dans le cas du GaAs) des 2 bandes de split-off (J=$\frac{1}{2}$).

[1] Il est connu que le l'énergie du couplage spin-orbite Δ varie comme Z^4, Z étant le nombre atomique, de sorte que pour les atomes "lourds", on s'attend à ce que le couplage spin-orbite soit important

Définition de l'hamiltonien *k.p*

Qu'en est-il lorsque le vecteur d'onde des porteurs s'écartent du centre de zone ($\overrightarrow{k} \neq 0$). L'hamiltonien *k.p* couple non seulement les 6 fonctions d'onde de base de la bande de valence mais également les 2 fonctions d'onde de la bande de conduction. Afin d'obtenir une structure de la bande de valence la plus exacte possible, la méthode de rénormalisation de Löwdin est en général utilisée. Cette dernière traite, en effet, de façon exacte le couplage entre les 6 bandes de valence et les bandes de conduction en énergie de façon perturbative :

$$H'_{ij} = H_{ij} + \sum_{k \neq \Gamma_7, \Gamma_8} \frac{H_{ik} H_{kj}}{E_i E_k}$$

où i et j sont deux indices décrivant les 6 bandes de valence (1 à 6) et k un indice décrivant les bandes éloignées en énergie. En projettant alors $H_{k.p}$ sur la base définie ci-dessus, on obtient l'hamiltonien hermitique de Luttinger-Kohn 6 x 6 :

$$H_{k.p} = -\frac{\hbar^2}{2m_0} \begin{bmatrix} P+Q & L & M & 0 & \frac{i}{\sqrt{2}}L & -i\sqrt{2}M \\ L^* & P-Q & 0 & M & -i\sqrt{2}Q & i\sqrt{\frac{3}{2}}L \\ M^* & 0 & P-Q & -L & i\sqrt{\frac{3}{2}}L^* & -i\sqrt{2}Q \\ 0 & M^* & -L^* & P+Q & -i\sqrt{2}M^* & \frac{-i}{\sqrt{2}}L^* \\ \frac{-i}{\sqrt{2}}L^* & i\sqrt{2}Q & i\sqrt{\frac{3}{2}}L & i\sqrt{2}M & P+\Delta & 0 \\ i\sqrt{2}M^* & -i\sqrt{\frac{3}{2}}L^* & i\sqrt{2}Q & \frac{i}{\sqrt{2}}L & 0 & P+\Delta \end{bmatrix} \quad \text{(A.6)}$$

avec les notations

$$P = \gamma_1 k^2 \quad Q = \gamma_2(k_x^2 + k_y^2 - 2k_z^2) \quad L = -i\frac{2}{\sqrt{3}}\gamma_3(k_x - ik_y)k_z$$

$$M = \sqrt{3}[\gamma_2(k_x^2 - k_y^2) - i2\gamma_3 k_x k_y] \quad \Delta = \frac{2m_0\Delta_0}{\hbar^2}$$

Les paramètres γ_1,γ_2 et γ_3 sont souvent désignés comme paramètres de Luttinger. En 1956, ce dernier a introduit une autre écriture de l'hamiltonien *k.p* sur la base restreinte de la bande Γ_8 et donc de dimension 4 x 4 :

$$H_L = \frac{\hbar^2}{2m_0}\left[(\gamma_1 + \frac{5}{2}\gamma_2)k^2 I_4 - 2\gamma_2(\overrightarrow{k} \cdot \overrightarrow{J})^2 + 2(\gamma_3 - \gamma_2)[k_x k_y (J_x J_y + J_y J_x) + p.c]\right]$$

où p.c. représentera les permutations circulaires.

	γ_1	γ_2	γ_3	Δ_o (eV)
GaAs	6,85	2,1	2,9	0,34
AlAs	3,25	0,64	1,21	0,275
InAs	20,4	8,3	9,1	0,38
$In_{0,25}Ga_{0,75}As$	10,24	3,65	4,45	0,35

TAB. A.1 – Résumé des paramètres de Luttinger utilisés dans ce manuscrit. D'après Dietl et al. [32].

A.0.3 Couche simple de (Ga,Mn)As

Les impuretés magnétiques de manganèse modifient la structure de bande du semiconducteur de GaAs. En tenant compte de l'énergie d'échange et des effets de contraintes, la structure de bandes de (Ga,Mn)As a été modélisée par Dietl et al. [32] à l'aide de la théorie *k.p*.

Hamiltonien d'échange H_{p-d} :

Ce terme décrit l'interaction d'échange anti-ferromagnétique *p-d* entre les trous itinérants et les ions de manganèse localisés dans l'approximation du champ moléculaire (et du cristal virtuel). L'hamiltonien d'échange s'écrit sous la forme

$$H_{ech} = -xN_0\beta\overrightarrow{s}.\overrightarrow{S} = 6B_G\overrightarrow{s}\overrightarrow{m}$$

où 6 B_G représente l'énergie d'échange moyenne entre les trous lourds (au point Γ) alignés antiparallèlement et parallèlement à l'aimantation locale, $\overrightarrow{s}$ le spin des trous et $\overrightarrow{m}$ la direction unitaire de l'aimantation locale. Cet hamiltonien s'écrit pour les matériaux cubiques sous la forme :

$$H_{p-d} = B_G \begin{bmatrix} 3w_z & i\sqrt{3}w_- & 0 & 0 & \sqrt{6}w_- & 0 \\ -i\sqrt{3}w_+ & w_z & 2iw_- & 0 & 2i\sqrt{2}w_z & -\sqrt{2}w_- \\ 0 & -2iw_+ & -w_z & i\sqrt{3}w_- & \sqrt{2}w_+ & -2i\sqrt{2}w_z \\ 0 & 0 & -i\sqrt{3}w_+ & -3w_z & 0 & -\sqrt{6}w_+ \\ \sqrt{6}w_+ & -2i\sqrt{2}w_z & \sqrt{2}w_- & 0 & -w_z & iw_- \\ 0 & -\sqrt{2}w_+ & 2i\sqrt{2}w_z & -\sqrt{6}w_- & -iw_+ & w_z \end{bmatrix}$$

Avec

$$B_G = \frac{\beta M}{6g\mu_B} \quad w_z = \frac{M_z}{M} \quad w_\pm = \frac{M_x \pm iM_y}{M}$$

En absence de contraintes, le paramètre de spin splitting lève la dégénérescence de la bande Γ_8 en k=(0,0,0) pour former 4 bandes d'énergie différentes $\pm B_G$,$\pm 3B_G$.

Hamiltonien de contraintes H_{BS} :

En général, lorsqu'un cristal est soumis à une contrainte de faible amplitude, la déformation peut être considérée de type élastique et peut être décrite selon la loi de Hooke. Dans le cas d'une contrainte biaxiale, l'hamiltonien de contraintes (de Bir-Pikus) s'écrit dans la base des fonctions d'onde définies préalablement selon

$$H_{BS} = b \begin{bmatrix} -Q_\varepsilon & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & Q_\varepsilon & 0 & 0 & i\sqrt{2}Q_\varepsilon & 0 \\ 0 & 0 & Q_\varepsilon & 0 & 0 & i\sqrt{2}Q_\varepsilon \\ 0 & 0 & 0 & -Q_\varepsilon & 0 & 0 \\ 0 & -i\sqrt{2}Q_\varepsilon & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & i\sqrt{2}Q_\varepsilon & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{A.7}$$

où b est le potentiel de déformation de cisaillement tétragonale. Dans le cas du GaAs, b est égal à 1,7.

$$Q_\varepsilon = \varepsilon_{zz} - (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy})/2$$

En se référant à Mattana et al. [95], on peut calculer facilement que, pour une couche de (Ga,Mn)As épitaxiée sur un substrat de GaAs, Q_ε est égal à 0,006. On précisera ici que le potentiel de déformation hydrostatique de la bande de valence (termes diagonaux identiques) n'a pas été pris en compte.

Finalement l'hamiltonien total de la couche est donné par

$$H_{tot} = H_{k.p} + H_{p-d} + H_{BS}$$

Annexe B

La lithographie optique

Les jonctions étudiées au cours de cette thèse ont été réalisées par lithographie optique. Nous exposons ici brièvement les différentes étapes de la procédure de lithographie-gravure ayant permis d'obtenir des tailles de jonctions entre 6 et 128 μm^2.

Etape 1 : Définition des piliers

Dans l'objectif de définir les jonctions, la surface de l'échantillon est enduite d'une photorésine positive (SPR 700). Afin d'assurer une épaisseur homogène de la résine, on active une tournette pendant 30 secondes à une vitesse de rotation de 5000 tours par minute. Un recuit de l'échantillon pendant 30 minutes dans une étuve à 110°C sert à durcir la résine et à évaporer les éventuels solvants sur la surface. L'échantillon est ensuite placé sous un masque optique en quartz sur lequel figure des motifs en chrome qui permettent de définir les emplacements des futures jonctions. L'échantillon est alors insolé à l'aide d'un masqueur dont la lampe émet un rayonnement dans l'UV (λ=365 nm) [Fig. B.1 (a)]. Après un nouveau recuit de 4 min sur plaque chauffante à 90°C, l'échantillon est trempé pendant 80 secondes dans un bain de développeur MF319 pour dissoudre la résine dans les zones insolées [Fig. B.1 (b)].

L'étape suivante concerne la gravure sèche des piliers par plasma RF d'argon : elle permet de graver la partie non protégée par la résine sur une profondeur d'environ 150 nm [Fig. B.1 (c)]. Enfin, afin d'enlever toute trace de résine, l'échantillon est trempé pendant plusieurs heures dans un bain d'acétone [Fig. B.1 (d)].

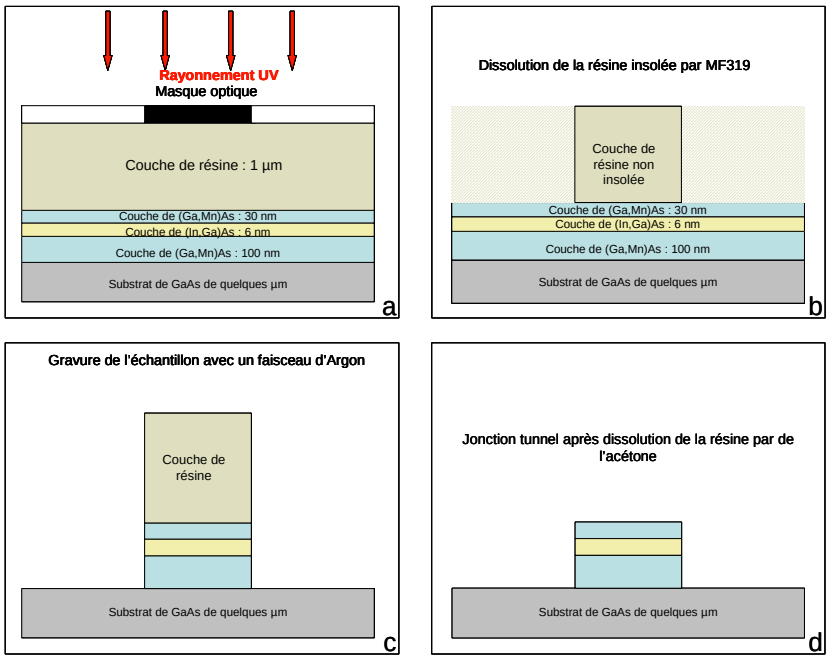


FIG. B.1 – Etape 1 du processus de lithographie optique

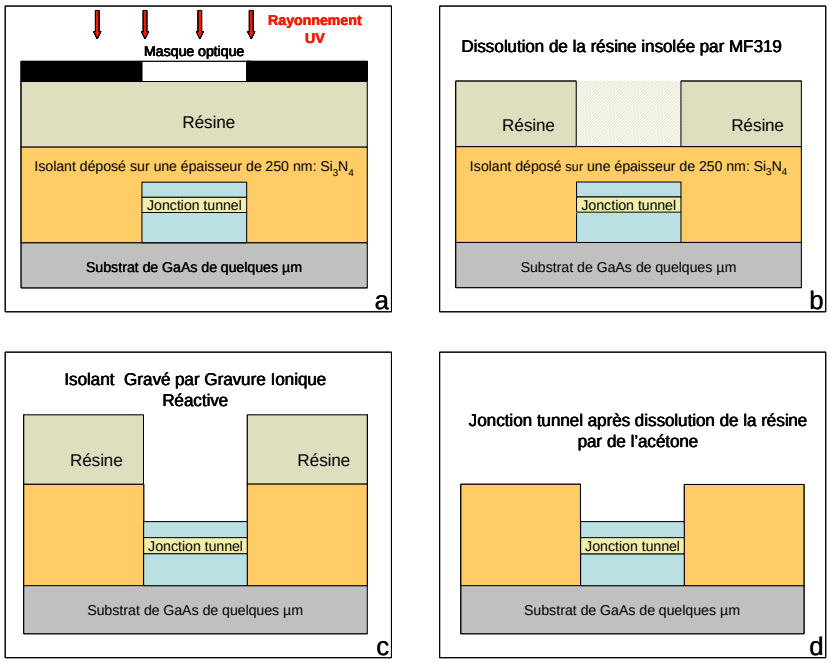


FIG. B.2 – Etape 3 du processus de lithographie optique

Etape 2 : Isolation des piliers

Pour assurer une bonne isolation des jonctions et des électrodes séparées les unes des autres d'environ 20 μm, on dépose par pulvérisation cathodique une couche de nitrure de silicium Si_3N_4 de l'ordre de 250 nm sur l'ensemble de l'échantillon.

Etape 3 : Ouverture de l'isolant sur les piliers

Il s'agit dans la prochaine étape d'enlever l'isolant recouvrant les jonctions. Comme dans la première étape, tout l'échantillon est enduit avec de la résine SPR700. Pour éviter les court-circuits, il s'agit lors de cette étape de veiller à aligner les motifs de manière très précise [Fig. B.2 (a)]. L'échantillon est alors insolé sous lumière UV puis révélé avec du développeur MF319 : la résine est alors dissoute au niveau des jonctions [Fig. B.2 (b)]. Pour enlever la couche de Si_3N_4 sur la jonction on utilise une gravure ionique réactive (R.I.E.= Reactive Ion Etching). L'échantillon est alors soumis à un plasma de SF6 attaquant progressivement le Si_3N_4 dans les zones non protégées. Cette étape s'opère par suivi laser afin de s'assurer que tout l'isolant a été enlevé [Fig. B.2 (c)]. Toute la résine est ensuite retirée par l'acétone [Fig. B.2 (d)].

Etape 4 : Pistes de contact

La dernière étape consiste à prendre des contacts ohmiques sur les piliers en utilisant la technique de lift-off. Après avoir déposé une couche de résine S1813 sur l'échantillon, la surface est endurcie dans un bain de chlorobenzène pendant 10 minutes. Il nous est ainsi possible de réaliser une forme de casquette autour des piliers

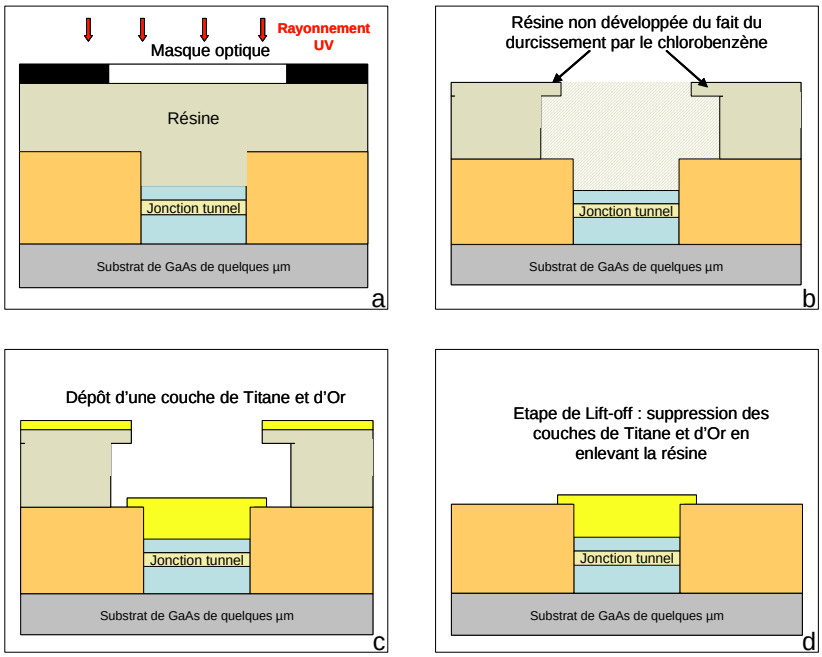


FIG. B.3 – Etape 4 du processus de lithographie optique

[Fig. B.3 (b)]. Après insolation [Fig. B.3 (a)], la résine est attaquée plus fortement en profondeur qu'en surface après l'effet de durcissement. Une bicouche de Ti de 50 nm et d'Au de 200 nm est ensuite déposée sur l'échantillon ; la fine couche de titane sert à assurer une bonne adhésion de l'or sur la couche [Fig. B.3 (c)]. L'échantillon est trempé finalement dans l'acétone sous ultrasons pour retirer toute la résine et ne laisser ainsi que les couches métalliques visibles au dessus des piliers [Fig. B.3 (d)].

Bibliographie

[1] **http ://www.freescale.com/files/microcontrollers/doc/data_sheet/MR2A16A.pdf**.

[2] 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"**.

[3] M. ADELL, J. ADELL, L. ILVER, J. KANSKI, AND J. SADOWSKI, Appl. Phys. Lett., **89**, p. 172509, (2006). **"Photoemission study of the valence band offset between low temperature GaAs and (GaMn)As"**.

[4] M. ADELL, L. ILVER, J. KANSKI, V. STANCIU, P. SVEDLINH, J. SADOWSKI, J. Z. DOMAGALA, F. TERKI, C. HERNANDEZ, AND S. CHARAR, Appl. Phys. Lett., **86**, p. 112501, (2005). **"Postgrowth annealing of (Ga,Mn)As under As capping : An alternative way to increase T_C"**.

[5] M. ALHAJDARWISH, A. FERT, J. W. P. PRATT, AND J. BASS, J. Appl. Phys., **95**, p. 6771, (2004). **"Inverted current-driven switching in Fe(Cr)/Cr/Fe(Cr) nanopillars"**.

[6] M. ALHAJDARWISH, H. KURT, S. URAZDHIN, A. FERT, R. LOLOEE, J. W. P. PRATT, AND J. BASS, Phys. Rev. Lett., **93**, p. 157203, (2004). **"Controlled Normal and Inverse Current-Induced Magnetization Switching and Magnetoresistance in Magnetic Nanopillars"**.

[7] K. ANDO, T. HAYASHI, M. TANAKA, AND A. TWARDOWSKI, J. Appl. Phys., **83**, p. 6548, (1998). **"Magneto-optic effect of the ferromagnetic diluted magnetic semiconductor $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[8] A. BALDERESCHI AND N. O. LIPARI, Phys. Rev. B, **8**, p. 2697, (1973). **"Spherical Model of Shallow Acceptor States in Semiconductors"**.

[9] ——, Phys. Rev. B, **9**, p. 1525, (1974). **"Cubic contributions to the spherical model of shallow acceptor states"**.

[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 $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[11] L. BERGER, J. Appl. Phys., **49**, p. 2156, (1978). **"Low-field magnetoresistance and domain drag in ferromagnets"**.

[12] J. S. BLAKEMORE, J. Appl. Phys., **53**, p. R123, (1982). **"Semiconducting and other major properties of gallium arsenide"**.

[13] J. BLINOWSKI AND P. KACMAN, Phys. Rev. B, **67**, p. 121204, (2003). **"Spin interactions of interstitial Mn ions in ferromagnetic GaMnAs"**.

[14] D. BLISS, W. WALUKIEWICZ, J. AGER, E. HALLER, K. T. CHAN, AND S. TANIGAWA, J. Appl. Phys., **71**, p. 1699, (1992). **"Annealing studies of low-temperature-grown GaAs :Be"**.

[15] M. BOWEN, M. BIBES, A. BARTHÉLÉMY, J.-P. CONTOUR, A. ANANE, Y. LEMAÎTRE, AND A. FERT, Appl. Phys. Lett., **82**, p. 233, (2003). **"Nearly total spin polarization in $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$ from tunneling experiments"**.

[16] 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. GüELL, 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)"**.

[17] A. M. BRATKOVSKY, Phys. Rev. B, **56**, p. 2344, (1997). **"Tunneling of electrons in conventional and half-metallic systems : Towards very large magnetoresistance"**.

[18] ——, Appl. Phys. Lett., **72**, p. 2334, (1998). **"Assisted tunneling in ferromagnetic junctions and half-metallic oxides"**.

[19] L. BREY, J. FERNáNDEZ-ROSSIER, AND C. TEJEDOR, Appl. Phys. Lett., **85**, p. 1996, (2004). **"Tunnel magnetoresistance in GaMnAs : Going beyond Jullière formula"**.

[20] W. F. BRINKMAN, R. C. DYNES, AND J. M. ROWELL, J. Appl. Phys., **41**, p. 1915, (1970). **"Tunneling Conductance of Asymmetrical Barriers"**.

[21] L. CHANG, E. MENDEZ, AND C. TEJEDOR, eds., **"Resonant Tunneling in Semiconductors : Physics and Applications"**, NATO ASI series. Series B, Physics, ——, eds., **Vol. 277**, Plenum Press, New York, 1991.

[22] L. L. CHANG, L. ESAKI, AND R. TSU, Appl. Phys. Lett., **24**, p. 593, (1974). **"Resonant tunneling of holes in AlAs-GaAs-AlAs heterostructures"**.

[23] C. Y.-P. CHAO AND S. L. CHUANG, Phys. Rev. B, **43**, p. 7027, (1991). **"Resonant tunneling of holes in the multiband effective-mass approximation"**.

[24] D. CHIBA, T. KITA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, J. Apppl. Phys., **99**, p. 08G514, (2006). **"Pulse-width and magnetic-field dependences of current-induced magnetization switching in a (Ga,Mn)As magnetic tunnel junction"**.

[25] D. CHIBA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, Physica E, **21**, p. 966, (2004). **"Tunneling magnetoresistance in (Ga,Mn)As-based heterostructures with a GaAs barrier"**.

[26] D. CHIBA, Y. SATO, T. KITA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, Phys. Rev. Lett., **93**, p. 216602, (2004). **"Current-Driven Magnetization Reversal in a Ferromagnetic Semiconductor (Ga,Mn)As/GaAs/(Ga,Mn)As Tunnel Junction"**.

[27] 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"**.

[28] S. A. CROOKER, M. FURIS, X. LOU, C. ADELMANN, D. L. SMITH, J. C. PALMSTROM, AND P. A. CROWELL, Science, **309**, p. 2191, (2005). **"Imaging Spin Transport in Lateral Ferromagnet/Semiconductor Structures"**.

[29] V. CROS, O. BOULLE, J. GROLLIER, A. HAMZIC, M. MUNOZ, L. G. PEREIRA, AND F. PETROFF, C. R. Physique, **6**, p. 956, (2005). **"Spin Transfer Torque : a new method to excite or reverse a magnetization"**.

[30] S. DATTA AND B. DAS, Appl. Phys. Lett., **56**, p. 665, (1990). **"Electronic analog of the electro-optic modulator"**.

[31] T. DIETL, Journ. Phys. : Cond. Matt., **16**, p. S5471, (2004). **"Magnetic anisotropy and domain structure in carrier-controlled ferromagnetic semiconductors"**.

[32] T. DIETL, H. OHNO, AND F. MATSUKURA, Phys. Rev. B, **63**, p. 195205, (2001). **"Hole-mediated ferromagnetism in tetrahedrally coordinated semiconductors"**.

[33] 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"**.

[34] D. D. DJAYAPRAWIRA, K. TSUNEKAWA, M. NAGAI, H. MAEHARA, S. YAMAGATA, AND N. WATANBE, Appl. Phys. Lett., **86**, p. 092502, (2005). **"230 % room-temperature magnetoresistance in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions"**.

[35] K. W. EDMONDS, P. BOGUSLAWSKI, 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"**.

[36] K. W. EDMONDS, R. P. CAMPION, K. Y. WANG, A. C. NEUMANN, B. L. GALLAGHER, C. T. FOXON, AND P. C. MAIN, J. Appl. Phys., **93**, p. 6787, (2003). **"Magnetoresistance and Hall effect in the ferromagnetic semiconductor $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[37] K. W. EDMONDS, N. S. FARLEY, R. P. CAMPION, C. T. FOXON, B. L. GALLAGHER, T. K. JOHAL, G. VAN DER LAAN, M. MACKENZIE, J. N. CHAPMAN, AND E. ARENHOLZ, Appl. Phys. Lett., **84**, p. 4065, (2004). **"Surface effects in Mn $L_{3,2}$ x-ray absorption spectra from (Ga,Mn)As"**.

[38] K. W. EDMONDS, K. Y. WANG, R. P. CAMPION, A. NEUMANN, N. R. S. FARLEY, B. L. GALLAGHER, AND C. T. FOXON, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 4991, (2002). **"High-Curie-temperature $Ga_{1-x}Mn_xAs$ obtained by resistance-monitored annealing"**.

[39] K. W. EDMONDS, K. Y. WANG, R. P. CAMPION, A. NEUMANN, C. T. FOXON, B. L. GALLAGHER, AND P. C. MAIN, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 3010, (2002). **"Hall effect and hole densities in $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[40] M. ELSEN, O. BOULLE, J.-M. GEORGE, H. JAFFRÈS, R. MATTANA, V. CROS, A. FERT, A. LEMAITRE, R. GIRAUD, AND G. FAINI, Phys. Rev. Lett., **73**, p. 035303, (2006). **"Spin transfer experiments on (Ga,Mn)As/(In,Ga)As/(Ga,Mn)As tunnel junctions"**.

[41] A. V. ESCH, L. V. BOCKSTAL, J. D. BOECK, 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 semiconductor $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[42] G. D. FUCHS, N. C. EMLEY, I. N. KRIVOROTOV, P. M. BRAGANCA, E. M. RYAN, S. I. KISELEV, J. C. SANKEY, D. C. RALPH, R. A. BUHRMAN, AND J. A. KATINE, Appl. Phys. Lett., **85**, p. 1205, (2004). **"Spin-transfer effets in nanoscale magnetic tunnel junctions"**.

[43] G. D. FUCHS, J. A. KATINE, S. I. KISELEV, D. MAURI, K. S. WOOLEY, D. C. RALPH, AND R. A. BUHRMAN, Phys. Rev. Lett., **96**, p. 186603, (2006). **"Spin Torque, Tunnel-Current Spin Polarization, and Magnetoresistance in MgO Magnetic Tunnel Junctions"**.

[44] A. GIDDINGS, M. KHALID, T. JUNGWIRTH, J. WUNDERLICH, S. YASIN, R. CAMPION, K. EDMONDS, J. SINOVA, K. ITO, K.-Y. WANG, D. WILLIAMS, B. GALLAGHER, AND C. FOXON, Phys. Rev. Lett., **94**, p. 127202, (2005). **"Large Tunneling Anisotropic Magnetoresistance in (Ga,Mn)As Nanoconstrictions"**.

[45] R. GIRAUD, M. GRYGLAS, L. THEVENARD, A. LEMAITRE, AND G. FAINI, Appl. Phys. Lett., **87**, p. 242505, (2005). **"Voltage-controlled tunneling anisotropic magnetoresistance of a ferromagnetic p^{++}-(Ga,Mn)As/n^{+}-GaAs Zener-Esaki diode"**.

[46] C. GOULD, C. RUSTER, T. JUNGWIRTH, E. GIRGIS, G. M. SCHOTT, R. GIRAUD, K. BRUNNER, G. SCHMIDT, AND L. W. MOHLENKAMP, Phys. Rev. Lett., **93**, p. 117203, (2004). **"Tunnel Anisotropic Magnetoresistance : A Spin-Valve-Like Tunnel Magnetoresistance Using a Single Magnetic Layer"**.

[47] B. GRANDIDIER, H. CHEN, R. M. FEENSTRAA, D. T. MCINTURFF, P. W. JUODAWLKIS, AND S. E. RALPH, Appl. Phys. Lett., **74**, p. 1439, (1999).

"Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of arsenic antisites in low temperature grown InGaAs".

[48] J. GROLLIER, V. CROS, A. HAMZIC, J.-M. GEORGE, H. JAFFRÈS, 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"**.

[49] J. GROLLIER, V. CROS, H. JAFFRÈS, A. HAMZIC, J.-M. GEORGE, G. FAINI, J. B. YOUSSEF, H. L. GALL, AND A. FERT, Phys. Rev. B, **67**, p. 174402, (2003). **"Field dependence of magnetization reversal by spin transfer"**.

[50] K. HAMAYA, Y. KITAMOTO, Y. YAMAZAKI, T. TANIYAMA, R. MORIYA, AND H. MUNEKATA, J. Appl. Phys., **97**, p. 10D301, (2005). **"Correlation between ferromagnetism and hole localization in very thin (Ga,Mn)As epilayers"**.

[51] A. HANBICKI, B. JONKER, G. ITSKOS, G. KIOSEOGLOU, AND A. PETROU.

[52] J. HAYAKAWA, S. IKEDA, Y. M. LEE, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, arXiv :cond-mat/0610526, (2006). **"Effect of high annealing temperature on giant tunnel magnetoresistance ratio of CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions"**.

[53] J. HAYAKAWA, S. IKEDA, Y. M. LEE, R. SASAKI, T. MEGURO, F. MATSUKURA, H. TAKAHASHI, AND H. OHNO, Jap. J. Appl. Phys., **44**, p. L1267, (2005). **"Current-Driven Magnetization Switching in CoFeB/MgO/CoFeB Magnetic Tunnel Junctions"**.

[54] T. HAYASHI, Y. HASHIMOTO, 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"**.

[55] R. K. HAYDEN, L. EAVES, M. HENINI, D. K. MAUDE, J. C. PORTAL, AND H. HILL, Appl. Phys. Lett., **60**, p. 1474, (1992). **"Hole space-charge buildup and evidence for sequential tunneling in p-type double-barrier resonant tunneling devices"**.

[56] 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 Magnetotunneling Spectroscopy"**.

[57] H. T. HE, C. L. YANG, W. K. GE, AND J. N. WANG, Appl. Phys. Lett., **87**, p. 162506, (2005). **"Resistivity minima and Kondo effect in ferromagnetic GaMnAs films"**.

[58] Y. HUAI, F. ALBERT, P. NGUYEN, M. PAKALA, AND T. VALET, Appl. Phys. Lett., **84**, p. 3118, (2004). **"Observation of spin-transfer switching in deep submicron-sized and low-resistance magnetic tunnel junctions"**.

[59] H. JAFFRÈS, D. LACOUR, F. N. V. 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"**.

[60] X. JIANG, R. WANG, R. SHELBY, R. MACFARLANE, S. BANK, J. HARRIS, AND S. PARKIN, Phys. Rev. Lett., **94**, p. 056601, (2005). **"Highly Spin-Polarized Room-Temperature Tunnel Injector for Semiconductor Spintronics using MgO(100)"**.

[61] M. JULLIÈRE, Phys. Rev., **54A**, p. 225, (1975). **"Tunneling between ferromagnetic films"**.

[62] T. JUNGWIRTH, M. ABOLFATH, J. SINOVA, J. KUCERA, AND A. H. MACDONALD, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 4029, (2002). **"Boltzmann theory of engineered anisotropic magnetoresistance in (Ga,Mn)As"**.

[63] T. JUNGWIRTH, J. MAEK, K. Y. WANG, K. W. EDMONDS, M. SAWICKI, M. POLINI, J. SINOVA, A. H. MACDONALD, R. P. CAMPION, L. X. ZHAO, N. R. S. FARLEY, T. K. JOHAL, G. VAN DER LAAN, C. T. FOXON, AND B. L. GALLAGHER, Phys. Rev. B, **73**, p. 165205, (2006). **"Low-temperature magnetization of (Ga,Mn)As semiconductors"**.

[64] T. JUNGWIRTH, J. SINOVA, K. Y. WANG, K. W. EDMONDS, R. P. CAMPION, B. L. GALLAGHER, C. T. FOXON, Q. NIU, AND A. H. MACDONALD, Appl. Phys. Lett., **83**, p. 320, (2003). **"Dc-transport properties of ferromagnetic (Ga,Mn)As semiconductors"**.

[65] T. JUNGWIRTH, K. Y. WANG, J. MASEK, K. W. EDMONDS, J. KÖNIG, J. SINOVA, M. POLINI, N. GONCHARUK, A. H. MACDONALD, M. SAWICKI, A. RUSHFORTH, R. P. CAMPION, L. X. ZHAO, C. T. FOXON, AND B. L. GALLAGHER, Phys. Rev. B, **72**, p. 165204, (2005). **"Prospects for high temperature ferromagnetism in (Ga,Mn)As semiconductors"**.

[66] A. KAMINSKI AND S. D. SARMA, Phys. Rev. Lett., **88**, p. 247202, (2002). **"Polaron Percolation in Diluted Magnetic Semiconductors"**.

[67] 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"**.

[68] B. J. KIRBY, J. A. BORCHERS, J. J. RHYNE, K. V. O'DONOVAN, T. WOJTOWICZ, X. LIU, Z. GE, S. SHEN, AND J. K. FURDYNA, Appl. Phys. Lett., **86**, p. 072506, (2005). **"Effects of capping on the $Ga_{1-x}Mn_xAs$ magnetic depth profile"**.

[69] B. J. KIRBY, J. A. BORCHERS, J. J. RHYNE, S. G. E. TE VELTHUIS, A. HOFFMANN, K. V. O'DONOVAN, T. WOJTOWICZ, X. LIU, W. L. LIM, AND J. K. FURDYNA, Phys. Rev. B, **69**, p. 081307(R), (2004). **"Annealing-dependent magnetic depth profile in $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[70] S. I. KISELEV, J. C. SANKEY, I. N. KRIVOROTOV, N. C. EMLEY, R. J. SCHOELKOPF, R. A. BUHRMAN, AND D. C. RALPH, Nature, **425**, p. 380, (2003). **"Microwave oscillations of a nanomagnet driven by a spin-polarized current"**.

[71] C. KITTEL, ed., **"Physique de l'état solide"**, ——, ed., Dunod, 7ème édition, 1998.

[72] A. KOEDER, S. FRANK, W. SCHOCH, V. AVURTIN, W. LIMMER, K. THONKE, R. SAUER, M. KRIEGER, K. ZUERN, P. ZIEMANN, S. BROTZMANN, AND H. BRACHT, Appl. Phys. Lett., **82**, p. 3278, (2003). **"Curie temperature and carrier concentration gradients in epitaxy-grown** $Ga_{1-x}Mn_xAs$**"**.

[73] M. KOHDA, T. KITA, Y. OHNO, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, Appl. Phys. Lett., **89**, p. 012103, (2006). **"Bias voltage dependence of the electron spin injection studied in a three-terminal device based on a (Ga,Mn)As/n$^+$-GaAs Esaki diode"**.

[74] I. N. KRIVOROTOV, N. C. EMLEY, J. C. SANKEY, S. I. KISELEV, D. C. RALPH, AND R. A. BUHRMAN, Science, **307**, p. 228, (2005). **"Time-Domain Measurements of Nanomagnet Bynamics Driven by Spin-Transfer Torques"**.

[75] P. KRSTAJIC AND F. M. PEETERS, Phys. Rev. B, **72**, p. 125350, (2005). **"Spin-dependent tunneling in diluted magnetic semiconductor trilayer structures"**.

[76] K. C. KU, S. J. POTASHNIK, R. F. WANG, S. H. CHUN, P. SCHIFFER, N. SAMARTH, M. J. SEONG, A. MASCARENHAS, E. JOHNSTON-HALPERIN, R. C. MYERS, A. C. GOSSARD, AND D. D. AWSCHALOM, Appl. Phys. Lett., **82**, p. 2302, (2003). **"Highly enhanced Curie temperature in low-temperature annealed [Ga,Mn]As epilayers"**.

[77] I. KURYLISZYN, T. WOJTOWICZ, X. LIU, J. K. FURDYNA, W. DOBROWOLSKI, J.-M. BROTO, O. PORTUGALL, H. RAKOTO, AND B. RAQUET, J. Supercond., **16**, p. 63, (2003). **"Low Temperature Annealing Studies of Ga$_{1-x}$Mn$_x$As"**.

[78] S. LEE, S. J. CHUNG, I. S. CHOI, S. U. YULDESHEV, H. IM, T. W. KANG, W. L. LIM, Y. SASAKI, X. LIU, T. WOJTOWICZ, AND J. K. FURDYNA, J. Appl. Phys., **93**, p. 8307, (2003). **"Effect of Be doping on the properties of GaMnAs ferromagnetic semiconductors"**.

[79] W. LIMMER, A. KOEDER, S. FRANK, V. AVRUTIN, W. SCHOCH, R. SAUER, K. ZUERN, J. EISENMENGER, P. ZIEMANN, E. PEINER, AND A. WAAG, Phys. Rev. B, **71**, p. 205213, (2005). **"Effect of annealing on the depth profile of hole concentration in (Ga,Mn)As"**.

[80] M. LINNARSON, E. JANZEN, B. MONEMAR, M. KLEVERMAN, AND A. THILDERKVIST, Phys. Rev. B, **55**, p. 6938, (1997). **"Electronic structure of the GaAs :Mn$_{Ga}$ center"**.

[81] N. O. LIPARI AND A. BALDERESCHI, Phys. Rev. Lett., **25**, p. 1660, (1970). **"Angular Momentum Theory and Localized States in Solids. Investigation of Shallow Acceptor States in Semiconductors"**.

[82] X. LIU, Y. SASAKI, AND J. K. FURDYNA, Phys. Rev. B, **67**, p. 205204, (2003). **"Ferromagnetic resonance in $Ga_{1-x}Mn_xAs$: Effects of magnetic anisotropy"**.

[83] Y. LIU, Z. ZHANG, J. WANG, P. P. FRAITAS, AND J. L. MARTINS, J. Appl. Phys., **93**, p. 8385, (2003). **"Current-induced switching in low resistance magnetic tunnel junctions"**.

[84] S. LODHAA, 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"**.

[85] X. LOU, C. ADELMANN, M. FURIS, S. A. CROOKER, J. C. PALMSTROM, AND P. A. CROWELL, Phys. Rev. Lett., **96**, p. 176603, (2006). **"Electrical Detection of Spin Accumulation at a Ferromagnet-Semiconductor Interface"**.

[86] P. LYU AND K. MOON, Phys. Rev. B, **64**, p. 035201, (2001). **"Tunneling magnetoresistance in diluted magnetic semiconductor tunnel junctions"**.

[87] A. H. MACDONALD, P. SCHIFFER, AND N. SAMARTH, Nature, **4**, p. 195, (2005). **"Ferromagnetic semiconductors :moving bayond (Ga,Mn)As"**.

[88] J. M. MACLAREN, X.-G. ZHANG, AND W. H. BUTLER, Phys. Rev. B, **56**, p. 11827, (1997). **"Validity of the Julliere model of spin-dependent tunneling"**.

[89] P. MAHADEVAN AND A. ZUNGER, Phys. Rev. B, **69**, p. 115211, (2004). **"Ferromagnetism in Mn-doped GaAs due to substitutional-interstitial complexes"**.

[90] M. MALFAIT, J. VANACKEN, W. V. ROY, G. BORGHS, AND V. V. MOSHCHALKOV, Journ. of Magn. and Magn. Mat., **290-291**, p. 1387, (2005). **"Low-temperature annealing study of $Ga_{1-x}Mn_xAs$: magnetic properties and Hall effect in pulsed magnetic fields"**.

[91] R. MATHIEU, B. S. SORENSEN, J. SADOWSKI, U. SODERVALL, J. KANSKI, P. SVEDLINH, P. E. LINDELOF, D. HRABOVSKY, AND E. VANELLE, Phys. Rev. B, **68**, p. 184421, (2003). **"Magnetization of ultrathin (Ga,Mn)As layers"**.

[92] 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.

[93] F. MATSUKURA, M. SAWICKI, T. DIETL, D. CHIBA, AND H. OHNO, Physica E, **21**, p. 1032, (2004). **"Magnetotransport properties of metallic (Ga,Mn)As films with compressive and tensile strain"**.

[94] R. MATTANA, Thèse de l'Université Paris XI, (2003). **"Transport dépendant du spin dans des nanostructures semiconductrices"**.

[95] R. MATTANA, M. ELSEN, J.-M. GEORGE, H. JAFFRÈS, F. N. V. DAU, A. FERT, M. F. WYCZISK, J. OLIVIER, P. GALTIER, B. LÉPINE, A. GUIVARC'H, AND G. JÉZÉQUEL, Phys. Rev. B, **71**, p. 075206, (2005). **"Chemical profile and magnetoresistance of $Ga_{1-x}Mn_xAs$/GaAs/AlAs/GaAs/$Ga_{1-x}Mn_xAs$ tunnel junctions"**.

[96] R. MATTANA, J.-M. GEORGE, H. JAFFRÈS, F. N. V. DAU, A. FERT, B. LÉPINE, A. GUIVARC'H, AND G. JEZEQUEL, Phys. Rev. Lett., **90**, p. 166601, (2003). **"Electrical detection of spin accumulation in a p-type GaAs quantum well"**.

[97] 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"**.

[98] F. MONTAIGNE, M. HEHN, AND A. SCHUHL, Phys. Rev. B, **64**, p. 144402, (2001). **"Tunnel barrier parameters and magnetoresistance in the parabolic band model"**.

[99] 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 Junctions"**.

[100] G. P. MOORE, J. FERRÉ, A. MOUGIN, M. MORENO, AND L. DAEWERITZ, J. Appl. Phys., **94**, p. 4530, (2003). **"Magnetic anisotropy and switching process in diluted $Ga_{1-x}Mn_xAs$ magnetic semiconductor films"**.

[101] A. V. NAZAROV, H. M. OLSON, H. CHO, K. NIKOLAEV, Z. GAO, S. STOKES, AND B. B. PANT, Appl. Phys. Lett., **88**, p. 162504, (2006). **"Spin transfer stimulated microwave emission in MgO magnetic tunnel junctions"**.

[102] A. M. NAZMUL, T. AMEMIYA, Y. SHUTO, S. SUGAHARA, AND M. TANAKA, Phys. Rev. Lett., **95**, p. 017201, (2005). **"High Temperature Ferromagnetism in GaAs-Based Heterostructures with Mn δ Doping"**.

[103] A. M. NAZMUL, S. SUGAHARA, AND M. TANAKA, Phys. Rev. B, **67**, p. 241308, (2003). **"Ferromagnetism and high Curie temperature in semiconductor heterostructures with Mn δ-doped GaAs and p-type selective doping"**.

[104] H. OHNO, Science, **281**, p. 951, (1998). **"Making Nonmagnetic Semiconductors Ferromagnetic"**.

[105] ——, J. Magn. Magn. Mater., **200**, p. 110, (1999). **"Properties of Ferromagnetic III-V Semiconductors"**.

[106] H. OHNO, N. AKIBA, F. MATSUKURA, A. SHEN, K. OHTANI, AND Y. OHNO, Appl. Phys. Lett., **73**, p. 363, (1998). **"Spontaneous splitting of ferromagnetic (Ga,Mn)As valence band observed by resonant tunneling spectroscopy"**.

[107] 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"**.

[108] H. OHNO, E. MENDEZ, AND W. WANG, Appl. Phys. Lett., **56**, p. 1793, (1990). **"Effects of carrier mass differences on the current-voltage characteristics of resonant tunneling structures"**.

[109] H. OHNO, H. MUNEKATA, T. PENNEY, S. VON MOLNAR, AND L. CHANG, Phys. Rev. Lett., **68**, p. 2664, (1992). **"Magnetotransport Properties of p-Type (In,Mn)As Diluted Magnetic III-V Semiconductors"**.

[110] 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"**.

[111] Y. OHNO, I. ARATA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, Physica E, **13**, p. 521, (2002). **"Valence band barrier at (Ga,Mn)As/GaAs interfaces"**.

[112] S. OHYA, P. N. HAI, Y. MIZUNO, AND M. TANAKA, cond-mat/0608357, (2006). **"Quantum-size effect and tunneling magnetoresistance in ferromagnetic-semiconductor quantum heterostructures"**.

[113] S. OHYA, P. N. HAI, AND M. TANAKA, Appl. Phys. Lett., **87**, p. 012105, (2005). **"Tunnel magnetoresistance in GaMnAs/AlAs/InGaAs/AlAs/GaMnAs double-barrier magnetic tunnel junctions"**.

[114] 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** $Ga_{1-x}Mn_xAs$**"**.

[115] ——, Phys. Rev. B, **64**, p. 125304, (2001). **"Angle-resolved photoemission study of** $Ga_{1-x}Mn_xAs$**"**.

[116] I. OSHIYAMA, T. KONDO, AND H. MUNEKATA, J. Appl. Phys., **98**, p. 093906, (2005). **"Effect of nitrogen incorporation in ferromagnetic (Ga,Mn)As epilayers"**.

[117] K. PAPPERT, M. J. SCHMIDT, S. HUMPFNER, C. RUSTER, G. SCHOTT, K. BRUNNER, C. GOULD, G. SCHMIDT, , AND L. MOLENKAMP, Phys. Rev. Lett., **97**, p. 186402, (2006). **"Magnetization-Switched Metal-Insulator Transition in a (Ga,Mn)As Tunnel Device"**.

[118] S. S. P. PARKIN, C. KAISER, A. PANCHULA, P. M. RICE, B. HUGHES, M. SAMANT, AND S.-H. YANG, Nat. Mater., **3**, p. 862, (2004). **"Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barries"**.

[119] A. G. PETHUKOV, A. N. CHANTIS, AND D. O. DEMCHENKO, Phys. Rev. Lett., **89**, p. 107205, (2002). **"Resonant Enhancement of Tunneling Magnetoresistance in Double-Barrier Magnetic Heterostructures"**.

[120] S. J. POTASHNIK, K. C. KU, S. H. CHUN, J. BERRY, N. SAMARTH, AND P. SCHIFFER, Appl. Phys. Lett., **79**, p. 1495, (2001). **"Effects of annealing time on defect-controlled feromagnetism in $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[121] 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 $Ga_{1-x}Mn_xAs$ epilayers"**.

[122] S. J. POTASHNIK, K. C. KU, R. F. WANG, M. B. STONE, N. SAMARTH, P. SCHIFFER, AND S. H. CHUN, J. Appl. Phys., **93**, p. 6784, (2003). **"Coercive field and magnetization in $Ga_{1-x}Mn_xAs$ epilayers"**.

[123] W. H. RIPPARD, M. R. PUFALL, S. KAKA, S. E. RUSSEK, AND T. J. SILVA, Phys. Rev. Lett., **92**, p. 027201, (2004). **"Direct-Current induced dynamics in $Co_{90}Fe_{10}/Ni_{80}Fe_{20}$ point contacts"**.

[124] C. RUSTER, C. GOULD, T. JUNGWIRTH, E. GIRGIS, G. M. SCHOTT, R. GIRAUD, K. BRUNNER, G. SCHMIDT, AND L. W. MOHLENKAMP, Phys. Rev. Lett., **93**, p. 117203, (2004). **"Tunnel Anisotropic Magnetoresistance : A Spin-Valve-Like Tunnel Magnetoresistance Using a Single Magnetic Layer"**.

[125] C. RUSTER, C. GOULD, T. JUNGWIRTH, J. SINOVA, G. M. SCHOTT, R. GIRAUD, K. BRUNNER, G. SCHMIDT, AND L. W. MOHLENKAMP, Phys. Rev. Lett., **94**, p. 027203, (2005). **"Very Large Tunneling Anisotropic Magnetoresistance of a (Ga,Mn)As/GaAs/(Ga,Mn)As Stack"**.

[126] H. SAITO, S. YUASA, AND K. ANDO, Phys. Rev. Lett., **95**, p. 086604, (2005). **"Origin of the Tunnel Anisotropic Magnetoresistance in $Ga_{1-x}Mn_xAs$/ZnSe/$Ga_{1-x}Mn_xAs$ Magnetic Tunnel Junctions of II-VI/III-V Heterostructures"**.

[127] P. SANKOWSKI, P. KACMAN, J. A. MAJEWSKI, AND T. DIETL, arXiv :cond-mat/0607206, (2006). **"Spin-dependent tunneling in modulated structures of (Ga,Mn)As "**.

[128] ——, Physica E, **32**, p. 375, (2006). **"Tight-binding model of spin-polarizd tunnelling in (Ga,Mn)As-based structures"**.

[129] V. F. SAPEGA, M. MORENO, M. RAMSTEINER, L. DAEWERITZ, AND K. H. PLOOG, Phys. Rev. Lett., **94**, p. 137401, (2005). **"Polarization of Valence Band Holes in the (Ga,Mn)As Diluted Magnetic Semiconductor"**.

[130] V. F. SAPEGA, M. RAMSTEINER, O. BRANDT, L. DAEWERITZ, AND K. H. PLOOG, Phys. Rev. B, **73**, p. 235208, (2006). **"Hot-electron photoluminescence study of the (Ga,Mn)As Diluted Magnetic Semiconductor"**.

[131] Y. SATO, D. CHIBA, F. MATSUKURA, AND H. OHNO, Journal of Superconductivity : Incorporating Novel Magnetism, **18**, p. 345, (2005). **"Effect of GaAs Intermediary Layer Thickness on the Properties of (Ga,Mn)As Tri-Layer Structures"**.

[132] M. SAWICKI, J. Magn. Magn. Mat., **300**, p. 1, (2006). **"Magnetic properties of (Ga,Mn)As"**.

[133] M. SAWICKI, F. MATSUKURA, T. DIETL, G. M. SCHOTT, C. RUESTER, G. SCHMIDT, L. W. MOLENKAMP, AND G. KARCZEWSKI, J. of Supercond., **16**, p. 7, (2003). **"Temperature Pecularities of Magnetic Anisotropy in (Ga,Mn)As : The Role of the Hole Concentration"**.

[134] M. SAWICKI, F. MATSUKURA, A. IDZIASZEK, T. DIETL, G. M. SCHOTT, C. RUESTER, C. GOULD, G. KARCZEWSKI, G. SCHMIDT, AND L. W. MOLENKAMP, Phys. Rev. B, **70**, p. 245325, (2004). **"Temperature dependent magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As layers"**.

[135] M. SAWICKI, K. Y. WANG, K. W. EDMONDS, R. P. CAMPION, C. R. STADDON, N. R. S. FARLEY, C. T. FOXON, E. PAPIS, E. KAMINSKA, A. PIOTROWSKA, T. DIETL, AND B. L. GALLAGHER, Phys. Rev. B, **71**, p. 121302(R), (2005). **"In-plane uniaxial anisotropy rotations in (Ga,Mn)As thin films"**.

[136] G. M. SCHOTT, C. RUSTER, K. BRUNNER, C. GOULD, G. SCHMIDT, L. W. MOLENKAMP, M. SAWICKI, R. JAKIELA, A. BARCZ, AND G. KARCZEWSKI, Appl. Phys. Lett., **85**, p. 4678, (2004). **"Doping of low-temperature GaAs and GaMnAs with carbon"**.

[137] G. SCHUBERTH, G. ABSTREITER, E. GORNIK, F. SCHÄFFLER, AND J. LUY, Phys. Rev. B, **43**, p. 2280, (1991). **"Resonant tunneling of holes in Si/Si$_x$Ge$_{1-x}$ quantum-well structures"**.

[138] T. C. SCHULTHESS, W. M. TEMMERMAN, Z. SZOTEK, W. H. BUTLER, AND G. M. STOCKS, Nature materials, **4**, p. 838, (2005). **"Electronic structure and exchange coupling of Mn impurites in III-V semiconductors"**.

[139] M. J. SEONG, S. H. CHUN, H. M. CHEONG, N. SAMARTH, AND A. MASCARENHAS, Phys. Rev. B, **22**, p. 033202, (2002). **"Spectroscopic determination of hole density in the ferromagnetic semiconductor $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[140] R. SHIODA, K. ANDO, T. HAYASHI, AND M. TANAKA, Phys. Rev. B, **58**, p. 1100, (1998). **"Local structures of III-V diluted magnetic semiconductor $Ga_{1-x}Mn_xAs$ studied using extended x-ray absorption fine structure "**.

[141] E. J. SINGLEY, K. S. BURCH, R. KAWAKAMI, J. STEPHENS, D. D. AWSCHALOM, AND D. N. BASOV, Phys. Rev. B, **68**, p. 165204, (2003). **"Electronic structure and carrier dynamics of the ferromagnetic semiconductor $Ga_{1-x}Mn_xAs$"**.

[142] J. SINOVA, T. JUNGWIRTH, X. LIU, Y. SASAKI, J. K. FURDYNA, W. A. ATKINSON, AND A. H. MACDONALD, Phys. Rev. B, **69**, p. 085209, (2004). **"Magnetization relaxation in (Ga,Mn)As ferromagnetic semiconductors"**.

[143] A. SLOBODSKYY, C. GOULD, T. SLOBODSKYY, C. BECKER, G. SCHMIDT, AND L. MOLENKAMP, Phys. Rev. Lett., **90**, p. 246601, (2003). **"Voltage-Controlled Spin Selection in a Magnetic Resonant Tunneling Diode"**.

[144] J. C. SLONCZEWSKI, J. Magn. Magn. Magn. Mater., **159**, p. L1, (1996). **"Current-driven excitation of magnetic multilayers"**.

[145] ——, Phys. Rev. B, **71**, p. 024411, (2005). **"Currents, torques, and polarization factors in magnetic tunnel junctions"**.

[146] B. S. SORENSEN, J. SADOWSKI, S. E. ANDERSEN, AND P. E. LINDELOF, Phys. Rev. B, **66**, p. 233313, (2002). **"Dependence of Curie temperature on the thickness of epitaxial (Ga,Mn)As film"**.

[147] V. STANCIU AND P. SVEDLINH, Appl. Phys. Lett., **87**, p. 242509, (2005). **"Annealing-induced changes of the magnetic anisotropy of (Ga,Mn)As epilayers"**.

[148] M. B. STEARNS, J. Magn. Magn. Mater., **5**, p. 167, (1977). **"Simple explanation of tunneling spin-polarization of Fe, Co, Ni and its alloys"**.

[149] M. STELLMACHER, R. BISARO, P. GALTIER, J. NAGLE, AND K. KHIROUNI, Semicon. Sci. Technol., **16**, p. 440, (2001). **"Defects and defect behaviour in GaAs grown at low temperature"**.

[150] M. STILES AND J. MILTAT, edited by B. Hillebrands and A. Thiaville, Springer Berlin, **Vol. 101**, (2006). **"Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures III"**.

[151] M. STILES AND A. ZANGWILL, Phys. Rev. B, **66**, p. 014407, (2002). **"Anatomy of spin-transfer torque"**.

[152] ——, J. Appl. Phys., **91**, p. 6812, (2002). **"Noncollinear spin transfer in Co/Cu/Co multilayers (invited)"**.

[153] 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 effects on $Ga_{1-x}Mn_xAs$ epilayers"**.

[154] J. SUN, D. MONSMA, D. ABRAHAM, M. ROOKS, AND R. KOCH, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 2202, (2002). **"Batch-fabricated spin-injection magnetic switches"**.

[155] J. SZCZYTKO, W. MAC, A. TWARDOWSKI, K. MATSUKURA, AND H. OHNO, Phys. Rev. B, **59**, p. 12935, (1999). **"Antiferromagnetic p-d exchange in ferromagnetic $Ga_{1-x}Mn_xAs$ epilayers"**.

[156] 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 $Ga_{1-x}Mn_xAs$ epilayers"**.

[157] M. TANAKA AND Y. HIGO, Phys. Rev. Lett., **87**, p. 026602, (2001). **"Large Tunneling Magnetoresistance in GaMnAs /AlAs /GaMnAs Ferromagnetic Semiconductor Tunnel Junctions"**.

[158] H. TANG, R. KAWAKAMI, D. AWSCHALOM, AND M. ROUKES, Phys. Rev. Lett., **90**, p. 107201, (2003). **"Giant Planar Hall Effect in Epitaxial (Ga,Mn)As Devices"**.

[159] J. TANG AND M. E. FLATTÉ, Phys. Rev. B, **72**, p. 161315, (2005). **"Spin-orientation-dependent spatial structure of a magnetic acceptor state in a zincblende semiconductor "**.

[160] Y. C. TAO, J. G. HU, AND H. LIU, J. Appl. Phys., **96**, p. 498, (2004). **"Spin-polarized transport in diluted GaMnAs /AlAs /GaMnAs ferromagnetic semiconductor tunnel junctions"**.

[161] P. M. TEDROW AND R. MESERVEY, Phys. Rev. Lett., **26**, p. 192, (1971). **"Spin-Dependent Tunneling into Ferromagnetic Nickel"**.

[162] J. M. D. TERESA, A. BARTHELEMY, A. FERT, J. P. CONTOUR, F. MONTAIGNE, AND P. SENEOR, Science, **286**, p. 507, (1999). **"Role of Metal-Oxide Interface in Determining the Spin Polarization of Magnetic Tunnel Junctions"**.

[163] L. THEVENARD, L. LARGEAU, O. MAUGUIN, A. LEMAITRE, AND B. THEYS, Appl. Phys. Lett., **87**, p. 182506, (2005). **"Tuning the ferromagnetic properties of hydrogenated GaMnAs"**.

[164] M. TSOI, A. G. M. JANSEN, J. BASS, W.-C. CHIANG, M. SECK, V. TSOI, AND P. WYDER, Phys. Rev. Lett., **80**, p. 4281, (1998). **"Excitation of a Magnetic Multilayer by an Electric Current"**.

[165] T. VALET AND A. FERT, Phys. Rev. B, **48**, p. 7099, (1993). **"Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers"**.

[166] D. WANG, C. NORDMAN, J. DAUGHTON, Z. QIAN, AND J. FINK, IEEE Trans. Magn., **40**, p. 2269, (2004). **"70 % TMR at room temperature for SDT sandwich junctions with CoFeB as free and reference Layers"**.

[167] K. Y. WANG, R. P. CAMPION, K. W. EDMONDS, M. SAWICKI, T. DIETL, C. T. FOXON, AND B. GALLAGHER, Proc. 27th Int. Conf. on Phys. of Semicon., Flagstaff, AZ, USA, p. p.333, (July 2004, (New York 2005)). **"Magnetism in (Ga,Mn)As Thin Films With T_C Up To 173K"**.

[168] K. Y. WANG, K. W. EDMONDS, R. P. CAMPION, B. L. GALLAGHER, N. R. S. FARLEY, C. T. FOXON, M. SAWICKI, P. BOGUSLAWSKI, AND T. DIETL, J. Appl. Phys., **95**, p. 6512, (2004). **"Influence of the Mn interstitial on the magnetic and transport properties of (Ga,Mn)As"**.

[169] K. Y. WANG, K. W. EDMONDS, R. P. CAMPION, L. X. ZHAO, C. T. FOXON, AND B. L. GALLAGHER, Phys. Rev. B, **72**, p. 085201, (2005). **"Anisotropic magnetoresistance and magnetic anisotropy in high-quality (Ga,Mn)As films"**.

[170] K. Y. WANG, M. SAWICKI, K. W. EDMONDS, R. P. CAMPION, S. MAAT, C. T. FOXON, B. L. GALLAGHER, AND T. DIETL, Phys. Rev. Lett., **95**, p. 217204, (2005). **"Spin Reorientation Transition in Single-Domain (Ga,Mn)As"**.

[171] K. Y. WANG, M. SAWICKI, K. W. EDMONDS, R. P. CAMPION, A. W. RUSHFORTH, A. A. FREEMAN, C. T. FOXON, AND B. L. GALLAGHER, Appl. Phys. Lett., **88**, p. 022510, (2006). **"Control of coercitivities in (Ga,Mn)As thin films by small concentrations of MnAs nanoclusters"**.

[172] 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** $Ga_{1-x}Mn_xAs$**"**.

[173] U. WELP, V. K. VLASKO-VLASOV, A. MENZEL, H. D. YOU, X. LIU, J. K. FURDYNA, AND T. WOJTOWICZ, Appl. Phys. Lett., **85**, p. 260, (2004). **"Uniaxial in-plane magnetic anisotropy of** $Ga_{1-x}Mn_xAs$**"**.

[174] 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"**.

[175] T. WOJTOWICZ, W. L. LIM, X. LIU, Y. SASAKI, U. BINDLEY, M. DOBROWOLSKA, J. K. FURDYNA, K. M. YU, AND W. WALUKIEWICZ, J. Supercond., **16**, p. 41, (2003). **"Correlation of Mn Lattice Location, Free Hole Concentration, and Curie Temperature in Ferromagnetic GaMnAs"**.

[176] A. M. YAKUNIN, A. Y. SILOV, P. M. KOENRAAD, J. H. WOLTER, W. V. ROY, J. D. BOECK, J.-M. TANG, AND M. E. FLATTÉ, Phys. Rev. Lett., **92**, p. 216806, (2004). **"Spatial structure of an individual Mn acceptor in GaAs"**.

[177] K. M. YU, W. WALUKIEWICZ, T. WOJTOWICZ, J. DENLINGER, M. SCARPULLA, X. LIU, AND J. K. FURDYNA, Appl. Phys. Lett., **86**, p. 042102, (2005). **"Effect of film thickness on the incorporation of Mn interstitials in** $Ga_{1-x}Mn_xAs$**"**.

[178] K. M. YU, W. WALUKIEWICZ, T. WOJTOWICZ, I. KURYKISZYN, X. LIU, Y. SASAKI, AND J. K. FURDYNA, Phys. Rev. B, **65**, p. 201303, (2002). **"Effect of the location of Mn sites in ferromagnetic** $Ga_{1-x}Mn_xAs$ **on its Curie temperature "**.

[179] K. M. YU, W. WALUKIEWICZ, T. WOJTOWICZ, W. L. LIM, X. LIU, U. BINDLEY, M. DOBROWOLSKA, AND J. K. FURDYNA, Phys. Rev. B, **68**, p. 041308, (2003). **"Curie temperature in ferromagnetic** $Ga_{1-x}Mn_xAs$**"**.

[180] K. M. YU, W. WALUKIEWICZ, T. WOJTOWICZ, W. L. LIM, X. LIU, Y. SASAKI, M. DOBROWOLSKA, AND J. K. FURDYNA, Appl. Phys. Lett., **81**, p. 844, (2002). **"Determination of free jole concentration in ferromagnetic** $Ga_{1-x}Mn_xAs$ **using electrochemical capacitance-voltage profiling"**.

[181] S. YUASA, T. NAGAHAMA, A. FUKUSHIMA, Y. SUZUKI, AND K. ANDO, Nat. Mater., **3**, p. 868, (2004). **"Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions"**.

[182] C. ZENER, Phys. Rev., **81**, p. 440, (1951). **"Interaction between the d shells in the Transition Metals"**.

[183] 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"**.