الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية وزارة التعليم العالى و البحث العلمي جامعة حسيبة بن بوعلى _ الشلف Université Hassiba Benbouali - Chlef

كلية العلوم وعلوم الهندسة

Faculté des Sciences et Sciences de l'Ingénieur

Département d'Electronique



Thèse de Magistère en Electronique

Option : Nanotechnologie

Présentée par : Djelloul-Berkane Lalia Ingénieur d'état en électronique option communication.

THEME

Transport de spin dans les nanomatériaux : Application à la spintronique

Thèse soutenue le 17 /12/ 2008

Devant le jury composé de :

Président: B. BELMADANI Professeur (U.CHLEF) Encadreur : Med. BENAROUS M. de conferences (UHBC) **Examinateur: Madjid. LADREM Professeur (ENS.KOUBA)** A. ALI BENAMARA M.de conferences (UHBC)

2

Remerciements

A travers ce modeste travail, nous tenons à remercier vivement notre promoteur Mr –BENAROUSS MOHAMED pour l'intéressante documentation qu'il a mise à notre disposition, pour ses conseils précieux et pour toutes les commodités et aisances qu'il nous a apportées durant l'étude et la réalisation de ce projet.

Nos remerciements les plus vifs s'adressent aussi aux messieurs le président et les membres de jury pour avoir accepté d'examiner et d'évaluer notre travail.

Nous exprimons également notre gratitude à tous les professeurs et enseignants qui ont collaboré à notre formation depuis notre premier cycle d'étude jusqu'à la fin de notre cycle universitaire, sans omettre bien sùr de remercier profondément tous ceux qui ont contribué de prés ou de loin à la réalisation du présent travail.

Et enfin, que nos chers parents et familles, et bien avant tout, trouvent ici l'expression de nos remerciements les plus sincères et les plus profonds en reconnaissance de leurs sacrifices, aide, soutien et encouragements afin de nous assurer cette formation de magistère dans les meilleures conditions.

Djelloul Berkane Lalia

Dédicaces

Je rends grâce à Dieu de m'avoir donné le courage, la volonté ainsi que la conscience d'avoir pu terminer mes études.

Je dédie ce modeste travail :

A mes très chers mère et père pour toute leur tendresse et pour leurs nombreux sacrifices. Que Dieu me les garde.

A tous ceux qui m'ont aidé de loin ou de près durant mes études.

A tout la Famille Spécialement mon frère, mes sœurs,

A tous les professeurs et enseignants qui ont collaboré à ma formation depuis mon premier cycle d'étude.

A toutes mes amies, et tous mes amis de Magistère NANOTECHNOLOGIE.

Djelloul Berkane Lalia

Table des matières

Tables des matières5
Liste des Tableaux
Liste des Figures9
Abréviations14
Introduction
Chapitre I : Concepts généraux pour le transport de spin
I.1 Introduction
I.2 Rappel des propriétés des gaz d'électrons libres de Fermi
I.2.1 Notions fondamentales
I.3 Transport électronique
I.3.1 Fonction de Distribution de Fermi Dirac 25
I.3.2 Gaz d'électrons libres à trois dimensions
I.3.3 Densité d'états à champ nul
I.3.3.1 Densité d'états pour un système à 1D
I.3.3.2 Densité d'états pour un système à 2D
I.3.3.3 Densité d'états pour un système à 3D
I.3.4 Effet du champ Electrique
I.4 Théorie des bandes
I.5 Différents régimes de transports
I.5.1Transport diffusif classique
I.5.2Transport balistique
I.5.3 Transport mésoscopique diffusif
I.6 Modèle de Drude
I.6.1 Effet de champ magnétique
I.7La conductance, modèle de Landauer-Büttiker
I.7.1Transport balistique
I.7.2 Conductance d'un système désordonné40
I.7.3 Transport incohérent
I.7.4 Transport cohérent
Chapitre II : L'électronique de spin ou Spintronique
II.1 Introduction
II.2 Définition de spin45

•

II.3 Fondements de la spintronique46
II.3.1 Asymétrie de spin des porteurs du courant46
II.3.2 Approximation de Mott [10]46
II.3.3 Diffusion dépendant du spin46
II.3.4 Accumulation de spin47
II.4 Phénomènes de la spintronique47
II.4 .1 La Magnétorésistance Géante (GMR)47
II.4.2 Description phénoménologique de l'effet GMR : modèle à 2 courants50
II.4 .2.1 Cas du transport en CPP54
II.4 .2.2 Cas du transport en CIP57
II.4 .2.3 Description semi-classique de l'effet GMR60
II.4 .2.4 Accumulation et relaxation de spin (GMR CPP)66
II.5 Magnétorésistance Tunnel (TMR)
II.5.1 Description phénoménologique de la TMR69
II.5.2 Courant tunnel à travers une barrière isolante
II.5.3 Modèle de Jullière pour les jonctions tunnel magnétiques72
II.6 Les modèles de TMR76
II.6.1 Modèle de Bardeen77
II.6.2 Modèle des électrons libres77
II.6.3 Modèle de Slonczewski80
II.7 Conclusion sur les différents modèles étudiés
Chapitre III : La spintronique avec des semiconducteurs
III.1 Introduction
III.2 Injection de courant polarisé à partir d'un contact ohmique ferromagnétique (FM)/
semiconducteur (SC)
III.2.1 Etude expérimentale
III.2.2 Modèle pour le transport de spin dans les systèmes diffusifs : application au
transport à travers l'interface FM/SC
III.2.3 Solutions au problème de « Conductivity Mismatch »
III.3 Transport de spin à travers une barrière tunnel isolante
III.3.1 Théorie
III.3.2 Cas de la barrière Schottky94
III.3 .3 Cas de la structure Métal Ferromagnétique/Isolant/Semiconducteur (FMIS)95

III.3.4 Résumé des principaux résultats sur l'injection de spin dans les semico	nducteurs
	97
III.4 Transport de spin dans les semiconducteurs	98
III.4.1 L'interaction spin – orbite	98
III.4.2 Le mécanisme Elliot – Yafet (EY)	100
III.4.3 Le mécanisme D'Yakonov - Perel' (DP)	100
III.4.4 Le mécanisme Bir, Aronov et Pikus (BAP)	101
III.4.5 Estimations théoriques	102
III.4.6 Le couplage spin-orbite de Rashba	102
III.5 Accumulation de spin et courant de spin	104
III.6 Conditions de détection	107
III.7 Conclusion	111
Chapitre IV : Transport du spin dans les nanotubes de carbone	112
IV.1 Introduction	113
IV.2 Structures et propriétés électroniques des nanotubes de carbone	113
IV.3 Structure de bandes électroniques	116
IV.3.1 Le graphite	116
IV.3.2 Les nanotubes	118
IV.4 Transport de spin dans une structure MF/nanotube de carbone /MF	120
IV.4.1 Conception des échantillons	120
IV.4.2 Etapes de fabrication	121
IV.4.3 Caractéristiques des échantillons	122
IV.4.4 Techniques de mesure	122
IV.4.5 Les principaux paramètres : V _{sd} ,V _g , T	123
IV.5 Transport dans les nanotubes de carbone MWNT	125
IV.5.1 Balistique ou diffusifs ?	125
IV.5.2 Transport balistique	125
IV.5.3 Transport diffusif	127
IV.5.4 Nombre de modes participant au transport	129
IV.6 Concepts importants pour la nanospintronique	131
Chapitre V : Bilan	134
Conclusion	137
Annexes	140
Annexe I : Détermination du coefficient de diffusion électronique	141

Annexe II : Mesure de polarisation en spin	142
Annexe III : Epitaxie par Jets Moléculaires	151
Bibliographie	151

Liste des Tableaux

Tableau I.1 : Energies, températures, vecteurs d'ondes, et vitesses de Fermi de plusieurs
métaux, calculés à partir de la densité d'électrons de conduction dans le modèle d'électrons
libres
Tableau III.1 : Résultats obtenus par des méthodes optiques sur l'injection de spin dans un
semiconducteur97
Tableau annexe II.1 : polarisation en spin de quelques matériaux ferromagnétiques [125].
Tableau annexe II.2 : Polarisation en spin de quelques matériaux, mesurée par les deux
méthodes
Tableau annexe II.3 : Quelques exemples de demi-métaux avec leur structure, leur
polarisation en spin mesurée, leur aimantation à saturation et leur température de Curie.

•

Liste des Figures

Figure I.1 : Niveau de Fermi. 25
Figure I.2: Evolution de la distribution de Fermi-Dirac pour 0K, 100K et 300K (μ =
50meV)
Figure I.3 : L'état fondamental d'un système à N électrons libres. 28
Figure I.4: Relation de dispersion E (k) et densité d'états n(E) correspondante, (a) et (b) pour
un gaz d'électrons 3D, (c) et (d) pour un gaz 2D, (e) et (f) pour un gaz 1D31
Figure I.5 : Translation de la sphère de Fermi de δk dans l'espace des k sous l'action d'un
champ électrique
Figure I.6 : Densité d'états en fonction de l'énergie. 33
Figure I.7 : La projection de v_F sur l'axe x
Figure I.8 : Longueurs caractéristiques et régimes de transport correspondants
Figure I.9 : Schéma de principe d'un système balistique. Système unidimensionnel possédant
dans l'exemple, deux bandes de conductions donc deux canaux de conduction
Figure I.10 : Schéma de principe pour un système désordonné
Figure II.1 : Multicouches Fe/Cr, dans lesquelles existe un couplage antiferromagnétique
entre les couches de Fe (d représente l'épaisseur des couches Cr)
Figure II.2 : Variation de la résistivité électrique en fonction d'un champ magnétique48
Figure II.3 : Mécanisme de conduction dans une structure multicouche périodique, et circuit
équivalent en configuration magnétique antiparallèle
Figure II.4 : Mécanisme de conduction dans une structure multicouche périodique, et circuit
équivalent en configuration magnétique parallèle49
Figure II.5: Schématisation des 2 configurations de mesure. En gris sont représentées les
couches ferromagnétiques (FM) et en blanc les couches métalliques non magnétiques50
Figure II. 6 : Modélisation du parcours de chaque type de porteur en configuration CPP (a,b)
et CIP (c,d). Les termes P et AP correspondent à des aimantations Parallèles et Anti-
parallèles. Les processus de collisions dépendants du spin sont représentés par des étoiles. 53
Figure II.7 : Modèle résistif du parcours de chaque type de porteur dans les mêmes
configurations que la figure (II.6). (La dénomination F est pour les couches Ferromagnétiques
et R _{int} est pour la résistance à l'interface entre le ferromagnétique et le métal normal)54
Figure II.8 : Structure de bande réelle du cobalt et du cuivre dans la direction [001]. Les
lignes pointillées représentent le niveau de Fermi (figures tirées de [15])60
Figure II.9 : Schéma de la structure étudiée

•

Figure II.10 : Schéma des canaux de spin dans le cas d'une bicouche Co/Cu. Le déséquilibre entre les canaux de spin dans le cobalt et le cuivre entraîne l'existence d'une zone **Figure II.11**: Profils d'accumulation de spin (partie haute) et de polarisation en spin (partie basse) dans le cas d'une bicouche Co/Cu[12].67 Figure II.12 : Les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction tunnel Figure II.13: Diagramme d'énergie pour un électron libre dans une jonction Figure II.14. Diagramme d'énergie dans le cas d'une tension appliquée quasi-nulle......71 **Figure II.15**. Diagramme d'énergie dans le cas d'une tension appliquée $V\langle \frac{\varphi_0}{\varphi_0} \dots 2 \rangle$ **Figure II.16 :** Conductance relative $(\Delta G/G_0)$ en fonction de la tension appliquée d'une Figure II.17 : Effet tunnel entre deux métaux ferromagnétiques (MF1 et MF2) séparés par une barrière isolante *I* rectangulaire et déformée par une tension appliquée *V*......75 Figure II.18 : Diagramme d'énergie pour un électron dans une jonction tunnel magnétique pour le cas où la configuration des aimantations des électrodes ferromagnétiques FM1 et FM2 Figure II.19: (a)Modélisation du remplissage des niveaux pour des électrons dans une boîte de potentiel (b) modélisation du profil de potentiel pour une structure FM/I/FM qui consiste **Figure II.20 :** Ratio de conductance ($\Delta G/G$) par rapport à la polarisation au niveau de Fermi P pour un courant tunnel d'électrons libres dépendant du spin pour des hauteurs de barrière Figure III.3 : Modèle de résistance simplifié pour un dispositif composé d'un semiconducteur (SC) avec deux contacts ferromagnétiques (FM), 1 et 3. Les deux canaux de Figure III.4 : (a) et (b) montrent les potentiels électrochimiques dans les trois régions pour le

Figure III.5 : Interface entre un métal ferromagnétique et un semiconducteur. Les lignes en pointillé montre les asymptotes des potentiels chimiques. F_d représente la bande d du FM. S_c Figure III.6 : Potentiels électrochimiques pour le cas d'une barrière tunnel entre le métal Figure III.7: (a) Diagramme de bandes d'énergie en régime de bandes plates de la barrière Schottky tunnel et de la diode électroluminescente (LED) [82]. (b) Profil du dopage à l'interface Fe/AlGaAs [40].95 Figure III.9: Représentation de la diode électroluminescente fabriquée, et vue de dessus, Figure III.11: Représentation du mécanisme D'Yakonov - Perel'. Ce mécanisme est dû au **Figure III.12 :** Rôle relatif joué par les mécanismes BAP et DP dans le GaAs [76]102 Figure III.13: Allure de la bande de conduction à l'interface d'une hétérostructure à Figure III.14 : Courants de spin dans le composé ferromagnétique et dans le composé non **Figure III.15 :** Dissociation des potentiels chimiques μ_{\uparrow} et μ_{\downarrow} à l'interface. Les flèches vertes représentent les spin-flips induits par la distribution hors de l'équilibre des potentiels chimiques......105 Figure III.16 : Variation de la polarisation du courant dans le cas où le nombre de spin-flips est équivalent de chaque côté de l'interface (cas métal/métal) et dans le cas où le nombre de renversements de spins dans le composé ferromagnétique est prédominant (cas métal/semiconducteur). D'après Fert et al. [32].....105 Figure III.17: (a) Accumulation de spin (échelle logarithmique) et (b) polarisation du courantà l'interface métal ferromagnétique (F)/semiconducteur (N) D'après [32].107 Figure III.18: Structures émetteur ferromagnétique/canal semiconducteur/collecteur ferromagnétique dans les cas (a) d'une géométrie verticale et (b) d'une géométrie planaire.108 **Figure III.19 :** (a) $\Delta R/R_P$ de ces structures F/I/N/I/F (régime diffusif). (b) $\Delta R/R_P$ de ces mêmes structures dans le cas d'un régime balistique D'après [32].109

Figure IV.1: Modèles de nanotubes de carbone mono-parois, en fonction de leur
enroulement114
Figure IV.2 : Modèle de nanotubes de carbone mullti-parois114
Figure IV.3 : Représentation des vecteurs du réseau réel des nanotubes
Figure IV.4 : Réseau réel du graphène117
Figure IV.5 : a) Représentation tridimensionnelle des liaisons π du graphite. b) Structure de
bandes du graphite118
Figure IV.6: Représentation schématique de la structure MF/MWNT /MF, avec MF=Métal
Ferromagnétique, ici nickel ou cobalt121
Figure IV.7 : Les différentes étapes de la fabrication d'un échantillon121
Figure IV.8: Nanotube multifeuillet contacté après fabrication des électrodes par
lithographie électronique, la figure est une image de douze électrodes sous binoculaires123
Figure IV.9: (a) Image AFM de quatre électrodes sur un nanotube de carbone multifeuillet.
(b) Schéma en coupe : le substrat en silicium est isolé du nanotube par une couche d'oxyde.
Cette couche d'oxyde est grattée sur un bord de l'échantillon pour pouvoir contacter la grille.
Figure IV.10 : Schéma des mesures de type (a) deux pointes et (b) quatre pointes locales et
non locales et un voltmètre portant respectivement les lettres A et V
Figure IV.11 : Expérience de Frank et al [104]. Transport balistique dans les nanotubes
MWNT. (a) représente le principe de l'expérience (b) Image d'un nanotube MWNT sortant
de la fibre
La figure IV.12 : Exemple de mesures de fonction de la position de la pointe
Figure IV.13: Exemple de mesures de magnétorésistance sur un nanotube de carbone MWNT
(a) en champ perpendiculaire à l'axe du tube et (b) en champ parallèle128
Figure : IV.14 : Résistances d'un nanotube MWNT en fonction de V_g mesuré (a) dans un
électrolyte de <i>LiClO</i> ₄ , (b) dans l'air en utilisant le substrat de silicium comme grille130
Figure IV.15 : Nanotubes de carbone entre deux contacts ferromagnétiques
Figure IV.16: Représentation d'un contact LSMO-CNT-LSMO
Figure V.1 : GMR en fonction de τ_n / τ_{sf} . En rouge (CNT), en vert (SC) et en bleu (métal).

Figure annexe II.1: (a) éclatement Zeeman de la densité d'états BCS (Bardeen, Cooper et Schrieffer) en fonction de la tension appliquée, sous un champ magnétique. (b) conductance à

température finie. On observe alors quatre pics au lieu de deux du fait de la levée de
dégénérescence. D'après [123]142
Figure annexe II.2 : principe de la mesure de la polarisation en spin par réflexion d'Andreev.
Figure annexe II.3: Représentation schématique des densités d'états et polarisation en spin
d'un métal non ferromagnétique (A), d'un matériau ferromagnétique (B) et d'un matériau
demi métallique (C)
Figure annexe II.4: Diagramme expliquant l'origine de la magnétorésistance dans le cas d'un
matériau ferromagnétique « classique » avec une polarisation en spin de 40 %, et dans le cas
d'un demi-métal donc avec une polarisation en spin de 100 %148
Figure Annexe III-1 : Schéma de l'enceinte d'Epitaxie par Jets Moléculaires. Les brides
représentent les endroits où les différents éléments sont fixés (manipulateur, canons à
électrons, sublimateur de titane,)

Abbreviation

GMR: Magnétorésistance Géante

TMR : Magnétorésistance Tunnel

CNT : Nanotubes de carbone

FM : Matériaux ferromagnétiques.

CIP: Current In Plane

CPP: Current Perpendicular to Plane

Introduction générale

La spintronique (ou électronique de spin) est un sujet en plein développement à travers le monde. Alors que l'électronique classique est basée sur le contrôle de courants de charge, l'électronique de spin manipule des courants de spin en exploitant l'influence du spin sur le transport électronique dans des nanostructures magnétiques associant matériaux magnétiques et non-magnétiques.

Le caractère «nano» des structures est imposé par les longueurs d'échelle en jeu, ce qui explique que le développement de la spintronique a été intimement lié au progrès des nanotechnologies. La première manifestation d'effet de spintronique a été la magnétorésistance géante ou GMR, découverte en 1988. Dans des multicouches alternant un métal magnétique et un métal non magnétique, un changement de résistance important est observé lorsque les aimantations des couches magnétiques successives basculent d'un état antiparallèle en champ nul à un état parallèle aligné en champ appliqué. Des structures artificielles plus complexes, appelées vannes de spin, permettent un effet de magnétorésistance géante dans des champs très faibles.

Aujourd'hui, la quasi-totalité de la production des têtes de lecture / écriture pour disques durs (1 milliard de têtes par an) est constituée de têtes à GMR. Les applications comme capteurs de champ pour l'automobile et l'aéronautique sont également en plein essor.

Un effet de magnétorésistance semblable à la GMR, appelé magnétorésistance tunnel ou TMR, est observé dans des jonctions tunnel (métal ferromagnétique/isolant/métal ferromagnétique). On observe aussi une variation importante de la résistance lorsque les directions relatives des aimantations des couches ferromagnétiques varient. La forte variation de magnétorésistance et l'impédance élevée (de 0.1 à $100 k\Omega$) ont conduit au développement de mémoires à accès aléatoire non volatiles (MRAM – Magnetic Random Access Memories)

Paradoxalement, alors que des applications doivent apparaître bientôt sur le marché, les mécanismes physiques en jeu dans la TMR sont encore loin d'être bien compris. Il apparaît maintenant que la TMR dépend non seulement de la polarisation en spin du ferromagnétique mais aussi de la structure électronique de l'isolant et surtout du caractère des liaisons électroniques à l'interface métal/isolant.

Il est probable que des TMR plus élevées pourront être obtenues avec d'autres isolants que l'alumine qui est essentiellement utilisée jusqu'à présent. Également, un autre enjeu important est la recherche de matériaux ferromagnétiques demi-métalliques (c'est-à-dire métalliques pour une direction de spin et isolants pour l'autre) pour lesquels on peut attendre une polarisation proche de 100 %.

Un gros effort de recherche en électronique de spin est déployé actuellement pour intégrer des matériaux magnétiques, des semi-conducteurs et des nanotubes de carbone dans une même hétérostructure, dite «hybride». L'objectif technologique est d'obtenir des composants d'électronique de spin combinant des fonctions de stockage permanent d'information, de traitement logique et de communication sur une même puce (microprocesseur reprogrammable par exemple). Une autre voie est l'élaboration de semi-conducteurs ferromagnétiques dans lesquels le courant est intrinsèquement polarisé en spin.

L'intégration actuelle des semiconducteurs en spintronique implique nécessairement une collaboration accrue entre communautés du magnétisme et des semiconducteurs. De façon plus générale, la spintronique a aussi besoin d'une pluridisciplinarité chimie/physique pour le développement de procédés de fabrication. Dans le champ applicatif, des connexions avec les domaines de la biologie et de la médecine ont également été ébauchées.

L'une des applications directes de la spintronique est la conception des mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM). Les premières MRAM sont apparues il y a une quinzaine d'années. Leurs performances limitées les ont malheureusement cantonnées aux applications très spécifiques, telles que les applications spatiales ou militaires. L'avancée majeure en matière de MRAM a été le développement des éléments à base de GMR. Le signal magnétorésistif peut alors atteindre près de 20%, mais l'inconvénient majeur reste la résistance trop faible de ce type de structure entièrement métallique (bien inférieure à celle de l'électronique CMOS). De plus le fait de connecter en série les cellules mémoires réduit drastiquement le signal magnétorésistif. Les Jonctions Tunnel Magnétiques (JTM) sont de bien meilleurs candidats pour la fabrication des MRAM car elles ont non seulement une très forte magnétorésistance et modulable en fonction de la nature des électrodes, mais aussi une résistance conséquente et modifiable en fonction de la nature de l'isolant (matériaux, épaisseur,...). Cette dernière propriété permet l'utilisation d'une seule JTM en série avec un transistor CMOS dans une cellule mémoire.

Les mémoires magnétiques présentent un certain nombre d'atouts, elles sont nonvolatiles, les temps d'écriture et de lecture sont courts (quelques nanosecondes), le nombre de cycle d'écriture et de lecture est illimité, la lecture est non destructive, et elles présentent une très faible sensibilité aux radiations. Les MRAM possèdent donc les atouts combinés des mémoires actuelles et affichent des performances bien supérieure pour certaines caractéristiques (temps d'accès, insensibilité aux radiations). Ce type de mémoire apparaît donc comme une mémoire universelle. Une deuxième application de la spintronique, concerne les disques durs. Le disque dur est actuellement le moyen de stockage réinscriptible le plus utilisé dans le monde. Il permet de sauvegarder des données sur un disque métallique non amovible, ainsi que de les lire. C'est donc un support de stockage informatique compétitif de par l'équilibre entre son faible coût et la rapidité d'accès aux informations.

Récemment, l'exploitation de la GMR est venue accroître énormément les capacités de stockage des disques durs. La progression s'est accentuée avec l'arrivée des têtes à magnétorésistance puis confirmée avec la mise sur le marché des disques à tête de lecture GMR. La GMR a donc permis d'augmenter les capacités de stockage des ordinateurs et le permet encore aujourd'hui avec l'arrivée des variantes des têtes GMR appelées Advanced GMR Heads.

Les avantages de la spintronique sont donc considérables. En effet, on gagne en rapidité d'accès à l'information, en permanence de celle-ci, en taille des composants et en consommation d'énergie.

Cependant, cette technique reste trop coûteuse vu les technologies de fabrication des nanomatériaux. Les industriels hésitent encore quant à sa mise en application et cela a des répercussions néfastes sur les programmes de recherche.

Plusieurs approches expérimentales ont été adoptées afin de produire d'une façon observable l'effet GMR et l'effet TMR. On peut en effet insérer entre deux nanocouches ferromagnétiques soit un matériau métallique, soit un isolant, soit un semi-conducteur, soit un nanotube de carbone. Chacune des approches présente des avantages et des inconvénients.

L'objectif de notre travail est de mener une étude comparative de ces diverses approches. En examinant et en mettant en lumière les paramètres pertinents pour caractériser de telles multi-structures, nous exploiterons les données expérimentales existant dans la littérature afin de conclure quant à l'efficacité de telle ou telle approche. En particulier, nous identifierons l'un des paramètres les plus importants à savoir, le temps de vie de spin dans le nanomatériau, qui est en fait *le* paramètre décisif pour adopter l'une ou l'autre des structures en fonction évidemment de son utilisation.

Notre travail se présente comme suit. Dans le premier chapitre, nous étudierons les bases du transport de charge du au déplacement d'électrons. Nous rappellerons les propriétés des gaz d'électrons libres de Fermi ainsi que les différents régimes de transport. Dans le second chapitre, nous présenterons les bases du transport de spin dans les structures magnétiques. Nous y abordons d'abord les progrès essentiels de l'électronique de spin d'un point de vue historique ainsi que les fondements de la spintronique. Nous nous intéresserons

ensuite aux phénomènes essentiels de la spintronique à savoir, l'effet GMR et l'effet TMR. Nous commencerons par analyser un certain nombre de modèles concernant les jonctions ''ferromagnétique/métal/ ferromagnétique'' afin de calculer la magnétorésistance qui, faut-il le préciser, permet de décider si ce type de jonctions peut être exploité dans la réalité comme matériau de base pour la spintronique.

Dans le troisième chapitre, nous étudierons un autre type de jonctions où le matériau métallique est remplacé par un semiconducteur. Nous présenterons les résultats d'injection et de détection de courants polarisés en spin dans les semiconducteurs. Nous montrerons en particulier que la condition nécessaire pour pouvoir injecter des porteurs polarisés en spin d'un métal ferromagnétique vers un semiconducteurs est d'insérer une barrière tunnel.

Le quatrième chapitre sera consacré à l'étude du transport de spin dans les nanotubes de carbone. Puisque ce genre de matériau est assez récent, nous définirons d'abord les nanotubes de carbone, puis nous présenterons leurs propriétés. Nous discuterons en détail la nature du transport de spin dans les nanotubes. Nous observerons que les mesures de magnétorésistance et de temps de vie de spin durant le transport dans un contact ferromagnétique/nanotube de carbone, sont largement en faveur de l'utilisation de ce genre de jonctions.

Le chapitre cinq sert à dresser un bilan sur les différents types de jonctions étudiées et permet de comparer leurs efficacités respectives en se basant sur le temps de vie de spin et la magnétorésistance.

Le dernier chapitre contient une conclusion et quelques perspectives et recommandations.

Chapitre I Concepts Généraux pour le Transport de Spin

I.1 Introduction :

Nous pouvons expliquer un grand nombre de propriétés physiques importantes telles que la conductance, la conductivité, ..., des métaux, surtout les métaux simples, par le modèle des électrons libres. Dans ce modèle, les électrons les moins liés aux atomes du métal se déplacent librement dans tout le volume du métal et assurent la conduction. Dans cette approximation on néglige les interactions entre les électrons de conduction et les ions.

I.2 Rappel des propriétés des gaz d'électrons libres de Fermi :

On appelle gaz d'électrons libres de Fermi, un gaz d'électrons dans lequel on néglige les interactions électron-ion ainsi que les interactions électron-électron. Les électrons de conduction sont libres de se déplacer n'importe où dans le système.

I.2.1 Notions fondamentales :

Espace des positions, espace configurationnel : c'est un espace engendré par les rayons vecteurs \vec{r} . Dans l'espace configurationnel à 3 dimensions, un point est défini par ses coordonnées cartésiennes (*x*, *y*, *z*).

Espace des moments, espace des quantités de mouvement : espace engendré par les vecteurs quantité de mouvement \vec{p} . Dans l'espace des moments, un point est défini par ses composantes caractéristiques p_x , p_y , p_z dans l'espace p.

Espace \vec{k} , espace des vecteurs d'onde \vec{k} : dans l'espace \vec{k} un point est défini par les composantes k_x, k_y, k_z .

Etat fondamental : état de plus basse énergie (le plus stable). Pour un système de *N* particules, cet état est construit en remplissant successivement les états les plus bas possibles, jusqu'à ce que toutes les *N* particules soient placées.

Niveau de Fermi : niveau d'énergie électronique quantifié dans un solide, dont la probabilité d'occupation pour un électron, calculée par la statistique de Fermi-Dirac est $\frac{1}{2}$. Dans un système composé de fermions dans son état fondamental, c'est le niveau de plus haute énergie occupé. Dans un métal, c'est le niveau le plus élevé de la bande de conduction occupé par les électrons, son énergie est notée E_F .

Energie de Fermi: E_F , énergie du niveau de Fermi, dans l'approximation des électrons libres, c'est la surface de la sphère de Fermi.

$$E_F = \frac{p_F^2}{2m} = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m}$$
(I.1)

Sphère de Fermi : volume de l'espace des moments, occupé dans son état fondamental par les électrons d'un gaz de Fermi (électrons sans interaction).

Quantité de mouvement de Fermi : \vec{p}_F , l'impulsion de Fermi est la quantité de mouvement la plus grande d'une particule de masse *m* d'un gaz de Fermi,

$$p_F = \hbar k_F = \sqrt{2mE_F} \tag{I.2}$$

Vitesse de Fermi : v_F , vitesse des particules (électron) de masse *m* à la surface de la sphère de Fermi :

$v_F = \hbar k_F / m$.	(I.3)

	Symbole	Unité	Dénomination
	E_{F}	J	Énergie de Fermi
$E_F = \frac{p_F^2}{2m} = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m}$	p_F	Kg.m/s	Quantité de mouvement de Fermi
2111 2111	k _F	m ⁻¹	Vecteur d'onde de Fermi
	т	Kg	Masse de la particule
	ħ	J.s	Constante de Planck/ 2π

Longueurs caractéristiques

Longueur d'onde électronique de Fermi :

Dans un système dégénéré de type métal, les niveaux électroniques sont occupés jusqu'à l'énergie de Fermi E_F . Les électrons responsables de la conduction ont une longueur d'onde proche de la longueur d'onde de Fermi λ_{F} . Elle permet à elle seule de caractériser nombre de propriétés d'un métal comme la densité électronique, la vitesse des électrons de conduction.

Nous avons :
$$\lambda_F = \frac{2\pi}{k_F}$$
, donc

$$\lambda_F = \frac{2\pi\hbar}{\sqrt{2mE_F}} \tag{I.4}$$

Libres parcours moyens élastique et inélastique

Les électrons de conductions subissent des collisions sur leurs trajectoires. Les principales causes sont :

- Les impuretés statiques : elles provoquent des collisions élastiques, sans perte d'énergie, seule la direction de propagation est modifiée.

- *Les phonons* : vibrations du réseau atomique activées par la température, ils provoquent des collisions inélastiques avec transfert d'énergie.

On définit pour ces différents types de collisions, deux temps caractéristiques τ_e et τ_i ainsi que des probabilité de collisions par unité de temps associées, P_{col-el} et P_{col-in}:

$$\tau_e$$
: Temps de collision élastique tel que $P_{col-el}(dt) = \frac{dt}{\tau_e}$. (I.5)

$$\tau_i$$
: Temps de collision inélastique tel que $P_{col-in}(dt) = \frac{dt}{\tau_i}$. (I.6)

Il s'ensuit la définition de deux longueurs caractéristiques du transport, le libre parcours moyen élastique l_e , et le libre parcours moyen inélastique l_i . Ces deux longueurs représentent la distance de parcourt d'un électron entre deux collisions élastique ou inélastique successives.

$$l_e = v_F \tau_e$$
 et $l_i = v_F \tau_i$ (I.7)

Longueur de cohérence de phase L_{φ} :

Lorsque $\tau_i \ge \tau_e$ une nouvelle longueur "inélastique" plus pertinente est définie : la longueur de cohérence de phase L_{φ} . En effet, selon cette condition, entre deux collisions inélastiques le transport est diffusif, autrement dit les électrons se déplacent dans un chemin aléatoire. Nous avons ainsi pendant le temps τ_i , τ_i/τ_e orientations aléatoires de longueur l_e . Nous définissons alors L_{φ} dans une direction donnée de la manière suivante :

$$L_{\varphi}^{2} = \frac{\tau_{i}}{\tau_{e}} l_{e}^{2} \langle (\cos(\theta))^{2} \rangle = \frac{1}{2} v_{F} l_{e} \tau_{i} = D \tau_{i}$$
(I.8)

où $D = \frac{1}{2} v_F l_e$ est le coefficient de diffusion électronique (voir annexe I). (I.9)

La quantité $l_e^2 \langle (\cos(\theta)^2) \rangle$ est la valeur moyenne de l_e^2 dans une direction donnée.

Cette longueur définit la distance sur laquelle un électron diffuse en gardant sa phase électronique. Pour être plus précis, les collisions inélastiques ne conservent pas la norme du vecteur d'onde \vec{k} de l'électron. La phase électronique est ainsi perdue contrairement aux collisions élastiques, lesquelles conservent la norme. Imaginons une interférence entre 2 ondes électroniques : $\psi_1 = A_1 e^{ik_1x_1}$ et $\psi_2 = A_2 e^{ik_2x_2}$. La fonction d'onde globale s'écrit $\psi = \psi_1 + \psi_2$ et la densité de probabilité devient :

$$|\psi|^2 = |A_1|^2 + |A_2|^2 + 2A_1A_2\cos(k_1x_1 - k_2x_2)$$
 (I.10)

Le terme en $\cos(k_1x_1 - k_2x_2)$ représente l'interférence entre les deux ondes et dépend de leur différence de phase. Dans le cas de collisions élastiques $k_1 = k_2 = k$, la phase au cours d'un trajet est toujours définie, elle est fixée et est égale à $k(x_1 - x_2)$.

I.3 Transport électronique :

Considérons un gaz unidimensionnel d'électrons libres, obéissant à la théorie quantique et au principe de Pauli. Un électron de masse *m* est enfermé dans un segment de longueur *L* par des barrières infiniment hautes, la fonction d'onde $\psi_n(x) = Ae^{i\vec{k}.\vec{x}}$ de l'électron est solution de l'équation Schrödinger $H\psi = E\psi$, où *H* est l'Hamiltonien. Dans le cas le plus simple où il n'y a pas de confinement ce dernier s'écrit :

$$H = \frac{1}{2m}p^2 \tag{I.11}$$

p étant la quantité de mouvement. En théorie quantique, p est représenté par :

$$p = -i\hbar \frac{d}{dx}$$
(I.12)

ce qui donne

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\frac{d^2\psi_n}{dx^2} = E_n\psi_n \tag{I.13}$$

où E_n est l'énergie de l'électron dans l'orbitale n. Nous utilisons le terme d'**orbitale** pour représenter une solution de l'équation d'onde d'un système à un seul électron. Ce terme nous permet de faire la distinction entre un état quantique exact d'un système de N électrons et un état quantique approché construit en affectant les N électrons à N orbitales différentes, où chacune d'elle est une solution d'une équation d'onde pour un électron. Ce modèle d'orbitales n'est exact que s'il n y a aucune interaction entre les électrons.

Les conditions aux limites :

$$\psi_n(0) = 0 \; ; \psi_n(L) = 0$$
 (I.14)

imposées par les barrières infinies sont satisfaites si la fonction d'onde est sinusoïdale avec un nombre entier n de demi périodes entre 0 et L

$$\psi_n = A\sin\left(\frac{2\pi}{\lambda_n}x\right) \quad , \lambda_n = \frac{2L}{n}$$
(I.15)

où A est une constante. Nous voyons que (I.15) est solution de (I.13), et l'énergie s'écrit :

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{n\pi}{L}\right)^2$$
(I.16)

Nous voulons placer N électrons sur le segment. D'après le principe d'exclusion de Pauli, deux électrons ne peuvent pas avoir tous leurs nombres quantiques identiques. Chaque orbitale peut être occupée par un électron au maximum. Dans un solide linéaire, les nombres quantiques d'un électron de conduction sont n et m_s , où n est un entier quelconque positif et $m_s = \pm \frac{1}{2}$, suivant l'orientation du spin. Une paire d'orbitales associée au nombre quantique n

peut recevoir deux électrons de spin opposés.

Soit n_F le niveau rempli d'énergie la plus élevée; nous commençons le remplissage par le niveau le plus bas (n=1) et nous continuons à remplir les niveaux supérieurs jusqu'à ce que les N électrons aient été placés. La condition $2n_F=N$, détermine n_F . Nous avons dans le modèle unidimensionnel :

$$E_F = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{n_F \pi}{L}\right)^2 = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{N\pi}{2L}\right)^2.$$
 (I.17)



Figure I.1 : Niveau de Fermi.

De la même façon, on peut trouver l'énergie E_n pour le cas d'un système à deux et trois dimensions et calculer ainsi l'énergie de Fermi [1].

I.3.1 Fonction de Distribution de Fermi Dirac :

L'état fondamental est l'état du système au zéro absolu. Qu'advient il si la température augmente ? C'est un problème classique en mécanique statistique élémentaire et sa solution est donnée par la fonction de distribution de Fermi-Dirac. L'énergie cinétique du gaz d'électrons augmente quand la température augmente. La fonction de distribution de Fermi Dirac donne la probabilité qu'une orbitale d'énergie *E* soit occupée. Dans le cas d'un gaz électronique idéal en équilibre thermique, elle s'écrit:

$$f(E) = \frac{1}{e^{(E-\mu)/k_B T} + 1}$$
(I.18)

où μ est le potentiel chimique et k_B la constante de Boltzmann.



Figure I.2 : Evolution de la distribution de Fermi-Dirac pour 0K, 100K et 300K ($\mu = 50$ meV).

La quantité μ est fonction de la température. Pour un problème donné, μ doit être choisi de telle façon que le nombre total de particules dans le système soit N.

Au zéro absolu, $\mu = E_F$ car lorsque $T \to 0$, la fonction f(E) passe de façon discontinue de la valeur 1 (rempli) à la valeur 0 (vide) pour $E = E_F = \mu$. Pour des températures T > 0, f(E) est égale à $\frac{1}{2}$ quand $E = \mu$.

Pour les énergies supérieures au niveau de Fermi, nous avons $E - \mu \rangle \rangle k_B T$. Dans ce cas l'exponentielle est le terme prépondérant dans le dénominateur de l'équation (**I.18**). Donc : $f(E) \approx e^{(\mu - E)/K_B T}$ qui n'est autre que la distribution de Boltzmann. A haute température, le gaz d'électrons devient donc classique.

I.3.2 Gaz d'électrons libres à trois dimensions :

L'équation de Schrödinger pour une particule libre dans l'espace à trois dimensions est :

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \psi_k(r) = E_k \psi_k(r).$$
(I.19)

Si les électrons sont emprisonnés dans un cube de coté L, la fonction d'onde est celle de l'onde stationnaire :

$$\psi_n(r) = A\sin(\pi n_x x/L)\sin(\pi n_y y/L)\sin(\pi n_z z/L)$$
(I.20)

où n_x, n_y, n_z sont des entiers positifs.



Il est pratique d'introduire des fonctions d'ondes qui satisfont aux conditions aux limites périodiques. Nous imposons donc que les fonctions d'onde soient périodiques en x, y, z avec une période L, donc :

$$\psi(x+L, y, z) = \psi(x, y, z)$$
 (I.21)

et de même pour les coordonnées *y* et *z*. Les fonctions d'onde satisfaisant à l'équation de Schrödinger pour une particule libre et à la condition de périodicité ont la forme d'une onde progressive :

$$\psi_k(r) = e^{iK.r} \tag{I.22}$$

à condition que les composantes de k vérifient :

$$k_x = 0 \; ; \pm \frac{2\pi}{L} \; ; \pm \frac{4\pi}{L} \; ; \pm \frac{6\pi}{L}$$
 (I.23)

et de même pour k_y et k_z . Les composantes de k sont de la forme $\frac{2n\pi}{L}$ où n est un entier positif ou négatif. Les composantes de k sont les nombres quantiques du problème, au même titre que le nombre quantique m_s pour la direction du spin.

En substituant (**I.22**) dans (**I.16**) nous obtenons la valeur de l'énergie E_k de l'orbitale correspondant au vecteur d'onde *k*:

$$E_{k} = \frac{\hbar^{2}}{2m}k^{2} = \frac{\hbar^{2}}{2m}(k_{x}^{2} + k_{y}^{2} + k_{z}^{2}) = \frac{\hbar^{2}}{2m}\frac{\pi^{2}}{L^{2}}(n_{x}^{2} + n_{y}^{2} + n_{z}^{2})$$
(I.24)

Dans l'état fondamental d'un système de N électrons libres, les orbitales occupées peuvent être représentées par des points intérieurs à une sphère de l'espace **k**. L'énergie à la

surface de la sphère est l'énergie de Fermi, les vecteurs d'onde à la surface de Fermi ont l'amplitude k_F telle que :

$$E_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m} \tag{I.25}$$

De (**I.23**) nous déduisons qu'il y a un seul vecteur d'onde possible, c'est-à-dire un seul triplet de nombres quantiques n_x, n_y, n_z - pour l'élément de volume $(2\pi/L^3)$ de l'espace **k.** Par conséquent dans la sphère de volume $4\pi k_F^3/3$ le nombre total d'orbitales est :



Figure I.3 : L'état fondamental d'un système à N électrons libres.

Dans l'état fondamental d'un système de N électrons libres, les états occupés du système remplissent une sphère de rayon k_F , où $E_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m}$ est l'énergie d'un électron ayant un vecteur d'onde k_F . On peut alors facilement calculer k_F :

$$k_F = (3\pi^2)^{1/3} \left(\frac{N}{V}\right)^{1/3}$$
(I.27)

qui ne dépend que de la densité des particules et non de leur masse. En utilisant l'équation (**I.25**), nous avons :

$$E_{F} = \frac{\hbar^{2}}{2m} \left(\frac{3\pi^{2}N}{V}\right)^{2/3}$$
(I.28)

qui relie l'énergie de Fermi à la concentration en électron N/V. La vitesse v_F d'un électron à la surface de Fermi est :

$$v_F = \left(\frac{\hbar k_F}{m}\right) = \frac{\hbar}{m} \left(\frac{3\pi^2 N}{V}\right)^{1/3}$$
(I.29)

On peut alors facilement calculer N:

$$N = \frac{V}{3\pi^2} \left(\frac{2mE_F}{\hbar^2}\right)^{3/2}$$
(I.30)

Des valeurs de k_F , v_F et E_F , calculées pour certains métaux, sont données dans le tableau (I.1), on y trouvera aussi la valeur de la température de Fermi T_F , égale à E_F/k_B . (La quantité T_F n'a rien à voir avec la température du gaz d'électrons).

Métal	Concentration en électrons (en 10 ²² cm ⁻¹)	Vecteur d'onde de Fermi (en 10 ⁸ cm ⁻¹)	Vitesse de Fermi (en 10 ⁸ cm ⁻¹)	Energie de Fermi (en eV)	Température de Fermi T_F (en10 ⁴ K)
Li	4,70	1,11	1,29	4,72	5,48
Na	2,65	0,92	1,07	3,23	3,75
Κ	1,40	0,75	0,86	2,12	2,46
Rb	1,15	0,70	0,81	1,85	2,15
Cs	0,91	0,64	0,75	1,58	1,83
Cu	8,45	1,36	1,57	7,00	8,12
Ag	5,85	1,20	1,39	5,48	6,36
Au	5,90	1,20	1,39	5,51	6,39
Be	24,2	1,93	2,23	14,14	16,41
Mg	8,60	1,37	1,58	7,13	8,27
Ca	4,60	1,11	1,28	4,68	5,43
Sr	3,65	1,02	1,18	3,95	4,58
Al	18,06	1,75	2,02	11,63	12,01
Pb	13,20	1,57	1 ,82	9,37	10,87
Sn	14,48	1,62	1,88	10,03	11,64

Tableau I.1 : Energies, températures, vecteurs d'ondes, et vitesses de Fermi de plusieurs métaux, calculés à partir de la densité d'électrons de conduction dans le modèle d'électrons

libres.

I.3.3 Densité d'états à champ nul :

La densité d'états intervient dans le calcul de nombreuses quantités physiques des métaux. Elle est définie comme le nombre d'états par unité de volume et d'énergie, nous la noterons n(E). Le calcul de cette densité de gaz d'électrons libres nous aide dans la suite pour le calcul de la conductivité des métaux. A partir des relations précédentes, on peut facilement calculer la densité d'états pour plusieurs dimensions (3D, 2D, 1D).

I.3.3.1 Densité d'états pour un système à 1D :

Pour un système à une dimension (fil quantique), les électrons n'ont plus qu'un seul degré de liberté puisqu'ils sont confinés dans les deux autres dimensions.

La densité
$$n(E)$$
 s'écrit comme : $n(E) = \frac{dN}{dE}$. (I.31)

En utilisant l'équation (I.25) on obtient:

$$n(E) = \frac{\sqrt{2m}}{\pi\hbar} \left(\frac{L}{\sqrt{E}}\right)$$
(I.32)

I.3.3.2 Densité d'états pour un système à 2D :

De la même façon, pour les puits quantiques à 2D, les électrons peuvent se déplacer dans le plan des couches mais restent confinés dans la troisième dimension. Ils ont donc deux degrés de liberté. On trouve facilement la densité d'états comme :

$$n(E) = \frac{m}{\pi \hbar^2}$$
(I.33)

qui ne dépend plus de E, c'est une caractéristique typique des systèmes à deux dimensions.

I.3.3.3 Densité d'états pour un système à 3D :

La densité d'états n(E) pour un gaz d'électrons libres à trois dimensions représente le nombre d'états électroniques (spin inclus) d'énergie comprise entre E et E+dE. Ces états correspondent à des vecteurs d'onde \vec{k} compris entre les sphères de rayons : $k = \sqrt{\frac{2mE}{\hbar^2}}$

$$\operatorname{et} k + dk = \sqrt{\frac{2m(E+dE)}{\hbar^2}}$$



Figure I.4: Relation de dispersion E (k) et densité d'états n(E) correspondante, (a) et (b) pour un gaz d'électrons 3D, (c) et (d) pour un gaz 2D, (e) et (f) pour un gaz 1D.

La dépendance de la densité d'états en fonction de l'énergie est différente selon la dimensionnalité du système. A trois dimensions, elle varie comme \sqrt{E} , à deux dimensions elle est constante et à une dimension elle varie comme $\frac{1}{\sqrt{E}}$ [2].

I.3.4 Effet du champ Electrique :

Dans un champ électrique $\vec{\varepsilon}$ la force exercée sur un électron de charge –e est $\vec{F} = -e\vec{\varepsilon}$ de sorte que la seconde loi de Newton s'écrit :



Figure I.5 : Translation de la sphère de Fermi de δk dans l'espace des k sous l'action d'un champ électrique.

En présence de collisions, la sphère de Fermi (figure ci dessus) de l'espace k est déplacée à vitesse constante sous l'effet d'un champ électrique constant. Nous obtenons :

$$\mathbf{k}(\mathbf{t}) - \mathbf{k}(0) = -\mathbf{e}\varepsilon\mathbf{t}/\hbar \tag{I.36}$$

Si le champ est appliqué à l'instant t=0 au gaz d'électrons, la sphère est déplacée et son centre est en :

$$\delta \mathbf{k} = \frac{-\mathbf{e}\varepsilon}{\hbar} \mathbf{t}$$
 (I.37)

A cause des collisions des électrons avec les impuretés, les défauts du réseau et les phonons, la sphère déplacée peut être maintenue stationnaire dans un champ électrique. Si le temps de la collision est τ , le déplacement de la sphère de Fermi en régime continu est donné par (**I.37**).

En supposant que $\delta E \langle \langle E_F \rangle$, on peut écrire $\delta n \cong n(E_F) \delta E$ ainsi que est $v \cong v_F$;



Figure I.6 : Densité d'états en fonction de l'énergie.

La densité de courant électronique peut s'écrire :

$$j = -\delta \operatorname{nev}_{F} = -\operatorname{ev}_{F} n(E_{F}) \delta E = -e \operatorname{v}_{F} n(E) \frac{dE}{dk} \mid_{E=E_{F}} \delta k$$

et comme $E_{F} = \frac{\hbar^{2} k_{F}^{2}}{2m} \Rightarrow \frac{dE}{dk} \mid_{E=E_{F}} = \frac{\hbar^{2}}{m} k_{F} = \hbar \operatorname{v}_{F}$, on en déduit
 $j = -\operatorname{v}_{F}^{2} en(E_{F}) \hbar \delta k$ (I.38)

Détermination de δk:

$$F = -e\varepsilon = \frac{dp}{dt} = \hbar \frac{dk}{dt} \Rightarrow dk = -\frac{e\varepsilon}{\hbar} dt$$
$$\Rightarrow \delta k = -\frac{e\varepsilon}{\hbar} \delta t = -\frac{e\varepsilon}{\hbar} \tau$$
(I.39)

La densité de courant devient :

$$j = e^2 \mathbf{v}_F^2 n(E) \tau \varepsilon \tag{I.40}$$

<u>Remarque :</u>

Seule la projection de v_F sur l'axe x intervient, car les autres composantes s'annulent. A deux et trois dimensions, il faut moyenner sur les différentes orientations. Ce qui donne :

$$\left\langle v_F^2 \right\rangle = \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} (v_F \cos\theta)^2 d\theta = \frac{1}{2} v_F^2$$
(I.41)

pour le cas d'un système à deux dimensions, et

$$\left\langle v_F^2 \right\rangle = \int_{\frac{-\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \int_{\frac{-\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} (v_F \cos\theta\cos\varphi)^2 d\theta d\varphi = \frac{1}{3} v_F^2$$
(I.42)

pour un système à trois dimensions.



Figure I.7 : La projection de v_F sur l'axe x.

Finalement, on obtient :

$$j = \frac{1}{3}e^2 v_F^2 n(E_F) \tau \varepsilon = \sigma \varepsilon$$
 (I.43)

La conductivité électrique à 3D s'écrit donc

$$\sigma = \frac{1}{3}e^2 \mathbf{v}_{\mathrm{F}}^2 n(E)\tau \tag{I.44}$$

I.4 Théorie des bandes :

Si les solutions de l'équation de Schrödinger sont écrites sous la forme $\psi_k(r) = e^{ikr}u_k(r)$, la fonction $u_k(r)$ doit satisfaire à l'équation différentielle.

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m}(-k^2 + 2ik.\nabla + \nabla^2) + U(r)\right]u_k(r) = \zeta_k u_k(r)$$
 (I.45)

En général, cette équation a une infinité de solutions que l'on repère par un nombre quantique supplémentaire n appelé indice de bandes. Les fonctions ξ_{nk} constituent la structure de bandes.



Dans la théorie des bandes, on suppose que les électrons n'interagissent pas entre eux. Les états propres à N électrons sont alors obtenus en plaçant un électron dans chaque état quantique. A ce stade, il faut prendre en compte le spin des électrons. Chaque état quantique est repéré par son énergie $\xi_{nk\sigma}$, $\sigma = \uparrow \text{ou} \downarrow$. En l'absence de champ magnétique, et si le système a un centre d'inversion, $\xi_{nk\uparrow} = \xi_{nk\downarrow}$.

De façon générale, il existe des énergies ne correspondant à $\xi_{nk\sigma}$ pour aucune valeur de $(nk\sigma)$. Ces énergies forment des intervalles appelés *bandes interdites*.

<u>Remarque</u>: l'existence de bandes interdites n'est une réalité que pour les solides. En présence d'une surface, il y a d'autres solutions dont l'énergie tombe dans les bandes interdites. Il s'agit de solutions telles que :

$$\psi(r+R) = z\psi(r) \tag{I.46}$$

où z est un nombre complexe.

L'état fondamental d'un système à 3D est obtenu en remplissant les niveaux d'énergie en partant du plus bas. Deux cas de figure peuvent se présenter :

1. Toutes les bandes sont soit complètement pleines, soit complètement vides.

Le premier état excité est séparé du fondamental par l'énergie Δ qui sépare la dernière bande occupée de la première bande vide. Du coup il est impossible de mettre les électrons en mouvement en appliquant une tension arbitrairement petite: le système est un isolant. Comme
il y a 2N états par bande, ceci n'est possible que si le nombre d'électrons par maille élémentaire est un entier pair.

2. Une ou plusieurs bandes sont partiellement remplies [6]. L'énergie du dernier état occupé est l'énergie de Fermi. Dans ce cas, la séparation entre le dernier état occupé et le premier état vide tend vers 0 quand $N \rightarrow \infty$. Le système peut répondre à des excitations infinitésimales. De tels systèmes sont dits métalliques (ou conducteurs) ou bien semicnducteurs. Cette classification est sans doute le plus grand succès de la théorie des bandes. Avant cette théorie, l'existence de métaux et d'isolants était un grand mystère. De très nombreuses conséquences de cette théorie ont été vérifiées.

I.5 Différents régimes de transports :

Les considérations précédentes nous permettent maintenant de distinguer différents régimes de transport (figure I.8). Soit un conducteur plan de longueur L très grande devant la largeur W.

Si l'on considère le cas $L_{\varphi}\rangle\rangle L$, les électrons sont alors traités comme des particules cohérentes, les phénomènes d'interférences modifiant fortement le transport dit alors *cohérent*. A l'inverse, dans le régime correspondant à $L_{\varphi}\langle L$, que nous appellerons *classique*, les électrons sont des particules *purement* classiques, à l'image de boules de billard.

I.5.1Transport diffusif classique:

Dans le cas où $L_{\varphi} \langle L$, le transport s'étudie principalement en terme de collisions inélastiques, détruisant toute corrélation, et par conséquent indépendant de la forme du système. Les propriétés macroscopiques d'un tel système sont décrites par le modèle de Drude (voir plus loin) [3].

I.5.2Transport balistique:

Lorsque les dimensions du système sont inférieures au libre parcours moyen $L_{\varphi} \rangle l_{e} \rangle L, W$, le transport est dit *balistique*, les électrons se déplacent librement dans la structure sans qu'une collision de quelque sorte que ce soit, inélastique où élastique, ne se produise, si ce n'est sur le bord de l'échantillon. Les propriétés de transport sont essentiellement gouvernées par la géométrie du système.

I.5.3 Transport mésoscopique diffusif:

Enfin, on peut distinguer un cas intermédiaire, pour lequel $W\langle l_e \langle L \langle L_{\varphi} \rangle$, que nous nommerons *mésoscopique diffusif*. La trajectoire des électrons est un chemin aléatoire. Cependant, la cohérence de phase est toujours conservée. Les effets d'interférences doivent être encore pris en compte. Ces corrections quantiques à la théorie classique rendent le système sensible à la configuration précise des impuretés.



Figure I.8 : Longueurs caractéristiques et régimes de transport correspondants.

Ce schéma correspond au cas où $L_{o} \rangle l_{e}$, à suffisamment basse température, c'est-à-dire pour le

cas où le transport est cohérent.

I.6 Modèle de Drude :

Dans le modèle de Drude [4], les électrons participent de manière égale à la conduction, ce qui est vrai si l'on considère uniquement les électrons au voisinage du niveau de Fermi.

Dans le cas général du régime diffusif classique, les électrons de conduction ont un mouvement désordonné dans toutes les directions, gouverné par les nombreuses collisions effectuées (avec les impuretés, les défauts du réseau, les phonons....).

L'application d'un champ électrique $\vec{\varepsilon}$ se traduit par l'acquisition d'une vitesse de dérive \vec{v}_d , qui est la valeur moyenne des vitesses acquises après chaque collision, à savoir $\vec{v}_d = -e\vec{\varepsilon}\tau_e/m$, avec τ_e le temps de relaxation ou temps moyen entre deux collisions. On peut alors définir la mobilité électronique μ_e par $\vec{v}_d = -\mu_e\vec{\varepsilon}$, soit

$$\mu_e = \frac{e\tau_e}{m} \tag{I.47}$$

Le courant correspondant a pour densité

$$\vec{j}_d = -en_{2d}(E)\vec{v}_d = \sigma\vec{\varepsilon}$$
(I.48)

avec σ la conductivité électrique. Cette dernière s'exprime alors simplement dans le modèle

de Drude.
$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m}$$
. (I.49)

I.6.1 Effet de champ magnétique :

En présence d'un champ magnétique, les électrons sont soumis à la force de Lorentz $\vec{F} = -e\vec{\epsilon} \wedge \vec{B}$. Elle modifie σ qui devient une quantité tensorielle. En résolvant les équations de mouvement pour les vitesses, on trouve

$$\vec{\tilde{\sigma}} = \frac{\sigma_0}{1 + (\omega_c \tau_e)} \begin{pmatrix} 1 & -\omega_c \tau_e \\ \omega_c \tau_e & 1 \end{pmatrix}$$
(I.50)

ou σ_0 est la conductivité de Drude pour $\vec{B} = \vec{0}$, et $\omega_c = \frac{eB}{\mu}$ est la pulsation cyclotron.

La résistivité s'écrit $\vec{\vec{\rho}} = \vec{\vec{\sigma}}^{-1}$ d'où:

$$\vec{\vec{\rho}} = \frac{1}{\sigma_0} \begin{pmatrix} 1 & -\omega_c \tau_e \\ \omega_c \tau_e & 1 \end{pmatrix}$$
(I.51)

I.7La conductance, modèle de Landauer-Büttiker :

Le formalisme de Landauer-Büttiker permet de relier la conductivité d'un système à la probabilité qu'un électron a de traverser le système, appelé communément le coefficient de transmission. C'est une généralisation de la théorie développée pour décrire l'injection de courant dans une jonction tunnel [5].

<u>I.7.1Transport balistique :</u>

Dans la section précédente nous avons vu que le transport diffusif est caractérisé par le fait que l'électron traverse le système en faisant beaucoup de collisions. Un système balistique est quant à lui caractérisé par le fait que l'électron ne subit aucune collision. Il traverse balistiquement le conducteur sans dissiper d'énergie.



Figure I.9 : Schéma de principe d'un système balistique. Système unidimensionnel possédant dans l'exemple, deux bandes de conductions donc deux canaux de conduction.

Considérons un système unidimensionnel caractérisé par N canaux de conductions (N bandes de conduction électronique) et connecté à deux réservoirs d'électrons macroscopiques : (figure I.9) caractérisés par des potentiels chimiques μ_1 et μ_2 tels que :

$$\mu_1 - \mu_2 = eV \tag{I.52}$$

V étant la tension de polarisation. Nous nous plaçons à température nulle. En plus du fait que les électrons ne subissent aucune collision, on considère des contacts sans réflexion [6]. Dans le sens conducteur/réservoir les électrons ne sont pas réfléchis. Les électrons se propageant de 1 vers 2 rentrent dans le système avec le potentiel μ_1 , ne subissant pas de collisions, il traverse le système avec la même énergie donc conserve le potentiel μ_1 . N'étant pas réfléchis à l'interface conducteur/contact, on peut caractériser les électrons se propageant de 1 vers 2 par le potentiel μ_1 . Il en est de même pour les électrons se propageant de 2 vers 1, ils sont caractérisés par le potentiel μ_2 .

Comme décrit dans le transport classique, on observe une dissymétrie de la distribution en énergie. Dans l'intervalle d'énergie μ_{1_u} , μ_2 , un courant est créé. Nous avons :

$$I = e \int v(E)n(E)dE$$
 (I.53)

En tenant compte du spin et pour une direction de propagation :

$$n(E) = \frac{N}{\pi} \frac{\partial k}{\partial E}$$
(I.54)

$$v(E) = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial E}{\partial k}$$
(I.55)

$$I = \frac{2e N}{h} (\mu_1 - \mu_2) = \frac{2e^2 N}{h} V$$
 (I.56)

où V est la différence de potentiel. La conductance $G = \frac{I}{V}$ s'en déduit alors :

$$G = \frac{I}{V} = \frac{2e^2N}{h} = NG_0$$
 (I.57)

$$G_0 = \frac{2e^2}{h}$$
 est le quantum de la conductance (I.58)

Nous obtenons la conductance d'un système unidimensionnel balistique. Les points à noter sont :

- La conductance est indépendante de la longueur du système, la loi d'Ohm $G = \sigma \frac{S}{L}$ est rompue.

- Elle dépend du nombre de canaux et évolue par palier. C'est un multiple entier de $G_0 = \frac{2e^2}{h} = (12,9K\Omega)^{-1}.$ (I.59)

Un système balistique se comporte comme un guide d'onde électronique, les électrons se propagent à énergie constante selon un mode électronique donné.

I.7.2 Conductance d'un système désordonné :

Une barrière tunnel est caractérisée par un coefficient de transmission T qui permet de définir sa conductance. La formulation de Landauer-Büttiker généralise ce principe à un conducteur quelconque. Comme nous l'avons vu, la conductance étant reliée au coefficient de diffusion, elle peut être reliée au coefficient de transmission du système.

Considérons le système suivant, (figure I.10) deux réservoirs de potentiel μ_1 et μ_2 tels que $\mu_1 - \mu_2 = eV$, reliés au système désordonné ayant N canaux de conduction et caractérisé par le coefficient de transmission T.



Figure I.10 : Schéma de principe pour un système désordonné.

En utilisant l'équation (I.53) pour les canaux $1(0\langle E \langle \mu_1 \rangle)$ et $2(0\langle E \langle \mu_2 \rangle)$, nous avons :

$$I_{1} = e \int_{0}^{\mu_{1}} v(E)n(E)dE$$
(I.60)
$$I_{2} = e \int_{0}^{\mu^{2}} v(E)n(E)dE$$
(I.61)

$$I = I^{+} - I^{-} = TI_{1} - TI_{2} = eT \int_{\mu_{2}}^{\mu_{1}} v(E)n(E)dE = \frac{2eN}{h}T(\mu_{1} - \mu_{2})$$

Donc

$$G = \frac{2e^2 NT}{h} \tag{I.62}$$

La conductance est tout simplement proportionnelle au cœfficient de transmission du système. L'expression précédente exprime la conductance à deux pointes du système global (contact+zone désordonnée). Nous remarquons que nous pouvons écrire la résistance R de la manière suivante :

$$R = \frac{1}{G} = \frac{h}{2e^2 N} \frac{1}{T} = \frac{h}{2e^2 N} + \frac{h}{2e^2 N} \frac{1-T}{T}$$
(I.63)

Nous retrouvons un terme indépendant de la transmission. Il représente la résistance de contact due au changement brusque du nombre de canaux. Le deuxième terme représente la résistance intrinsèque du système. En régime balistique T = 1, ce qui nous permet de retrouver l'expression trouvée précédemment.

I.7.3 Transport incohérent :

Connaissant l'expression de la conductance, on montre qu'en régime incohérent [4], c'est à dire lorsque $\tau_{\varphi} \langle \langle \tau_e \text{ et } l_e \langle L \rangle$, nous retrouvons la loi d'ohm d'après la formulation de Landauer-Büttiker. Ceci nous permet aussi de montrer la complémentarité avec le modèle de Boltzmann. Considérons deux diffuseurs au sein du système caractérisé par les coefficients de transmission T₁, T₂ et de réflexion R₁, R₂ tels que T₁ = 1 – R₁ et T₂ = 1 - R₂. La transmission à travers les deux diffuseurs s'écrit alors [7]:

$$T_{tot} = T_1 T_2 + T_1 R_1 R_2 T_2 + T_1 R_1 R_2 R_1 R_2 T_2 + \dots$$
(I.64)

$$T_{tot} = T_1 T_2 (1 + R_1 R_2 + R_1^2 R_2^2 + \dots R_1^n R_2^n)$$
(I.65)

Donc

$$T_{tot} = \frac{T_1 T_2}{1 - R_1 R_2}$$
(I.66)

Nous additionnons les différents chemins que peut emprunter l'électron, c'est-à-dire les multiples réflexions effectuées à travers les deux diffuseurs [7]. Nous obtenons une somme géométrique de raison R_1R_2 . Le coefficient T_{tot} peut s'écrire de la manière suivante :

$$\frac{1 - T_{tot}}{T_{toy}} = \frac{1 - T_1}{T_1} + \frac{1 - T_2}{T_2}$$
(I.67)

L'expression $\frac{1-T}{T}$ a donc une propriété additive. Or comme nous l'avons vu auparavant, ce terme est proportionnel à la résistance intrinsèque d'un diffuseur. Ceci veut dire que la combinaison de deux diffuseurs en régime incohérent augmente la résistance de façon linéaire comme l'on s'attend à observer d'après la loi d'Ohm. Nous avons donc pour *M* diffuseurs ayant un coefficient de transmission T.

$$\frac{1-T_{tot}}{T_{toy}} = M \frac{1-T}{T} \Longrightarrow T_{tot} = \frac{T}{M(1-T)+T}$$
(I.68)

Posons
$$L_0 = \frac{T}{\alpha(1-T)}$$
 avec $\alpha = \frac{N}{L}$ nous avons alors $:T_{tot} = \frac{L_0}{L+L_0}$. On trouve donc

$$R = \frac{h}{2e^2N} + \frac{h}{2e^2N} \frac{L}{L_0}$$
(I.69)

$$R = R_c + R_{cl} \tag{I.70}$$

avec R_{cl} : la résistance classique et R_c : la résistance de contact [7].

I.7.4 Transport cohérent :

Dans le cas du transport cohérent, on a $\tau_{\varphi}\rangle\rangle\tau_{e}$ et $L_{\varphi}\rangle L$ et les interférences entre trajectoires doivent être prises en compte. Considérons deux diffuseurs caractérisés par des coefficients de transmission :

$$T_1 = |t_1|^2$$
 et $T_2 = |t_2|^2$ (I.71)

En régime cohérent nous devons combiner les amplitudes de probabilité t pour tenir compte des phénomènes de cohérence électronique. Entre les diffuseurs, l'électron conservant son vecteur d'onde, nous devons considérer le déphasage θ qu'il acquiert entre les deux diffuseurs [5]. Ce déphasage est à l'origine d'interférences constructives ou destructrices entre les allers et retours effectués par l'électron entre les deux diffuseurs. Nous pouvons montrer que la transmission totale s'écrit alors [8]:

$$T = \frac{T_1 T_2}{1 - \sqrt{R_1 R_2 \cos(\theta)} + R_1 R_2} = \frac{1 + R_1 R_2 - T_1 T_2}{T_1 T_2}$$
(I.72)

La résistance intrinsèque (sans tenir compte de R_c) s'écrit alors de la manière suivante :

$$R = R_a + R_b + 2 \times \frac{2e^2N}{h} R_a R_b$$
 (I.73)

Avec R_a , R_b la résistance de réservoir a et b respectivement .

En régime cohérent la linéarité est brisée, la résistance de deux conducteurs n'est pas la somme des deux résistances.

Calculons la résistance d'un conducteur unidimensionnel (N=1) de dimension L. En considérant qu'un petit élément ΔL obéit encore à la loi d'Ohm, nous avons (sans prendre en compte la résistance de contact) [9] :

$$R(L + \Delta L) = R(L) + \frac{h}{2e^2} \frac{\Delta L}{L_0} + 2R(L) \frac{h}{2e^2} \frac{\Delta L}{L_0}$$

$$\frac{\Delta R(L)}{\Delta L} = \frac{h}{2e^2} \frac{1}{L_0} + \frac{2}{L_0} R(L)$$
(I.74)

Cette équation différentielle a une solution R(L) de la forme :

$$R(L) = \frac{h}{4e^2} (\exp\left(\frac{2L}{L_0}\right) - 1)$$
 (I.75)

En régime cohérent, plus le système est grand moins il conduit et ceci de manière exponentielle. Les électrons ont tendance à se localiser à cause de la cohérence électronique entraînant des phénomènes d'interférences entre les trajectoires électroniques.

Chapitre II L'électronique de Spin ou Spintronique

II.1 Introduction :

L'électronique de spin, ou "spintronique", est une nouvelle thématique de recherche en plein essor depuis la fin des années 80. Les premières structures étudiées dans ce domaine sont constituées de multicouches métalliques ferromagnétiques, séparées soit par des isolants "tunnel", soit par des films métalliques non magnétiques. Leurs principes de fonctionnement sont liés à une propriété des métaux ferromagnétiques relative au spin des électrons : ils injectent ou collectent préférentiellement des porteurs dont le spin est polarisé suivant la direction de leur moment magnétique. De tels dispositifs sont déjà utilisés au niveau industriel en tant que capteurs de champ magnétique pour têtes de lecture de disques durs, ou des mémoires MRAM magnétiques.

Durant ces quatre dernières années, des groupes travaillant dans le domaine des composants à semiconducteurs se sont également intéressés aux propriétés du spin de l'électron. En effet, des études récentes ont montré qu'il est envisageable d'agir sur le spin des porteurs de charge et d'utiliser cette grandeur pour modifier les caractéristiques électriques et optiques des structures à semiconducteurs.

II.2 Définition de spin :

Le spin est, en mécanique quantique, une observable un peu mystérieuse, qui n'a pas d'analogue classique bien précis contrairement à l'impulsion, au moment cinétique, à la position... Et pourtant on s'en fait souvent une idée en l'associant à un moment cinétique intrinsèque de la particule. Ainsi les électrons qui ont un spin 1/2 et dont la projection sur une direction arbitraire peut prendre les valeurs $\pm 1/2$ sont souvent décrits comme des toupies tournant dans un sens ou dans l'autre. Le spin des électrons intervient de façon prépondérante dans tous les domaines de la physique : l'expérience de Stern et Gerlach a été cruciale pour élaborer la mécanique quantique ; les expériences de collisions, à très hautes énergies, d'électrons polarisés ont confirmé les théories unifiant les interactions faibles et électromagnétiques; la liaison chimique covalente se fait par association de deux spins opposés. En physique du solide, le spin des électrons est à l'origine du magnétisme. En effet, on associe au spin un moment magnétique élémentaire et, dans un solide magnétique, l'aimantation provient de ce qu'il existe davantage de spins électroniques pointant dans une direction que dans la direction opposée.

II.3 Fondements de la spintronique :

Les dispositifs qui utiliseraient le spin seront nécessairement petits, et nécessitent une très faible énergie pour leur maintien. Par ailleurs, la nature quantique du spin permet d'envisager des utilisations purement quantiques telles que les ordinateurs quantiques (cet aspect est détaillé dans le mémoire de magister de A.Oumsallem [transport de spin dans les nanomatériaux: application aux ordinateurs quantiques].

II.3.1 Asymétrie de spin des porteurs du courant :

Dans un matériau non magnétique, qu'il soit métallique, isolant ou semi-conducteur, le nombre d'électrons de spin up et de spin down est le même. Dans un matériau magnétique, ce nombre est différent. C'est justement cette différence qui donne lieu à l'apparition d'un moment magnétique macroscopique non nul. Dans les métaux magnétiques usuels (fer, cobalt, nickel et leurs alliages), les électrons responsables du magnétisme sont ceux-la mêmes qui participent au transport électrique. L'asymétrie de spin des porteurs est la première brique de base de la spintronique.

II.3.2 Approximation de Mott [10] :

Dans un métal, le mouvement des électrons est freiné par la diffusion due aux impuretés du réseau, aux défauts (dislocations, joints de grains, ...) et aux excitations collectives (phonons, magnons) : c'est l'origine de la résistance électrique. En première approximation, lors des collisions et autres diffusions subies par les électrons, la probabilité de diffusion avec retournement du spin est négligeable. En d'autres termes, le spin des électrons est, en première approximation, conservé. On peut donc considérer que les électrons de spin up et de spin down conduisent le courant en parallèle: c'est l'approximation de Mott [10], deuxième brique de base de la spintronique.

II.3.3 Diffusion dépendant du spin :

Dans un métal magnétique, puisque le nombre d'électrons est différent pour les électrons de spin up et de spin down, la probabilité de diffusion (qui est liée à la densité d'états) va être différente selon que le spin des électrons conducteurs du courant est parallèle ou antiparallèle à l'aimantation macroscopique locale. Cette propriété, appelée diffusion dépendant du spin, est la troisième brique de base de la spintronique.

II.3.4 Accumulation de spin :

Enfin, lorsque le courant est injecté d'un matériau magnétique vers un matériau non magnétique, un désaccord apparaît à l'interface puisque le nombre d'électrons de spin up et de spin down est différent dans le métal magnétique alors qu'il est identique dans le métal non magnétique. Il apparaît alors une zone tampon dans laquelle l'asymétrie de spin décroît progressivement. Cependant puisque la probabilité de diffusion avec renversement du spin est très faible, la dimension de cette zone tampon, appelée longueur de diffusion de spin, est importante. Cet effet d'accumulation de spin est la quatrième brique de base de la spintronique.

II.4 Phénomènes de la spintronique :

II.4 .1 La Magnétorésistance Géante (GMR) :

L'effet GMR a été mis en évidence expérimentalement en 1988 dans des empilements de couches Fe/Cr. Il se manifeste par une variation de la résistivité électrique du système en fonction des orientations des différentes aimantations de chaque couche. Les premières études réalisées sur des systèmes constitués de 50 bicouches Fe/Cr ont montré que la différence de résistivité $\frac{\Delta \rho}{\rho}$ entre la configuration où les aimantations de toutes les couches sont alignées parallèlement et celle où elles sont alignées antiparallèlement pouvait atteindre jusqu'à 200 % à 4 K. Dans les systèmes actuels, l'effet GMR peut atteindre jusqu'à 20 % à température ambiante.



Figure II.1 : Multicouches Fe/Cr, dans lesquelles existe un couplage antiferromagnétique entre les couches de Fe (d représente l'épaisseur des couches Cr).

Suivant l'épaisseur de la couche séparatrice de Cr, il peut y avoir un couplage indirect, ferromagnétique ou antiferromagnétique, entre les couches de Fe. Lorsque un couplage antiferromagnétique est obtenu entre les couches magnétiques, l'application d'un champ magnétique provoque une diminution de la résistance électrique (figure II.2). Cette diminution est suivie d'une saturation pour le champ H_s qui correspond au champ de saturation de l'aimantation globale de l'échantillon (champ nécessaire pour vaincre le couplage et aligner les aimantations de chaque couche). Lorsque l'épaisseur des couches de Cr atteint 0,9 nm, une chute de la résistance de 50 % est observée lors de l'application du champ magnétique. L'amplitude de cette variation (magnétorésistance) est bien supérieure à celles mesurées, avant cette découverte, sur d'autres systèmes. C'est pourquoi cette magnétorésistance a été qualifiée de géante.



Figure II.2 : Variation de la résistivité électrique en fonction d'un champ magnétique.

Pour des multicouches $(Fe/Cr)_n$, où n représente le nombre de périodes de la multicouche. L'épaisseur d des couches de Cr varie de 0,9 nm à 1,8nm. Mesure effectuée avec le courant appliqué dans le plan des couches (géométrie CIP : current into the plane) [11].

La chute de résistivité est corrélée à la réorientation des moments magnétiques lors de l'application du champ magnétique. En effet, du fait du couplage antiferromagnétique, les moments magnétiques des couches de Fe passent d'une configuration antiparallèle en champ nul à une configuration parallèle en champ fort. Dans les couches magnétiques, la diffusion des électrons de conduction étant dépendante du spin la réorientation des moments magnétiques provoque le changement de l'état résistif de la structure. L'origine de la magnétorésistance géante se trouve donc dans le mécanisme de conduction des électrons dépendant du spin. Considérons une couche Cr/Fe, on applique le modèle à deux courants de conduction, c'est-à-dire que le courant est transporté par 2 canaux indépendants d'électrons : le canal d'électrons de spin up et le canal d'électrons de spin down. Le mécanisme de conduction dans la structure multicouche du type Cr/Fe/Cr/Fe, est schématisé sur la figure (II.3) pour une configuration antiparallèle et pour une configuration parallèle.



Figure II.3 : Mécanisme de conduction dans une structure multicouche périodique, et circuit équivalent en configuration magnétique antiparallèle.

En configuration antiparallèle, les deux canaux d'électrons ont globalement les mêmes résistivités et la résistivité globale ρ_{ap} de la structure dans cette configuration magnétique peut se déduire à l'aide d'un circuit équivalent. On a alors :

$$\rho_{ap} = \frac{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}}{2} \tag{II.1}$$





En configuration parallèle, un des deux canaux d'électrons subit un nombre d'événements de diffusion beaucoup plus élevée. Les résistivités globales des deux canaux ne sont donc plus égales. La résistivité globale de la structure est alors :

$$\rho_{p} = 2 \frac{\rho_{\uparrow} \rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}}$$
(II.2)

On montre alors que la résistivité en configuration parallèle ρ_p est inférieure à la résistivité en configuration antiparallèle ρ_{ap} .

$$\rho_p \langle \rho_{ap} \Rightarrow R_{ap} \rangle R_p \tag{II.3}$$

$$\rho_{ap} = \frac{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}}{2} \Longrightarrow R_{a} = \frac{R_{\uparrow} + R_{\downarrow}}{2}$$
(II.4)

Et

$$\rho_{p} = 2 \frac{\rho_{\uparrow} \rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}} \Longrightarrow R_{p} = 2 \frac{R_{\uparrow} R_{\downarrow}}{R_{\uparrow} + R_{\downarrow}}$$
(II.5)

La variation normalisée de résistance, c'est à dire la magnétorésistance, s'écrit alors :

$$GMR = \frac{\Delta R}{R_{AP}} = \frac{R_{AP} - R_{P}}{R_{AP}}$$
(II.6)

On voit donc plus les situations $\uparrow\uparrow$ et $\uparrow\downarrow$ sont différentes, plus l'effet GMR est visible et mieux il pourra être exploité.

II.4.2 Description phénoménologique de l'effet GMR : modèle à 2 courants

Deux types de configurations peuvent être utilisées afin d'étudier l'effet GMR, elles sont schématisées dans la **figure (II.5)** :



Figure II.5: Schématisation des 2 configurations de mesure. En gris sont représentées les couches ferromagnétiques (FM) et en blanc les couches métalliques non magnétiques.

La première configuration (Figure II.5.a) correspond au cas où le courant traverse la structure perpendiculairement au plan des couches. Cette configuration est appelée « Current Perpendicular to Plane » (CPP). La seconde, (Figure II.5.b), correspond quant à elle à un courant traversant la structure parallèlement au plan des couches. Cette configuration est appelée « Current In Plane » (CIP). Expérimentalement, cette dernière est plus facile à obtenir avec les techniques de lithographie usuelles (voir annexe II). Cependant, en configuration CPP, l'amplitude de l'effet est plus importante. Ainsi, en fonction de ce que l'expérimentateur souhaite étudier, le choix du « design » sera important. Pour notre étude, nous avons opté pour une configuration CIP.

Les phénomènes physiques régissant l'effet GMR, dans l'une ou l'autre des deux configurations, reposent globalement sur les mêmes principes. Il existe toutefois quelques distinctions théoriques entre CIP et CPP que nous détaillerons ultérieurement.

Tous les modèles décrivant l'effet GMR ont pour « briques » élémentaires les hypothèses de travail suivantes :

• La première correspond au « modèle à deux courants » décrit par Mott en 1936 [10]. Celui-ci repose sur le fait que dans la majorité des processus de collisions, élastiques et inélastiques, que subissent les électrons dans un métal, l'information de spin est conservée. Ainsi, si l'on néglige les processus susceptibles de « retourner » le spin d'un électron (comme le couplage spin-orbite voir chapitre III), on peut considérer que dans un métal le courant est porté par deux types de porteurs indépendants, les électrons ayant un spin « up » et les électrons ayant un spin « down » suivant les aimantations, qui se comportent en première approximation comme deux circuits en parallèle. Ceci pousse à considérer une longueur sur laquelle le spin de l'électron est conservé. Cette distance, appelée la longueur de diffusion de spin, sera notée λ_{sd} dans la suite de ce manuscrit. Cette longueur est de l'ordre de quelques dizaines de nm dans les métaux et est plus grande que le libre parcours moyen des électrons. Elle constitue le paramètre pertinent dans le transport CPP.

• La seconde correspond à la prise en compte de la différence de probabilité de diffusion de chaque type de porteur dans un métal ferromagnétique. En effet, comme nous l'avons déjà dire au chapitre I, la probabilité de diffusion d'un électron est directement proportionnelle au nombre d'états disponibles autour du niveau de Fermi (dans une gamme énergétique de l'ordre de kT). Or on connaît que cette densité d'état est dissymétrique pour les spins up et

pour les spins down. Ceci implique une différence des libres parcours moyens, et par conséquent des conductivités, pour chaque type de porteur (le libre parcours moyen étant inversement proportionnel au taux de diffusion).

• Enfin la dernière hypothèse repose sur le fait que lorsqu'un courant traverse une interface entre un métal ferromagnétique et un métal normal, un déséquilibre des populations de spin est créé dans les deux métaux. Ceci provient du fait que les nombres d'électrons de spin up et down sont différents dans les métaux ferromagnétiques et égaux dans les métaux normaux. Le système doit donc passer d'un état de déséquilibre de spin vers un état d'équilibre de spin, ce qui induit l'apparition d'une zone de transition dans laquelle l'asymétrie de spin décroît progressivement. Dans le modèle développé par Valet et Fert [12] dans le cas du transport perpendiculaire aux couches, cet effet s'appelle l'accumulation de spin. Cette notion fut introduite en premier lieu indépendamment par Johnson et al. [13] et par Van Son et al. [14].

Pour expliquer qualitativement l'effet GMR, il nous faut expliquer la différence de résistance globale du système lorsque les couches sont alignées parallèlement et anntiparallèlement. Il nous faut également expliquer les différences expérimentales observées entre configuration CIP et CPP telles que l'amplitude de l'effet. Nous allons désormais donner une vision simple de l'effet GMR basée sur le modèle du « réseau de résistance ». Ce modèle ayant été repris de nombreuses fois dans la littérature, nous avons opté pour une présentation telle que celle développée par J. Mathon dans la référence [15]. Ce modèle permet de comprendre de manière intuitive les mécanismes sous-jacents à l'effet GMR. Commençons par représenter le parcours des électrons dans les différentes configurations de mesure (figure II.6).



Figure II. 6 : Modélisation du parcours de chaque type de porteur en configuration CPP (a,b) et CIP (c,d). Les termes P et AP correspondent à des aimantations Parallèles et Antiparallèles. Les processus de collisions dépendants du spin sont représentés par des étoiles.

L'effet GMR s'explique, quelle que soit la configuration de mesure, par le taux de diffusion subi par chaque type de porteur sur son parcours. Nous allons montrer que ce taux est dépendant de l'orientation de la projection de spin de l'électron sur l'aimantation locale.

Dans la figure (II.6), nous avons représenté par des étoiles les processus de diffusion dépendant du spin. Il en existe différents types que nous allons détailler par la suite. Pour expliquer qualitativement les différences de résistivité entre les configurations parallèles et antiparallèles, représentons le parcours de chaque porteur par un modèle de résistance.





Commençons par décrire ce qui se passe en configuration CPP. La question à laquelle nous devons répondre est comment construire ce réseau de résistances, c'est à dire quelles sont les valeurs des résistances pour chaque canal, et quels sont les effets physiques mis en jeu.

II.4.2.1 Cas du transport en CPP :

Pour obtenir un effet GMR, il faut que les deux canaux de spin restent indépendants l'un de l'autre sur toute la longueur du parcours des électrons afin de répondre au critère de Mott.

On peut comprendre cette nécessité très simplement. Considérons que chaque couche ferromagnétique agisse comme un filtre pour les électrons de spin down (en respect avec l'orientation de son aimantation). Par filtre, nous entendons qu'un électron de spin down ne puisse pénétrer une couche ferromagnétique (comme nous le verrons par la suite ceci correspondrait au cas extrême d'une différence de potentiel chimique infinie entre le métal non magnétique et le métal ferromagnétique). Lorsque les deux couches ferromagnétiques sont alignées parallèlement, les électrons de spin up traversent toute la multicouche et aucun électron de spin down ne la traverse. Dans le cas où les deux couches sont alignées anntiparallèlement, aucun des deux types de porteur ne sortira de la structure. Ainsi, on comprend que la résistivité de la multicouche est différente en configurations parallèle et antiparallèle.

Considérons à présent le cas pour lequel nous permettons à une partie des électrons de spin up de changer leur direction de spin (par l'intermédiaire des processus de spin flip) avant d'arriver à la deuxième couche. On comprend de manière évidente que moins d'électrons traverseront la structure lorsque les aimantations seront parallèles et que désormais une partie des électrons pourront quand même la traverser lorsque les aimantations seront alignées antiparallèlement. Le rôle de filtre de chaque couche est en quelque sorte annihilé par les processus de spin-flip et la différence de résistivité entre la configuration parallèle et antiparallèle n'existe plus.

Bien que ce modèle soit très approximatif, il nous permet de comprendre qu'il est absolument nécessaire que la longueur de diffusion de spin soit plus grande que l'épaisseur de la structure dans le cas d'une mesure en CPP et que l'amplitude de l'effet GMR sera décroissante pour des couches (ferromagnétiques ou non) de plus en plus épaisses, ce qui est vérifié expérimentalement [12].

La différence des densités d'états au niveau de Fermi permet de définir un coefficient phénoménologique β appelé « Bulk Scattering Asymmetry » qui rend compte de la différence des résistivités pour les spins up et down dans chaque couche :

$$\beta = \frac{\rho_{F\uparrow} - \rho_{F\downarrow}}{\rho_{F\uparrow} + \rho_{F\downarrow}} \tag{II.7}$$

où $\rho_{F\uparrow}$ et $\rho_{F\downarrow}$ correspondent aux résistivités des porteurs de spin up et down respectivement dans la couche ferromagnétique. Les résistances correspondantes dans la figure (II.7) peuvent ainsi être définies de la façon suivante :

$$R_{F\downarrow} = \frac{\rho_F \times M}{S} = \frac{2 \times M}{S} \times \frac{\rho_{FM}}{1 - \beta}$$
(II.8)

$$R_{F\uparrow} = \frac{\rho_{F\uparrow} \times M}{S} = \frac{2 \times M}{S} \times \frac{\rho_{FM}}{1+\beta}$$
(II.9)

Dans les équations (II.8) et (II.9), nous avons défini la résistivité de la couche ferromagnétique sous forme « massive » ρ_{FM} donnée par :

$$\rho_{FM} = \frac{1}{\rho_{F\uparrow}} + \frac{1}{\rho_{F\downarrow}}$$
(II.10)

ainsi que le nombre de plans atomiques M, et la surface du métal ferromagnétique S. Notons que le signe de β dépend du matériau étudié, par exemple, dans le cas du cobalt β est positif alors qu'il est négatif dans le cas du fer.

Il existe un autre type de diffusion dépendant du spin correspondant aux diffusions aux interfaces. Elle est représentée par le terme R_{int} sur la figure (II.7). Cette diffusion a plusieurs origines :

• Le désaccord entre les bandes énergétiques du métal ferromagnétique et du métal normal suivant la direction de spin de l'électron.

• Les atomes magnétiques qui ont diffusé vers le métal non magnétique lors de la synthèse des matériaux. Notons que ces atomes peuvent aussi amener des processus de spinflip, ce qui est au détriment de l'effet GMR.

Dans le premier cas, des calculs de structures de bandes permettent de définir les potentiels de diffusion dépendants du spin à l'interface. En revanche, la contribution due aux atomes magnétiques dans le métal normal est plus difficile à quantifier. Elle dépend de la rugosité de surface et des processus de croissance des couches. Ainsi, de la même façon que l'on a défini β , on est amené à définir un coefficient phénoménologique de diffusion d'interface γ «Interfacial Scattering Asymmetry » :

$$\gamma = \frac{\rho_{\uparrow}^{\text{int erface}} - \rho_{\downarrow}^{\text{int erface}}}{\rho_{\uparrow}^{\text{int erface}} + \rho_{\downarrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.11)

On peut ainsi définir les résistances d'interfaces pour chaque type de porteur sous la forme suivante :

$$R_{\uparrow}^{\text{int erface}} = S \times \rho_{\uparrow}^{\text{int erface}} = 2 \times S \times \frac{\rho_{F-N}}{1+\gamma}$$
(II.12)

<u>.</u> 56

$$\rho_{F-N} = \frac{1}{\rho_{\uparrow}^{\text{int erface}}} + \frac{1}{\rho_{\downarrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.13)

 ρ_{F-N} étant la résistivité totale de l'interface entre le métal ferromagnétique et le métal normal.

Dans le cas du transport CPP, si l'on ne considère que la vitesse de dérive due au champ électrique appliqué, chaque type de porteur traverse les couches les unes après les autres.

Ainsi, chaque couche et chaque interface agissent comme des résistances en série. Ceci permet de calculer la résistance totale du système en fonction des différentes configurations des aimantations :

$$\frac{1}{R_{\uparrow\uparrow}^{total}} = \left(\frac{1}{R_{\uparrow}}\right)_{\uparrow\uparrow} + \left(\frac{1}{R_{\downarrow}}\right)_{\uparrow\uparrow}$$
(II.14)

$$\frac{1}{R_{\uparrow\downarrow}^{total}} = \left(\frac{1}{R_{\uparrow}}\right)_{\uparrow\downarrow} + \left(\frac{1}{R_{\downarrow}}\right)_{\uparrow\downarrow}$$
(II.15)

Avec

$$\left(\frac{1}{R_{\uparrow}}\right)_{\uparrow\uparrow} = \frac{1}{2R_{F\uparrow} + R_{spacer} + 2R_{\uparrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.16)

$$\left(\frac{1}{R_{\downarrow}}\right)_{\uparrow\uparrow} = \frac{1}{2R_{F\downarrow} + R_{spacer} + 2R_{\downarrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.17)

$$\left(\frac{1}{R_{\uparrow}}\right)_{\uparrow\downarrow} = \frac{1}{R_{F\uparrow} + R_{spacer} + R_{F\downarrow} + R_{\uparrow}^{\text{int erface}} + R_{\downarrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.18)

$$\left(\frac{1}{R_{\downarrow}}\right)_{\uparrow\downarrow} = \frac{1}{R_{F\downarrow} + R_{spacer} + R_{F\uparrow} + R_{\downarrow}^{\text{int erface}} + R_{\uparrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.19)

R_{spacer} est la résistance de la couche de métal normal.

A partir de ces équations, il est possible d'évaluer le ratio $\frac{R_{\uparrow\downarrow} - R_{\uparrow\uparrow}}{R_{\uparrow\downarrow}} = \frac{R_{ap} - R_p}{R_{ap}}$.Notons

qu'une mesure en configuration CPP permet de mesurer γ et β [15].

II.4 .2.2 Cas du transport en CIP :

Dans le cas d'une mesure en configuration CIP, la situation est quelque peu plus compliquée. En effet, ici les électrons se déplacent au travers de toutes les couches de manière aléatoire en fonction des processus de diffusions subis dans chaque couche (voir figure II.7 c et d). Ainsi, deux cas sont à considérer :

• Le premier correspond au cas où le libre parcours moyen des électrons dans chaque couche est plus petit que l'épaisseur de la couche. On peut alors considérer que les électrons se répartissent équitablement dans chaque couche et que les électrons présents dans une couche n'atteignent pas les autres. Ainsi, la résistance de chaque canal sera calculée en mettant en parallèle les résistances de chaque couche :

$$\left(\frac{1}{R_{\uparrow}}\right)_{\uparrow\uparrow} = \frac{2}{R_{F\uparrow}} + \frac{1}{R_{spacer}}$$
(II.20)

$$\left(\frac{1}{R_{\downarrow}}\right)_{\uparrow\uparrow} = \frac{2}{R_{F\downarrow}} + \frac{1}{R_{spacer}}$$
(II.21)

$$\left(\frac{1}{R_{\uparrow}}\right)_{\uparrow\downarrow} = \frac{1}{R_{F\uparrow}} + \frac{1}{R_{spacer}} + \frac{1}{R_{F\downarrow}}$$
(II.22)

$$\left(\frac{1}{R_{\downarrow}}\right)_{\uparrow\downarrow} = \frac{1}{R_{F\downarrow}} + \frac{1}{R_{spacer}} + \frac{1}{R_{F\uparrow}}$$
(II.23)

dans les configurations parallèle (équations 20 et 21) et antiparallèle (équations 22 et 23) respectivement. En injectant ces deux équations dans l'équation 14 et 15 respectivement, on constate qu'il n'y a pas de différence de résistance totale entre les configurations parallèle et antiparallèle, c'est-à-dire pas d'effet GMR.

• Le second cas correspond au contraire à la situation où le libre parcours moyen des électrons est plus grand que l'épaisseur des couches. Dans ce cas, chaque porteur est libre de se déplacer dans chacune des couches. La résistance (par unité de surface et de longueur) de chaque canal est alors une résistance moyenne sur l'épaisseur que l'on peut définir par :

$$\left(\frac{1}{R_{\uparrow}}\right)_{\uparrow\uparrow} = \frac{\left(2M + N + 2I\right)^2}{2MR_{F\uparrow} + NR_{spacer} + 2IR_{\uparrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.24)

$$\left(\frac{1}{R_{\downarrow}}\right)_{\uparrow\uparrow} = \frac{\left(2M + N + 2I\right)^2}{2MR_{F\downarrow} + NR_{spacer} + 2IR_{\downarrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.25)

$$\left(\frac{1}{R_{\uparrow}}\right)_{\uparrow\downarrow} = \frac{\left(2M + N + 2I\right)^2}{MR_{F\uparrow} + NR_{spacer} + IR_{\uparrow}^{\text{int erface}} + MR_{F\downarrow} + IR_{\downarrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.26)

$$\left(\frac{1}{R_{\downarrow}}\right)_{\uparrow\downarrow} = \frac{\left(2M + N + 2I\right)^2}{MR_{F\downarrow} + NR_{spacer} + IR_{\downarrow}^{\text{int erface}} + MR_{F\uparrow} + IR_{\uparrow}^{\text{int erface}}}$$
(II.27)

M est le nombre de couches atomiques du métal ferromagnétique, N est le nombre de couches atomiques du métal normal, I est le nombre de plans atomiques correspondant à l'interface ferromagnétique/normal.

Ces équations traduisent le fait que la résistance de chaque canal fait intervenir la moyenne des différents processus de diffusions que subissent les électrons sur l'ensemble de leur parcours. De par la valeur de la résistance totale du système donnée par les équations (14) et (15), on voit aisément la différence entre les cas où les aimantations sont parallèles ou antiparallèles. En guise d'exemple, nous pouvons exprimer la GMR en configuration CIP dans le cas où $\gamma = 0$:

$$GMR = \frac{\Delta R}{R_{ap}} = \frac{R_{ap} - R_{p}}{R_{AP}} = \frac{R_{\uparrow\downarrow} - R_{\uparrow\uparrow}}{R_{\uparrow\downarrow}} = \frac{\left(1 - \beta\right)^{2}}{4\left(1 + \frac{N\rho_{spacer}}{M\rho_{F\uparrow}}\right)\left(\beta + \frac{N\rho_{spacer}}{M\rho_{F\uparrow}}\right)}$$
(II.28)

Notons que cette expression, ne rend pas compte de certains effets observés expérimentalement [15] tels que la décroissance de l'amplitude de l'effet GMR lorsque les couches ferromagnétiques deviennent de plus en plus épaisses. Pour rendre compte de cet effet il faut tenir compte de la diffusion aux interfaces.

Nous venons de montrer que dans le cas du transport en configuration CIP le paramètre pertinent est le libre parcours moyen des électrons et non la longueur de diffusion de spin comme dans le cas CPP. Ce libre parcours moyen est de l'ordre de la dizaine de nanomètres dans les métaux usuels (ex : le libre parcours moyen est de à 30 nm pour le cuivre à 300°K).

Dans les deux configurations de mesure, nous avons vu que nous ne pouvons séparer les contributions résistives dues aux interfaces de celles dues aux couches ferromagnétiques pour expliquer l'ensemble des résultats expérimentaux relatifs à l'effet GMR. En détaillant les équations, nous pouvons voir qu'il sera d'autant plus important que β et γ le sont. Pour augmenter β , il faut choisir des matériaux qui ont de fortes polarisations magnétiques, c'est à dire avec un fort décalage de bandes. C'est le cas par exemple du fer. Pour augmenter γ , il est important d'avoir un accord entre les bandes énergétiques du métal ferromagnétique et du métal normal. Cet accord sera bon pour un type de porteur de spin et très mauvais pour l'autre type. Ce désaccord entre les bandes énergétiques induit un fort potentiel de diffusion pour un des deux types de porteurs afin de rééquilibrer les 2 populations de spins dans le métal normal. Cette condition est réalisée dans des structures du type Co/Cu ou Fe/Cr.

Le mécanisme de diffusion relié au désaccord de bandes est prépondérant dans la configuration CPP. Il l'est moins en CIP du fait que les électrons se déplacent principalement

parallèlement aux interfaces. Dans ce cas, ce mécanisme ne devient réellement efficace que si les interfaces présentent une certaine rugosité. Toutefois il ne peut être négligé car, comme nous l'avons déjà mentionné, il permet d'expliquer la dépendance observée expérimentalement de l'effet GMR avec l'épaisseur des couches. En effet, dans le cas de couches extrêmement minces (de l'ordre de quelques plans atomiques), la rugosité des interfaces est très prononcée et induit de nombreux processus de diffusion dépendant du spin. Lorsque les couches sont plus épaisses, les interfaces sont mieux définies et leurs influences dans les processus de diffusion moins importantes.

Le modèle de résistance présenté ci-dessus permet d'expliquer de manière qualitative les résultats expérimentaux obtenus [15]. Pour cela, nous avons introduit les paramètres β et γ comme des paramètres phénoménologiques permettant de rendre compte des propriétés physiques des couches ferromagnétiques et des interfaces. Cependant, il est possible de donner une description plus quantitative de l'effet GMR basée sur un modèle microscopique prenant en compte les structures de bandes réelles des matériaux présents. Ceci permet de tenir compte de tous les effets mentionnés ci-dessus et de faire apparaître les coefficients phénoménologiques β et γ .



Figure II.8 : Structure de bande réelle du cobalt et du cuivre dans la direction [001]. Les lignes pointillées représentent le niveau de Fermi (figures tirées de [15]).

II.4 .2.3 Description semi-classique de l'effet GMR :

Dans la partie précédente, nous avons décrit de manière phénoménologique les mécanismes physiques à la base de l'effet GMR. Nous pouvons aussi aborder ces mécanismes

du point de vue microscopique à partir d'une approche basée sur la théorie de Fuchs-Sondheimer étendue au cas des multicouches [12]. Cette approche est appelée semi-classique car les électrons sont considérés comme des objets ponctuels indépendants (c'est à dire que le paquet d'onde correspondant à la fonction électronique est très localisé) mais certains principes de la mécanique quantique tels que la statistique de Fermi-Dirac sont appliqués.

Dans cette partie nous nous contenterons de présenter les principes de base des calculs de l'effet GMR qui sont développés par Camley et Barnas [16] dans le cas du transport en CIP ou bien de Valet et Fert [12] dans le cas du transport CPP. Nous montrerons comment les processus de diffusion dans les couches ferromagnétiques (β dans la partie précédente) ainsi que les diffusions aux interfaces (γ) sont pris en compte. De même, nous montrerons l'importance de l'accumulation de spin dans le cas du transport en CPP.

Le modèle de Fuchs-Sondheimer [20] consiste à développer l'équation de Boltzmann dans le cas où la fonction de distribution électronique présente une dépendance spatiale. A l'équilibre thermodynamique, la fonction $f_0(k)$ décrivant la probabilité d'occupation des états électroniques de vecteurs d'ondes k répond à la statistique de Fermi-Dirac :

$$f_{0}(k) = \frac{1}{\exp\left[\frac{(E(k) - E_{F})}{k_{B}T}\right] + 1}$$
(II.29)

où E(k) : énergie de l'état de vecteur d'onde k, E_F : l'énergie de Fermi. k_B est la constante de Boltzmann, T est la température d'équilibre thermodynamique du système.

Notons que cette équation est valable dans le cas où la longueur d'onde de l'électron est plus petite que le libre parcours moyen dans le matériau étudié.

En présence d'une perturbation (par exemple un champ électrique), cette fonction est modifiée de telle sorte qu'en régime stationnaire la nouvelle fonction de distribution s'écrit :

$$f(k) = f_0(k) + g(k)$$
 (II.30)

Cette perturbation est équivalente à un déplacement global de la sphère de Fermi dans l'espace réciproque sous l'effet de l'apport de quantité de mouvement induite par l'action du champ électrique. Dans ce cas, la densité de courant traversant la structure s'exprime sous la forme suivante :

$$J = \sigma \varepsilon = -e \int v f(v) dv = -e \int v g(v) dv$$
 (II.31)

où σ est la conductivité, ε l'amplitude du champ électrique appliqué, e(e)0 est la charge de l'électron, v est la vitesse des électrons.

Dans l'approximation du gaz libre de Fermi, l'énergie de l'électron est simplement :

$$E_k = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \frac{1}{2}mv^2$$
 (II.32)

De ce fait, l'expression (II.29) de f_0 montre qu'il s'agit d'une fonction paire de v et donc ne contribue pas à l'intégrale (II.31).

Exprimons maintenant le fait que l'accélération moyenne des

$$\frac{df}{dt} = \frac{df}{dt}\Big|_{perturbation} + \frac{df}{dt}\Big|_{relaxation} = 0$$
 (II.33)

Le premier terme dans la partie droite de (II.33) correspond au déplacement de la sphère de Fermi due à l'accélération des électrons, il ne dépend donc que de $f_0(k)$. Le second terme correspond aux phénomènes de diffusions permettant la relaxation des électrons vers l'état d'équilibre et ne dépend que de g(k). La partie perturbation s'écrit dans le cas où le champ électrique est appliqué suivant la direction arbitraire x:

$$\frac{df}{dt}\Big|_{perturbation} = \frac{\partial f_0}{\partial k_x} \cdot \frac{dk_x}{dt} = -\frac{\partial f_0}{\partial k_x} \cdot \frac{e\varepsilon}{\hbar}$$
(II.34)

En effet

$$\frac{dk_x}{dt} = \frac{m}{\hbar} \frac{dv}{dt} = -\frac{e\varepsilon}{\hbar}$$
(II.35)

Le développement du terme de relaxation est réalisé dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation. Cette approximation consiste à considérer que la fonction g(k) décroît exponentiellement jusqu'à s'annuler avec un temps de relaxation caractéristique τ :

$$\frac{df}{dt}\Big|_{relaxation} = \frac{dg}{dt}\Big|_{relaxation} = \frac{g}{\tau}$$
(II.36)

En injectant (II.34) et (II.36) dans l'équation (II.33) on obtient :

$$g = \frac{\partial f_0}{\partial k_x} \cdot \frac{e\varepsilon}{\hbar} \tau$$
(II. 37)

Le calcul de l'intégrale (II.31) s'en déduit et la densité de courant circulant dans la structure s'écrit :

$$J = -e \int v_g(v) dv = -e \int v \cdot \frac{\partial f_0}{\partial k_x} \frac{e\varepsilon}{\hbar} \tau dv = -e^2 \frac{\varepsilon\tau}{\hbar} \int v \frac{\partial f_0}{\partial k_x} dv$$
(II.38)

Sachant que $E(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$,

<u>.</u> 62

$$J = -e^{2} \varepsilon \tau \int (-f_{0})(1 - f_{0})v^{2} dv = \sigma \varepsilon$$
 (II.39)

d'où

$$\sigma = e^{2} \tau \int f_{0} (1 - f_{0}) v^{2} dv$$
 (II.40)

Jusqu'ici nous avons considéré que la fonction de probabilité de présence f(k) était indépendante de la position des électrons. Dans le cas d'une multicouche magnétique, cette hypothèse ne peut être retenue du fait des différents matériaux rencontrés par les électrons sur leurs parcours. Le développement de l'équation de Boltzmann en tenant compte de la dépendance spatiale de f(k) a été réalisé par Fuchs et Sondheimer. Considérons une structure composée de différentes couches métalliques. Soit x la direction du champ appliqué (configuration CIP) et z la normale au plan des couches (figue II.9) :



Figure II.9 : Schéma de la structure étudiée.

Dans ce cas, nous devons rajouter un terme dépendant de la position dans le calcul de g(k), en effet (II.36) peut s'écrire :

$$\frac{df}{dt} = \frac{dg}{dt} + \frac{\partial g}{\partial z}\frac{dz}{dt} \approx \frac{g}{\tau} + v_z\frac{\partial g}{\partial z}$$
(II.41)

Dans le cas d'une multicouche magnétique, la fonction g est aussi dépendante du spin de l'électron. De plus, nous pouvons choisir comme argument de cette fonction la variable vitesse à la place de la variable vecteur d'onde. Ceci permet de réécrire l'équation (II.41) sous la forme :

$$\frac{g^{\uparrow(\downarrow)}(z,v)}{\tau^{\uparrow(\downarrow)}v_z} + \frac{\partial g^{\uparrow(\downarrow)}(z,v)}{\partial z} = \frac{\partial f_0}{\partial v_x} \cdot \frac{e\varepsilon}{mv_z}$$
(II.41)

Nous pouvons alors décomposer la fonction en deux parties, l'une pour les électrons se déplaçant dans le sens des z positifs et l'autre pour les électrons se déplaçant dans le sens des z négatifs. Les solutions de (II.41) s'écrivent alors :

$$g_{\pm}^{\uparrow(\downarrow)}(z,v) = \frac{eE\tau^{\uparrow(\downarrow)}(z,v)}{\partial z} \times \left[1 + F_{\pm}^{\uparrow(\downarrow)}(v) \exp\left[\frac{\mu z}{\tau^{\uparrow(\uparrow)}|v_z|}\right]\right]$$
(II.42)

Les signes + et – désignent les électrons se propageant respectivement dans le sens positif et négatif. $F_{\pm}^{\uparrow(\downarrow)}(v)$ est une fonction qui se calcule grâce aux conditions au limites appropriées. Barnas et Camley ont réalisé ce calcul dans le cas d'un transport en configuration CIP [16] et ont exprimé ces conditions aux limites sous différentes formes :

• Les conditions de Fuchs sont appliquées en -b et b de la figure (II.9). Elles correspondent aux réflexions spéculaires sur les surfaces libres de la multicouche. Ceci implique au niveau du calcul que la fonction g s'annule en ces points.

•Aux interfaces entre métaux, des conditions aux limites semblables à celles rencontrées en optique sont considérées. En effet, on considère qu'une partie des électrons arrivant à l'interface sera transmise et l'autre partie sera réfléchie. Ceci amène à définir les coefficients de réflexion et de transmission non diffusive utilisés par Barnas et Camley.

• Enfin, dans le but de prendre en compte le changement de direction de l'axe de quantification du spin de l'électron lorsque celui ci passe d'une couche ferromagnétique à l'autre, on définit une interface fictive en z = 0 pour laquelle la direction de l'axe de quantification est changée. Ceci permet de faire apparaître dans le calcul de g (et donc dans le calcul de la conductance) une relation directe avec l'angle formé par l'orientation relative des aimantations.

En écrivant l'ensemble de ces conditions limites pour les électrons de spins up et down se propageant dans les directions $+z \operatorname{et} - z$, Barnas et Camley ont montré que le calcul des différentes fonctions g sous la forme de l'équation (II.42) implique naturellement la prise en compte de l'asymétrie de diffusion de spin dans les couches ferromagnétiques (β dans la partie précédente) ainsi que celle aux interfaces. En effet, le calcul des fonctions $F_{\pm}^{\uparrow(\downarrow)}$ fait intervenir le rapport des libres parcours moyens entre les spins up et down qui sont euxmêmes reliés aux différences de conductivités. Ce calcul, qu'ils ont appliqué à la configuration CIP, permet de mettre en évidence que le libre parcours moyen des porteurs est le paramètre pertinent de cette mesure.

Le cas du transport en CPP a été traité en détails par Valet et Fert [12]. La base du calcul est la même que celle développée par Camley et Barnas en prenant cette fois le champ électrique dans la direction z. Ce modèle repose sur certaines hypothèses importantes :

• Le modèle est développé dans le cas où les bandes de conduction sont paraboliques dans chaque couche de la structure mais il peut être appliqué au cas de structures de bandes réelles.

• Les processus de spin flip sont pris en compte dans l'équation de Boltzmann. Le modèle étant appliqué au cas T = 0K, seul le processus de spin flip par interaction spin orbite est considéré.

• Le terme d'accumulation de spin est intégré au développement de perturbation f indice de la fonction f(k). Comme nous l'avons déjà mentionné, lorsqu'un courant d'électrons traverse une interface entre deux métaux ferromagnétiques (ou entre un ferromagnétique et un métal normal), une partie des électrons traverse « facilement » l'interface (spins up) et une partie est « réfléchie » (spins down). Ainsi à cause du courant, les deux populations de spins ne sont plus à l'équilibre thermodynamique dans aucun des métaux. Le retour à l'équilibre s'effectue grâce aux processus de spin flip. La distance sur laquelle le déséquilibre persiste, appelée longueur d'accumulation de spin, est du même ordre de grandeur que la longueur de diffusion de spin. Il est intéressant de noter que cette accumulation de spin induit une aimantation hors équilibre dans le métal normal. Ceci fut observé expérimentalement par Silsbee et al. [17].

Ces différentes hypothèses permettent un calcul général de l'effet GMR en configuration CPP. Les calculs sont cependant assez longs et délicats pour être reportés dans ce mémoire. Nous citons néanmoins les principaux résultats :

• Le potentiel chimique dans chaque couche est modifié pour chacun des types de porteurs à cause de l'accumulation de spin. Ce potentiel chimique est une fonction à la fois de la densité locale pour chaque type de porteur (relié à l'accumulation de spin) et du champ électrique local. On peut y voir un parallèle avec les phénomènes d'accumulation et de déplétion de charges à l'interface d'une jonction P-N qui modifient la structure de bandes afin de rééquilibrer les populations d'électrons et de trous dans les deux matériaux. La prise en compte de la différence de potentiel chimique à l'interface entre les matériaux équivaut à définir les coefficients de réflexion et de transmission définis par Barnas et Camley [16] et fait apparaître l'effet GMR. Notons que l'accumulation de spin est dépendante de l'orientation relative des couches ferromagnétiques.

 Dans le cas général, la linéarité de la réponse entre le gradient de potentiel chimique et le courant de spin (loi d'Ohm) est détruit. Cette correction est une conséquence du phénomène d'accumulation de spin. Cependant, il a été démontré que cette correction est négligeable dans le cas où la longueur de diffusion de spin est plus grande que le libre parcours moyen $(l_e \langle \langle l_{sd}) \rangle$ ce qui est généralement réalisé expérimentalement.

II.4 .2.4 Accumulation et relaxation de spin (GMR CPP) :

La GMR en géométrie CPP est basée sur un ´équilibre entre des phénomènes de relaxation [18] et d'accumulation de spin [12].

Considérons en effet le cas simple de deux couches consécutives, la première constituée d'un métal ferromagnétique et la deuxième d'un métal normal, comme l'illustre la figure (II.10).

Loin de l'interface, dans la couche ferromagnétique, les deux canaux de spin sont dissymétriques, du fait des conductivités différentes des spins "up" et "down". Par exemple, sur la figure (II.10), le canal de spin "up" est majoritaire dans la couche de Co, loin de l'interface Co/Cu. Au contraire, loin de l'interface dans la couche non magnétique, les deux canaux de spin sont équilibrés. Ces conditions aux limites impliquent un transfert d'électrons entre le canal de spin "up" vers le canal de spin "down".



Figure II.10 : Schéma des canaux de spin dans le cas d'une bicouche Co/Cu. Le déséquilibre entre les canaux de spin dans le cobalt et le cuivre entraîne l'existence d'une zone d'accumulation de spin autour de l'interface.

Le temps de vie de spin étant bien supérieur au temps de collision moyen, ce renversement de spin ne peut s'effectuer avant une longueur caractéristique que l'on nomme l_{sf} longueur de diffusion de spin. Cette longueur peut s'exprimer de la façon suivante :

$$l_{sf} = v_F \sqrt{\tau_{sf}}$$
(II.43)

où v_F est la vitesse de Fermi et τ le temps moyen entre deux collisions, τ_{sf} est le temps moyen entre deux collisions dépendant du spin.

Il va donc y avoir de part et d'autre de l'interface, l'existence d'une zone où les électrons de spins "up" s'accumulent et où les 'électrons de spin "down" sont en déficit par rapport `a la situation d'équilibre, d'où le nom de zone d'accumulation de spin.

Les longueurs de diffusion de spin étant différentes dans le métal ferromagnétique et dans le métal non magnétique. Ce dernier faisant intervenir moins de processus de chocs dépendant du spin, sa longueur de diffusion de spin est plus élevée. On a par exemple $l_{sf} = 60nm$ dans le cobalt pour approximativement 0,5nm dans le cuivre. Cette plus forte densité d'électrons de spin "up" `a l'interface, ainsi que la déplétion en spin "down" entraîne une levée de dégénérescence des potentiels chimiques entre "up" et "down" : dans la zone d'accumulation de spin, $\mu_{\uparrow} \neq \mu_{\downarrow}$. Ce phénomène est illustré dans la partie supérieure de la figure (II.11).

La levée de dégénérescence des potentiels chimiques entraîne l'établissement de courants de diffusion de spin (gradients du potentiel chimique) de signes opposés J_{\uparrow} et J_{\downarrow} . A partir de ces courants, on peut établir l'expression de la polarisation en spin.

$$P = \frac{J_{\uparrow} - J_{\downarrow}}{J_{\uparrow} + J_{\downarrow}} \tag{II.44}$$

La polarisation en spin est tracée dans la partie basse de la figure (II.11).



Figure II.11 : Profils d'accumulation de spin (partie haute) et de polarisation en spin (partie basse) dans le cas d'une bicouche Co/Cu[12].

Le résultat le plus important est que l'effet GMR en configuration CPP ne peut exister que dans le cas où la longueur d'accumulation de spin est supérieure à l'épaisseur des couches. Dans le cas contraire, il a été montré [12] que les deux interfaces entre les métaux ferromagnétiques et normaux présentent la même résistance en configuration parallèle ou antiparallèle. Ainsi, le paramètre pertinent en configuration CPP est la longueur de diffusion de spin et non pas le libre parcours moyen comme en CIP.

Dans cette partie, nous avons exposé la base des calculs microscopiques de l'effet GMR et les résultats les plus importants qui en découlent. Nous avons défini les mécanismes expliquant la dépendance angulaire de la résistance d'une vanne de spin avec l'orientation relative des aimantations des couches magnétiques ainsi que les paramètres pertinents dans chaque configuration de mesure. Enfin, il nous reste à expliquer l'augmentation de l'amplitude de l'effet GMR en configuration CPP par rapport à la configuration CIP. Ce résultat provient du fait qu'en configuration CIP le phénomène d'accumulation de spin n'existe pas car les électrons se déplacent parallèlement aux couches. Nous traitons maintenant le deuxième phénomène de la spintronique, qui est la Magnétorésistance Tunnel (TMR).

II.5 Magnétorésistance Tunnel (TMR):

La structure utilisée est celle d'une couche isolante comprise entre deux ferromagnétiques. Contrairement à l'aimantation de la première couche, la seconde n'est pas imposée. L'aimantation dans la première couche est prédéfinie et un champ externe permet de changer facilement la direction de l'aimantation de la seconde couche. Quand le courant traverse la première couche ferromagnétique, seuls les électrons dont le spin est orienté dans la direction de l'aimantation peuvent passer. Il en résulte un courant polarisé en spin, où tous les spins des électrons ont le même sens. Deux cas sont alors à considérer : si la seconde couche possède une aimantation dans le même sens que la première, alors les électrons traversent l'isolant par effet tunnel quantique (figure 12.a). Dans le cas contraire, le courant tunnel est bloqué (figure 12.b). Quelques électrons pourtant parviennent à traverser la barrière, l'effet tunnel est réduit : le courant qui circule est faible.



Figure II.12 : Les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction tunnel magnétique.

II.5.1 Description phénoménologique de la TMR:

Ce paragraphe est consacré à l'exposé de certaines notions théoriques utiles à l'interprétation des phénomènes de conduction des électrons polarisés en spin entre deux matériaux ferromagnétiques séparés par une barrière isolante.

Dans une première partie, nous présentons les caractéristiques essentielles du transport électronique par effet tunnel dans une structure métal–isolant-métal. Ensuite, la seconde partie est consacrée à l'influence du spin de l'électron sur ces caractéristiques de conduction.

II.5.2 Courant tunnel à travers une barrière isolante:

Dans le cas d'une jonction tunnel, nous allons nous intéresser à la densité de courant tunnel J exprimée en fonction de la tension V appliquée aux bornes ainsi qu'à sa dérivée dJ/dV. La théorie la plus simple pour décrire ce courant d'électrons est celle de Simmons [21] qui nous fournit une interprétation analytique de la densité de courant J en fonction de la tension V et des paramètres de la barrière isolante que sont l'épaisseur physique et la hauteur de potentiel de la barrière.

Ce modèle se base sur l'approximation des électrons libres. Un électron traversant la barrière tunnel peut alors être représenté par une fonction d'onde plane incidente. Une partie de cette onde est réfléchie à l'interface métal/isolant tandis que l'autre pénètre dans la barrière avec une amplitude décroissant exponentiellement avec l'épaisseur.

Nous pouvons représenter, pour un électron, la barrière de potentiel à franchir à l'aide du diagramme d'énergie schématisé sur la figure (II.13). Ici, les deux électrodes métalliques A et B sont séparées par une barrière isolante d'épaisseur d et de hauteur de potentiel φ_{a} par rapport au niveau de Fermi des métaux. Une tension +V est appliquée à l'électrode B. En notant n_A et n_B les densités d'états aux énergies E et E + eV respectivement, le nombre d'électrons d'énergie E qui vont passer de A vers B est proportionnel :



Figure II.13 : Diagramme d'énergie pour un électron libre dans une jonction métal/isolant/métal.

- au nombre d'états occupés à une énergie E au-dessus du niveau de Fermi E_{FA} dans l'électrode A, soit n_A(E).f(E).
- au nombre d'états inoccupés à la même énergie E dans l'électrode B, soit
 n_B(E+eV).[1-f(E+eV);
- au carré de la matrice $|M_{AB}|$ représentant la probabilité de transmission de A à B.

En intégrant ces paramètres, on obtient le courant tunnel $I_{A \setminus B}(V)$ suivant :

$$I_{A \mid B}(V) = \int_{-\infty}^{+\infty} n_A(E) . n_B(E + eV) \left| M_{AB} \right|^2 f(E) [1 - f(E + eV)] . dE$$
(II.45)

Le courant tunnel total I_{AB} est alors la somme des deux courants $I_{A \lor B}$ et $I_{B \lor A}$ soit:

$$I_{AB} = I_{A \rangle B} - I_{B \rangle A}$$
(II.46)

Pour calculer I(V), Simmons [21] utilise l'approximation WKB qui, n'est valable que pour une barrière ayant un potentiel variant lentement (barrière « douce »). On obtient alors une expression analytique à T nulle de la densité de courant en fonction de V appliquée tout en assimilant le profil réel de la barrière isolante à un profil rectangulaire dont la hauteur $\overline{\varphi}_0$ est la valeur moyenne de $\varphi_0(x)$. L'expression de la densité de courant obtenue est [21] :

$$J = e \int 2 \frac{dk}{(2\pi)^3} v_x [f(E - f(E + eV)]n(E)]$$
(II.47)

Tous calculs faits, on trouve :

$$J = J_0 \left[\overline{\varphi_0} \exp(-A\sqrt{\overline{\varphi_0}}) - (\overline{\varphi_0} + eV) \exp(-A\sqrt{\overline{\varphi_0} + eV}) \right]$$
(II.48)

où :

$$J_0 = \frac{e}{2\pi\hbar d^2} ; \qquad A = \frac{4\pi\beta x}{\sqrt{2m/\hbar}} ; \qquad \overline{\varphi}_0 = \frac{1}{x} \int_0^d \varphi_0(x) dx = \frac{\varphi_0 + \varphi_1}{2}$$

La constante β est un facteur correctif dépendant de la tension appliquée V, \hbar est la constante de Planck.

L'équation (II.48) peut être interprétée comme étant la somme d'une densité de courant A vers B et d'une densité de courant B vers A. La densité de courant tunnel J dépend de la tension appliquée V.

Deux cas sont alors à considérer :

$V \approx 0$: gamme de tensions faibles :

La barrière de potentiel est approximativement rectangulaire (figure II.14). On a alors $\overline{\varphi}_0 = \varphi_0$. On peut montrer que β est proche de l'unité lorsque $eV \approx 0$. Donc on peut considérer que $A\sqrt{\overline{\varphi}_0}$ >>1 et l'équation (II.48) se réduit à :

$$J = J_L \sqrt{\overline{\varphi_0}} V \exp(-A \sqrt{\overline{\varphi_0}})$$

Où



Figure II.14. Diagramme d'énergie dans le cas d'une tension appliquée quasi-nulle.
$V\langle \frac{\varphi_0}{e}$: gamme de tensions intermédiaires :



Figure II.15. Diagramme d'énergie dans le cas d'une tension appliquée $V\langle \frac{\varphi_0}{q} \rangle$.

Au vu du diagramme d'énergie présenté sur la (figure II.15), on pose dans ce cas-ci

$$\overline{\varphi_0} = \left(\frac{\varphi_0 + \varphi_1}{2}\right), \text{ et on substitue cette expression dans l'équation (II.48) on trouve alors.}$$

$$J = \frac{e}{2\pi\hbar d^2} \left\{ \left(\overline{\varphi_0} - \frac{eV}{2}\right) \cdot \exp\left[\frac{-4\pi d}{\hbar}\sqrt{2m} \cdot \sqrt{\left(\overline{\varphi_0} - \frac{eV}{2}\right)}\right] - \left(\overline{\varphi_0} + \frac{eV}{2}\right) \cdot \exp\left[\frac{-4\pi d}{\hbar}\sqrt{2m} \cdot \sqrt{\left(\overline{\varphi_0} + \frac{eV}{2}\right)}\right] \right\}$$
(II.50)

II.5.3 Modèle de Jullière pour les jonctions tunnel magnétiques :

En 1975, Jullière [22] a mis en évidence le rôle prépondérant du spin des électrons dans le transport par effet tunnel dans des jonctions Fe/Ge/Fe où une couche de 10 nm composée du semi-conducteur Ge légèrement oxydé fait office de barrière (typiquement d'une hauteur de potentiel de 100 meV). A basse température (4,2 K), ses observations font état d'une variation de la conductance électrique en fonction de l'orientation relative des aimantations des deux couches magnétiques (figure II.16). Ce phénomène, qui est la magnétorésistance tunnel (TMR) s'explique par l'existence d'un courant tunnel à travers la barrière dépendant de la polarisation en spin des électrons de conduction des deux électrodes.



Figure II.16 : Conductance relative $(\Delta G/G_0)$ en fonction de la tension appliquée d'une jonction Fe-Ge-Fe à T = 4,2 K.

Avec ΔG est la différence entre les deux valeurs de conductance correspondant aux aimantations relatives parallèle et antiparallèle des deux couches ferromagnétiques [22].

Jullière a proposé un modèle descriptif simple basé sur la notion de polarisation des métaux ferromagnétiques. Cette quantité notée P est définie comme étant la différence relative des densités d'états, au niveau de Fermi, $n_{spin}(E_F)$ pour les deux bandes de spin (de configuration de spin \uparrow ou \downarrow):

$$P = \frac{n_{\uparrow}(E_F) - n_{\downarrow}(E_F)}{n_{\uparrow}(E_F) + n_{\downarrow}(E_F)}$$
(II.51)

En supposant que l'électron conserve son état de spin lors de son passage à travers la barrière, on peut considérer que la conduction s'effectue par deux canaux indépendants (figure II.17). La conductivité pour chaque canal de spin est calculée par la règle de Fermi. Celle ci stipule que la probabilité de passage d'un électron dans un état de spin donné est proportionnelle à la densité d'états disponibles au niveau de Fermi dans l'électrode réceptrice.

De même, le nombre d'électrons candidats au passage à travers la barrière est proportionnel à la densité d'états initiaux dans l'électrode de départ. Il en résulte que pour chaque catégorie d'électrons (spin up et spin down) la conductivité tunnel *G* est proportionnelle au produit des densités d'états des deux électrodes, émettrice et réceptrice. Dans ce modèle à deux courants [23] chaque état de spin contribue de manière indépendante au courant tunnel. La conductivité totale est la simple somme des conductivités pour chaque canal. On obtient donc $G_{totale} = G_{\uparrow} + G_{\downarrow}$. Si n_1^{spin} et n_2^{spin} sont les densités d'états au niveau de Fermi des électrodes 1 et 2 on obtient :

$$\begin{cases} G_p \cong n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) \\ G_{ap} \cong n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) \end{cases}$$
(II.52)

Comme on peut clairement le voir sur la figure (II.17), dans une configuration parallèle des aimantations des deux matériaux ferromagnétiques, les densités d'états de spin \uparrow , $n_1^{\uparrow}(E_F)$ et $n_2^{\uparrow}(E_F)$ sont majoritaires dans chacune des électrodes 1 et 2. La transmission des électrons de spin \uparrow se fait entre des états majoritaires de chaque côté de la barrière ce qui entraîne une conductance électrique importante pour ce canal de spin. A l'inverse, les densités d'états de spin \downarrow , $n_1^{\downarrow}(E_F)$ et $n_1^{\downarrow}(E_F)$ sont minoritaires dans chacune des électrodes et entraînent une conductance électrique faible pour ce canal de spin. La résistance globale de la jonction tunnel magnétique étant équivalente à la mise en parallèle des résistances des deux canaux de spin, on obtient une résistance faible (conductance forte, dominée par le canal de spin \uparrow).

De la même manière, dans la configuration anti-parallèle des aimantations, les densités d'états $n_1^{\uparrow}(E_F)$ et $n_2^{\downarrow}(E_F)$ sont majoritaires, et les densités d'états $n_1^{\downarrow}(E_F)$ et $n_2^{\uparrow}(E_F)$ sont minoritaires. On voit clairement que les électrons de spin \uparrow initialement majoritaires et venant de l'électrode 1 n'ont pas assez d'états de spin \uparrow disponibles dans l'électrode 2 d'où une conductance tunnel faible pour le canal de spin \uparrow , et que les électrons de spin \downarrow sont fortement minoritaires dans l'électrode 1 et ne peuvent combler tous les états de spin \downarrow à leur disposition dans l'électrode 2, d'où une conductance tunnel faible pour ce canal de spin \downarrow . Il en résulte une conductance globale faible et une résistance de la jonction tunnel élevée.



Figure II.17. Effet tunnel entre deux métaux ferromagnétiques (MF1 et MF2) séparés par une barrière isolante *I* rectangulaire et déformée par une tension appliquée *V*.

Les densités d'états $n_1^{\uparrow}(E), n_2^{\uparrow}(E), n_1^{\downarrow}(E), n_2^{\downarrow}(E)$ sont schématisées par des paraboles décalées en énergie par l'échange. En négligeant les phénomènes de spin-flip lors du passage à travers la barrière, les électrons de spin \uparrow et de spin \downarrow traversent alors la barrière de manière indépendante par deux canaux de spin distincts. La conduction totale à travers la barrière est alors modélisée par deux résistances électriques connectées en parallèle. Le schéma (a) décrit le cas où les deux électrodes sont dans une configuration magnétique parallèle [24].

On développe alors l'équation décrivant la magnétorésistance tunnel TMR :

$$TMR = \frac{R_{ap} - R_{p}}{R_{p}} = \frac{G_{p} - G_{ap}}{G_{ap}} = \frac{\left(n_{1}^{\uparrow} n_{2}^{\uparrow} + n_{1}^{\downarrow} n_{2}^{\downarrow}\right) - \left(n_{1}^{\uparrow} n_{2}^{\downarrow} + n_{1}^{\downarrow} n_{2}^{\uparrow}\right)}{n_{1}^{\uparrow} n_{2}^{\downarrow} + n_{1}^{\downarrow} n_{2}^{\uparrow}}$$
(II.53)

Cette quantité est sans dimension et s'exprime couramment en %. On remarquera que Jullière n'introduit que la notion de polarisation électronique au niveau de Fermi et que les paramètres tels que l'épaisseur et la hauteur de la barrière ou la nature des électrodes n'interviennent pas. La conductance tunnel s'écrit alors :

$$G = G_{eff} \left(1 + P_1 P_2 \cos \theta \right) \tag{II.54}$$

où θ est l'angle entre les directions des aimantations des deux électrodes (figure II.18) et G_{eff} la valeur moyenne de la conductance de surface. P_1 et P_2 désignent les polarisations au sens de Jullière des électrodes 1 et 2 respectivement.



Figure II.18 : Diagramme d'énergie pour un électron dans une jonction tunnel magnétique pour le cas où la configuration des aimantations des électrodes ferromagnétiques FM1 et FM2 sont parallèles.

Le champ d'échange sépare les bandes d'énergie correspondant aux deux directions de spin (représentées par \uparrow et \downarrow) [31].

II.6 Les modèles de TMR:

Consécutivement aux premiers travaux de Jullière et à son modèle de magnétorésistance tunnel, de nombreux auteurs ont très largement amélioré ce dernier. L'avancée la plus significative dans ce domaine a été le développement d'un modèle proposé par Slonczewsi [25] en 1989, qui intègre pour la toute première fois la concordance des fonctions d'ondes à travers la barrière tunnel pour le transport dépendant du spin. Par la suite, différents auteurs ont proposé leurs modèles propres ou amélioré ceux déjà existants.

II.6.1 Modèle de Bardeen :

Bardeen [26] a exprimé la probabilité par unité de temps pour qu'un électron d'énergie *E* dans l'électrode de gauche (MF₁) passe par effet tunnel et se retrouve dans un état de la même énergie mais dans l'électrode de droite (MF₂) (on peut remarquer l'analogie avec la règle de Fermi) :

$$P_{12}(E) = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{12}(E,V)|^2 f_1(E) n_1(E) (1 - f_2(E + eV)) n_2(E + eV)$$
(II.55)

où $f_1(E)$ et $f_2(E+eV)$ sont les probabilités d'occupation des états dans les électrodes MF₁ et MF₂ aux énergies E et E+eV respectivement, et sont donc données par la distribution de Fermi Dirac, $n_1(E)$ et $n_2(E+eV)$ sont les densités d'états aux énergies E et E+eV dans les électrodes correspondantes, et $M_{12}(E, V)$ est l'élément de la matrice de transition.

La densité de courant J₁₂ qui passe de MF₁ vers MF₂ s'écrit :

$$J_{12} = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{\parallel}} \int_{-\infty}^{+\infty} \left| M_{12}(E) \right|^2 f_1(E) n_1(E) (1 - f_2(E + eV)) n_2(E + eV) dE$$
(II.56)

Le courant inverse J_{21} passant de MF₂ vers MF₁ est donné par :

$$J_{21} = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{\parallel}} \int_{-\infty}^{+\infty} \left| M_{21}(E) \right|^2 f_2(E + eV) n_2(E + eV) (1 - f_1(E)) n_1(E) dE$$
(II.57)

La densité de courant total est alors J_{12} - J_{21} , soit :

$$J = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{||}} \int_{-\infty}^{+\infty} |M_{12}(E)|^2 n_1(E) n_2(E+eV) (f_1(E) - f_2(E+eV)) dE$$
(II.58)

où nous avons utilisé le fait que $M_{21} = M_{12}^*$. La conductance dynamique dJ/dV par unité de surface s'écrit alors :

$$G(V) = \frac{dJ}{dV} = -\frac{2e^2}{\hbar} \sum_{k_{\parallel}} \int_{-\infty}^{+\infty} \left| M_{12}(E) \right|^2 n_1(E) n_2(E+eV) \frac{df_2(E+eV)}{d(eV)} dE$$
(II.59)

Dans le calcul ci-dessus, le spin des électrons n'a pas été pris en compte : suivant la configuration magnétique considérée, il suffit d'ajouter un indice supplémentaire ($\uparrow ou^{\downarrow}$) aux populations $n_1(E)$ et $n_2(E)$. C'est le modèle de Bardeen.

II.6.2 Modèle des électrons libres :

Nous allons voir comment il est possible de modéliser, en utilisant le modèle des électrons libres, le transport tunnel dans une hétérostructure FM/I/FM.

Dans un premier temps, considérons le modèle de Sommerffeld qui correspond à des électrons sans interaction dans une boîte. Il s'agit d'électrons dits libres (figure II.19 (a)). La résolution de l'équation de Schrödinger avec un potentiel V_0 constant donne des états d'énergie E de V_0 jusqu'à E_F :

$$E - V_0 = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \frac{\hbar^2 (k_z^2 + k_{//}^2)}{2m}$$
(II.60)



Figure II.19: (a)Modélisation du remplissage des niveaux pour des électrons dans une boîte de potentiel (b) modélisation du profil de potentiel pour une structure FM/I/FM qui consiste en une succession de trois boîtes telles que celle montrée en (a).

Dans un deuxième temps, on envisage des électrons d'une électrode ferromagnétique. Cette électrode est modélisée par une même boîte que celle présentée ci-dessus. Pour rendre compte du magnétisme, on considère que le potentiel est différent pour les deux directions de spin. Il vaut V^{\uparrow} pour les spins \uparrow et V^{\downarrow} pour les spins \downarrow . Les niveaux d'énergie sont alors définis, suivant la direction de spin :

$$E - V^{\uparrow} = \frac{\hbar^2}{2m} \left(k_z^{\uparrow 2} + k_{//}^2 \right)$$
(II.61)

$$E - V^{\downarrow} = \frac{\hbar^2}{2m} \left(k_z^{\downarrow 2} + k_{//}^2 \right)$$
(II.62)

Les termes $k_{\prime\prime}$ dépendant de la direction de spin mais cette contribution du spin peut être intégrée dans V^{\uparrow} et V^{\downarrow} .

Dans un troisième temps, la structure FM/I/FM se modélise par 2 boîtes ferromagnétiques séparées par une troisième dont le potentiel V_b est supérieur à E_F d'avoir une boîte vide. On aboutit au profil de potentiel de la figure (II.19 (b)). La résolution de l'équation de Schrödinger donne les vecteurs d'onde perpendiculaires au plan de la barrière, dans chaque électrode et pour la direction de spin σ :

$$k_{1}^{\sigma} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^{2}} \left(E_{F} - V_{1}^{\sigma} \right) - k_{//}^{2}}$$
(II.63)

et

$$k_{2}^{\sigma} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^{2}} \left(E_{F} - V_{2}^{\sigma} \right) - k_{//}^{2}}$$
(II.64)

Dans la barrière, la fonction d'onde est une onde évanescente dont le vecteur d'onde est donné par :

$$k = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (V_b - E_F) - k_{//}^2}$$
(II.65)

Le coefficient de transmission pour cette barrière vaut alors $T = \frac{|\psi_2|}{|\psi_1|}$ [31] :

$$T_{\prime\prime\prime} = \frac{16k_1k^2k_2\exp(-2kd)}{\left\{k(k_1+k_2)\left[1+\exp(-2kd)\right]\right\}^2 + \left\{(k^2-k_1k_2)\left[1+\exp(-2kd)-\right]\right\}^2}$$
(II.66)

En particulier si les deux électrodes sont identiques alors $k_1 = k_2 = k^{\uparrow}$ pour la configuration parallèle et $k_1 = k_2 = k^{\downarrow}$ pour la configuration antiparallèle :

Dans le cas de jonctions tunnel parfaites, la périodicité dans le plan parallèle à l'interface FM/I est assurée. De plus, dans l'hypothèse d'une périodicité transverse, le vecteur d'onde transverse de l'électron $k_{//}$ est conservé. Il est alors possible d'utiliser la formule de Landauer-Büttiker, sous la forme :

$$G = \frac{e^2}{(2\pi)^2 \hbar} \int d^2 k_{//} T(k_{//})$$
 (II.67)

Un modèle couramment utilisé est le modèle de Slonczewski [25] qui est une approximation du calcul des électrons libres. La valeur de la conductance dans ce modèle est obtenue en considérant les équations 62 et 63, en intégrant sur $k_{//}$ et en ne conservant que les termes du premier ordre en 1/d:

$$G = \frac{e^2}{4\pi h} \frac{k_0}{d} T(0)$$
 (II.68)

avec $k_0 = k$ et $k_{//} = 0$,

Dans ce cas, on aboutit pour l'expression de la TMR, à un résultat similaire à celui de Jullière mais en remplaçant la polarisation P par une polarisation effective qui tient compte de la hauteur de la barrière V_b :

$$P_{eff} = P \frac{k_0^2 - k^{\uparrow} k^{\downarrow}}{k_0^2 + k^{\uparrow} k^{\downarrow}} \qquad \text{avec} \qquad P = \frac{k^{\uparrow} - k^{\downarrow}}{k^{\uparrow} + k^{\downarrow}}$$
(II.69)

II.6.3 Modèle de Slonczewski :

La première approche théorique précise de la magnétorésistance tunnel entre deux électrodes identiques ($MF_1=MF_2$) fut faite par Slonczewski [25]. Toujours en restant dans le cadre du modèle des électrons libres, il supposa que seuls les électrons au niveau de Fermi participent au courant ; après intégration sur $k_{//}$ et en ne conservant que les termes dominants en 1/d, les conductances dans les configurations magnétiques P et AP, notées G_P et G_{AP} sont telles que :

$$G_{p} \propto \frac{k_{0}}{d} \Big[T^{\uparrow\uparrow} (k_{//} = 0) + T^{\downarrow\downarrow} (k_{//} = 0) \Big] = \frac{k_{0}}{d} \Big[\frac{16k_{0}^{2}k^{\uparrow2}}{(k_{0}^{2} + k^{\uparrow2})^{2}} + \frac{16k_{0}^{2}k^{\downarrow2}}{(k_{0}^{2} + k^{\downarrow2})^{2}} \Big] e^{-2dk_{//}}$$
(II.66)

et

$$G_{ap} \propto \frac{k_0}{d} \left[T^{\uparrow\downarrow} \ (k_{//} = 0) + T^{\uparrow\uparrow} (k_{//} = 0) \right] = \frac{k_0}{d} \left[\frac{32k_0^2 k^{\uparrow} k^{\downarrow} e^{-2dk_{//}}}{k_0 (k^{\uparrow} + k^{\downarrow})^2 + (k_0^2 - k^{\uparrow} k^{\downarrow})^2} \right]$$
(II.67)

La magnétorésistance s'écrit alors :

$$TMR = \frac{G_P - G_{ap}}{G_{ap}} = \frac{2P_{eff}^2}{1 - P_{eff}^2} \quad P_{eff} = \frac{k^{\uparrow} - k^{\downarrow}}{k^{\uparrow} + k^{\downarrow}} \frac{k_0^2 - k^{\uparrow} k^{\downarrow}}{k_0^2 + k^{\uparrow} k^{\downarrow}}$$
(II.68)

Le résultat obtenu par Slonczewski a la même forme que celui du modèle de Jullière mais en considérant cette fois une polarisation effective, produit de la polarisation des électrodes ferromagnétiques et d'un terme qui dépend de la hauteur de la barrière. Ainsi, à la différence du modèle de Jullière, la magnétorésistance dépend du type de jonction tunnel : Slonczewski fut le premier à considérer que la polarisation « tunnel » n'est pas une propriété intrinsèque des métaux mais dépend du couple {métal-isolant} considéré. Des expériences récentes ont clairement validé ce concept et ont montré la forte dépendance entre la polarisation en spin et les propriétés structurales et électroniques des métaux, de l'isolant et de leurs interfaces [28].



Figure II.20. Ratio de conductance ($\Delta G/G$) par rapport à la polarisation au niveau de Fermi P pour un courant tunnel d'électrons libres dépendant du spin pour des hauteurs de barrière variables (V_b).

Dans chaque encart sont représentées les épaisseurs de la barrière de 5, 10, 20, 100 et 200 Å avec les courbes correspondantes de Jullière et Slonczewski légendées J et S respectivement [29].

II.7 Conclusion sur les différents modèles étudiés :

Ces modèles peuvent tous être utilisés pour décrire le comportement magnétorésistif d'une jonction tunnel magnétique. Cependant, ces différentes formulations ne sont pertinentes que dans des gammes de paramètres assez limitées et ne peuvent en aucun cas décrire le comportement des JTM dans leur globalité. Ces modèles produisent des résultats assez voisins de sorte qu'on ne peut pas actuellement les distinguer d'une façon précise.

Chapitre III La Spintronique avec des Semiconducteurs

III.1 Introduction :

La mise en évidence expérimentale en 1988 d'un transport électrique dépendant du spin dans des multicouches Fe/Cr [32] constitua le point de départ d'une nouvelle discipline de la physique de l'état solide : l'électronique de spin.

Les deux effets principaux étudiés jusqu'à présent sont la magnétorésistance géante (GMR) et la magnétorésistance tunnel (TMR). La structure caractéristique, associée à ces deux effets, est composée de deux matériaux ferromagnétiques séparés par un matériau non magnétique (couche métallique pour la GMR ou isolante pour la TMR). Une modification de la configuration magnétique des matériaux ferromagnétiques par un champ appliqué amène une variation de résistance électrique. Ce type d'effets est appliqué dans des capteurs, des têtes de lectures – écritures etc... [44].

La croissance et l'étude d'hétérostructures semiconductrices intégrant des matériaux magnétiques représentent actuellement un intense axe de recherche qui amènera probablement une nouvelle génération de composants électroniques [45]. Un des intérêts des semiconducteurs est le temps de vie du spin plus long que dans les métaux, et donc l'avantage d'une propagation de l'information du spin sur de plus grandes distances [46, 47].



Figure III.1 : Transistor à spin proposé par Datta et Das [48].

Au-delà de la réalisation de ces nouveaux mais relativement classiques concepts, l'utilisation de spin dans les semiconducteurs, et plus précisément la nature quantique du spin, pourrait constituer une des vois pour la réalisation de calculs ou de cryptographie quantiques.

L'étape préalable à la réalisation de tels dispositifs est l'injection d'un courant électrique dépendant de spin dans un semiconducteur et la conservation de l'information de spins dans ce semiconducteur. L'injection, la manipulation et la détection de spins dans des semiconducteurs ne constituent pas un domaine récent de la physique.

Dès les années 60, les études des propriétés du spin des porteurs dans des semiconducteurs ont été effectuées par des moyens optiques [49]. Toutefois, depuis un peu plus d'une décennie, l'injection électrique de porteurs polarisés en spin, nécessaire à la réalisation de dispositifs purement électroniques, constitue un nouveau défi.

Dans les semiconducteurs, le contrôle du spin des porteurs, en plus de leur charge, pourrait donner naissance à une nouvelle génération de dispositifs électroniques [50], [51]. Cette idée est née d'un nouveau concept de dispositifs pouvant tirer profit de la manipulation du spin pour créer une nouvelle fonctionnalité. C'est le transistor de Datta et Das dont nous allons décrire brièvement le principe [48].

Ce concept a été proposé en 1990 et baptisé Spin FET (Spin - dependent Field Effect Transistor) ou encore « transistor à rotation de spin ». Ce dispositif ressemble à première vue à un transistor à effet de champ classique, comme illustré sur la figure III.2 ; il a une source de courant, un drain et un canal avec une conductance contrôlable via une tension de grille, Vg.

Cependant, la comparaison s'arrête là. Le transistor à spin est basé sur des contacts sélectifs en spin, c'est-à-dire capables d'injecter ou de collecter une orientation donnée de spin. L'injection et la collection du courant polarisé en spin sont assurées par des électrodes ferromagnétiques (le Fe, par exemple).



Figure III.2 : Schéma du "transistor à rotation de spin".

La polarisation Vg permet de contrôler via le couplage spin-orbite de Rashba l'orientation du spin dans le canal [48]. L'injection de spin a lieu dans un gaz d'électrons à deux dimensions pour augmenter la mobilité des électrons.

Pour moduler le courant de drain, Datta et Das ont proposé de contrôler la rotation du faisceau de spin dans le canal en utilisant le couplage spin-orbite de Rashba (voir plus loin)

qui doit être fonction de la tension appliquée à la grille [52], [53]. Le courant de drain atteint une valeur maximale quand l'orientation des spins est parallèle à celle de l'aimantation des électrodes injectrice et collectrice. Il atteint une valeur minimale quand elles sont opposées. Ce concept de transistor suppose également une transmission cohérente, autrement dit sans perte du spin, entre l'injecteur (la source) et le collecteur (le drain). Selon cette proposition, le canal où la propagation de spin a lieu doit être un gaz d'électrons à deux dimensions pour tirer profit d'une mobilité élevée permettant ainsi une propagation cohérente.

En résumé, ce concept de transistor à spin est basé sur :

- 1. Une injection de courant polarisé en spin dans un semiconducteur ;
- 2. Une propagation cohérente des spins ;
- 3. Un contrôle de la précession des spins ;
- 4. Une collection sélective en spin.

Nous allons traiter plus particulièrement les points 1, 2 et 4 dans les paragraphes qui suivent. Le point 3 est assez délicat et sort du cadre de ce mémoire (voir [48]).

III.2 Injection de courant polarisé à partir d'un contact ohmique ferromagnétique (FM)/ semiconducteur (SC) :

III.2.1 Etude expérimentale :

Un nombre important de tentatives de démonstration expérimentale du concept de transistor à spin a été effectué. Citons par exemple les travaux de Monzon [54], [55] et ceux de Filip [56] qui ont porté sur l'injection de spin à partir d'un métal ferromagnétique (Py1, Co ou Ni) vers un canal semiconducteur. La mise en évidence de l'injection et de la collection sélective en spin est basée dans ces travaux sur l'observation d'un changement de la résistance dans le canal SC lorsque les aimantations des deux électrodes passent de l'état parallèle à l'état antiparallèle. Un certain nombre de groupes a ainsi rapporté l'observation de phénomènes de magnétorésistance, pouvant indiquer une injection de spin dans un semiconducteur [57], [58], [59], [60]. Cependant, la démonstration de phénomènes d'injection électrique de spin dans des dispositifs à partir de contacts ohmiques métal ferromagnétique/semiconducteur reste peu concluante et très controversée [61]. En effet, l'amplitude du signal de magnétorésistance observée reste inférieure à 1 %, ce qui pourrait être attribuée à une injection de spin [55].

III.2.2 Modèle pour le transport de spin dans les systèmes diffusifs : application au transport à travers l'interface FM/SC :

Face à cet échec expérimental, différents groupes de recherche se sont employés à étudier les mécanismes de transport de spin dans les systèmes FM/SC. G. Schmidt et al. [62] ont décrit l'injection électrique de spin d'un métal ferromagnétique dans un semiconducteur, en terme de deux courants électriques, un courant de « spin up » et un courant de « spin down». Dans la suite, le formalisme du modèle à deux courants de spin sera introduit et puis appliqué au système FM/SC.

Le modèle suppose que l'on peut définir en tout point de la structure deux potentiels chimiques μ_{\uparrow} et μ_{\downarrow} et deux courants J_{\uparrow} et J_{\downarrow} associés aux spins up et down (cas des systèmes diffusifs). Le courant circule dans la direction x. Les potentiels chimiques sont reliés aux courants via la conductivité σ , le coefficient de diffusion *D* et le temps de spin-flip τ_{sf} par la loi d'Ohm:

$$\frac{\partial \mu_{\uparrow,\downarrow}}{\partial x} = -\frac{eJ_{\uparrow,\downarrow}}{\sigma_{\uparrow,\downarrow}}$$
(III.1)

et l'équation de la diffusion

$$\frac{\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}}{\tau_{sf}} = \frac{D\partial^2(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow})}{\partial x^2}$$
(III.2)

 σ_{\uparrow} et σ_{\downarrow} représentent les conductivités des canaux de spin up et down respectivement. Ces conductivités sont différentes dans le cas du métal ferromagnétique et identiques dans un métal normal. τ_{sf} est la durée moyenne pour faire changer l'orientation d'un spin up en spin down et vice-versa (voir plus loin pour le calcul de τ_{sf}).

Pour ce modèle D est la moyenne pondérée des coefficients de diffusion des spins up D_{\uparrow} et des spins down D_{\downarrow} :

$$D = \frac{D_{\uparrow} n_{\uparrow} + D_{\downarrow} n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}}$$
(III.3)

avec n_{\uparrow} et n_{\downarrow} les densités d'états des électrons au niveau de Fermi pour les deux orientations de spin.

La solution générale des équations (1) et (2) s'écrit :

$$\mu_i = a + bx + \frac{c}{\sigma_i} \exp(-\frac{x}{l_{sf}}) + \frac{d}{\sigma_i} \exp(\frac{x}{l_{sf}})$$
(III.4)

où $l_{sf} = \sqrt{D\tau_{sf}}$ est la longueur de diffusion de spin.

On applique ce modèle au système unidimensionnel dans lequel on a un métal ferromagnétique (index i = 1) qui s'étend de x = $-\infty$ à x = 0. Ce dernier est en contact avec un semiconducteur (index i = 2, $0 < x < x_0$) lequel est en contact avec un deuxième métal ferromagnétique (index i = 3, $x_0 \le x \le +\infty$). x₀ correspond à l'épaisseur du semiconducteur. Ce système est décrit par la figure III. 3 et peut être représenté d'un point de vue électrique par un réseau de résistances $R_{1\uparrow,\downarrow}$, $R_{sc\uparrow,\downarrow}$ et $R_{3\uparrow,\downarrow}$ représentant les deux canaux de spin indépendants pour chacune des régions.



Figure III.3 : Modèle de résistance simplifié pour un dispositif composé d'un semiconducteur (SC) avec deux contacts ferromagnétiques (FM), 1 et 3. Les deux canaux de spin indépendants sont représentés par des résistances $R_{1\uparrow,\downarrow}$, $R_{sc\uparrow,\downarrow}$ et $R_{3\uparrow,\downarrow}$.



Figure III.4 : (a) et (b) montrent les potentiels électrochimiques dans les trois régions pour le cas où les aimantations sont parallèles (a) et anti – parallèles (b) d'après [62].

Pour séparer les effets liés à la polarisation de spin du flux de courant normal, les potentiels chimiques dans les métaux ferromagnétiques pour les deux orientations de spin sont exprimés par :

$$\mu_{\uparrow,\downarrow} = \mu^0 + \mu_{i\uparrow,\downarrow} \tag{III.5}$$

où μ^0 est le potentiel chimique sans effet du spin. Pour chaque partie (i = 1, 3), on utilise l'équation (4).

 $\mu_{i\uparrow,\downarrow} = \mu_i^0 + \mu_{i\uparrow,\downarrow}^* = \mu_i^0 + c_{i\uparrow,\downarrow} \exp \pm \left((x - x_i) / l_{fm} \right) \text{ pour i=1,3 avec } x_1 = 0, x_3 = x_0 \text{ et le signe +(-)}$ se réfère à l'indice 1(3).

Dans le semiconducteur, puisque l_{sc} est de plusieurs ordres de grandeurs plus grand que l_{fin} et beaucoup plus important que l'épaisseur x₀ du semiconducteur, l'expression (4) fournit :

$$\mu_{2\uparrow\downarrow}(x) = \mu_{1\uparrow\downarrow}(0) + \gamma \ x. \tag{III.6}$$

où γ est une constante.

En l'absence de diffusion de spin aux interfaces FM/SC, les conditions aux limites aux interfaces sont : 1/ la continuité des potentiels chimiques ; 2/ la conservation des courants de spins up et down.

En prenant en compte ces conditions aux limites, G. Schmidt et al. [62] déduisent une expression de la polarisation P du courant d'électrons injectés du métal ferromagnétique dans le semiconducteur :

$$P = \frac{J_{\uparrow} - J_{\downarrow}}{J_{\uparrow} + J_{\downarrow}} = \beta \frac{l_{fm} \sigma_{sc}}{\sigma_{fm} x_0 (2 \frac{l_{fm} \sigma_{sc}}{x_0 \sigma_{fm}} + 1) - \beta^2}$$
(III.7)

où *P* est évaluée à l'interface FM/SC. Elle est constante à travers le semiconducteur car l'on suppose que le temps de spin flip est constant à travers le semiconducteur car il est supposé que τ_{sf} est infini. β est la polarisation du métal ferromagnétique loin de l'interface FM/SC (polarisation du massif). Or d'après le modèle de Jullière [42] (Voir éq.49 chapitre II), *P* est définie par l'expression suivante :

$$P = \frac{\sigma_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow}}{\sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}} = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}}$$
(III.8)

avec n_{\uparrow} et n_{\downarrow} les densités d'états des électrons au niveau de Fermi pour les deux orientations de spin. β peut atteindre quelque 10 % [63], [64], [65], [66].

Pour des valeurs typiques, $\beta = 60$ %, $x_0 = 1 \,\mu$ m et $\sigma_{jm} = 10^4 \sigma_{sc}$ [62], on obtient P = 0,002% ce qui est très faible. *P* a une valeur maximale égale à la polarisation du métal ferromagnétique β .

Cependant, cette valeur maximale de α ne peut être obtenue que pour β proche de 1, ce qui correspond à un ferromagnétique demi-métallique.

Pour un système tout métal (c'est-à-dire si le semiconducteur est remplacé par un métal normal), on a $\sigma_{fm} \approx \sigma_{sc}$ et *P* tend vers à β à l'interface métal ferromagnétique/métal normal [66], [67]. On en conclut qu'en raison de la différence de conductivité entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur, on réduit très fortement l'efficacité d'injection de courants polarisés en spin dans le semiconducteur. Ce phénomène est connu sous le terme de « conductivity mismatch ».

III.2.3 Solutions au problème de « Conductivity Mismatch »:

Deux solutions pour obtenir une injection efficace de spin dans un semiconducteur découlent directement de la théorie rappelée précédemment. La première consiste à utiliser un semiconducteur magnétique comme source de spin à la place du FM afin d'avoir $\sigma_{fm} \approx \sigma_{sc}$ [68], [69], [28]. La deuxième consiste à utiliser un ferromagnétique demi-métallique pour avoir β proche de 1 [28], [70].

Des travaux de recherche ont en effet montré que les semiconducteurs tels que le composé paramagnétique $Be_xMn_yZn_{1-x-y}Se$ [28] et le composé ferromagnétique GaMnAs [64] peuvent permettre d'injecter des spins dans un semiconducteur non magnétique.

Toutefois, le ferromagnétisme disparaît en dessous d'une centaine de Kelvin et l'utilisation du semiconducteur paramagnétique nécessite l'application d'un champ magnétique élevé (de l'ordre du Tesla) [28]. Ceci rend impossible toute application pratique basée sur ces systèmes.

L'utilisation d'un métal ferromagnétique en tant que polariseur de spin reste donc à ce jour la seule possibilité pouvant conduire à l'élaboration de dispositifs fonctionnant à température ambiante. Afin de contourner l'obstacle fondamental lié à la différence de conductivité entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur, une idée a été avancée par différents auteurs [71], [72], [73], [74], [75]. Elle consiste à intercaler une barrière tunnel isolante entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur.

III.3 Transport de spin à travers une barrière tunnel isolante: III.3.1 Théorie:

L'injection des électrons polarisés en spin par effet tunnel dans un semiconducteur a déjà été réalisée par Alvarado et al. [76], [77]. Ils ont injecté un courant tunnel vers le GaAs par l'intermédiaire d'une pointe de Nickel d'un microscope à effet tunnel et mesuré le degré de polarisation circulaire de la luminescence induite. Cette polarisation de la lumière est une preuve de la présence au sein du semiconducteur d'un excès de population de spins d'une orientation donnée et découle des règles de sélection qui régissent la recombinaison radiative vis-à-vis du spin [78], [79], [80].

Notons que la physique de l'injection de spin à travers une barrière tunnel est assez différente de celle décrivant l'injection à travers l'interface FM/SC comme développée précédemment [71], [72], [73], [74], [75] (voir Figure III.5).



Figure III.5: Interface entre un métal ferromagnétique et un semiconducteur. Les lignes en pointillé montre les asymptotes des potentiels chimiques. F_d représente la bande d du FM.

 S_c et S_v représentent respectivement la bande de conduction et de valence du SC.



Figure III.6 : Potentiels électrochimiques pour le cas d'une barrière tunnel entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur.

La chute de potentiel électrochimique $\Delta \overline{\mu}_B$ à travers la jonction est beaucoup plus grande que la différence de potentiels électrochimiques entre les spins up et down dans le métal ferromagnétique ou le semiconducteur. Notons l'inversion de signe entre l'accumulation de spin du FM et du SC [74].

En insérant une barrière tunnel entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur, la continuité des courants de spins up J_{\uparrow} et down J_{\downarrow} est toujours valable mais pas celle des potentiels électrochimiques $\overline{\mu}_{\uparrow}$ ou $\overline{\mu}_{\downarrow}$. En particulier, les quantités $\Delta \overline{\mu}$ qui décrivent l'accumulation de spins pour le métal ferromagnétique $\Delta \overline{\mu}_{FM}(0) = \overline{\mu}_{FM}(0) - \overline{\mu}_{FM\downarrow}(0)$ et pour le semiconducteur $\Delta \overline{\mu}_{sc}(0) = \overline{\mu}_{sc}(0) - \overline{\mu}_{sc\downarrow}(0)$ sont de signes opposés dans le cas d'une injection tunnel alors qu'ils étaient de même signe $\Delta \overline{\mu}_{FM}(0) = \Delta \overline{\mu}_{sc}(0) = \Delta \overline{\mu}(0)$ dans le cas d'une injection directe à travers l'interface FM/SC [74]. En effet, la grande mobilité des spins up dans le métal ferromagnétique, liée à leur densité d'états d plus basse, fait qu'ils arrivent en plus grand nombre à l'interface. Or, le courant tunnel dépend directement du produit des densités d'état des deux matériaux de part et d'autre de la barrière tunnel. Par conséquent, les spins down sont préférentiellement injectés puisqu'ils ont une densité d'états d plus importante dans le métal ferromagnétique.

Dans le cas où la chute de potentiel électrochimique $\Delta \overline{\mu}_B$ à travers la barrière est de plusieurs ordres de grandeur plus importante que les quantités $\Delta \overline{\mu}_{FM}$ et $\Delta \overline{\mu}_{sc}$, il a été montré que la polarisation *P* du courant polarisé en spin [74], [75] s'écrit :

$$P = \frac{J_{\uparrow} - J_{\downarrow}}{J_{\uparrow} + J_{\downarrow}} = -\beta \text{ ou } \beta = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}} \text{ est la polarisation du métal ferromagnétique, avec } n_{\uparrow} \text{ et}$$

 n_{\downarrow} les densités d'états des électrons au niveau de Fermi pour les deux orientations de spin. Notons qu'il en résulte que la polarisation correspond là encore à la polarisation du métal ferromagnétique β , avec toutefois une inversion de signe par rapport au système FM/métal normal comme vu précédemment.

Dans le cas des barrières ultra-minces ou des barrières discontinues, la différence de potentiels électrochimiques dans le métal ferromagnétique $\Delta \overline{\mu}_{FM}$ est du même ordre de grandeur que la chute de potentiel dans la barrière $\Delta \overline{\mu}_B$. Les signes des accumulations de spin du métal ferromagnétique et du semiconducteur étant opposés, la chute de potentiel dans la barrière $\Delta \overline{\mu}_B$ et la différence de potentiels électrochimiques $\Delta \overline{\mu}_{FM}$ tendent à établir une injection de spin de signes opposés. La polarisation nette tend alors vers 0.

En résumé, l'injection de spin vers un semiconducteur nécessite une barrière tunnel entre le FM et le SC. Cette barrière peut être obtenue soit par une barrière de type Schottky soit en intercalant une couche diélectrique tunnel entre le FM et le SC.

III.3.2 Cas de la barrière Schottky:

Une barrière Schottky peut dans certaines conditions constituer une barrière tunnel naturelle entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur. Les électrons peuvent alors être injectés du métal ferromagnétique dans le semiconducteur en appliquant une tension négative sur l'électrode ferromagnétique. Dans le cas général, le courant injecté est très faible en raison de l'existence d'une zone de déplétion dans le semiconducteur de quelques 100 Å typiquement.

Cependant, la largeur de la zone de déplétion peut être ajustée en utilisant un profil de dopage adapté [81]. Hanbicki et al. [82], [40] ont utilisé une jonction Schottky réalisée par croissance d'une couche de Fe par épitaxie à jet moléculaire (voir annexe 3) sur une structure à puits quantique de type Al GaAs/GaAs/Al GaAs (voir la Figure III. 7(a)).

L'étude du degré de polarisation de la lumière émise dans le puits quantique de GaAs (voir la Figure III.7 (b)) suite à la recombinaison des électrons polarisés avec des trous non

polarisés, a permis de mettre en évidence une injection efficace de spin où la polarisation du courant était de 30 % à 4,5 K et de 4 % à 240 K [82].



Figure III.7: (a) Diagramme de bandes d'énergie en régime de bandes plates de la barrière Schottky tunnel et de la diode électroluminescente (LED) [82]. (b) Profil du dopage à l'interface Fe/AlGaAs [40].

III.3 .3 Cas de la structure Métal Ferromagnétique/Isolant/Semiconducteur (FMIS):

V.F. Motsnyi et al. [83] ont proposé en 2002 une étude d'injection électrique de spin en utilisant une barrière tunnel isolante d'AlO_x entre la couche ferromagnétique et l'hétérostructure semiconductrice (AlGa)As/GaAs. Les auteurs observent une polarisation de 9 % à 80 K en utilisant l'effet Hanle Oblique (OHE). Après optimisation de leur échantillon, une polarisation de 24 % à 80 K et de 12 % à température ambiante a été rapportée par Dorpe et al.[82], puis de 21 % à 80 K et de 16 % à température ambiante par Motsnyi et al. [84].

Dans une jonction tunnel Métal/Isolant/Semiconducteur (MIS) réelle polarisée en direct, trois courants peuvent traverser la jonction tunnel : (i) les électrons « tunnellent » du métal ferromagnétique dans la bande de conduction du semiconducteur ; (ii) les électrons « tunnellent » du métal ferromagnétique dans la bande de valence du semiconducteur (tunnel des trous) ; (iii) les électrons du métal ferromagnétique « tunnellent » à travers la barrière puis se recombinent avec les états de surface de l'interface oxyde/semiconducteur [86]. Seule l'injection électrique des électrons dans la bande de conduction du semiconducteur peut être évaluée par des méthodes optiques.

Trois courants traversent la jonction : un courant du métal ferromagnétique vers la bande de conduction du semiconducteur, un courant du métal ferromagnétique vers la bande de valence du semiconducteur (tunnel des trous), et un courant de recombinaison avec les états de surface à l'interface oxyde tunnel/semiconducteur [84].

Les deux autres mécanismes de conduction causent un chauffage local de l'échantillon, un plus grand stress appliqué à la jonction (courant, tension), la dégradation du dispositif, et un fonctionnement peu fiable. Pour réduire ces contributions, les auteurs introduisent une couche d'AlGaAs non dopée entre l'oxyde tunnel et le GaAs (voir la Figure III8). Cette couche garde les trous loin de l'interface oxyde/semiconducteur et réduit ainsi le courant via les défauts de surface et le courant tunnel des trous vers le métal



Figure III.8: Représentation d'une jonction FMIS.

La figure III.8 montre la structure des échantillons étudiés pour l'étude de l'injection de spin.

Dans les semiconducteurs III-V, le degré de polarisation des spins injectés est généralement contrôlé en mesurant le degré de polarisation de la lumière émise par la diode électroluminescente (LED). Cette polarisation caractérise seulement la composante des spins normale à la surface.



Figure III.9: Représentation de la diode électroluminescente fabriquée, et vue de dessus, montrant le contact en Or avec la fenêtre optique [84].

III.3.4 Résumé des principaux résultats sur l'injection de spin dans les semiconducteurs:

Le tableau suivant résume les principaux résultats obtenus par des méthodes optiques sur l'injection de spin dans un semiconducteur.

Auteurs	Injecteur de spin	Détecteur de spin	Polarisation du courant (%)	Température (K)
H.J. Zhu (2001) [84]	Fe/GaAs Contact Schottky	(In,Ga)As/GaAs	2	300
A.T. Hanbicki (2002)[78]	Fe/AlGaAs contact Schottky	(Al,Ga)As/GaAs	30	240
V.F. Motsnyi (2002) [80]	CoFe/Al ₂ O ₃ /AlGaAs diode MIS	(Al,Ga)As/GaAs	9	80
M. Ramsteiner (2002) [85]	MnAs/GaAs contact Schottky	(In,Ga)As/GaAs	6	80
V.F. Motsnyi(2003) [81]	CoFe/Al2O3/AlGaAs diode MIS	(Al,Ga)As/GaAs	16	300
A. Kawaharazuka (2004)[86]	Fe ₃ Si/GaAs contact Schottky	(In,Ga)As/GaAs	10	25
Wang (2005) [87]	CoFe/MgO/GaAs diode MIS	(Al,Ga)As/GaAs	55	100
Y. Ohno(1999) [64]	GaMnAs	(In,Ga)As/GaAs	≈ 2	6
R. Fiederling (99)[65]	BeMnZnSe	(Al,Ga)As/GaAs	90	5

Tableau III.1 : Résultats obtenus par des méthodes optiques sur l'injection de spin dans un semiconducteur.

.

III.4 Transport de spin dans les semiconducteurs:

La réalisation d'un dispositif spintronique suppose, outre une injection et une collection de spin, un transport cohérent en spin au sein du semiconducteur. Dans un régime de transport diffusif, la polarisation du courant de spin injecté décroît exponentiellement au sein du SC. La longueur caractéristique de cette décroissance est la longueur de diffusion l_{sc} . Pour comprendre le transport des spins, il est intéressant de connaître les différents mécanismes impliqués dans la relaxation de spin dans les semiconducteurs. Commençons par introduire le concept fondamental de couplage (ou interaction) spin – orbite, nécessaire à la compréhension de ces mécanismes.

III.4.1 L'interaction spin – orbite:

L'interaction spin – orbite est un effet relativiste qui a lieu quand une particule possédant un spin non- nul se déplace dans une région où règne un champ électrique.

Quand un électron se déplace avec une vitesse \vec{v} dans un champ électrique extérieur \vec{E} , il voit dans son référentiel propre un champ magnétique \vec{B}_{eff} dont l'expression est :

$$\vec{B}_{eff} = -\frac{1}{c^2} \vec{v} \times \vec{E}$$
(III.9)

où c est la vitesse de la lumière.

La présence d'un champ magnétique effectif, que les électrons ressentent dans leur référentiel, affecte à la fois la dynamique du spin de l'électron et son énergie totale. Cette interaction est appelée interaction spin – orbite.

Il faut garder à l'esprit que la seule interaction aboutissant à une modification de l'orientation de spin est celle avec un champ magnétique. La source de ce champ magnétique peut être un champ magnétique extérieur ou un champ magnétique effectif généré par l'interaction spin – orbite. Le champ électrique statique à l'origine de l'interaction spin – orbite peut avoir différentes origines physiques, par exemple le champ électrique des noyaux des atomes ou celui relié au cristal ou à la structure de bande du solide.

Si l'on tient compte de l'interaction spin - orbite, l'équation de Schrödinger d'un électron se déplaçant dans un cristal est donnée par :

$$\left[\frac{\vec{P}^2}{2m} - qV(r) + \frac{q\hbar}{2mc^2}(\vec{\nabla}V \times \vec{p}).\vec{\sigma}\right]\psi = \varepsilon\psi$$
(III.10)

avec m la masse de l'électron libre, V(r) le potentiel périodique, \vec{p} la quantité de mouvement de l'électron et $\vec{\sigma}$ les matrices de Pauli. Le troisième terme de l'hamiltonien est le terme de l'interaction spin – orbite, ε est l'énergie propre du système. La résolution de l'équation de Schrödinger permet le calcul de la structure de bande électronique des cristaux en présence du terme de couplage spin – orbite [90].

La figure III.10 montre l'allure simplifiée des bandes d'énergie au centre de la zone de Brillouin ($\vec{p} = \vec{0}$) d'un semiconducteur III-V à bande interdite directe comme le GaAs. L'interaction spin - orbite est responsable du clivage de la bande de valence. L'écart énergétique entre les deux bandes clivées est noté Δ_0 .Typiquement, Δ_0 varie de 0,1 à 1 eV. Le GaAs présente une bande interdite directe et est caractérisé par un couplage spin-orbite de 0,34 eV, largement inférieur à la largeur de la bande interdite E_g de 1,4 eV. Par contre, le silicium présente une bande interdite indirecte et est caractérisé par un faible couplage spinorbite : le clivage de la bande de valence Δ_0 du silicium n'est que d'environ 0,04 eV c'est-àdire quasiment 10 fois plus faible que dans le GaAs [92]. Dans la suite, nous reviendrons sur cette différence d'amplitude du couplage spin-orbite entre le GaAs et le Si et sur ces implications sur les propriétés de transport des spins dans le silicium.



Figure III.10 : Bandes d'énergie du GaAs près de [89].

Nous nous focaliserons ici sur les mécanismes de relaxation des électrons de conduction. Les trois principaux mécanismes aboutissant à une perte de l'orientation des spins dans un semiconducteur sont le mécanisme Elliot – Yafet (EY), le mécanisme D'yakonov Perel' et le mécanisme Bir – Aronov Pikus [90],[91],[94].

III.4.2 Le mécanisme Elliot – Yafet (EY):

L'origine physique du mécanisme Elliot – Yafet est le potentiel de perturbation U dû soit aux impuretés ionisées soit aux vibrations du réseau (les phonons). L'interaction spinorbite relative à ce potentiel de perturbation U aboutit à des transitions entre états de la bande de conduction d'orientations de spins opposés.

Le temps de relaxation de spin d'électrons τ_{sf} correspondant à la combinaison de ces effets est donné par [93], [94] :

$$\frac{1}{\tau_{sf}} = A \left(\frac{\Delta_0}{E_g + \Delta_0} \right)^2 \left(\frac{E_e}{E_g} \right)^2 \frac{1}{\tau_m}$$
(III.11)

où A est une constante, τ_m est la durée entre deux collisions aboutissant à un changement de moment $\Delta \vec{k} = \vec{k} - \vec{k'}$, E_e l'énergie cinétique de l'électron, et Eg le gap du semiconducteur. Ce type d'interaction avec retournement simultané de l'orientation de spin a été introduit par Elliot dans le cas de l'interaction coulombienne avec les impuretés ionisées [90] et par Yafet [95] dans le cas de l'interaction porteur/phonon. La figure III.10 illustre ce mécanisme.

III.4.3 Le mécanisme D'Yakonov - Perel' (DP):

L'origine physique du mécanisme D'Yakonov - Perel' est le champ électrique cristallin \vec{E}_{cris} , non nul dans les cristaux sans centre d'inversion tels que les semiconducteurs III-V comme le GaAs. Ce mécanisme n'existe donc pas dans le silicium qui est centro-symétrique ($\vec{E}_{cris} = \vec{0}$). Le champ cristallin correspond à un champ magnétique \vec{B}_{eff} agissant sur le spin, l'amplitude et la direction de ce champ dépendant de l'amplitude et la direction du moment de l'électron [96]. $\vec{B}_{eff}(\vec{k})$ cause une précession du spin de l'électron à la fréquence ω .

Le changement du moment de l'électron suite à une diffusion mène à un changement de \vec{B}_{eff} par la suite, de l'axe de précession.

Donc, l'orientation initiale du spin change au fur et à mesure des diffusions (voir la figure III.11).



Figure III.11: Représentation du mécanisme D'Yakonov - Perel'. Ce mécanisme est dû au champ cristallin.

Dans le cas des électrons thermalités, entre deux collisions, le spin de l'électron n'a pas le temps de dévier considérablement de sa direction initiale. Il est montré que le temps de relaxation de spin lié au mécanisme DP obéit à la loi suivante [94] :

$$\frac{1}{\tau_{sf}} = b \frac{(k_B T)^3}{\hbar^2 E_g} \tau_m$$
(III.12)

où τ_m est la durée entre deux collisions aboutissant à un changement de moment de l'électron et b est une constante qui caractérise la structure de la bande de conduction du SC.

III.4.4 Le mécanisme Bir, Aronov et Pikus (BAP):

Le mécanisme BAP résulte de l'existence de l'interaction d'échange entre le spin des électrons de la bande de conduction et le moment cinétique des trous [97]. L'hamiltonien d'interaction d'échange électron - trou a pour expression :

$$H_{\acute{e}ch} = A_{\acute{e}ch} V \vec{J} \cdot \vec{S} \delta(\vec{r}_e - \vec{r}_h)$$
(III.13)

où \vec{J} est le moment cinétique angulaire des trous, \vec{r}_e et \vec{r}_h repèrent les positions respectives des électrons et des trous, \vec{S} le spin de l'électron et δ la fonction de Dirac.

Le temps de relaxation de spin τ_{sf} est inversement proportionnel à la densité N_A des accepteurs du semiconducteur dopé p [98]: $\tau_{sf} \propto \frac{1}{N_A}$. Le mécanisme BAP est responsable d'une précession du spin des électrons autour d'un axe instantané, analogue au mécanisme D'yakonov Perel.

D'autres mécanismes contribuent à la décohérence des spins tels que l'interaction hyperfine (interaction entre le spin des électrons de conduction et le spin nucléaire) [91] et l'interaction entre électrons [99].

III.4.5 Estimations théoriques:

Les estimations théoriques prédisent les gammes de température et de densités d'accepteurs pour lesquelles chacun des mécanismes est dominant. Les résultats indiquent que pour une large gamme de densités d'accepteurs dans le GaAs et le GaSb, les mécanismes de DP et EY sont dominants à basses densités d'accepteurs et hautes températures tandis que le mécanisme de BAP est plus important à hautes densités d'accepteurs et à basses températures [80]. La figure III.12 montre l'importance relative des mécanismes DP et BAP dans le GaAs.



Figure III.12 : Rôle relatif joué par les mécanismes BAP et DP dans le GaAs [76]

III.4.6 Le couplage spin-orbite de Rashba:

L'interaction Rashba est un cas particulier d'interaction de type spin-orbite [52], [53]. Elle n'est importante que dans les systèmes bidimensionnels dans lesquels un champ électrique uniforme est présent, perpendiculaire au plan dans lequel les électrons se déplacent. Le fort champ perpendiculaire est présent dans les systèmes dans lesquels les électrons sont confinés dans un puits de potentiel asymétrique. Ce champ électrique interfacial existe par exemple à l'intérieur d'une hétérojonction à modulation de dopage comme l'hétérojonction InGaAs/InAlAs proposée et étudiée par Das et al [100], [48]. La figure III.13 présente le schéma de la bande de conduction à l'interface d'une hétérostructure constituée du semiconducteur InAlAs (large bande interdite) et du semiconducteur InGaAs (faible bande interdite).



Figure III.13: Allure de la bande de conduction à l'interface d'une hétérostructure à modulation de dopage.

Les électrons sont repoussés du contact Schottky ; il se forme une zone déplétive dans le semiconducteur. Les électrons sont alors confinés dans un puits de potentiel bidimensionnel et forment un gaz d'électrons bidimensionnel. La forme du puits asymétrique se rapproche de celle d'un puits triangulaire. Cette forme de potentiel V de confinement est la source d'un champ électrique \vec{E} uniforme ($\vec{E} = -\vec{\nabla}V$). Tout se passe comme si les porteurs dans ce puits quantique évoluaient dans un champ magnétique \vec{B}_R appelé champ de Rashba. Ce dernier peut induire une précession du spin et changer ainsi son orientation au cours de sa progression dans le canal. L'amplitude de la précession induite par le champ de Rashba est modulable via une tension appliquée sur une grille laquelle sert à modifier le potentiel de confinement préexistant.

Dans un référentiel cartésien, si y est la direction du champ électrique, l'hamiltonien de Rashba est habituellement écrit comme suit [92] :

$$H_{R} = \alpha [\vec{\sigma} \times \vec{k}] \vec{u}_{v}$$
(III.14)

où α est le paramètre de l'interaction spin - orbite qui dépend linéairement du champ électrique normal à la surface E_y et est fonction du gap du semiconducteur et de la masse effective. L'hamiltonien total en supposant que l'effet Rashba domine tous les autres facteurs de couplage avec le spin est :

$$H_{tot} = H_k + H_R \tag{III.15}$$

où H_{tot} est l'énergie cinétique de l'électron. Les valeurs propres des spins up E_{\uparrow} ou down E_{\downarrow} sont alors :

$$E_{\uparrow,\downarrow} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \pm \alpha \left| \vec{k} \right|$$
(III.16)

où le signe + (-) se réfère respectivement au spin up (down).

On en déduit l'énergie de la bande de conduction qui est $\Delta_R = \pm \alpha k_F$ à champ nul et au niveau de Fermi.

Dans la couche d'accumulation d'une hétérojonction [92], α s'écrit $\alpha = a_{46}E_y$ où le champ électrique normal à la surface E_y dérive du potentiel appliqué V, soit : $E_y \vec{u}_y = -\vec{\nabla}V$.

Lommer [101] en donne une expression théorique qui dépend des paramètres caractéristiques des bandes d'énergie des matériaux. D'après cette expression, a_{46} varie comme le rapport $\frac{\Delta_0}{E_g^3}$, avec Δ_0 l'écart énergétique du fait de l'interaction spin-orbite qui clive la bande de valence et E_g la largeur de la bande interdite. Il est donc d'autant plus grand que Δ_0 est grand et E_g faible. Pour augmenter l'intensité du couplage spin-orbite de Rashba, un semiconducteur à faible bande interdite est donc préférable.

III.5 Accumulation de spin et courant de spin:

Afin de détecter le courant polarisé en spin dans la région de l'interface entre les deux canaux de spin, les électrons majoritaires vont s'accumuler dans la région de l'interface alors qu'il y aura une zone de déplétion pour les électrons minoritaires, d'où le terme de zone d'accumulation de spin. Cette accumulation de spin conduit à une levée de dégénérescence des potentiels chimiques dans la région de l'interface figure III.14. L'état d'équilibre est atteint par renversement de spin dans la zone d'accumulation. Du fait de la diffusion de spin, la zone d'accumulation n'est pas seulement à l'interface mais s'étend sur les longueurs de diffusion de spin du métal ferromagnétique l_{sf}^F et du semiconducteur l_{sf}^N . La résolution des équations de transport diffusif (eq.1 et 2) dépendant du spin donne une décroissance exponentielle de l'accumulation de spin de chaque côté de l'interface de la forme $\exp(z/l_{sf}^F)$ et $\exp(-z/l_{sf}^N)$ [Fig. III.15].



Figure III.14 : Courants de spin dans le composé ferromagnétique et dans le composé non magnétique, loin de l'interface.



Figure III.15 : Dissociation des potentiels chimiques μ_{\uparrow} et μ_{\downarrow} à l'interface. Les flèches vertes représentent les spin-flips induits par la distribution hors de l'équilibre des potentiels



Figure III.16 : Variation de la polarisation du courant dans le cas où le nombre de spin-flips est équivalent de chaque côté de l'interface (cas métal/métal) et dans le cas où le nombre de renversements de spins dans le composé ferromagnétique est prédominant (cas métal/semiconducteur). D'après Fert et al. [32].

La dépolarisation progressive du courant est liée aux mécanismes de renversement de spin dans la zone d'accumulation. Le niveau de la polarisation du courant à l'interface est lié à la proportion de renversements effectués à gauche et à droite. Dans le cas métal ferromagnétique/semiconducteur, la densité d'états est beaucoup plus forte dans le métal. On peut dire de manière équivalente que la résistivité du métal est beaucoup plus faible que celle du semiconducteur : $\rho_F \langle \langle \rho_N \rangle$ - donc le nombre de spins accumulés sera plus important du côté du métal.

En considérant des temps de relaxation de spin similaires pour le métal et le semiconducteur, le nombre de renversements de spins sera alors beaucoup plus important du côté métal et le courant sera dépolarisé avant de franchir l'interface [Fig.III.16]. Le même

phénomène se produira si les densités d'états sont équivalentes à gauche et à droite, avec un temps de relaxation de spin plus petit pour le métal ferromagnétique. La polarisation du courant à l'interface s'écrit :

$$(SP)_{I} = \left(\frac{J_{\uparrow} - J_{\downarrow}}{J_{\uparrow} + J_{\downarrow}}\right)_{I} = \frac{\beta}{1 + \frac{r_{N}}{r_{F}}}$$
(III.17)

où β décrit la polarisation du courant dans le métal ferromagnétique et r_F la résistance du matériaux ferromagnétique, $r_N = \rho_N l_{sf}^N$, $r_F = \rho_F l_{sf}^F$. Pour que le courant soit polarisé dans le semiconducteur, il faut augmenter la proportion de renversements de spin du côté semiconducteur en augmentant l'accumulation de spin du côté semiconducteur par rapport au côté métal ferromagnétique. Une telle discontinuité du potentiel chimique à l'interface est réalisée par l'insertion d'une résistance d'interface dépendant du spin (typiquement une barrière tunnel) de la forme :

$$r_{\uparrow(\downarrow)} = 2r_b^*[1-(+)\gamma]$$
 (III.18)

où γ décrit l'asymétrie de spin à l'interface dans le cas de la CPP-GMR et r_b^* la résistance de la barrière tunnel .

La polarisation du courant à l'interface s'écrit alors, dans la limite de bandes plates et de faibles courants:

$$(SP)_{I} = \frac{\beta r_{F} + \gamma r_{b}^{*}}{r_{F} + r_{N} + r_{b}^{*}}$$
 (III.19)

La figure III.17 montre les profils d'accumulation de spin et de polarisation du courant dans les cas $r_b^* = 0$ et $r_b^* = r_N \rangle \rangle r_F$. La polarisation d'interface est relativement élevée dans le cas $r_b^* = r_N \rangle \rangle r_F$ et atteint la limite du coefficient d'asymétrie de spin γ pour $r_b^* \rangle \rangle r_N + r_F$.



Figure III.17 : (a) Accumulation de spin (échelle logarithmique) et (b) polarisation du courant à l'interface métal ferromagnétique (F)/semiconducteur (N) D'après [32].

Les calculs sont effectués à 300 K avec F=Co ($r_F = 4.5 \times 10^{-15} \Omega m^2$, $\beta = 0.46$ et $l_{sf}^F = 60$ nm) et N=GaAs avec n=10¹⁶ cm⁻³ ($r_N = 4 \times 10^{-9} \Omega m^2$, $l_{sf}^N = 2 \mu m$), avec une résistance d'interface $r_b^* = r_N$, $\gamma = 0.5$ (courbe bleue), et sans résistance d'interface (courbe rouge pointillée).

III.6 Conditions de détection:

Considérons maintenant le cas d'un canal semiconducteur entre un émetteur et un collecteur constitués de composés ferromagnétiques. La structure est du type F/I/N/I/F où F désigne le composé ferromagnétique, I la barrière tunnel, et N le semiconducteur [Fig. III.18
(a), (b)]. Par rapport au problème d'injection dans un semiconducteur, l'interaction entre les accumulations de spin aux différentes interfaces est à considérer.

Le problème n'est plus seulement d'injecter un courant polarisé en spin dans un semiconducteur mais également de conserver une différence d'accumulation de spin dans les configurations parallèle (P) et antiparallèle (AP) des aimantations de l'émetteur et du collecteur. Finalement, il faut obtenir une différence significative de résistance entre les deux configurations ($\Delta V/V$ ou $\Delta R/R \approx 1$).



Figure III.18 : Structures émetteur ferromagnétique/canal semiconducteur/collecteur ferromagnétique dans les cas (a) d'une géométrie verticale et (b) d'une géométrie planaire.

Dans la figure III.18 (a) le calcul de $\Delta R/R_P$ est fait dans des structures F/I/N/I/F en régime diffusif en fonction du rapport r_b^*/r_N pour différentes longueurs de canal t_N . Les calculs sont effectués comme dans la figure III.17 avec F=Co et N=GaAs, et dans la figure III.18 (b) $\Delta R/R_P$ de ces mêmes structures mais cette fois dans un régime balistique en fonction du rapport entre le temps de séjour τ_n et le temps de vie du spin τ_{sf} dans le canal semiconducteur.



Figure III.19 : (a) $\Delta R/R_P$ de ces structures F/I/N/I/F (régime diffusif). (b) $\Delta R/R_P$ de ces mêmes structures dans le cas d'un régime balistique D'après [32].

Dans le cas de transport diffusif et dans l'approximation de bandes plates, le problème considéré est très proche de celui de la CPP-GMR pour une vanne de spin [33]. La faible résistance d'interface entre les couches métalliques est seulement remplacée par une très forte résistance qui représente la barrière tunnel aux interfaces émetteur/semiconducteur et semiconducteur/collecteur. La figure III.19 (a) montre l'évolution du rapport $\Delta R/R_P$ des structures considérées [figure III.19 (a), (b)] en fonction de la résistance tunnel r_b^* . Ces courbes sont calculées dans le cas Co/I/GaAs/I/Co et pour plusieurs longueurs de canal semiconducteur t_N .

On remarque qu'il existe une fenêtre optimale pour r_b^* dans laquelle le signal de magnétorésistance est voisin de la polarisation en spin des contacts ferromagnétiques ($\gamma = 0.5$). Quantitativement, la condition pour obtenir le signal maximum $\Delta R/R_P$ s'écrit :

$$r_1 = \rho_N t_N \langle \langle r_b^* \langle \langle r_2 = \rho_N \frac{\left[l_{sf}^N \right]^2}{t_N} = r_N \frac{l_{sf}^N}{t_N}$$
(III.20)

Ce résultat n'est valable que dans le cas où $t_N \langle l_{sf}^N$, mais cette condition de longueur de canal inférieure à la longueur de diffusion de spin n'est pas suffisante.

Dans le cas où $t_N \langle \langle l_{sf}^N, [ex:t_N = 20nm \text{ figure III.19 (a)}]$, la magnétorésistance dans la fenêtre optimale de r_b^* s'écrit $\Delta R/R_P = \frac{\gamma^2}{1-\gamma^2}$

La borne inférieure dans l'expression (III.20) correspond à la condition d'injection explicitée dans la section précédente. La borne supérieure de l'expression (III.20) est la condition pour une conservation optimale de l'accumulation de spin qui se produit dans la configuration antiparallèle. Dans le cas où r_b^* devient supérieur à r₂, une expression plus générale de la magnétorésistance peut être écrite :

$$\frac{\Delta R}{R_{p}} = \frac{\left[\gamma^{2} / (1 - \gamma^{2})\right]}{1 + r_{b}^{*} / 2r_{2}} = \frac{\left[\gamma^{2} / (1 - \gamma^{2})\right]}{1 + \tau_{n} / \tau_{sf}}$$
(III.21)

où τ_n décrit le temps de séjour moyen des porteurs dans le canal semiconducteur et τ_{sf} représente le temps de vie de spin. Ainsi, quand la résistance tunnel devient plus grande que r₂, le temps de séjour des porteurs devient plus grand que le temps de vie de spin et la magnétorésistance tend progressivement vers 0.

Les conditions de détection peuvent être également considérées dans un régime balistique (les longueurs considérées sont inférieures au libre parcours moyen). En considérant la limite d'un tunnel séquentiel dans une structure F/I/N/I/F symétrique, l'expression de la magnétorésistance s'écrit [34] :

$$\frac{\Delta R}{R_p} = \frac{\left[\gamma^2 / (1 - \gamma^2)\right]}{1 + \tau_n / \tau_{sf}} = \frac{\left[\gamma^2 / (1 - \gamma^2)\right]}{1 + r_b^* / r'_2} \quad \text{avec} \quad r'_2 = 2r_2 \quad , \qquad (III.22)$$

La forme de la magnétorésistance est très similaire à celle déduite dans le cas d'un régime diffusif, mis à part qu'il n'y a pas de borne inférieure pour la résistance tunnel r_b^* figure 19(b). Les conditions pour une magnétorésistance optimale s'écrivent [32] :

$$\frac{\tau_n}{\tau_{sf}} = \frac{2t_N}{v_N \bar{t}_r} \frac{1}{\tau_{sf}} \langle \langle 1$$
(III.22)

ou de manière équivalente,

$$r_b^* \langle \langle r_2' = \frac{h v_N \tau_{sf}}{4e^2 M t_N}$$
(III.23)

où \bar{t}_r désigne le coefficient de transmission des barrières tunnels, v_N la mobilité des porteurs dans le canal, et *M* la densité de canaux de conduction. Ces conditions sont indépendantes de l'émetteur/collecteur ferromagnétique. Elles reflètent simplement le fait que des barrières tunnels trop opaques vont entraîner des réflexions multiples aux interfaces I/N et N/I, et le temps de séjour des porteurs dans le canal semiconducteur deviendra trop long par rapport au temps de vie de spin.

III.7 Conclusion :

L'avantage de transport du spin dans les contacts FM/SC/FM, est que dans les semiconducteurs, le temps de vie de spin est plus long que dans les métaux « FM/SC/FM », et donc la propagation de l'information du spin peut se faire sur de plus grandes distances. Cependant, la vitesse de Fermi v_F dans les semiconducteurs est plus faible que dans les métaux ce qui induit une conduction plus « lente ». Les recherches se sont alors tournées vers un autre type d'interface, à savoir les nanotubes de carbone. Ce sera l'objet du chapitre suivant.

Chapitre IV Transport de Spin dans les Nanotubes de Carbone

IV.1 Introduction :

Dans ce chapitre, nous ferons une présentation générale des nanotubes de carbone, puis nous présenterons les différents types les MWNT et les SWNT ainsi que leurs propriétés électroniques. La deuxième partie est consacrée au transport de spin dans les MWNT et les SWNT, les aspects théoriques et expérimentaux y afférent.

IV.2 Structures et propriétés électroniques des nanotubes de carbone :

Le carbone est un élément chimique fascinant. Il doit son importance au fait qu'il forme plus de composés que tous les éléments réunis car il peut se lier à d'autres atomes de carbone pour former des chaînes et des cycles complexes.

Il est présent dans la nature sous différentes formes. Dans les conditions de pression normales, le carbone est sous la forme graphite, dans laquelle chaque atome est lié à trois autres dans une couche d'anneaux hexagonaux fusionnés, comme ceux des composés aromatiques hydrocarbonés. Ainsi, une feuille de graphite est un simple plan d'atomes de carbone hybridés sp² organisés en structure hexagonale. A très haute pression, le carbone a un autre allotrope nommé diamant, dans lequel chaque atome est lié à quatre autres. Le diamant à la même structure cubique que le silicium et le germanium, et, grâce à la résistance des liaisons carbone-carbone, est, avec le nitrure de bore, la matière la plus dure à rayer.

Si on roule une feuille de graphite sur elle-même, on obtient alors un objet cylindrique très long mais très fin. Cet objet est appelé nanotube de carbone. Un seul nanotube de carbone est appelé nanotube mono paroi, ou mono feuillet (single wall carbon nanotube ou SWNT) (voire figure 1). Lorsque plusieurs de ces nanotubes sont enroulés les uns autour des autres, à la manière de poupées russes, on obtient des nanotubes de carbone multi parois (MWNT, figure 2). La distance entre deux tubes est alors de l'ordre de la distance entre deux plans de graphite soit 0.34 nm.



Figure IV.1 : Modèles de nanotubes de carbone mono-parois, en fonction de leur enroulement.



Figure IV.2 : Modèle de nanotubes de carbone mullti-parois

De manière plus précise, la figure IV.3 schématise une feuille de graphène sur laquelle les 4 points du réseau réel O, A, B, B' servent à définir l'enroulement. Les points B' et A vont venir coïncider, lors de l'enroulement avec les points B et O respectivement, ce sont des points cristallographiques équivalents. De cette manière, aucune liaison pendante n'apparaît. Il suffit alors de deux vecteurs pour définir la structure des tubes : le vecteur chiralité \vec{C}_h perpendiculaire à l'axe du tube, et le vecteur translation \vec{T} parallèle à l'axe du tube. Ils constituent le réseau réel des nanotubes de carbone.



Figure IV.3 : Représentation des vecteurs du réseau réel des nanotubes.

Le vecteur \vec{C}_{h} est défini comme suit : $\vec{C}_{h} = n\vec{a}_{1} + m\vec{a}_{2}$, avec n et m entiers tel que $0 \le |m| \le n$. D'après la figure 3, il est aisé de voir qu'un nanotubes armchair est tel que n = m, l'angle de chiralité θ défini par rapport à \vec{a}_{1} est quant à lui égal à 30°. Dans le cas d'un nanotube zigzag, nous avons, m = 0 et $\theta = 0^{\circ}$. Pour les nanotubes chiraux, n, m et θ sont quelconques. Le vecteur chiralité a pour norme la circonférence du nanotube.

$$d_t = \frac{C_h}{\pi}, \ d_t = \frac{a_{c-c}\sqrt{3(n^2 + m^2 + n.m)}}{\pi}$$
 (IV.1)

où d_t est le diamètre du tube.

Le vecteur translation qui satisfait $\vec{C}_h \cdot \vec{T} = 0$ est défini par : $\vec{T} = t_1 \vec{a}_1 + t_2 \vec{a}_2$ avec t_1 et t_2 entiers sans diviseur commun tels que:

$$t_1 = \frac{2m+n}{d_R}$$
, $t_2 = -\frac{2n+m}{d_R}$, (IV.2)

 d_R étant le plus grand diviseur commun de 2n+m et 2m+n.

 \vec{C}_h et \vec{T} définissent en plus la cellule unité des nanotubes. Nous pouvons déterminer le nombre d'hexagones dans la cellule unité par la relation suivante :

$$N = \frac{\left|\vec{C}_{h} \times \vec{T}\right|}{\left|\vec{a}_{1} \times \vec{a}_{2}\right|} = \frac{2L^{2}}{a^{2}d_{R}}$$
(IV.3)

Pour finir, le réseau réciproque \vec{K}_1, \vec{K}_2 des nanotubes est tel que :

$$\vec{C}_h \cdot \vec{K}_1 = 2\pi$$
, $\vec{T} \cdot \vec{K}_1 = 0$
 $\vec{C}_h \cdot \vec{K}_2 = 0$, $\vec{T} \cdot \vec{K}_2 = 2\pi$ (IV.4)

Ainsi :

$$\vec{K}_1 = \frac{1}{N} (-t_2 \vec{b}_1 + t_1 \vec{b}_2), \ \vec{K}_2 = \frac{1}{N} (m \vec{b}_1 - n_1 \vec{b}_2)$$
 (IV.5)

IV.3 Structure de bandes électroniques :

Les propriétés électroniques des nanotubes sont déterminées par la méthode des liaisons fortes [115].

Considérons un solide cristallin périodique défini par un réseau réel et un réseau réciproque. Comme nous l'avons vu au chapitre I, les fonctions propres électroniques doivent satisfaire au théorème de Bloch [116] :

$$\psi(\vec{r}+\vec{a}) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{a}}\psi(\vec{r})$$
 (IV.6)

où \vec{a} est le vecteur du réseau réel , et \vec{k} est le vecteur du réseau réciproque.

Pour calculer les états propres électroniques du solide, la méthode des liaisons fortes se base sur les orbitales atomiques. On définit une orbitale de Bloch par :

$$\Phi_{j}(\vec{k},\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}_{\alpha}}^{N} e^{i\vec{k}.\vec{R}_{\alpha}} \varphi_{j}(\vec{r}-\vec{R}_{\alpha}) , \quad j=1,...,n$$
(IV.7)

où N est le nombre de cellules unités, φ_j les orbitales atomiques, et \vec{R}_{α} la position des atomes de type α dans la cellule unité.

Les états propres électroniques du système sont alors une combinaison linéaire des orbitales de Bloch.

$$\psi_{J}(\vec{k},\vec{r}) = \sum_{j'=1}^{n} C_{jj'}(\vec{k})\phi_{j'}(\vec{k},\vec{r})$$
(IV.8)

Si *H* est l'hamitonien du système, les cœfficients C_{jj} s'obtiennent en reportant l'expression (IV.7) dans l'équation de Schrödinger. Les énergies propres se calculent alors simplement par :

$$E_{j}(\vec{k}) = \frac{\langle \psi_{J} | H | \psi_{J} \rangle}{\langle \psi_{J} | \psi_{J} \rangle}$$
(IV.9)

IV.3.1 Le graphite

Les propriétés de conduction électronique du graphite sont principalement dictées par les liaisons π formées entre les orbitales atomiques p_z perpendiculaires au plan du graphène. D'après la figure suivante, nous voyons que dans la cellule unité il y a deux sites atomiques A et B.



Figure IV.4 : Réseau réel du graphène.

Il existe pour chaque site atomique une orbitale pz. Nous allons donc obtenir, deux bandes, une liante π et une antilliante π^* . Afin de résoudre l'équation aux valeurs propres, les composantes de l'hamiltonien sont déterminées selon les orbitales de Bloch du site A et du site B.

$$\Phi_{A,B}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{R_{A,B}} e^{i\vec{k}.\vec{R}_{A,B}\phi_{PZ}(\vec{r}-\vec{R}_{A,B})}$$
(IV.10)

$$H_{AA,BB} = \frac{1}{N} \sum_{R_{A,B};\vec{R}_{A,B}} e^{i\vec{k}.(\vec{R}_{A,B}-\vec{R}'_{A,B})} \left\langle \varphi_{pz}(\vec{r}-\vec{R}'_{A,B}) \left| H \right| \varphi_{pz}(\vec{r}-\vec{R}_{A,B}) \right\rangle$$
(IV.11)

$$H_{AA,BB} = \varepsilon_{2p} \tag{IV.12}$$

Nous négligeons tous les termes où la distance est supérieure ou égale à une distance interatomique par rapport aux termes d'énergies de sites atomiques ε_{2v} . Ce dernier représente l'énergie d'un électron sur l'orbitale atomique pz du site A ou B. Pour être plus précis, elle diffère de l'énergie de l'atome isolé puisque le potentiel des autres atomes est compris dans l'hamiltonien du système.

$$H_{AB} = \frac{1}{N} \sum_{R_A; R_B} e^{i\vec{k}.(\vec{R}_B - \vec{R}_B)} \left\langle \varphi_{pz}(\vec{r} - \vec{R}_A) \middle| H \middle| \varphi_{pz}(\vec{r} - \vec{R}_B) \right\rangle$$
(IV.13)

$$H_{AB} = \gamma_0 (e^{ik \cdot x \frac{a}{\sqrt{3}}} + 2e^{-ikx \frac{a}{2\sqrt{3}}} \cos(\frac{k_y}{2})).$$
 (IV.14)

où $\vec{R}_1 = (\frac{a}{\sqrt{3}}, 0), \vec{R}_2 = (-\frac{a}{2\sqrt{3}}, \frac{a}{2}), \vec{R}_3 = (-\frac{a}{2\sqrt{3}}, -\frac{a}{2})$ sont les positions des atomes autour du site A.

Pour le terme de saut H_{AB} , les sauts au delà du plus proche voisin sont également négligés. De plus, si l'on néglige les recouvrements entre les orbitales p_z du site A et celle du site B, le calcul de l'équation séculaire donne l'expression simple suivante pour l'énergie des orbitales π :

$$E_{\pi}(k_x,k_y) = \pm \gamma_0 \left\{ 1 + 4\cos\left(\frac{\sqrt{3}k_xa}{2}\right)\cos\left(\frac{k_ya}{2}\right) + \cos^2\left(\frac{k_xa}{2}\right) \right\}^{1/2}$$
(IV.15)

Il existe deux électrons p_z dans une cellule unité provenant de chaque atome. La liaison π possédant deux états de spins est donc pleine et la liaison π^* vide. Le même principe est appliqué aux orbitales atomiques p_x , p_y et s comprises dans le plan du graphène. Elles vont former 3 liaisons σ pleines en électrons et 3 liaisons σ^* vides.

Comme on peut le voir d'après le schéma de bandes électroniques de la figure IV.5 ce sont bien les liaisons π , états électroniques proches de E_F , qui déterminent les propriétés de conduction du graphite. Maintenant que la structure électronique du graphite est précisée il est aisé d'obtenir les propriétés électroniques des nanotubes de carbone comme nous allons le voir dans ce qui suit.



Figure IV.5 : a) Représentation tridimensionnelle des liaisons π du graphite. b) Structure de bandes du graphite

IV.3.2 Les nanotubes :

Toujours en ayant à l'esprit l'image de la feuille de graphène s'enroulant sur elle même nous pouvons déduire les propriétés électroniques des nanotubes grâce à celles du graphène. En effet, la structure cylindrique impose à la fonction d'onde électronique du nanotube d'être périodique le long de la circonférence. Il en résulte une quantification du vecteur d'onde selon la direction du vecteur \vec{C}_h . Cette dernière s'écrit comme suit, sachant que la fonction d'onde électronique satisfait le théorème de Bloch :

$$\psi(0,0)_{(C_h,T)} = \psi(1,0)_{(C_h,T)}$$

$$\psi(0,0)_{(C_h,T)} = e^{i(k.C_h)}\psi(1,0)_{(C_h,T)}$$

$$\vec{k}.\vec{C}_h = 2\pi n , n=0,1,2$$

(IV.16)

D'après la définition des vecteurs du réseau réciproque, on a donc :

$$\vec{k} = n\vec{K}_1 = \frac{n}{N}(-t_2\vec{b}_1 + t_1\vec{b}_2)$$
 (IV.17)

Sachant que deux états électroniques de vecteurs d'onde $\vec{k} = \text{et } \vec{k} + \vec{K}$, \vec{K} étant un vecteur du réseau réciproque, sont indiscernables, et que $N.\vec{K}_1$ est un vecteur du réseau réciproque du graphène, les N vecteurs $n.\vec{K}_1$ avec $n = \{0, ..., N-1\}$, définissent les états discrets uniques du tube selon la direction parallèle à \vec{C}_h . Cette quantification du vecteur d'onde est à l'origine des propriétés électroniques remarquables des nanotubes de carbone.

Nous obtenons ainsi N coupes (N bandes) de la structure électronique du graphite dans la direction de \vec{K}_2 . Selon que les points K et K', états dégénérés du croisement de π et π^* , soient des états permis ou non par la quantification, nous allons obtenir respectivement soit un nanotube à gap nul en énergie (un métal), soit un nanotube avec un gap en énergie (un semi-conducteur). La condition pour qu'un nanotube soit métallique d'après [115] est: n - m = 3p avec p entier.

La structure des tubes est donc complètement déterminée par celle du graphite par la relation suivante :

$$E_{CNT}(k) = E_{graphite}\left(k\frac{\vec{K}_2}{\left|\vec{K}_2\right|} + q\vec{K}_1\right) \text{ avec } \frac{-\pi}{T} \le k \le \frac{\pi}{T} \text{ et } q = \{0, \dots, N-1\}$$
(IV.18)

Dans le cas d'un nanotube armchair (n, n), nous obtenons la dispersion en énergie suivante :

$$E_T^{arm} = \pm \gamma_0 \left[1 \pm 4 \cos\left(\frac{q\pi}{n}\right) \cos\left(\frac{ka}{2}\right) + 4 \cos^2\left(\frac{ka}{2}\right) \right]^{\frac{1}{2}}$$
(IV.19)

avec $\frac{-\pi}{a} \le k \le \frac{\pi}{a}$ et $q = \{1, \dots, 2n\}$

Les propriétés électroniques des SWNT varient périodiquement de métallique à semiconducteur, en fonction de leur hélicité et de leur diamètre [117]. Ce comportement a été prédit en 1992 [118] et vérifié expérimentalement en 1998 par spectroscopie tunnel [119]. La microscopie à effet tunnel permet de déterminer le diamètre et la chiralité du nanotube. Par ailleurs, en mesurant le courant tunnel en fonction de la tension de polarisation appliquée, on peut avoir accès à la structure de bandes du tube, et donc déterminer si le tube est métallique ou semiconducteur. Il a été vérifié notamment que la largeur de la bande interdite des SWNT [119] est inversement proportionnelle au diamètre du nanotube. A basse température, les SWNT se comportent comme des fils quantiques. La conduction ne se produit que pour des états d'énergie discrets. La largeur de la bande interdite d'un SWNT semiconducteur est inversement proportionnelle à son diamètre. Ainsi, puisque les MWNT sont formés de SWNT dont le diamètre est plus élevé qu'un unique SWNT, les couches externes des MWNT sont métalliques. Des mesures sur des SWNT individuels ou des fagots de SWNT avec de faibles résistances de contact, à des températures inférieures à 1K et pour de basses tensions de polarisation, ont montré des caractéristiques qui peuvent être interprétées par l'existence de la supraconductivité dans les SWNT.

Les nanotubes de carbone mono et multi-parois présentent des caractéristiques de conducteurs électroniques mésoscopiques. Ces phénomènes ne sont pas pris en compte habituellement dans les modèles de GMR/TMR, et ne sont pas présents dans les échantillons fabriqués habituellement dans le cadre de ces études. Il est donc nécessaire d'étudier la nature du transport électrique dans les nanotubes de carbone, pour pouvoir obtenir des signaux de magnétorésistance dépendant du spin avec des nanotubes de carbone contactés entre deux couches de matériaux ferromagnétiques.

IV.4 Transport de spin dans une structure MF/nanotube de carbone /MF: IV.4.1 Conception des échantillons:

Pour insérer des nanotubes de carbone entre deux contacts ferromagnétiques, l'idée est de faire croître les nanotubes de carbone sur des nanofils de cobalt ou de nickel, dans les pores d'une membrane en alumine. En effet, le groupe du Professeur Ansermet [106] est spécialisé dans la fabrication de structures magnétiques dans des membranes poreuses. Nous disposons donc du savoir-faire pour contrôler et caractériser très précisément les états magnétiques des contacts. Cette géométrie permet en plus d'intercaler les nanotubes de carbone perpendiculairement au plan des couches magnétiques, donc d'avoir une géométrie CPP (Current Perpendicular to the Plane). La figure IV.6 est une représentation schématique d'un échantillon, dont le support est une membrane en alumine.



Figure IV.6: Représentation schématique de la structure MF/MWNT /MF, avec MF=Métal Ferromagnétique, ici nickel ou cobalt.

IV.4.2 Etapes de fabrication :





La troisième étape est la formation des MWNT par CVD (Chemical Vapor Deposition), sous flux de C_2H_2 à 640°C pendant 5 minute.

La quatrième étape est la croissance des nanotubes de carbone multiparois (MWNT) par CVD.

Après la croissance des nanofils métalliques, la membrane en alumine est placée dans un four à 640°C. Une pression partielle de 20 mbar d'acétylène est introduite pendant 5 min. Les MWNT se forment alors par croissance catalytique au sommet des nanofils de cobalt ou de nickel.

Enfin, le deuxième contact ferromagnétique est déposé à la surface de la membrane par pulvérisation cathodique dans le cas du nickel, ou par évaporation dans le cas du cobalt.

IV.4.3 Caractéristiques des échantillons:

La résistance des MWNT peut varier en fonction du diamètre du MWNT, de la nature des nanotubes qui forment le MWNT, et du taux d'impuretés. Il est possible mais ardu de tenter de quantifier ces caractéristiques à l'aide de la microscopie électronique. Mais il est impossible de caractériser par microscopie le MWNT qui transporte le courant électrique. Les deux contacts sur le MWNT sont de nature différente. Le contact entre le MWNT et le nanofil ferromagnétique est très bon, puisque la nature de la liaison entre les deux matériaux est covalente. Pour former l'autre contact électrique, une couche de Ni ou de Co est déposée par évaporation ou pulvérisation cathodique sur les MWNT. D'après les expériences reportées dans la littérature [106], cette manière de procéder, sans traitement spécial, donne toujours lieu à de fortes résistances de contact, donc à la création d'une barrière tunnel entre le MWNT et l'électrode de contact. On a donc une jonction tunnel entre le MWNT et le deuxième contact ferromagnétique.

IV.4.4 Techniques de mesure :

Les mesures se font en utilisant la station de mesure sous pointe. Celle-ci utilise des aiguilles contrôlées par des micro-manipulateurs sous une binoculaire pour venir contacter directement les électrodes (figure IV.8). Les mesures se font alors à l'air à température ambiante. Le cryostat permet lui de faire les études en température de 1.4K à 300K et en champ magnétique jusqu'à 8T dans un vide partiel d'Hélium.



Figure IV.8 : Nanotube multifeuillet contacté après fabrication des électrodes par lithographie électronique, la figure est une image de douze électrodes sous binoculaires.

IV.4.5 Les principaux paramètres : V_{sd}, V_g, T

Les mesures que nous pouvons faire font varier essentiellement trois paramètres : la tension source-drain, la tension de grille et la température. Comme illustré dans la figure IV.9 a), un nanotube est généralement contacté par 2 à ~10 électrodes utilisées à la fois pour appliquer ou mesurer des différences de potentiel.

Tension source-drain : les deux électrodes reliées à un générateur de tension et utilisées pour injecter les porteurs dans le conducteur et les récupérer servent de source et de drain. La tension appliquée entre celle-ci est alors appelée tension source-drain et notée V_{sd} . La différence de potentiel électrochimique (des réservoirs) qui lui correspond est alors : $\Delta \mu = -eV_{sd}$. Pour travailler dans le régime linéaire il faut veiller à ce que $eV\langle\langle k_BT \rangle$.

Tension de grille : la couche d'oxyde Si dopée isolée du CNT par la couche d'oxyde est aussi contactée et permet de servir de grille (figure IV.9 (b)). Celle-ci est couplée capacitivement au nanotube et le potentiel de grille noté V_g permet de faire varier le niveau de Fermi au niveau du nanotube. Le nanotube est aussi couplé capacitivement aux électrodes. La variation de l'énergie de Fermi dépend donc de l'ensemble des capacités, des différents potentiels et de la densité d'états du nanotube. Pour un nanotube multifeuillet sur « wafer » avec 500nm d'oxyde, une différence de potentiel de 1V appliquée sur la grille permet typiquement de faire varier le niveau de Fermi de 5 à 10meV [102].



Figure IV.9: (a) Image AFM de quatre électrodes sur un nanotube de carbone multifeuillet.(b) Schéma en coupe : le substrat en silicium est isolé du nanotube par une couche d'oxyde.Cette couche d'oxyde est grattée sur un bord de l'échantillon pour pouvoir contacter la grille.



Figure IV.10 : Schéma des mesures de type (a) deux pointes et (b) quatre pointes locales et non locales et un voltmètre portant respectivement les lettres A et V.

Température : la température est un autre paramètre qui nous permet de changer le régime de transport. L'évolution des paramètres mesurés avec la température apporte de plus des informations importantes. C'est par exemple le cas lorsqu'il faut rétablir si un phénomène de transport fait appel à une activation thermique ou à un processus tunnel. En minimisant

l'élargissement thermique, le travail à basse température permet enfin une meilleure résolution des phénomènes se faisant à de petites énergies.

IV.5 Transport dans les nanotubes de carbone MWNT:

Le but de cette partie est de répondre à quelques questions concernant le transport dans les nanotubes de carbone. Des travaux ont montré que les nanotubes métalliques se comportent comme des conducteurs balistiques unidimensionnels avec des longueurs élastiques pouvant excéder un micron, il semble plus difficile de ranger de façon définitive les nanotubes MWNT dans une catégorie donnée de conducteurs. Balistique ou diffusif ? Les divers résultats obtenus par différentes équipes sont parfois totalement contradictoires [102]. Il faut déjà noter que la structure concentrique des nanotubes ne simplifie pas le problème à priori. Des travaux expérimentaux et théoriques semblent montrer que seul le feuillet extérieur participe au transport. Dans les expériences de transport, les électrodes sont en effet généralement en contact avec ce seul feuillet. Les MWNT paraissent ainsi à première vue pouvoir être considérés comme des nanotubes monofeuillet de gros diamètre. Ils ont alors l'avantage d'être plus facile à contacter et donnent de meilleures résistances de contact. Plus rigides que les monofeuillets, ils sont aussi moins sensibles aux centres diffuseurs. Leur diamètre donne accès à certaines mesures de magnétorésistance impossibles avec des SWNT et des champs magnétiques usuels en laboratoires.

IV.5.1 Balistique ou diffusifs ?

Les premières mesures apportant des informations sur la nature du transport ont été faites en 1994 par Song et al [120] sur des faisceaux de nanotube MWNT puis par Kasumov et al [103], ainsi que Langer et al [102], sur des nanotubes individuels. Une magnétorésistance négative à basse température a été observée. Celle-ci est attribuée à la localisation faible et donne alors une première signature de la nature quantique du transport dans les nanotubes de carbone. Les longueurs de phases déduites de ces expériences avec des modèles 2D ne dépassent cependant pas 20*nm* à 0.3K.

IV.5.2 Transport balistique :

En 1998, une nouvelle méthode pour contacter individuellement les nanotubes MWNT [104] donne presque les résultats attendus théoriquement. Dans cette expérience illustrée par la figure III.11(a), les auteurs attachent avec de la laque d'argent sur une pointe de microscope à effet tunnel, un bout de fibre contenant des nanotubes de carbone fabriqués par la méthode d'arc. Ils remarquent qu'il y a alors généralement quelques nanotubes MWNT de longueur de l'ordre de 3 microns qui sortent de la fibre comme le montre la photo de la figure IV.11 (b). Le contrôle piézoélectronique en position est utilisé pour tremper les nanotubes en protubérance de façon cyclique dans un liquide métallique, généralement du mercure. Les auteurs ont vérifié par microscopie électronique à transmission que cela a pour effet de nettoyer la surface du nanotube des fines particules graphitiques généralement observées.



Figure IV.11 : Expérience de Frank et al [104]. Transport balistique dans les nanotubes MWNT. (a) représente le principe de l'expérience. . (b) Image d'un nanotube MWNT sortant de la fibre.

La figure IV.11 (a) représente le principe de l'expérience : un bout de fibre contenant des nanotubes MWNT est accroché sur une pointe STM. Le contrôle piézoélectrique permet de monter et descendre le nanotube en protubérance de la pointe dans un liquide métallique. La position de la pointe est couplée à des mesures de transport.



La figure IV.12 : Exemple de mesures de fonction de la position de la pointe.

Les cycles de descente et de montée de la pointe sont couplés à des mesures de transport dont deux exemples sont donnés dans la figure IV.12. La conductance est alors nulle

puis augmente brusquement pour former un plateau à une valeur proche de celle du quantum de conductance $G_0 = (12,9 \text{ k}\Omega)^{-1}$. Ce plateau est attribué à la conduction à travers le nanotube MWNT le plus protubérant de la pointe rentrant en contact avec le liquide métallique. Ce plateau est parfois suivi d'un autre plateau à $2G_0$ pour une position plus enfoncée de la pointe, attribué à la rentrée en contact d'un deuxième nanotube. Il est aussi parfois précédé d'un plateau à $1/2 G_0$: il est alors attribué à une diminution de la transmission due à l'existence d'un défaut au bout du nanotube. Un plateau initial à $2G_0$, qui est la valeur attendue pour une conductance balistique dans un nanotube métallique n'est cependant jamais observé.

Les auteurs concluent d'une part sur la possibilité de transport balistique à température ambiante sur plus d'un micron dans les nanotubes MWNT de haute qualité, n'ayant pas subi de traitement chimique et ayant été préalablement nettoyés dans le mercure. Ils proposent d'expliquer l'observation d'un unique quantum de conductance au lieu des deux attendus par une levée de la dégénérescence de spin (éventuellement due à un couplage entre le spin et l'hélicité du tube). Ils font d'autre part l'hypothèse que seul le feuillet externe participe à la conduction. A défaut, les plateaux de conductance seraient en effet à plusieurs multiples de $2G_0$ ou G_0 . Il faut enfin souligner que tous ces résultats font l'hypothèse que les contacts au niveau du liquide métallique sont des contacts ohmiques.

IV.5.3 Transport diffusif :

Dans le même temps, d'autres expériences sur des nanotubes MWNT ayant été synthétisés par la même méthode donnent des résultats contradictoires [106] et [107]. Il s'agit de mesures de magnétorésistance en champ parallèle et perpendiculaire à l'axe du nanotube MWNT. Les résultats sont regroupés dans la figure IV.13. Ils nous permettent entre autres de donner des estimations des longueurs de cohérence de phase et de longueur élastique.

Commençons par la figure IV.13 (a) qui donne les résultats de magnétorésistance en champ perpendiculaire pour différentes températures entre 2.5K et 45K. Le nanotube ayant un diamètre D=23nm est contacté par des électrodes séparées de $L=1,9\mu m$. La résistance, maximum en champ nul, décroît en appliquant un champ magnétique. Cette diminution de résistance est attribuée à la localisation faible : dans ce nanotube le transport est donc diffusif. Nous pouvons alors reprendre les résultats décrits précédemment pour des conducteurs 1D et donner une estimation de la longueur de cohérence de phase λ_{φ} . La réduction de conductance est donnée par $\Delta G \approx \frac{2e^2}{h} \frac{\lambda_{\varphi}}{L}$, ce qui donne $\Delta G \approx 0, 4 \frac{e^2}{h}$ à 2,5K. On déduit que λ_{φ} est de

l'ordre de 400*nm*. Un modèle plus élaboré 1D permet de reproduire les données et donne une longueur de cohérence de phase de 500*nm*. Les auteurs soulignent qu'un modèle 2D ou 3D similaire à celui utilisé dans des travaux précédents n'est pas adéquat, ceci est en bon accord avec le fait que la longueur de cohérence de phase λ_{φ} est plus grande que la circonférence πD du tube.



Figure IV.13: Exemple de mesures de magnétorésistance sur un nanotube de carbone MWNT (a) en champ perpendiculaire à l'axe du tube et (b) en champ parallèle.

La figure IV.13 (b) donne les résultats des mesures de magnétorésistance en champ parallèle. On trouve de façon similaire la décroissance de la résistance avec l'application du champ magnétique due à la localisation faible. Il y a par contre d'autres pics de résistance qui apparaissent pour des champs de $\pm 8.8T$. Ces pics sont attribués à une modulation périodique de la transmission avec le champ magnétique dù à un phénomène d'interférence entre deux trajectoires électroniques parcourant dans le sens direct ou indirect un cylindre fin diffusif. Le magnétique champ appliqué parallèlement à l'axe du tube entraîne un déphasage $\Delta \phi = 2\pi (2e/h)\phi$, (ϕ représente le flux à travers la section du cylindre) entre deux trajectoires et entraîne ainsi une modulation périodique de la résistance avec le champ magnétique de période $\Delta B = (h/2e)/r^2\pi$ (r est le rayon de cylindre).

Dans les mesures de figure IV.13 (b), le rayon déduit est alors de $8,6\pm lnm$ en bond accord avec le rayon $8\pm 0,8nm$ du nanotube mesuré. Ceci implique d'une part que le transport est diffusif et d'autre part qu'il utilise le feuillet externe ou au plus les deux premiers feuillets. D'autres estimations de la longueur élastique ont pu être faites à partir de l'élargissement des singularités de Van Hove observées dans les variations de la conductance différentielle $\frac{dI}{dV}$ avec la tension [107], [108]. Les largeurs des singularités de van Hove sont de l'ordre de $\delta E = 10 - 25mV$. Celle-ci n'est pas due à un élargissement thermique, car dans ces expériences $kT \langle \langle \delta E \rangle$, mais à un élargissement lié à la diffusion. En prenant $v_f \approx 10^6 m s^{-1}$ pour la vitesse de Fermi, on trouve alors des longueurs élastiques $l_e \approx \hbar v_f / \delta E$ du même ordre de grandeur ou supérieures à la circonférence $l_e \cong 50 - 100nm$. On peut déduire que les sous bandes 1D sont bien définies pour $l_e \rangle \pi D$ dues à la diffusion restent petites devant l'énergie $\hbar v_f / \pi D$ séparant deux sous-bandes.

En conclusion, plusieurs expériences montrent la nature diffusive du transport dans les nanotubes MWNT. La longueur de cohérence de phase et la longueur élastique dépendent des nanotubes étudiés. L'origine des centres diffuseurs est mal connue et peut être due à des impuretés statiques, des défauts atomiques ou encore à un effet des feuillets internes. La méthode de synthèse et les traitements chimiques utilisés pour les contacter peuvent donc aussi être une cause de changement des propriétés observées. La dimensionnalité 1D ou 2D du transport dans les MWNT, la définition des sous-bandes 1D, dépendent entre autres de la longueur élastique, comparée alors à la circonférence. Seul le feuillet extérieur, ou au maximum deux feuillets, semblent participer au transport. Maintenant que nous avons discuté la nature du transport, donnant déjà des renseignements sur le nombre de feuillets participant à la conduction, intéressons nous au nombre de modes.

IV.5.4 Nombre de modes participant au transport :

Un nanotube monofeuillet possède deux modes de conduction. L'énergie entre sous bandes étant de l'ordre de *leV* pour un diamètre de *lnm*, le nombre de modes va être relativement stable vis-à-vis d'une variation du niveau de Fermi due à un effet de dopage. La question se pose par contre pour les nanotubes MWNT, puisque pour un feuillet de *10nm* de diamètre, les sous bandes ne sont cette fois espacées que d'environ *100meV*. Plusieurs travaux [107] et [109] remarquent qu'une large majorité de MWNT semblent métalliques ou encore ne présentent pas d'effet de grille. Ceci est en contradiction avec le fait que statistiquement un feuillet a deux chances sur trois d'être semi-conducteur.

En 2000, les travaux de Kruger et al [110], mettent en évidence l'effet de dopage à l'air des nanotubes MWNT. Pour cela, les auteurs ont utilisé une grille électrochimique. Celle-ci

est fabriquée en déposant sur les nanotubes contactés une goutte d'électrolyte $LiClO_4$. Une électrode en platine contenue dans une pipette en verre permet de polariser l'électrolyte, ce qui a pour effet de concentrer des anions ou des cations à l'interface avec le nanotube et ainsi de jouer le rôle de grille. La grille obtenue est alors 200 fois plus efficace que celle utilisant le substrat de silicium et permet de varier l'énergie de Fermi dans le nanotube de $\pm lev$.



Figure : IV.14 : Résistances d'un nanotube MWNT en fonction de V_g mesuré (a) dans un électrolyte de *LiClO*₄, (b) dans l'air en utilisant le substrat de silicium comme grille.

La figure IV.14 donne un exemple de mesure de la résistance d'un nanotube MWNT en fonction de la tension de grille pour des grilles différentes. Pour la grille utilisant le substrat de silicium, la résistance avec U_g persiste jusqu'à des tensions de 80V (limite où l'échantillon est détruit). Pour les grilles à électrolyte, les courbes de résistance présentent par contre un maximum pour $U_g = U_0$ qui est de l'ordre de 1V et correspond au point de neutralité de charge.

Les auteurs proposent un modèle de variation de la résistance s'appuyant notamment sur la densité d'états 2D du graphène. Ils montrent de plus que pour une grille à l'électrolyte la correspondance entre tension de grille U_g et énergie de Fermi E_F peut se faire directement : $E_F = e(U_g - U_0)$, où U_0 permet de prendre en compte un effet de dopage. Pour un nanotube donné, à partir de $R(U_g)$ on connaît donc maintenant $R(E_F)$. La résistance dans l'air avant immersion dans l'électrolyte donne alors la variation d'énergie ΔE du niveau de Fermi due au dopage du tube. Les valeurs typiques trouvées dans l'air pour des nanotubes multifeuillets sont $\Delta E = -0.3 - 0.5eV$ (dopage de type p).

En conclusion, le nombre de modes à considérer dans les nanotubes multifeuillets est sensible au dopage. Dans l'air, ce dopage diminue le niveau de Fermi de plusieurs centaines de meV sous le niveau de neutralité de charge. 10 à 30 modes peuvent alors participer au transport.

IV.6 Concepts importants pour la nanospintronique :

Les nanotubes de carbone sont les candidats les plus prometteurs pour la réalisation efficace des dispositifs à base de la spintronique. Ils permettent de résoudre plusieurs difficultés connues par la spintronique avec les métaux, ou avec les semiconducteurs, telles que le temps de vie de spin très faible, la perte d'information sur une grande distance, et la faible vitesse de Fermi, donc il suffit d'intercalé un nanotube de carbone (CNT) entre deux contactes ferromagnétiques pour avoir une grande magnétorésistance (Figure IV.15)



Figure IV.15 : Nanotubes de carbone entre deux contacts ferromagnétiques.

Les nanotubes de carbone (CNT) sont relativement robustes, et faciles à manipuler. Quant à leur utilisation en spintronique, la faiblesse couplage spin-orbite présente l'avantage intrinsèque d'une longue durée de vie de spin.

Le principal avantage des CNT est leur grande vitesse de Fermi v_F , cependant il est loin d'être évident si l'information peut survivre pendant le transport de spin à longue distance.

Soit un ferromagnétique LSMO ($La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$) connecté à un CNT MWNT (figure IV.16), le LSMO présente une polarisation de spin proche de 100%, mais pour ces composés, la formation d'interfaces de bonne qualité, qui permettraient une injection efficace de courant sans pertes de polarisation, alors que les matériaux ferromagnétiques couramment utilisés dans la spintronique possèdent généralement une faible polarisation de l'ordre de 40%.



Figure IV.16: Représentation d'un contact LSMO-CNT-LSMO.

En outre le LSMO est un oxyde et est très stable de sorte que l'on peut tenter d'introduire des molécules. L'interface CNT-LSMO se comporte comme des jonctions tunnel.

La magnétorésistance d'une structure composée d'un canal de conduction entre deux contacts ferromagnétiques a le même principe que le contact Fe/SC/Fe mais cette fois on a un LSMO/CNT/LSMO, les mêmes étapes du chapitre III, la magnétorésistance s'écrit comme suit :

$$MR = \frac{\Delta R}{R_p} = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} = \frac{\gamma^2 / (1 - \gamma^2)}{1 + \frac{\tau_n}{\tau_{sf}}}$$
(IV.20)

où γ est le coefficient d'asymétrie dépendant de la résistance d'interface. Il s'écrit comme:

$$r_{\uparrow(\downarrow)} = 2(1\pm\gamma)r_b^*$$
 (IV.21)

où r_b^* est la valeur moyenne de la résistance d'interface, τ_{sf} représente le temps de vie de spin, et τ_n décrit le temps de séjour moyen des porteurs dans le canal CNT:

$$\tau_n = \frac{2L}{v_N \bar{t}_r}$$
(IV.22)

où *L* est la longueur du canal CNT, v_N la mobilité des porteurs et \bar{t}_r est le coefficient de transmission moyen à chaque interface. Ce coefficient est lié à la résistance d'interface calculée par la formule de Landauer (équation 45 chapitre I). Les équations IV.20 et 22 sont valables pour le transport balistique entre deux contacts ferromagnétiques.

Le point essentiel dans l'équation IV.20 est que la magnétorésistance MR est contrôlée par deux facteurs γ et $\frac{\tau_n}{\tau_{sf}}$. Si $\frac{\tau_n}{\tau_{sf}}$ est élevé la MR tend vers zéro quelle que soit la valeur

de γ . De l'équation IV.22, nous pouvons exprimer ce rapport comme :

$$\frac{\tau_n}{\tau_{sf}} = \frac{2L}{v_N \bar{t}_r \tau_{sf}}$$
(IV.23)

Pour des structures multicouches magnétiques, on a l'avantage d'une grande mobilité des porteurs v_N , et un grand \bar{t}_r , mais un τ_{sf} très court, si bien qu'un grand $\frac{\Delta R}{R}$ ne peut être obtenue que lorsque *L* est petit.

A titre de comparaison avec des semiconducteurs, on a vu que le temps de vie de spin est grand, mais la mobilité des porteurs est petite. Par exemple dans le cas de GaAs de type n, la mobilité des porteurs est de l'ordre de $3 \times 10^4 m^2 / s$. Par contre, dans un CNT la mobilité des porteurs est de l'ordre de $10^6 m^2 / s$. En outre, les semiconducteurs ont un \bar{t}_r faible compte tenu de la barrière tunnel qui est nécessaire à l'injection de spin [113].

L'avantage des CNT est donc qu'ils associent les avantages des semiconducteurs (un temps de vie de spin τ_{sf} très grand) et les avantages des métaux (vitesse de Fermi v_F très grande). Ils sont donc potentiellement candidats à être utilisés dans un futur proche comme constituants de base de la spintronique.

Chapitre V Bilan

A l'issue de ce travail, nous pouvons établir une comparaison précise pour le transport de spin dans les nanostructures constituées de différents contacts. Les chapitres précédents nous enseignent que la magnétorésistance est la quantité la plus importante, et c'est à travers sa grandeur que nous pouvons décider si le transport de spin peut être exploité en spintronique ou non. Nous avons vu que la magnétorésistance dépend de la nature du matériau et du contact utilisés. Plus la magnétorésistance est importante plus le matériau et le contact utilisés sont performants.

Pour les trois types de contacts présentés dans les chapitres II, III et IV, à savoir ferromagnétique-métal, ferromagnétique-semiconducteur et ferromagnétique-nanotube de carbone, nous avons calculé la magnétorésistance en fonction du rapport τ_n / τ_{sf} où τ_n est le temps moyen de séjour des porteurs dans le matériau et τ_{sf} est le temps de vie moyen d'un spin avant qu'il ne s'inverse pour diverses raisons.

On peut montrer que l'expression (III.22) obtenue pour la magnétorésistance

$$MR = \frac{\frac{\gamma^2}{1 - \gamma^2}}{1 + \tau_n / \tau_{sf}}$$

peut se généraliser à différents types de contact au prix de l'introduction d'un paramètre d'asymétrie γ empirique. Ce coefficient vaut:

- $\gamma = 0.7$ pour le Co/Cu (exemple de contact ferromagnétique-métal),
- $\gamma = 0,5$ pour le Co/GaAs (exemple de contact ferromagnétiquesemiconducteur),
- $\gamma = 0.8$ pour le LSMO/CNT (exemple de contact ferromagnétique-nanotube de carbone).

La figure V.1 suivante présente la magnétorésistance géante en fonction du rapport τ_n / τ_{sf} pour les trois types de contact présentés auparavant.



Figure V.1 : GMR en fonction de τ_n / τ_{sf} . En rouge (CNT), en vert (SC) et en bleu (métal).

On constate à première vue que la courbe en rouge correspondant à un contact ferromagnétique nanotube de carbone est la plus importante (comparativement aux autres types de contact) pour toute la plage balayée du rapport des temps de vie.

Cependant, la GMR décroît lorsque τ_n / τ_{sf} croît. Il faut donc choisir des matériaux

pour lesquels $\tau_n / \tau_{sf} \langle \langle 1. \text{ Or, d'après l'équation (III.22): } \frac{\tau_n}{\tau_{sf}} = \frac{2t_N}{v_N \bar{t}_r} \frac{1}{\tau_{sf}}$. Donc, pour

avoir une magnétorésistance optimale, il faut que:

- la longueur du contact L soit petite,
- la mobilité des porteurs v_N soit grande,
- le coefficient de transmission du contact \bar{t}_r soit grand.

Ces conditions sont néanmoins assez difficiles à réaliser simultanément. Il faut généralement trouver (expérimentalement) des compromis pour obtenir une GMR optimale.

Conclusion

Dans ce mémoire de magistère, nous nous sommes proposés de procéder à une synthèse des différentes techniques expérimentales et théoriques pour la conception et l'étude de matériaux destinés à la spintronique. Cette discipline, qui est en plein essor, vise à remplacer le transport de charges, avec tous ses défauts (consommation et dissipation d'énergie, faible durée de vie,...) par le transport de spin (pas d'effet Joule, précision et vitesse d'exécution essentiellement). Cependant, le spin étant une propriété purement quantique, il nécessite des moyens adéquats pour son étude théorique et sa manipulation expérimentale.

Dans le premier chapitre, nous avons rappelé les fondements du transport de charge utilisé en électronique traditionnelle. Nous avons présenté un certain nombre de modèles pour le calcul de la densité d'état, de la résistance et de la conductance.

Dans le chapitre deux, nous avons étudié le transport électronique basé sur le déplacement des électrons en agissant sur leur spin. Cela s'appelle aujourd'hui l'électronique de spin. Nous avons décrit certains aspects de cette technologie qui est essentiellement basée sur la superposition de deux couches ferromagnétiques séparées par une couche magnétique dont l'épaisseur est de l'ordre du nanomètre. La couche magnétique aimantée va filtrer les spins, c'est-à-dire laisser passer les électrons dont le spin est parallèle à leur aimantation et arrêter les électrons dont le spin est anti-parallèle à l'aimantation..

Nous avons aussi étudié les bases de la spintronique et quelques uns de ses phénomènes, tels que la magnétorésistange géante (GMR) et l'accumulation de spin. Cet effet engendré par les courants de spin est à la base du calcul de plusieurs grandeurs telles que le temps de vie et de relaxation du spin. Ces grandeurs serviront à décider si l'effet GMR peut être exploité ou non en spintronique. Nous avons aussi étudié la magnétorésistange tunnel (TMR) qui s'obtient en remplaçant la couche métallique dans le cas de la GMR par une couche isolante. L'effet TMR est plus important que la GMR et ce, grâce à la barrière tunnel dont le rôle est la conservation de l'information sur le spin.

Nous avons aussi présenté différents modèles pour décrire le comportement magnétorésistif d'une jonction tunnel tels que le modèle des électrons libres de Fermi, le modèle de Jullière, celui de Bardeen et enfin le modèle de Slonczewski. Nous avons conclu que ces modèles prédisent des résultats assez voisins de sorte qu'à l'heure actuelle, les expériences ne permettent pas définitivement d'en écarter certains.

Dans le troisième chapitre, l'interface isolante ou métallique est remplacée par un semiconducteur ce qui permet d'obtenir un dispositif spintronique à base de semi-conducteurs. Toutefois, ce dispositif ne sera exploitable que si l'injection de spins polarisés dans le semiconducteur est efficace. On a vu notamment que l'injection électrique de spin d'un métal ferromagnétique dans un semi-conducteur nécessite l'utilisation d'une barrière tunnel (barrière d'oxyde ou barrière Schottky). Nous avons aussi calculé la magnétorésistance, le temps de relaxation et le temps de vie du spin.

Dans le quatrième chapitre, nous avons présenté un autre dispositif où l'on remplace le semi-conducteur et la barrière tunnel par un nanotube de carbone (CNT). Nous avons présenté les différentes grandeurs qui caractérisent le transport de spin dans un contact Fe/CNT/Fe. Là aussi, nous avons calculé la magnétorésistance, le temps de relaxation et le temps de vie du spin.

Finalement, nous présentons au chapitre cinq une étude comparative des différents dispositifs survolés au cous des chapitres précédents. En étudiant la variation de la GMR en fonction des temps de vie et de relaxation, nous concluons que des jonctions réalisées avec des nanotubes de carbone sont assez efficaces pour la transmission de l'information car, non seulement le temps de vie du spin est plus grand que pour les semi-conducteurs, mais en plus la vitesse des porteurs est plus grande que pour les métaux. Les jonctions à base de nanotubes de carbone associent donc les avantages des semi conducteurs à ceux des métaux.



Détermination du coefficient de diffusion électronique :

Un électron diffusant dans un système désordonné suit un mouvement de type Brownien ou encore dit de marche aléatoire. Considérons un mouvement unidimensionnel. Le système est caractérisé par un libre parcours moyen le, un temps de collision moyen τ_e et une vitesse de propagation $v = \frac{l_e}{\tau_e}$. De plus à chaque collision sur une impureté, l'électron a une probabilité *T* d'être rétrodiffusé. Déterminons la valeur moyenne de la distance quadratique $\langle L(N)^2 \rangle$ parcourue par l'électron pour *N* pas :

Pour

$$N-1 \quad \left\langle L(1)^2 \right\rangle = T(-l_e)^2 + (1-T)(l_e)^2 = l_e^2$$

Pour $N \quad \frac{\left\langle L(N)^2 \right\rangle = \left\langle L(N-1)^2 \right\rangle + T(-l_e)^2 + (1-T)(l_e)^2 = \left\langle L(N-1)^2 \right\rangle + l_e^2}{\Rightarrow \left\langle L(N)^2 \right\rangle = Nl_e^2}$

Ramenons cette égalité à l'unité de temps, nous avons $t = N\tau_e \text{ donc}$:

$$\left\langle L(t)^2 \right\rangle = \frac{t}{\tau_e} l_e^2 = \frac{l_e}{\tau_e} l_e t$$

 $\left\langle L(t)^2 \right\rangle = v l_e t = 2Dt$

avec $D = \frac{1}{2}vl_e$: l_e coefficient de diffusion exprimant la distance moyenne parcourue (au carré) par unité de temps. Le coefficient de diffusion caractérise la distance moyenne parcourue par un électron lorsqu'il suit un mouvement de type Brownien dans un système désordonné.

Techniques de mesure de polarisation en spin :

La polarisation en spin peut être mesurée sur le matériau par réflexion d'Andreev [121] à l'aide d'une pointe supraconductrice, ou encore par mesure de conductance ou de magnétorésistance sur des jonctions.

<u>Mesure de la conductance dans une jonction ferromagnétique / isolant /</u> <u>supraconducteur :</u>

Meservey et [122] sont les premiers à avoir mesuré en 1994 la polarisation de métaux ferromagnétiques dans une jonction ferromagnétique / isolant / supraconducteur. Lorsqu'on applique un champ magnétique à un supraconducteur, on lève la dégénérescence de la densité d'états, pour les deux directions de spin, par effet Zeeman, comme le montre la figure 1. On obtient alors quatre pics, au lieu de deux, dans la courbe de conductance (Figure 1).



Figure annexe II.1: (a) éclatement Zeeman de la densité d'états BCS (Bardeen, Cooper et Schrieffer) en fonction de la tension appliquée, sous un champ magnétique. (b) conductance à température finie. On observe alors quatre pics au lieu de deux du fait de la levée de dégénérescence. D'après [123]

La dégénérescence de la densité d'états pour les deux directions de spin est levée en appliquant un champ magnétique au supraconducteur. En première approximation, la polarisation du matériau ferromagnétique s'exprime par [124].

$$p = \frac{(G_4 - G_2) - (G_1 - G_3)}{(G_4 - G_2) + (G_1 - G_3)}$$
 (Annexe II.1)

où G_i est la conductance du pic d'indice i .

Les mesures devant être réalisées à basse température (supraconducteur), on ne peut donc pas connaître la polarisation à température ambiante. Voici quelques valeurs de polarisation de métaux ou alliages ferromagnétiques obtenues par Moodera et al. [125] à l'aide de jonctions tunnel du type : métal ferromagnétique/Al₂O₃/Aluminium supraconducteur.

Ferromagnétique	Polarisation
Fe	44%
Со	45%
Ni	33%
Ni ₈₀ Fe ₂₀	48%
Co ₅₀ Fe ₅₀	51%

Tableau annexe II.1 : polarisation en spin de quelques matériaux ferromagnétiques [125].

Mesure de la magnétorésistance dans une jonction ferromagnétique / isolant / ferromagnétique :

La polarisation en spin peut être déduite en première approximation à partir de la formule de Jullière dans une jonction ferromagnétique / isolant / ferromagnétique. Malheureusement, la polarisation en spin dépend de l'interface avec la barrière et de la nature de la barrière [28]. Par ailleurs, différents phénomènes de transport peuvent interférer dans la mesure. Ceci est dû, par exemple, au fait que l'interface n'est pas parfaite, qu'elle est diffuse ou rugueuse. Cette méthode de mesure présente cependant l'avantage d'être la plus proche des applications.

Réflexion d'Andreev [121] :

La méthode de mesure de la polarisation en spin par réflexion d'Andreev consiste à appliquer une pointe supraconductrice, de niobium par exemple, sur une couche mince du matériau dont on veut déterminer la polarisation en spin. Cette méthode ne fonctionne donc qu'à basse température.

Examinons le cas d'une couche non magnétique métallique de Cu (Figure 2). Un électron de spin « up », injecté dans le gap du supraconducteur, s'apparie avec un électron de spin opposé pour former une paire de Cooper. Comme le montre la densité d'états, il y a dans le cuivre des états disponibles pour le spin « down ». Un courant supraconducteur va donc
pouvoir circuler, pour une tension inférieure au gap du supraconducteur. On observe alors une augmentation de la conductance pour des tensions inférieures au gap (Figure 2.B).

Dans le cas d'un matériau demi-métallique comme CrO_2 , on voit au niveau du diagramme de densité d'états (Figure 2.C) qu'il n'y a pas d'état accessible pour un électron de spin « down » et donc il n'y aura pas de courant supraconducteur. La conductance est alors faible pour des tensions inférieures au gap, comme le montre la Figure 2.D.



Figure annexe II.2 : principe de la mesure de la polarisation en spin par réflexion d'Andreev.

Ont adapté le modèle de conductance de Blonder et Tinkham [126] dans le cas de matériaux polarisés en spin. Ils obtiennent à température nulle et à tension nulle :

$$\frac{1}{G_n}\frac{dI}{dV} = 2(1 - P_c)$$
 (Annexe II-2)

Où G_n est la conductance pour un électron d'énergie supérieure au gap du supraconducteur et P_c est la polarisation.

Quelques valeurs déterminées par cette méthode sont rassemblées dans le Tableau annexe II.2. Si l'on compare ces valeurs avec celles obtenues par la méthode de Meservey et Tedrow (Tableau annexe II.1) on se rend compte que les valeurs obtenues par ces deux méthodes sont très proches pour le Fe et le Co, mais l'on trouve un écart de 11 % pour la polarisation du $Ni_{80}Fe_{20}$. Ceci illustre bien le fait que la polarisation obtenue dépend fortement de la méthode utilisée pour la mesurer.

Les oxydes présentent des polarisations en spin bien plus élevées que les matériaux ferromagnétiques classiques : ce sont des demi-métaux. Ils font l'objet du prochain paragraphe.

Ferromagnétique	Polarisation méthode	Polarisation méthode	
	(1)	(2)	
Fe	45%	44%	
Со	42%	45%	
Ni	45%	33%	
Ni ₈₀ Fe ₂₀	37%	48%	

 Tableau annexe II.2 : Polarisation en spin de quelques matériaux, mesurée par les deux méthodes.

La polarisation en spin des métaux de transition et de leurs alliages ne dépasse pas 50 %, d'autres matériaux comme CrO_2 et $La_{0,7}Sr_{0,3}MnO_3$ possèdent des polarisations en spin plus importantes, ce sont des demi-métaux.

Définition d'un demi métal selon de Groot (1983) :

La première apparition du terme « demi-métal » date du début des années [127]. Dans un demi-métal, d'après de Groot, seuls les électrons d'une orientation de spin donnée (« up » ou « down ») sont métalliques, tandis que les électrons de l'autre orientation de spin ont un comportement isolant. Autrement dit, les demi-métaux ont une polarisation en spin de 100 % puisque ne contribuent à la conduction que soit des électrons de spin « up » soit de spin « down » (Figure annexe II.3).



Figure annexe II.3: Représentation schématique des densités d'états et polarisation en spin d'un métal non ferromagnétique (A), d'un matériau ferromagnétique (B) et d'un matériau demi métallique (C).

Structure	Matériau	P à	M _S	T _c	Référence pour la
Structure		5K	$(\mu_B/u.f)$	(K)	polarisation
Butile AO	CrO ₂	96%	2	390	(Ji, Strijkers et
					al.2001) [128]
Spinelle AB.O.	Fe ₃ O ₄	*	4	840	(Hu et Suzuki 2002)
Spinene AD ₂ O ₄					[129]
Heuslers A ₂ MnB	Co ₂ MnSi	89%	5	985	(Sakuraba, Nakata et
					al. 2005) [130]
Domi Houslors AMnP	NiMnSb	*	4	730	(Soulen, Byers et al.
Denn-Heusiers Alvind					1998) [131]
Manganites ABMnO.	La _{1-x} Sr _x MnO ₃	95%		340	(Bowen, Bibes et al.
Mangaintes ADMinO3					2003) [132]
SC magnétiques dilués	(Ga,Mn)As	85%		110	(Braden, Parker et al.
					2003) [133]
Develate a face of his	Sr ₂ FeMoO ₆	85%	4	415	(Bibes, Bouzehouane
Double perovskite					et al. 2003) [134]
1				1	

Quelques exemples de demi-métaux :

Tableau annexe II.3 : Quelques exemples de demi-métaux avec leur structure, leur polarisation en spin mesurée, leur aimantation à saturation et leur température de Curie.

On peut remarquer tout d'abord que les demi-métaux dont on a pu mesurer une polarisation proche de 100 % sont peu nombreux. Cela est dû, d'une part à des difficultés expérimentales de synthèse des matériaux, et d'autre part à des difficultés de mesure de la polarisation. Beaucoup de demi-métaux ont la particularité d'avoir une aimantation égale à un nombre entier de magnétons de Bohr. Cela se comprend assez facilement en regardant le schéma précédent. En effet, $n = n_{\uparrow} - n_{\downarrow}$ est entier. Or, dans l'exemple de la figure annexe II.3, n_{\uparrow} est entier car tous les états sont occupés, donc n_{\downarrow} est aussi entier. L'aimantation, qui se calcule par la formule $M_s = (n_{\uparrow} - n_{\downarrow})\mu_B$, est donc bien égale à un nombre entier de magnétons de Bohr.

L'intérêt des demi-métaux pour l'électronique de spin :

Dans ce paragraphe, nous allons montrer quel est l'intérêt des demi-métaux pour l'électronique de spin. Intéressons-nous au cas des jonctions tunnel magnétiques, dans le cas où les deux électrodes sont des électrodes ferromagnétiques classiques (non demi métalliques) et dans le cas où ces deux électrodes ferromagnétiques sont demi-métalliques.

Si l'on considère que le spin de l'électron est conservé lors du processus tunnel, les électrons de spin « up » et de spin « down » peuvent traverser la barrière tunnel de manière indépendante. On peut donc modéliser la conduction dans la jonction tunnel par un réseau de deux résistances électriques en parallèle, où chaque résistance correspond à un canal de spin. La résistance totale va être différente selon que les aimantations des deux électrodes sont en configuration parallèle ou antiparallèle. On suppose également que la conductivité est proportionnelle au produit des densités d'états de chaque côté de la barrière sans tenir compte de la probabilité de transmission par effet tunnel pour les électrons de chaque direction de spin. Intéressons-nous à la Figure 4: dans le cas d'un matériau ferromagnétique classique, pour lequel les deux électrodes ont leur aimantation dans une configuration parallèle (Figure annexe II. 4.A), les densités d'états de spin « up » sont majoritaires dans les deux électrodes. Le courant de spin est donc important et la résistance de ce canal est faible. Les densités d'états de spin « down » sont minoritaires dans les deux électrodes, ainsi le courant de spin est faible et donc la résistance est élevée pour ce canal de spin. La résistance totale de la jonction, qui provient des résistances des deux canaux de spin mise en parallèle, est donc faible.

Dans la configuration antiparallèle Figure annexe II.4.B, les électrons de spin « up » ou « down » sont majoritaires pour une électrode, mais minoritaires pour l'autre, et vice-versa. Les résistances correspondant à chaque canal de spin sont élevées, ainsi que la résistance totale de la jonction. C'est l'existence de ces deux états de résistance, faible ou élevée, qui permet l'utilisation des jonctions tunnel magnétiques dans des mémoires ou des capteurs.



Figure annexe II.4: Diagramme expliquant l'origine de la magnétorésistance dans le cas d'un matériau ferromagnétique « classique » avec une polarisation en spin de 40 %, et dans le cas d'un demi-métal donc avec une polarisation en spin de 100 %.

Les densités d'états sont représentées pour des électrodes ferromagnétiques « classiques», et pour des électrodes demi-métalliques, dans le cas où les deux électrodes ont leurs aimantations soit parallèles soit antiparallèles. Dans le cas parallèle, on observe une résistance faible entre les deux électrodes pour les deux types de matériaux, « classiques » ou demimétalliques. Cependant, dans le cas antiparallèle, la résistance devient élevée dans le cas du ferromagnétique « classique » alors qu'elle devient infinie (en théorie) dans le cas du demimétal. La magnétorésistance est donc infinie en théorie dans le cas des électrodes demimétalliques.

Dans le cas où les deux électrodes sont demi-métalliques, et en configuration parallèle (Figure annexe II.4.C), il existe un canal de spin permettant le passage des électrons. La résistance est donc faible. Par contre, dans le cas d'une configuration antiparallèle (Figure annexe II.4.D), il n'y a aucun courant de spin car il n'y a pas d'état disponible soit au départ, soit à l'arrivée. La résistance est alors infinie en théorie. Ainsi, dans le cas d'un demi-métal,

on s'attend en théorie à une magnétorésistance tunnel infinie mais cela est loin d'être le cas en pratique). Le modèle de Jullière [22] montre que l'amplitude de la magnétorésistance tunnel est liée à la polarisation en spin des électrodes. Or les éléments magnétiques utilisés jusqu'à présent, comme le Ni, Co, Fe et CoFe, présentent des polarisations qui ne dépassent pas les 50 %.

Une solution pour avoir une polarisation plus importante et par conséquent une magnétorésistance élevée est d'utiliser des oxydes ferromagnétiques à caractère demimétallique, pour lesquels le niveau de Fermi passe au coeur d'une bande d'énergie dans l'une des directions de spin et passe par un gap d'énergie dans l'autre direction. Il n'y a alors qu'une seule population de spin au niveau de Fermi, donnant ainsi une polarisation de 100 %.

La technique d'Epitaxie par Jets Moléculaires :

Dans cette partie, l'appareillage est décrit de manière succincte. Des descriptions plus complètes d'appareils similaires sont disponibles dans les thèses de Hélène Fischer et d'Alexandra Mougin [135], [136] ainsi que dans l'ouvrage suivant [137].

Principe :

Les méthodes d'évaporation de métaux sont connues depuis fort longtemps déjà. Par contre, ce n'est que depuis la fin des années 1960 que les progrès de la technique permettent de réaliser ces évaporations sous ultravide. C'est ainsi qu'est née l'Épitaxie par Jets Moléculaires (EJM), ou encore la « Molecular Beam Epitaxy » (MBE) en anglais. Cette technique a vite fait ses preuves, car la synthèse sous ultravide permet l'utilisation de systèmes de caractérisation, dits in situ, propres aux techniques du vide. La MBE s'est développée essentiellement dans le cadre de la croissance épitaxiale de composés III-V.

La méthode consiste à faire interagir des flux atomiques ou moléculaires dans une enceinte à très basse pression résiduelle (inférieure à 10-10torr). La relation dite de Knudsen exprime le flux de particules Φ (par unités de temps et d'aire) en fonction de la pression partielle P, de la masse de l'atome m et de la température T :

$$\Phi = \frac{P}{\sqrt{2\pi n k_B T}}$$
(Annexe III.1)

Pour une densité de sites de l'ordre de 10¹⁵ sites par cm⁻², une pression de 10⁻¹⁰torr d'oxygène donne naissance à une monocouche complète adsorbée sur la surface au bout d'une dizaine d'heures. De plus, ce vide limite est tel que les dimensions de la chambre sont inférieures au libre parcours moyen des atomes dans ces conditions (typiquement 106m), ce qui permet de parler de régime moléculaire. Ces flux, issus de cellules d'évaporation, sont orientés sur un substrat monocristallin porté à la température convenable pour que les atomes évaporés s'y adsorbent. Le dépôt ainsi obtenu peut être ordonné, épitaxie selon les conditions expérimentales. On effectue souvent sur un même système des hétéroépitaxies successives pour la synthèse d'un superréseau.

La MBE est particulièrement adaptée à la préparation de ces matériaux monocristallins en couches très minces, grâce au contrôle possible de la stoechiométrie. Ses principaux avantages sont les suivants :

• Possibilité de l'étude in situ de l'interface de croissance par toute technique faisant intervenir un transport d'électrons dans le vide (diffraction d'électrons),

- Les dépôts s'effectuent sous ultra vide d'où une très faible pollution (quelques 10⁻⁹ torr en cours de dépôt pour les flux que nous utilisons),
- La faible vitesse de dépôt (quelques Angströms par seconde) et un système de caches pneumatiques permettent la réalisation d'interfaces abruptes,
- Excellent contrôle de la vitesse de croissance,
- Possibilité de réaliser des profils de concentrations,
- Très bonne résolution géométrique de la surface.

Descriptif technique :

Tous les échantillons étudiés ont été élaborés dans une enceinte MBE dessinée par Marc Alnot et réalisée par Meca 2000, couplée à une chambre d'introduction qui sert principalement de sas d'introduction des échantillons (figure 1). Les principaux éléments du bâti MBE sont les suivants :

L'enceinte à vide équipée pour obtenir et contrôler une pression résiduelle extrêmement faible, le porte-substrat équipé d'un four chaud $(20^{\circ}C \rightarrow 1000^{\circ}C)$ et d'un four froid $(-180^{\circ}C \rightarrow 200^{\circ}C)$, les cellules d'évaporation, les canons à électrons, les systèmes d'analyses annexes.

Un ensemble de différents types de pompage permet d'obtenir un vide limite de l'ordre de 2.10⁻¹¹torr : pompes à palettes primaire et turbo moléculaire secondaire, pompage ionique et par sublimation de titane, plus les panneaux cryogéniques qui doublent presque uniformément l'intérieur de l'enceinte et sur lesquels, une fois refroidis à 77K, viennent se condenser les gaz résiduels de l'enceinte.



Figure Annexe III-1 : Schéma de l'enceinte d'Epitaxie par Jets Moléculaires. Les brides représentent les endroits où les différents éléments sont fixés (manipulateur, canons à électrons, sublimateur de titane,...).

Le bâti est équipé de deux types de sources d'évaporation différentes : les canons à électrons ou les cellules de Knudsen. Le choix du type de source se fait en fonction du matériau à évaporer et de ses caractéristiques (température d'évaporation, réactivité avec le creuset). Ainsi, les éléments Fe, Pd, Cu et Ag ont été évaporés par des cellules de Knudsen ; pour le Co, V, Au et MgO, nous avons utilisé les canons à électrons.

L'étalonnage des flux de dépôt des différents matériaux se fait soit de manière in situ (microbalances à quartz, oscillations de RHEED) soit de manière ex situ (diffraction de rayons X aux petits angles, mesures magnétiques) [138]

L'étude structurale des couches est réalisée in situ au moyen d'un canon à électrons de haute énergie. Cette méthode de caractérisation sera décrite plus loin.

Préparation des substrats :

<u>Nettoyage ex situ</u>

Au début, le nettoyage des substrats consiste en trois bains successifs de 15 minutes chacun : trichloréthylène avec ultrasons, puis acétone bouillant et enfin propanol bouillant avant séchage à l'azote sec. L'étude en microscopie à force atomique a mis en évidence la présence de trous d'une centaine d'Angströms de profondeur induits par les ultrasons qui fragilisent le substrat. Cette méthode de préparation a donc été abandonnée. En effet, ces mêmes substrats sont très propres à la sortie de leur emballage (mis à part une forte pollution en carbone), sans nettoyage ex situ supplémentaire.

<u>Nettoyage in situ</u>

Les substrats subissent alors un flash thermique (500°C pendant 15 minutes). Le but est d'éliminer tous les gaz, comme CO ou l'eau, adsorbés en surface de l'échantillon. De plus, nous verrons que le recuit permettant d'aplanir la surface de Fe s'effectue à 450°C. Il est donc essentiel que la température du dégazage soit supérieure, de façon à éviter toute désorption d'espèces chimiques provenant du molybloc et du four. Désormais, les échantillons ne sont plus exposés à l'air jusqu'à la fin du processus d'épitaxie.

Caractérisation in situ par RHEED :

La technique de diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED Reflexion High Energy Electron Diffraction) a été développée lors de l'élaboration de structures artificielles de semi-conducteurs (puits quantiques,...), afin d'en contrôler en continu le mode de croissance. Elle permet non seulement de connaître la structure d'une surface (monocristal, polycristal, amorphe,...), d'en apprécier la planéité mais également d'en suivre le mode de croissance au cours du dépôt, ainsi que d'étalonner les flux d'évaporation grâce au phénomène d'oscillations d'intensité. Les oscillations de paramètre fournissent des renseignements complémentaires sur la taille des îlots en cours de croissance. La diffraction RHEED est devenue un outil indispensable pour étudier la croissance de films minces in situ et en temps réel. En effet son fonctionnement sous ultravide et le fait que le faisceau d'électrons soit dirigé parallèlement à la surface (donc perpendiculairement à l'axe de croissance) facilitent son implantation sur un bâti d'épitaxie.

Une description claire et détaillée du principe de RHEED se trouve dans la thèse de Pascal Turban [139] et dans l'ouvrage suivant [140].

[1]: J.M. Ziman. Principles of the Theory of solids.1972.

[2]: E.Akkermans, G. Montambaux, J-L. Pichard et J. Zinn-Justin, Physique quantique mésoscopique, Elsevier Science (1995).

[3]: N.W.Ashcroft and N.D. Mermin, Solide State Physics, Saunders College Publishing (1976).

- [4]: M.Lunrtstrum, Fandamentals of carrier transport. 2000.
- [5]: M. Buttiker, Y. Imry and R. Landauer, Phys. Lett. A 96 A, 365 (1983).
- [6]: M. Buttiker, Y. Imry and R. Landauer, S Pinhas, Phys. Rev. B31, 6207 (1985).
- [7]: S.Datta. Electronic transport in mesoscopic system.1998.
- [8]: M. Cahay, and S. Datta. Phys. Rev. B,37. 1988.
- [9]: P.W. Anderson, D.J Thouless, E.Abcahams, D.S. Fisher; Phys. Rev. B. 22;3519 (1980).

[10]: N. Mott, Proc. Roy. Soc. 156, 368, 1936

[11]:M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A.

Friederich, and J. Chazelas. "Giant magnetoresistance of (001) Fe / (001) Cr magnetic superlattices." Phys. Rev. Lett. 61(21)(1988) 2472-2475.

- [12]: Valet, A. Fert, Physical Review B, 48, 7099, 1993.
- [13]: Jhonson and R.H. Silsbee, Physical Review B, 35, 4959, 1987
- [14]: Von Son, H. Van Kempen, and P. Wyder, Physical Review Letters, 58, 2271, 1987.
- [15]: Spin Electronics, M. Ziese and M.J. Thornton, Springer ed., 2001.
- [16]: Camley and J. Barnas, Physical Review Letters, 63, 664, 1989.
- [17]: Johnson and R. H. Silsbee, Physical Review B, 37(10):5312–5325, 1988.

[18]: S. Zhang and P. M. Levy, J. App. Phys. 69, 4786 (1991).

[**19**]:Sam-APL-00 M. G. Samant, J. Lüning, J. Stöhr, S. S. P. Parkin, Thermal stability of IrMn and MnFe exchange-biased magnetic tunnel junctions, Appl., Phys. Lett., 76, 21, p3097, (2000).

[20]: E. Fuchs, P. Dollfus, G. Le Carval, S. Barraud, D. Villanueva, F. Salvetti, H. Jaouen, T. Skotnicki "A new backscattering model giving a description of the quasi ballistic transport in nano-MOSFET," IEEE Transaction on Electron Devices 52 (10), 2280-2289 (2005).

[21]:Sim-JAP-63 J.G. Simmons, « Generalized formula for the electric tunnel effect

between similar electrodes separated by a thin insulating film », J. Appl,

Phys., 34, p1793, (1963).

[22]: Jullière, « Tunneling between ferromagnetic films », Phys. Lett.,

54A, p225, (1975).

[23]: A. Fert, I.A. Campbell, « Electrical resistivity of ferromagnetic nickel and iron based alloys », J. Phys. F : Metal Phys., 6, p849, (1976).

[24] : C.V. Tiusan, Thèse de Doctorat européen « Magnétisme et transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques. Utilisation du transport tunnel comme une sonde micromagnétique », Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2000).

[25]: Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier J. C. Slonczewski, 1989

[26]: Bar-PRL-61 J. Bardeen, « Tunneling from a many-particle point of view », Phys. Rev. Lett., 6, p57, (1961).

[27]: Tunneling between ferromagnetic films M. Jullière Phys. Lett. A54, 225 (1975)

[28]: Inverse Tunnel Magnetoresistance in CoySrTiO3yLa0.7Sr0.3MnO3 : New Ideas on Spin-Polarized Tunneling J. M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J. P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, et A. Vaurès Phys. Rev. Lett. 82, 4288 (1999).

[29] : « Validity of the Jullière model of spin-dependent tunneling », Phys. Rev. B, 56, p11827, (1997) J. M. MacLaren, X. G. Zhang, W. H. Butler.

[**30**]: J. M., De Teresa, A. Barthelemy, et al. (1999). "Role of metal-oxide interface in determining the spin polarization of magnetic tunnel junctions." Science 286(5439): 507-509

[31]: T. Dimopoulos, Thèse de Doctorat « Transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques : le rôle des interfaces métal/oxyde dans le processus tunnel », Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2002).

[**32**]: A. FERT, J.-M. GEORGE, H. JAFFRÈS, AND R. MATTANA, unpublished, (2006). Semiconductor between ferromagnetic source and drain.

[33]: T. VALET AND A. FERT, Phys. Rev. B, 48, pp. 7099–7113, (1993). Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers.

[34]: J.-M. GEORGE, H. JAFFRÈS, R. MATTANA, M. ELSEN, F. N. V. DAU, A. FERT, B. LÉPINE, A. GUIVARC'H, AND G. JÉZÉQUEL, Molecular Physics Reports, 40, pp. 23–33, (2004). Electrical Spin Detection in GaMnAs-based tunnel junctions : Theory and Experiments.

[**35**]: R. FIEDERLING, M. KEIM, G. REUSCHER, W. OSSAU, G. SCHMIDT, A. WAAG, AND L. W. MOLENKAMP, Nature, 402, pp. 787–790, (1999). Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode.

[**36**]:Y. OHNO, D. K. YOUNG, B. BESCHOTEN, F. MATSUKURA, H. OHNO, AND D. D. AWSCHALOM, Nature, 402, pp. 790–792, (1999). Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure.

[**37**]: H. J. ZHU, M. RAMSTEINER, H. KOSTIAL, M. WASSERMEIER, H.-P. SCHÖNHERR, AND K. H. PLOOG, Phys. Rev. Lett., 87, p. 016601, (2001). Room-Temperature Spin Injection from Fe into GaAs.

[**38**]: M. RAMSTEINER, H. Y. HAO, A. KAWAHARAZUKA, H. J. ZHU, M. KÄSTNER, R. HEY, L. DÄWERITZ, H. T. GRAHN, AND K. H. PLOOG, Phys. Rev. B, 66, p. 081304, (2002). Electrical spin injection from ferromagnetic MnAs metal layers into GaAs.

[39]: A. T. HANBICKI, B. T. JONKER, G. ITSKOS, G. KIOSEOGLOU, AND A. PETROU, Applied Physics Letters, 80, pp. 1240–1242, (2002). Efficient electrical spin injection from a magnetic metal/tunnel barrier contact into a semiconductor.

[40]: A. T. HANBICKI, O. M. J. VAN 'T ERVE, R. MAGNO, G. KIOSEOGLOU, C. H. LI, B. T. JONKER, G. ITSKOS, R. MALLORY, M. YASAR, AND A. PETROU, Applied Physics Letters, 82, pp. 4092–4094, (2003). Analysis of the transport process providing spin injection through an Fe/AlGaAs Schottky barrier.

[41]: C. ADELMANN, X. LOU, J. STRAND, C. J. PALMSTROM, AND P. A. CROWELL, Physical Review B, 71, p. 121301, (2005). Spin injection and relaxation in ferromagnet-semiconductor heterostructures.

[42]: O. M. J. VAN 'T ERVE, G. KIOSEOGLOU, A. T. HANBICKI, C. H. LI, B. T. JONKER, R. MALLORY, M. YASAR, AND A. PETROU, Applied Physics Letters, 84, pp. 4334–4336, (2004). Comparison of Fe/Schottky and Fe/Al[sub 2]O[sub 3] tunnel barrier contacts for electrical spin injection into GaAs.

[43]: G. SALIS, R. WANG, X. JIANG, R. M. SHELBY, S. S. P. PARKIN, S. R. BANK, AND J. S. HARRIS, Applied Physics Letters, 87, p. 262503, (2005). Temperature independence of the spin-injection efficiency of a MgObased tunnel spin injector.

[44]: J. D. BOECK, W. VAN ROY, J. DAS, V. MOTSNYI, Z. LIU, L. LAGAE, H. BOEVE, K. DESSEIN, AND G. BORGHS, Semicond. Sci. Technol., 17, p. 342, (2002). "Technology and materials issues in semiconductorbased magnetoelectronics"

[45]: S. DAS SARMA, American Scientist, 89, p. 516, (2001). "Spintronics".

[46]: D. D. AWSCHALOM AND J. M. KIKKAWA, Physics Today, p. 33, (June 1999). "Electron spin and optical coherence in semiconductors".

[47]: D. D. AWSCHALOM AND N. SARMATH, "Optical manipulation, transport and storage of spin coherence in semiconductors", Semiconductor spintronics and quantum computation, D. D. AWSCHALOM, D. LOSS, AND N. SARMATH, eds., p. 147, Spinger, 2002.

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

[49]: F. MEIER AND B. P. ZAKHARCHENYA, eds., "Optical Orientation", , eds., Elsevier Science, Amsterdam, 1984.

[50]: S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, D. M. Treger, "Spintronics : A Spin-Based Electronics Vision for the future", Science 294, 1488 (2001)

[51]: B. E. Kane, "A silicon-based nuclear spin quantum computer", Nature 393, 133 (1998)

[52]: E.I. Rashba, Properties of semiconductors with an extremum loop, I/ Cyclotron and combinational resonance in a magnetic field perpendicular to the plane of the loop, Sov. Phys. Solid State 2, 1109 (1960)

[53]: Yu. A. Bychkov, E.I. Rashba, Properties of a 2D electron gas with lifted spectral degeneracy, Sov. Phys. JETP

[54]: F. G. Monzon, Mark Johnson, M. L. Roukes, Strong Hall voltage modulation in hybrid ferromagnet/semiconductor microstructures, Appl. Phys. Lett. 71 (21), 3087 (1997)

[55]: F. G. Monzon, M. L. Roukes, Spin injection and the local Hall effect in InAs quantum wells, J. Magn. Magn. Mater. 198-199, 632-635 (1999)

[56]: A. T. Filip, B. H. Hoving, F. J. Jedema, B. J. van Wees, Experimental search for the electrical spin injection in a semiconductor, Phys. Rev. B 62 (15), 9996 (2000)

[57]: S. Gardelis, C. G. Smith, C. H. W. Barnes, E. H. Linfield, D. A. Ritchie, Spin-valve effects in a semiconductor field-effect transistor : A spintronic device, Phys. Rev. B 60 (11), 7764 (1999)

[58]: P. R. Hammar, B. R. Bennett, M. J. Yang, Mark Johnson, Observation of Spin Injection at a Ferromagnet-Semiconductor Interface, Phys. Rev. Lett. 83 (1), 203 (1999)

[**59**]: C.-M. Hu, Junsaku Nitta, A. Jensen, J. B. Hansen, Hideaki Takayanagi, Spin-polarized transport in a two-dimentional electron gas with interdigital-ferromagnetic contacts, Phys. Rev. B 63, 125333 (2001)

[60]: W. Y. Lee, S. Gardelis, B.-C. Choi, Y. B. Xu, C. G. Smith, C. H. W. Barnes, D. A. Ritchie, E. H. Linfield, J. A. C. Bland, Magnetization reversal and magnetoresistance in a lateral spininjection device, J. Appl. Phys. 85 (9), 6682 (1999)

[61]: F. G. Monzon, H. X. Tang, M. L. Roukes, Magnetoelectronic Phenomena at a Ferromagnet-Semiconductor Interface, Phys. Rev. Lett. 84 (21), 5022 (2000)

[62]: G. Schmidt, D. Ferrand, L. W. Molenkamp, A. T. Filip, B. J. van Wees, Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor, Phys. Rev. B 8 (62), R4790 (2000)

[63]: P. M. Tedrow and R. Meservey, Spin-Dependent Tunneling into Ferromagnetic Nickel, Phys. Rev. Lett. 26 (4), 192 (1971)

[64]: P. M. Tedrow and R. Meservey, Spin Polarization of Electrons Tunneling from Films of Fe, Co, Ni, and Gd, Phys. Rev. B 7 (1), 318 (1973)

[65]: M. B. Stearns, Simple explanation of tunneling spin-polarization of Fe, Co, Ni and its alloys, J. Magn. Magn. Mater. 5, 167-171 (1977)

[66]: A. Fert, J.-M. George, H. Jaffrès, G. Faini, Spin injection and experimental detection of spin accumulation, J. Phys. D : Appl. Phys. 35, 2443 (2002)

[67]: F. J. Jedema, M. S. Nijboer, A. T. Filip, B. J. van Wees, Spin injection and spin accumulation in all-metal mesoscopic spin valves, Phys. Rev. B 67, 085319 (2003)

[68]: M. Oestreich, J. Hübner, D. Hägele, P. J. Klar, W. Heimbrodt, W. W. Rühle, D. E. Ashenford, B. Lunn, Spin injection into semiconductors, Appl. Phys. Lett. 74 (9), 1251 (1999)

[69]: Y. Ohno, D. K. Young, B. Beschoten, F. Matsukura, H. Ohno, D. D. Awschalom, Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure, Nature 402, 790 (1999)

[70]: S. Sugahara and M. Tanaka, A spin metal-oxide-semiconductor field-effect

transistor using half-metallic-ferromagnet contacts for the source and drain, Appl. Phys. Lett. 84 (13), 2307 (2004)

[71]: E.I. Rashba, Theory of electrical spin injection : Tunnel contacts as a solution of the conductivity mismatch problem, Phys. Rev. B 62 (24), R16 267 (2000)

[72]: D. L. Smith and R. N. Silver, Electrical spin injection into semiconductors, Phys. Rev. B 64, 045323 (2001)

[73] A. Fert and H. Jaffrès, Conditions for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor, Phys. Rev. B 64, 184420 (2001)

[74]: R. P. Borges, C. L. Dennis, J. F. Gregg, E. Jouguelet, K. Ounadjela, I. Petej, S. M.

Thompson, M. J. Thornton, Comparative study of spin injection into metals and semiconductors, J. Phys. D : Appl. Phys. 35, 186-191 (2002)

[75]: J. F. Gregg, R. P. Borges, E. Jouguelet, C. L. Dennis, I. Petej, S. M. Thompson, K. Ounadjela, Spin injection efficiency in spin electronic devices, J. Magn. Magn. Mater. 265, 274-289 (2003)

[76]: S. F. Alvarado and P. Renaud, Observation of Spin-Polarized-Electron Tunnelling from a Ferromagnet into GaAs, Phys. Rev. Lett. 68 (9), 1387 (1992)

[77] S. F. Alvarado, Tunneling Potential Barrier Dependence of Electron Spin Polarization, Phys. Rev. Lett. 75 (3), 513 (1995)

[78]: F. Meier, B. P. Zachachrenya, Optical Orientation, North-Holland, Amsterdam, 1984

[79]: C. Weisbuch, B. Vinter, Quantum Semiconductor Structures-Fundamentals and Applications, Academic, Boston, 1991

[80]: A. G. Aronov and G. E. Pikus, Spin injection into semiconductors, Sov. Phys. Semicond. 10 (6), 698 (1976)

[81]: J. D. Albrecht, D. L. Smith, Spin-polarized electron transport at ferromagnet/semiconductor Schottky contacts, Phys. Rev. B 68, 035340 (2003)

[82]: A.T. Hanbicki, B. T. Jonker, G. Itskos, G. Kioseoglou, A. Petrou, Efficient electrical spin injection from a magnetic metal/tunnel barrier contact into a semiconductor, Appl. Phys. Lett. 80 (7), 1240 (2002)

[83]: V.F. Motsnyi, J. De Boeck, J. Das, W. Van Roy, G. Borghs, E. Goovaerts, V.I. Safarov, Electrical spin injection in a ferromagnet/tunnel barrier/semiconductor heterostructure, Appl. Phys. Lett. 81 (2), 265 (2002)

[84]: V. F. Motsnyi, P. Van Dorpe, W. Van Roy, E. Goovaerts, V. I. Safarov, G. Borghs, J. De Boeck, Optical investigation of electrical injection into semiconductors, Phys. Rev. B 68,245319 (2003)

[85]: Pol Van Dorpe, Vasyl F. Motsnyi, Mayke Nijboer, Etienne Goovaerts, Viacheslav I. Safarov, Jo Das, Wim Van Roy, Gustaaf Borghs and Jo De Boeck, Highly Efficient Room Temperature Spin Injection in a Metal-Insulator-Semiconductor Light-Emitting Diode, Jpn. J. Appl. Phys. 42, L502 (2003)

[86]: S. M. Sze, Physics of Semiconductor Device, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1969
[87]: M. Ramsteiner, H. Y. Hao, A. Kawaharazuka, H. J. Zhu, M. Kästner, R. Hey, L. Däweritz, H. T. Grahn, K. H. Ploog, Electrical spin injection from ferromagnetic MnAs metal layers into GaAs, Phys. Rev. B 66, 081304(R) (2002)

[88]: A. Kawaharazuka, M. Ramsteiner, J. Herfort, H.-P. Schönherr, H. Kostial, K. H. Ploog, Spin injection from Fe3Si into GaAs, Appl. Phys. Lett. 85 (16), 3492 (2004)

[89]: R. Wang, X. Jiang, R. M. Shelby, R. M. Macfarlane, S. S. P. Parkin, S. R. Bank, J. S. Harris, Increase in spin injection efficiency of a CoFe/MgO(100) tunnel spin injector with thermal annealing, Appl. Phys. Lett. 86, 052901 (2005)

[90]: R. J. Elliot, Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors, Phys. Rev. 96 (2), 266 (1954)

[91] : M. I. D'Yakonov, Introduction to spin physics in semiconductors, Ecole thèmatique du CNRS organisé par le GDR SESAME sur "Le Spin dans les Semi-conducteurs: Physique et Applications, 2005

[92] : A. Bournel, Magnéto-électronique dans les dispositifs à semiconducteurs, Ann. Phys. Fr. 25 (1), 1-176 (2000)

[93]: G. Fishman and G. Lampel, Spin relaxation of photoelectrons in p-type gallium arsenide, Phys. Rev. B 16 (2), 820 (1977)

[94]: A. G. Aronov, G. E. Pikus, A. N. Titkov, Spin relaxation of conduction electrons in ptype III-V compounds, Sov. Phys. JETP 57 (3), 680 (1983)

[95]: Y. Yafet, Conduction - electron spin relaxation by transition - element impurities in copper, Journal of Applied Physics 39, 853 (1968)

[96]: M. I. D'Yakonov and V. I. Perel', Spin Orientation of Electrons associated with the interband absorption of light in semiconductors, Sov. Phys. JETP 33 (5), 1053 (1971)

[97]: G. L. Bir, A. G. Aronov, G. E. Pikus, Spin relaxation of electrons due to scattering by holes, Sov. Phys. JETP 42 (4), 705 (1975)

[98]: K. Zerrouati, F. Fabre, G. Bacquet, J. Bandet, J. Frandon, Spin-lattice relaxation in p-type gallium arsenide single crystals, Phys. Rev. B 37 (3), 1334 (1988)

[99]: J. M. Kikkawa, D.D. Awschalom, Resonant Spin Amplification in n-Type GaAs, Phys. Rev. Lett. 80 (19), 4313 (1998)

[100]: B. Das, D. C. Miller, S. Datta, Evidence for spin splitting in InxGa1xAs/In0.52Al0.48As heterostructures as B®0, Phys. Rev. B 39 (2), 1411(1989)

[101]: G. Lommer, F. Malcher, U. Rössler, Reduced g factor of subband Landau levels in AlGaAs/GaAs heterostructures for B® 0, Phys. Rev. Lett. 60, 728 (1988).

[102]: L.Langer, V.Bayot, E.Grivei, J-P.Heremans, C.H.Oik, LStockman C.Van Haesendonk, and Y.Bruynseraede. Quantum transport in a multiwalled carbon nanotube. *Physical Rview Letters*, *76*(*3*):479, *1996.JAN 15*.

[103]: A. Yu. Kasumov, I. I. Khodod, P. M. Ajayan, and C. Colliex. In *Proceedings of the International Workshop, Fullerenes and Atomic Clusters, St. Petersberg, Russia, 1995.*

[104]: S.Frank, P.Poncharal, Z. L.Wang, and W. A. de Heer. Carbon nanotube quantum resistors. *Sience*, 280(5370) :1744-1746,1998. JUN 12.

[**105**]: S. J. Tans, M. H. Devoret, H. Dai, A. Thess, R. E. Smalley, L. J. Geerligs, and C. Dekker. Individual single wall carbon nanotubes as quantum wires. *Nature*, 386:474,1997. AP 03.

[**106**]: A. Bachtod, C. Strunk, J. P. Salvetat, J. M. Bonard, L. Forro, T. Nussbaumer, and C. honenberger. Aharnonv-bohm oscillations in carbone nanotubes. Nature, 397(6721) :673-675, 1999. FEB 25.

[107]: C. Schonenberger, A. Bachtod, C. Strunk, J. P. Salvetat, and L. Forro. Interface and interaction in multi-wall carbon nanotubes. *Applied Physics a-Materials Sience and Processing*, 69(3):283-295, 1999. SEP.

[108]: A. Bachtold, M. de Jonge, K. Grove-Rasmussen, P. L. McEuen, M. Buiteleer, and C.Schonenberger. Supression of tunnelling into multiwall carbon nanotuibes. *Physical Review Letters*, 87(16): 166801-1-166801-4, 2001. OCT 15.

[109]: R. Martel, T. Schmidt, H. R. Shea, T. Hertel, and P. Avouris. Single-and multi-wall carbon nanotube fieled-effect transistors. *Applied Physics Letters*, 73(17) : 2447-2449, 1998. OCT 26.

[110]: M. R. Buitelaar, T. Nussbaumer, C. Schonenberger, and L. Forro. Electrochemical carbon nanotube fieled transistor. *Applied Physics Letters*, 78(9) : 1291-1293, 2001. FEB 26.

[111]: George, J. M., Jaffrès, H., Mattana, R., Elsen, M., Nguyen Van Dau, F., Fert, A., Lépine, B. & Jézéquel, G. Electrical Spin Injection in GaMnAs-based junctions. Mol. Phys. Rep. 40, 23 (2004).

[112]: Fert, A., George, J. M., Jaffrès, H. & Mattana, R., Semiconductor between ferromagnetic source and drain, to appear in Special Issue of IEEE Transactions of Electronic Devices on "Spintronics", 2006.

[113]: Mattana, R., George, J.-M., Jaffrès, H., Nguyen Van Dau, F., Fert, A., Lépine, R., Guivarc'h, A., Jézéquel, G. Electrical Detection of Spin Accumulation in a p-Type GaAs Quantum Well. Phys. Rev. Lett. 90, 166601 (2003).

[114] : Buitelaar, M. R., Bachtold, A., Nussbaumer, T., Iqbal, M., Schönenberger, C. Multiwall Carbon Nanotubes as Quantum Dots, Phys. Rev. Lett. 88, 156801 (2002).

[115]: R. Saito, G. Dresselhaus, and M. Dresselhaus. Physical Properties of Carbon nanotubes.1998.

[116]: N.W. Ashcroft and N.D. Mermin. Solid States Physics. 1976.

[117]: T. Ando and T. Nakanishi. J. Phys. Soc. Jap, 67 :1704, 1998.

[118]: P.L. McEuen, M. Bockrath, D.H. Cobden, Y-G. Yoon, and S.G. Louie. Phys. Rev. Lett.,83:5098, 1999.

[119]: M.P Anantram and T.R. Govindan. Phys. Rev. B, 58:4882, 1998.

[120]: R. P. H. Chang S. N, Song, X. K. Wang and J. B Ketterson. Electronic properties of graphite nanotubules from galvanomagnetic effects. Physical Review Letters 72(5) : 697, 1994. JAN31.

[121]: Andreev reflection and Proximity effect

[122]: Meservey, R. and P. M. Tedrow (1994). "Spin-polarized electron tunneling."

[123]: Zutic, I., J. Fabian, et al. (2004). "Spintronics: Fundamentals and applications." Reviews of Modern Physics 76(2): 323-410.

[124]: Seneor, P. (2000). "Thèse de doctorat. Jonctions tunnel à base d'oxydes magnétiques demimétalliques." Ecole polytechnique.

[**125**]: Moodera, J. S. and G. Mathon (1999). "Spin polarized tunneling in ferromagnetic junctions." Journal of Magnetism and Magnetic Materials 200(1-3): 248-273.

[126]: Blonder, G. E., M. Tinkham, et al. (1982). Phys. Rev. B 25: 4515.

[127]: de Groot, R. A. and e. al. (1983). Phys. Rev. Lett. 50: 2024.

[128]: Ji, Y., G. J. Strijkers, et al. (2001). "Determination of the spin polarization of halfmetallic CrO2 by point contact Andreev reflection." Physical Review Letters 86(24): 5585-

[129]: Hu, G. and Y. Suzuki (2002). "Negative Spin Polarization of Fe3O4 in Magnetite/Manganite-Based Junctions." Phys. Rev. Lett. 89: 276601.

[130]: Sakuraba, Y., J. Nakata, et al. (2005). "Huge spin-polarization of L2(1)-ordered CO2MnSi epitaxial Heusler alloy film." Jpn. J. Appl. Phys. Part 2 44: L1100.

[131]: Soulen, R. J., J. M. Byers, et al. (1998). "Measuring the spin polarization of a metal with a superconducting point contact." Science 282: 85.

[132]: Bowen, M., M. Bibes, et al. (2003). "Nearly total spin polarization in La2/3Sr1/3MnO3 from tunneling experiments." Applied Physics Letters 82(2): 233-235.

[133]: Braden, J. G., J. S. Parker, et al. (2003). "Direct Measurement of the Spin Polarization of the Magnetic Semiconductor (Ga,Mn)As." Phys. Rev. Lett. 91: 056602. Brinkman, W. F., R. C. Dynes, et al. (1970). "Tunneling conductance of asymmetrical.

[134]: Bibes, M., K. Bouzehouane, et al. (2003). "Tunnel magnetoresistance in nanojunctions based on Sr2FeMoO6." Applied Physics Letters 83(13): 2629-2631.

[135]: Fundamental magnetization processes in nanoscaled composite permanent Magnets R.Fischer, T. Leineweber, et H. Kronmüller Phys. Rev. B 57, 10723 (1998)

[136]: Nanosystèmes magnétostricitfs de type TRFe2(110) (TR=Terre Rare) : croissance, morphologie et propriétés magnétiques A. Mougin Thèse de l'Université H. Poincaré, Nancy I (1999) [137]: Epitaxy : Physical Principles and Technical Implementation M.A. Herman, W. Richter, et H. Sitter Springer Verlag (2004)

[138]: Interlayer Magnetic Coupling Interactions of Two Ferromagnetic Layers by Spin Polarized Tunneling J. Faure -Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, et A. Schuhl Phys. Rev. Lett. 89, 107206 (2002)

[139]: Epitaxie de films minces métalliques : (i) Relaxation élastique pendant la croissance pseudomorphe (ii) Epitaxie d'hétérostructures NiMnSb/MgO/NiMnSb pour l'électronique de spin P. Turban Thèse de l'université H. Poincaré, Nancy I (2001)

[140]: Applied RHEED, Reflection High Energy Electron Diffraction during Crystal GrowthW. Braun Springer Verlag (1999)

<u>Résumé</u>

Dans ce travail, nous avons mené à une synthèse bibliographique des différentes techniques expérimentales et théoriques pour la conception et l'étude de nanomatériaux destinés à la spintronique ou « l'électronique de spin », cette nouvelle thématique de recherche est apparue à la fin des années 80, sur la base notamment de travaux pionniers publiés dans les années 70.

Les premières structures étudiées dans ce domaine utilisent toutes des couches ultraminces de métaux ferromagnétiques. On trouve des multicouches magnétiques dans lesquelles l'effet de magnétorésistance géante (GMR) a été découvert par le groupe d'Albert Fert, ou encore des structures constituées de jonctions tunnel magnétiques avec un isolant d'épaisseur nanométrique intercalé entre deux couches ferromagnétiques, la magnétorésistance observée est alors appelée magnétorésistance tunnel (TMR). De tels dispositifs sont déjà utilisés au niveau industriel en tant qu'éléments de tête de lecture pour disque dur, ou des mémoires non volatiles MRAM.

Depuis 10 ans, des groupes travaillant dans le domaine des composants à semiconducteurs et les nanotubes de carbone se sont également intéressés aux propriétés relatives au spin de l'électron, ces nanotubes de carbone qui associent à la fois l'avantage d'avoir un comportement métallique présentant avec une mobilité de porteurs très grandes, et un comportement semiconducteur avec un temps de vie de spin très grand. Au tire de comparaison de la GMR entre les différents dispositifs utilisés en spintronique (métaux, isolants, semiconducteurs, nanotubes de carbone), mène à la conclusion que les nanotubes de carbone sont les meilleurs candidat pour avoir une GMR très grande.

Mots clés :

Transport de spin, magnétorésistance géante, magnétorésistance tunnel, spintronique, nanotube de carbone, semiconducteur, matériaux ferromagnétiques.

<u>Abstract</u>

In this work, we conducted a synthesis bibliographic of different techniques experimental and theoretical for the design and study of nanomaterials for spintronics or «spin electronics», this new research theme has emerged in the late 80s, particularly on the basis of pioneering work published in 70 years.

The first structures studied in this area use all of ultrathin layers of ferromagnetic metals. There are magnetic multilayers in which the giant magnetoresistance effect (GMR) was discovered by the group of Albert Fert, or structures made of magnetic tunnel junctions with an insulator nanometer thick intercalated between two magnetic layers, the magnetoresistance observed is called tunnel magnetoresistance (TMR). Such devices are already used in industry as part of playhead disk drive, or non-volatile memory MRAM.

For 10 years, groups working in the field of semiconductor components and carbon nanotubes have also focused on the properties of the electron spin, these carbon nanotubes that combine both the advantage of having behavior metal with a mobility very large carrier, and a semiconductor behavior with the life time of spin is very large. In this comparison between GMR devices used in spintronics (metals, insulators, semiconductors, carbon nanotubes), leads to the conclusion that carbon nanotubes are the best candidate for a high GMR.

Key words:

Spin transport, giant magnetoresistance, tunnel magnetoresistance, spintronics, Carbon nanotube, Semiconductor, ferromagnetic materials.