REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI OUZOU FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

MEMOIRE DE MAGISTER

Spécialité : PHYSIQUE

Option: SCIENCES DE LA MATIERE

Présenté par : AMAROUCHE Teyri

Intitulé

Propriétés magnétiques et électroniques « spintronique » des matériaux magnétiques.

Devant le jury d'examen composé de :

M ^r ZIANE Abdelhamid	Professeur ; UMMTO	Président
M ^r BELKHIR Abderrahmane	Maitre de Conf ; UMMTO	Rapporteur
M ^r TAMINE Mokrane	Professeur; UMMTO	Examinateur
M ^r MEGCHICHE El-Hocine	Maitre de conf A; UMMTO	Examinateur
M ^r SADAOUI Youcef	Maitre de conf A; UMMTO	Examinateur

Soutenu le: 11/12/2012

Remerciements

Je remercie vivement Monsieur Abderrahmane BELKHIR d'avoir accepté de diriger mon mémoire de Magister. Sa disponibilité, sa sollicitude à mon égard et ses conseils constructifs m'ont été d'une grande utilité pour la réalisation de ce mémoire de Magister.

Que le professeur Mokrane TAMINE trouve ici l'expression de ma profonde gratitude pour avoir répondu présent à mes sollicitations scientifiques

Que M^{rs} Abdelhamid ZIANE, El-Hocine MEGCHICHE, Youcef SADAOUI qui m'ont fait l'honneur de participer au jury, trouvent ici le témoignage de ma vive reconnaissance.

Mes remerciements chaleureux vont vers l'ensemble des membres d'équipes e recherche du laboratoire de physique et chimie quantique (LPCQ) de l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou et tout particulièrement son directeur Said BOUARAB.

Mes remerciements chaleureux vont également vers les membres de l'équipe de Couches Nano-métriques Formations, Interfaces, Défauts (CONFID) (intégrée dans l'axe structure dynamique et réactions des interfaces de l'Institut de Nano-Sciences de Paris) en l'occurrence :

Monsieur Jean Louis CANTIN, Maître de conférences à l'université Pierre et Marie Curie, qui m'a accueilli au sein de son laboratoire et codiriger ce travail, m'offrant assistance matérielle et scientifique.

Monsieur Jürgen VON BARDELEBEN Directeur de recherche au CNRS pour avoir contribuer à l'aboutissement de ce travail sans ménager aucun effort.

Monsieur Kashayar KHAZEN pour son soutien permanant.

Je ne saurais oublier d'adresser mes vifs remerciements aux autres chercheurs de la même équipe pour leur assistance scientifique.

Que toutes les personnes ayant contribué de près ou de loin à la réalisation de ce présent travail soient assurées de ma profonde considération.

Dédicaces

Je voudrais dédier ce travail à ma mère, ma sœur, mon frère, mon père, et mon mari, et à toutes les personnes qui m'aiment, elles se reconnaitront.

Table des matières

Introduction	01
Chapitre 1 : L'électronique de spin ou spintronique	04
1.1 Débuts et concepts fondamentaux de la spintronique	04
1.1.1 Historique	04
1.1.2 Fondement de la spintronique	07
1.1.2.1 L'asymétrie de spin des porteurs du courant	07
1.1.2.2 L'approximation de Mott	07
1.1.2.3 La diffusion dépendant du spin	07
1.1.2.4 L'accumulation de spin	80
1.1.3 Origine de la conduction électrique polarisée en spin qu'exploite	80
l'électronique de spin	
1.1.4 Définition de la spintronique	09
1.1.5 Le concept de la spintronique	09
1.2 Une application actuelle de la spintronique : La MRG	10
1.2.1 La découverte de la magnétorésistance géante (MRG)	11
1.2.2 Principe de la magnétorésistance géante (MRG)	11
1.2.3 Exemple d'utilisation de la MRG	13
1.2.4 La spintronique avec semi-conducteur dilué et métal ferromagnétique	14
Chapitre 2 : La résonance Ferromagnétique (RFM)	16
2.1 Principe de la RFM	16
2.1.1 Interaction Zeeman	17
2.1.2 Champ démagnétisant	18
2.1.3 L'anisotropie magnéto-cristalline	18
2.2 Equation du mouvement de l'aimantation	19
2.2.1 Equation Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG)	19
2.2.2 Densité d'énergie libre	20
2.2.3 Calcul de la fréquence de résonance ferromagnétique	22
2.3 Dispositif expérimental	24

Chapitre 3 : Présentation des échantillons	
3.1 Semi-conducteur magnétique Dilué Ga _{1-x} Mn _x As	27
3.1.1 Structure cristallographique	28
3.1.2 Condition de croissance	28
3.1.3 Configuration électronique de l'ion Mn	29
3.1.4 Origine du ferromagnétisme	30
3.1.5 Structure de bande	32
3.1.5.1 Hamiltonien de Kohn -Luttinger	32
3.1.5.2 Hamiltonien d'échange	32
3.1.5.3 Hamiltonien de contrainte	34
3.1.6 Anisotropie magnétique	34
3.2 Alliage Co _x Fe _{1-x}	35
3.2.1 Généralités sur les métaux de transition (Cobalt, Fer)	36
3.2.2 Structure électronique de l'alliage ferromagnétique Cobalt-Fer	36
3.2.3 Origine du magnétisme dans lesmétaux de transition Cobalt Fer	38
3.2.4 Quelques aspects magnétiques du Co et du Fe	40
3.2.5 Magnétisme des couches magnétiques ultra-minces	40
3.2.5.1 Effet de surface	41
3.2.5.2 Effet d'interface	41
3.2.6 Courbe de Slater Pauling	42
Chapitre 4 : Résultats et Discussions	44
4.1 L'effet des contraintes sur l'anisotropie magnétique de Ga _{1-x} Mn _x As	44
4.1.1 Mesure SQUID	44
4.1.2 Mesures de résonance ferromagnétique	47
4.1.3 Surfaces d'énergie	56
4.2 L'effet des anisotropies de surface/interfaces : Le cas du Co_xFe_{1-x}	58
4.2.1 Mesure SQUID	59
4.2.2 Mesures de résonance ferromagnétique	60
Conclusion	67
Références Bibliographiques	69

Table des Figures

1. 1: Le tube a rayon cathodique utilise par Joseph John Thomson pour la découverte de l'électron	04
1. 2 : Expérience de Stern et Gerlach	05
1. 3 : a) Spin up. b) Spin down	06
 4: Structure de bande: d'un matériau non magnétique (Cr) et d'un matériau ferromagnétique (Ni) 5: Concept de la spintronique 	08
1. 6 : Aimantations des couches de fer opposées	11
1. 7 : Aimantations des couches de fer parallèle	12
 8 : (a) Empilement des couches magnétiques (fer) et non magnétiques (chrome), (b) Le rapport de résistance en fonction du champ magnétique 	13
1. 9 : Évolution de la densité d'information stockée par pouce carré sur les disques	14
durs d'ordinateur	
 2. 1: (a) Rotation de l'aimantation excitée par micro ondes autour du champ effectif,(b) Mouvement précessionnel de l'aimantation autour du champ effectif 2. 2: Système de coordonnées utilisé en RFM, pour décrire l'orientation de 	20
l'aimantation M et du champ magnétique extérieur H [18].	
(a)Rotation dans le plan avec $\theta_H = \theta = 90^\circ$	
(b) Rotation en dehors du plan avec $\phi_H = \phi = 45^\circ$ 2. 3 : Spectres typiques d'absorption (courbe du haut) et de la dérivée première de	25
l'absorption (courbe du bas) obtenus à fréquence fixe et en faisant fluctuer le champ	
magnétique statique externe	
2. 4 : Dispositif expérimental	26
3. 1 : Structure cristallographique du GaMnAs	28
3. 2 : Diagramme de phase de la qualité cristalline du (Ga,Mn)As en fonction des	29
paramètres de croissance (T _{substrat} , x _{Mn})	
3. 3: Présentation de deux interactions: une interaction directe	31
antiferromagnétique entre les trous itinérants et les moments magnétiques Mn	
localisés et une interaction indirecte ferromagnétique entre les moments	
magnétiques Mn résultant de leur couplage aux trous	

3. 4: Champ moyen du champ d'anisotropie en fonction de la déformation bi-	33
axiale ε_{xx} , pour une couche de $Ga_{0,95}Mn_{0,05}As$	
3. 5 : Représentation schématique du diagramme d'énergie d'un alliage FeCo	36
3.6 : Densité d'états majoritaire dans les alliages bcc Fe _x Co _{1-x} désordonnés. (a) DOS	37
totale ; (b) LDOS sur un site de Fe ; (c) LDOS sur un site de Co	
3. 7 : Densité d'états minoritaire dans les alliages bcc FexCo1-x désordonnés (a) DOS	37
totale ; (b) LDOS sur un site de Fe ; (c) LDOS sur un site de Co	
3. 8 : Courbe de Slater-Pauling représentant la variation du moment atomique	42
moyen en fonction de la concentration en Co pour les alliages Fe_xCo_{1-x}	
3. 9 : Évolution des moments magnétiques portés par les atomes de fer et de cobalt	43
en fonction de la composition de l'alliage Fe _x Co _{1-x}	
4. 1 : Principe du magnétomètre à SQUID	45
4. 2 : Courbe d'aimantation à saturation du $Ga_{0.93}Mn_{0.07}$ As en fonction de la	46
température, obtenue par SQUID	
4. 3 : Cycle d'hystérésis mesuré en effet Kerr	47
4. 4 : Spectres RFM en configuration dans le plan d'un film de $Ga_{0.93}Mn_{0.07}As/GaInAs$ mesuré à 60K en bande X	48
4. 5 : Spectres de RFM mesurés en bande Q de $Ga_{0.93}Mn_{0.07}As/GaInAs$ en configuration hors du plan à $60K$	48
4. 6 : Spectre RFM du Ga _{0.93} Mn _{0.07} As en fonction de la température	49
4. 7 : Variations angulaires des champs de résonances du $Ga_{0.93}Mn_{0.07}As/GalnAs$, à	50
20K pour une configuration (a) dans le plan et (b) hors du plan	
4. 8 : Simulation de la variation angulaire pour déduire la meilleure valeur du facteur	51
de Landé g. a) g=1.97. b) g=2	
4. 9 : Variation des champs d'anisotropie $H_{2\perp}$, $H_{2/\!\!/}$, $H_{4\perp}$ et $H_{4/\!\!/}$ en fonction de la	53
température pour Ga _{0.93} Mn _{0.07} As/GalnAs	
4.10: Variation des quatre constantes d'anisotropie	53
${\rm magn\'etocristalline}K_{2\perp}$, $K_{2/\!\!/}$, $K_{4\perp}$ et $K_{4/\!\!/}$ (Avec $H_i=2K_i/M$) en fonction de la	
température pour Ga _{0.93} Mn _{0.07} As/GalnAs	
4. 11 : Surfaces d'énergie libre	57

4. 12 : Courbe d'aimantation à saturation du $Co_{0.7}Fe_{0.3}/GaAs$ en fonction de la	59
température obtenue par SQUID	
4. 13 : Cycle d'hystérésis du Co _{0·7} Fe _{0.3} /GaAs à 5K	60
4. 14 : Spectres RFM du ${\rm Co_{0.7}Fe_{0.3}}$ de 20nm en configuration dans le plan mesuré à	61
20K en bande X	
4. 15 : RFM du Co _{0.7} Fe _{0.3} de 20nm fonction de la température	61
4. 16 : RFM du Co _{0.7} Fe _{0.3} de 20nm fonction de la température	62
4.17 : Variation des quatre constantes d'anisotropie magnétocristalline $K_{2\perp}$, $K_{2/\!/}$, K_4	62
du Co _{0.7} Fe _{0.3} de 20nm en fonction de la température	
4.18 : Constante d'anisotropie $K_{2\perp}$ en fonction de l'inverse de l'épaisseur à 20K	63
4. 19 : constante d'anisotropie $K_{2/\!/}$ en fonction de l'inverse de l'épaisseur à 20K	63
4. 20 : Constante d'anisotropie $K_{4\perp}$ en fonction de l'inverse de l'épaisseur à 20K	64

Tableaux

- 2. 1 : Moments magnétiques μ $_{\text{B}}/\text{atome}$ de volume et de surface de certains métaux de transition 3d
- 4. 1 : Température de Curie et aimantation à saturation à 4 K du $Ga_{0.93}Mn_{0.07}$ As
- 4. 2 : récapitulatif des résultats obtenus pour $Ga_{0.93}Mn_{0.07}As/GalnAs$ comparé à ceux obtenus par *Kh. Khazen et al* [6]
- 4. 3 : Récapitulatif des résultats obtenus pour le Co0.7Fe0.3/GaAs comparé à ceux obtenus par *Kh.Zakeri et al [5]*

Introduction

De nos jours, les dispositifs de stockage et de traitement de l'information sont courants et font partie de notre quotidien. L'électronique de la technologie mise en jeu est basée sur le transport des porteurs de charge dans les semi-conducteurs. L'un des défis actuels de la science et de la technologie est d'améliorer ces dispositifs en termes de puissance de calcul et de stockage de l'information.

L'amélioration de la puissance des systèmes électroniques passe par une miniaturisation des composants les constituants. Cette miniaturisation constitue une limitation à laquelle l'industrie du microprocesseur est en train de se heurter. Une grande avancée scientifique peut permettre la réalisation de nouveaux dispositifs pouvant exploiter le spin de l'électron. L'électronique combinée avec le magnétisme donne naissance à la spintronique.

La spintronique (électronique de spin) est née de la découverte de la magnétorésistance géante (MRG) par l'équipe d'Albert Fert [1.2] en 1988 à Orsay. En plus de la manipulation de la charge électrique, base de l'électronique conventionnelle, l'électronique de spin exploite le spin dans le but d'avoir de nouveaux phénomènes et de les exploiter dans de nouveaux composants.

La base de ce domaine de la spintronique est la manipulation de l'orientation de l'aimantation dans des dispositifs par une excitation externe tel qu'un champ magnétique (mémoires magnétiques), un champ électrique, etc. La modification d'aimantation peut être relative entre deux composés dans les structures à multicouches qui fonctionnent par des effets MRG et TMR [3] ou absolue par rapport aux axes cristallins, dans des films magnétiques qui fonctionnent par effet de magnétorésistance anisotrope à effet tunnel (TAMR) [4].

L'aimantation d'un système à l'équilibre est orientée suivant l'axe de facile aimantation. Pour pouvoir manipuler l'aimantation, il faut que le système ait la possibilité de surpasser les barrières d'énergie qui sont liées aux différences d'énergies libres du système selon que son aimantation est alignée suivant différentes orientations cristallographiques.

Une des problématiques est d'arriver à réduire ces barrières afin de minimiser la consommation d'énergie nécessaire à la modification de l'aimantation, ainsi que les champs appliqués pour qu'ils ne perturbent pas le fonctionnement du système. Dans le domaine de la spintronique, les sujets relatifs aux anisotropies magnétiques des films minces ferromagnétiques sont en plein expansion pour la réalisation de dispositifs à base de semiconducteurs ferromagnétiques et de couche ultra minces tels que Fe/GaAs [5], dans lesquels la résistivité électrique dépend de l'orientation relative des aimantations. Les anisotropies sont généralement déterminées par la forme des objets (anisotropie de forme) et par des anisotropies magnétocristalline dépendant des contraintes exercées et de la structure cristalline.

L'objectif de ce travail est d'étudier :

- La grande influence des contraintes sur les propriétés magnétiques de couches de GaMnAs épitaxiés sur GaInAs par la technique de spectroscopie de Résonance Ferromagnétique et comparer les résultats avec ceux obtenus par Kh. Khazen et al.
 [6] sur les mêmes couches de GaMnAs mais épitaxiés sur GaAs.
- Des films d'alliage CoFe d'épaisseur variant de 20 à 3.5nm, déposés sur un substrat de GaAs, pour déterminer l'effet d'interface sur l'anisotropie magnétique Nous avons scindé notre travail en quatre chapitres:

Le premier chapitre est consacré à la présentation de l'historique et les concepts fondamentaux de la spintronique.

Dans le second chapitre, les principaux concepts et le dispositif expérimental de la spectroscopie de résonance ferromagnétique (RFM) sont introduits. La technique RFM est une technique de choix pour l'étude des anisotropies magnétiques. Elle a bien fait ses preuves et a montré sa puissance pour l'étude des systèmes magnétiques métalliques massifs que nous avons utilisés dans deux régimes particuliers. Le premier concerne les systèmes semi-conducteurs ferromagnétiques dilués et le second est celui des films métalliques ultra minces.

Le troisième chapitre donne un aperçu des deux types d'échantillons étudiés qui sont GaMnAs et CoFe.

Et enfin, le dernier chapitre est consacré à la présentation et à la discussion des résultats obtenus.

Chapitre 2 : La Résonance Ferromagnétique (RFM)

La technique de résonance ferromagnétique (RFM) est une technique très ancienne. Elle est la plus utilisée pour la détection de la dynamique de l'aimantation dans les couches minces ferromagnétiques. La RFM est une technique spectroscopique dont la méthode classique de détection est fondée sur le principe de l'absorption d'une onde électromagnétique dans une cavité résonante. En faisant balayer le champ magnétique extérieur, on modifie l'énergie magnétique du système et on observe une série de raies de résonance correspondant aux énergies propres de la dynamique de l'aimantation. Le spectre de RFM contient une information très riche. Il nous renseigne sur la nature des interactions magnétiques dominant la dynamique de l'aimantation et sur les propriétés dissipatives du système magnétique [14].

On peut définir la technique de résonance ferromagnétique comme étant la technique qui s'intéresse à la séparation des niveaux d'énergie d'un système de spin sous l'effet d'un champ magnétique statique H_0 . Cette séparation en énergie ($\Delta E = \hbar \omega_0 = \hbar \gamma H_0$) est caractérisée par l'absorption résonnante par le système de spin d'un petit champ haute fréquence $\hbar \psi$) lorsque la condition de résonance $_0 = \omega$ est satisfaite. On parle donc de Résonance Ferromagnétique (RFM) lorsqu'on étudie un système ferromagnétique en dessous de sa température de Curie c'est-à-dire un système de spins couplés entre eux par une interaction d'échange [14].

Dans ce second chapitre, on donnera quelques aspects théoriques mis en jeu pour l'étude d'un système par résonance ferromagnétique. Par la suite, on présentera le dispositif expérimental utilisé pour nos mesures.

2.1 Principe de la RFM

L'effet Zeeman représente l'interaction entre un champ appliqué et un ensemble de moments magnétiques indépendants tendant à s'orienter dans celui-ci. Il peut être décrit en

considérant le modèle classique des moments magnétiques qui auront un mouvement de précession autour du champ appliqué. En appliquant un petit champ oscillant à la fréquence de précession de Larmor et perpendiculairement au champ appliqué, le moment magnétique va accroître l'amplitude de sa précession ; il se produit une résonance.

Pour un solide ferromagnétique, un fort couplage existe entre les différents électrons. Il se manifeste par l'apparition, sans champ magnétique extérieur, d'une différence de population entre les états de spins haut et bas. En général, cette énergie est bien plus intense que l'énergie Zeeman, l'interaction d'échange assure fort couplage des moments magnétiques. En présence d'un champ appliqué, c'est l'aimantation totale de l'échantillon de matière ferromagnétique qui va présenter un mouvement de précession.

Le comportement de l'aimantation peut être modifié par d'autres interactions magnétiques comme l'anisotropie magnétocristalline ou encore le champ démagnétisant. A priori, on peut remonter à ces grandeurs par la mesure de la résonance. Il est possible d'étudier la distribution des champs internes du matériau grâce à l'étude de la résonance ferromagnétique.

2.1.1Interaction Zeeman

L'énergie Zeeman, tendant à aligner l'aimantation du matériau avec le champ extérieur, représente l'interaction entre cette aimantation M et le champ appliqué H_{ext}:

$$E_z = -MH\cos\varphi. \tag{2.1}$$

 φ représente l'angle que fait le champ appliqué H avec la direction de l'aimantation M.

2.1.2 Champ démagnétisant

Lorsque la seule source du champ magnétique H est une distribution connue d'aimantation, on le désigne par champ démagnétisant (H_d). Ce champ H_d est opposé généralement à l'aimantation. Sa projection sur la direction de l'aimantation est opposée à cette dernière. Dans une expérience de résonance, le champ démagnétisant est de sens contraire par rapport au champ externe appliqué. Les facteurs de forme des matériaux ferromagnétiques affectent les conditions de résonance.

2.1.3 L'anisotropie magnéto-cristalline

Les matériaux cristallisés magnétiquement homogènes sont à aimantation s'orientant préférentiellement selon certaines directions cristallographiques et minimisant l'énergie magnétocristalline. L'asymétrie du recouvrement des distributions électronique des ions voisins est un mécanisme d'anisotropie magnétocristalline. La distribution des charges n'est pas sphérique à cause de l'interaction spin-orbite [15]. L'asymétrie est liée à la direction du spin. De plus, une rotation des directions des spins par rapport aux axes cristallins change les énergies d'échange et d'interaction électrostatique des distributions de charges sur les paires d'atomes. Ces effets donnent lieu à une énergie d'anisotropie magnétocristalline.

On peut décrire l'anisotropie magnéto-cristalline en considérant que l'énergie ne dépend que de l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes cristallins. L'énergie d'anisotropie d'un échantillon cristallin aimanté dans une direction repérée par les cosinus directeurs α_1 , α_2 , α_3 rapportés aux arêtes d'un cube, est exprimée en utilisant un polynôme dépendant de la symétrie du matériau étudié. Dans le cas de nos échantillons de symétrie cubique : $F_K = K_1 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2 + ...$

L'énergie et les constantes K_i (i=1,2,...) sont en erg par cm₃. Les directions cristallographiques selon lesquelles cette énergie est minimale sont les directions de facile aimantation.

2.2 Equation du mouvement de l'aimantation

Dans cette partie, nous allons introduire le modèle dynamique proposé par Landau et

Lifshitz en 1935 pour décrire l'évolution temporelle de l'aimantation sous l'action d'un petit

champ micro-onde. Et après l'introduction de la densité d'énergie libre F, nous calculerons la

fréquence de résonance pour un système à anisotropie cubique uni-axiale.

2.2.1 Equation Landau-Lifshitz-Gilbert

La dynamique de l'aimantation M est régie par l'équation du mouvement établie par

Landau et Lifshitz, combinée avec un terme d'amortissement introduit par Gilbert. Cette

équation est connue sous le nom d'équation Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) [16]:

 $\frac{1}{\gamma} \frac{\partial \overrightarrow{M}}{\partial t} = -\left[\overrightarrow{M} \times \overrightarrow{H}_{eff} \right] + \frac{\alpha}{\gamma M_s} \left(\overrightarrow{M} \times \frac{\partial \overrightarrow{M}}{\partial t} \right). \tag{2.2}$

Le premier terme à droite dénote le couple de précession. Le deuxième est le terme

d'amortissement de Gilbert décrivant le processus de relaxation de l'aimantation.

 $\gamma = g \mu_{\rm B} / \hbar$ représente le rapport gyromagnétique et g le facteur de Landé.

H_{eff}: Champ effectif.

μ_B: Magnéton de Bohr.

M_s: Aimantation à saturation que l'on a mesurée par SQUID.

19

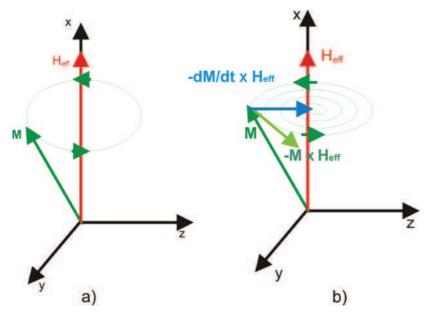


Figure 2. 1 : a) Rotation de l'aimantation excitée par micro ondes autour du champ effectif, b) Mouvement précessionnel de l'aimantation autour du champ effectif.

Le champ effectif est la somme de trois contributions qui sont celles du champ magnétique appliqué H, du champ démagnétisant H_d ainsi que celle des champs internes associés aux énergies d'anisotropie magnéto cristalline. Ce champ H_{eff} peut être lié à l'énergie libre F du système par :

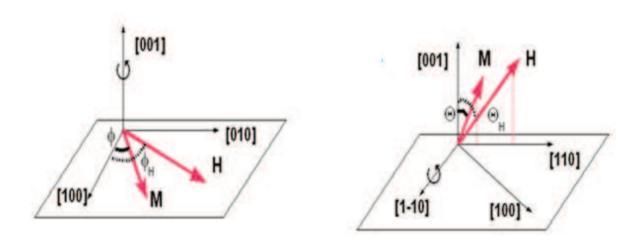
$$\partial F = \overrightarrow{H}_{eff} . \partial \overrightarrow{M}.$$
 (2. 3)

2.2.2 Densité d'énergie libre

Pour les structures cristallines blende-zinc $Ga_{1-x}Mn_xAs$ et l'alliage $Co_{1-x}Fe_x$, la densité d'énergie libre est décrite comme donnée dans la référence [17].

$$F = \frac{1}{2}M \left[-2H[\cos\theta\cos\theta_H + \sin\theta\sin\theta_H\cos(\phi - \phi_H)] + 4\pi M \cos^2\theta - H_{2\perp}\cos^2\theta - \frac{1}{2}H_{4\perp}\cos^4\theta - \frac{1}{2}H_{4\parallel}\frac{1}{4}(3 + \cos 4\phi)\sin^4\theta - H_{4\parallel}\sin^2\theta\sin^2\left(\phi - \frac{\pi}{4}\right) \right].$$
 (2. 4)

Le premier terme de cette dernière équation représente l'énergie Zeeman, le second décrit l'énergie de démagnétisation (anisotropie de forme), et les autres termes représentent l'énergie d'anisotropie magnétique (énergie d'anisotropie cubique et énergie d'anisotropie uni-axiale). $K_2 \perp$ et $H_4 \perp$, apparaissant dans ces termes, décrivent les champs d'anisotropie perpendiculaire uni-axiale et cubique respectivement. $H_{2//}$ et $H_{4//}$ sont respectivement les champs d'anisotropie uni-axiale et cubique dans le plan.Les angles polaire et azimutal, θ , θ_H et φ , φ_H de l'aimantation et du champ appliqué sont définis par rapport aux orientations [001] et [100] respectivement. (Voir figure 2.2).



(a) (b) Fig 2.2 : Système de coordonnées utilisé (M, pour décrire l'orientation de l'aimantation M et du champ magnétique extérieur H [18].

- (a)Rotation dans le plan avec $\theta_H = \theta = 90^\circ$,
- (b) Rotation en dehors du plan avec $\phi_H = \phi = 45^\circ$.

Les champs d'anisotropies H_i sont liés aux constantes d'anisotropies magnétocristallines K_i par : H_i =2 K_i /M.

 $K_2 \perp$ et $K_{2//}$ sont les constantes d'anisotropie bi-axiales, elles représentent la différence d'énergie du système d'aimantation perpendiculaire et parallèle au plan du film. Son origine

est due à l'existence de la contrainte bi-axiale résultant de l'inadéquation de réseau entre le film et le substrat.

 $K_2 \perp$: sera de signe opposé, suivant que les contraintes soient en compression ou en extension. Dans le cas des films minces, elle représente la plus grande contribution de l'énergie d'anisotropie contenue dans l'énergie libre du système. $K_2 \perp$ est lié à l'anisotropie de forme à travers ce terme $(4\,\pi\,\text{M})$ - $(2\,K_2 \perp /\text{M})$ = $4\,\pi\,\text{M}_{\text{effective}}$ qui joue un rôle crucial dans la réorientation de l'aimantation ce qui montre l'importance de cette constante.

 $K_{2//}$ est une constante d'anisotropie dans le plan (dans une structure blende-zinc, les directions [110] et [1-10] ne sont pas équivalentes).

 $K_4\perp$ et $K_{4//}$ dénotent respectivement les constantes d'anisotropie cubique perpendiculaire et dans le plan. Dans le cas d'un système cubique, les directions [100] et [110] de la matrice sont identiques, alors qu'en présence de déformations bi-axiales (cas d'un de nos échantillons $Ga_{1-x}Mn_xAs$), les deux constantes sont différentes [19].

2.2.3 Calcul de la fréquence de résonance ferromagnétique

Les spectres RFM sont analysés à l'aide du formalisme de Smit-Beljers [17.19] reliant les champs de résonance mesurés à la densité d'énergie libre F du système et cela en négligeant les effets d'amortissement. La précession du moment magnétique total avec l'énergie libre F se produit à une fréquence $f = \omega / 2\pi$:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{1}{M_s^2 \sin^2 \theta} \left[\frac{\partial^2 F}{\partial \theta^2} \frac{\partial^2 F}{\partial \phi^2} - \left(\frac{\partial^2 F}{\partial \theta \partial \phi}\right)^2 \right]. \tag{2.5}$$

avec ω représente la pulsation du champ micro-onde.

Les angles d'équilibre θ_{eq} et φ_{eq} de l'aimantation sont déterminés à partir les premières dérivées de F suivantes:

$$F_{\theta} = \frac{\partial F}{\partial \theta}\Big|_{eq} = 0,$$

$$F_{\phi} = \frac{\partial F}{\partial \phi}\Big|_{eq} = 0.$$
(2.6)

Pour remonter aux constantes, on effectue les variations angulaires du champ magnétique dans le plan de l'échantillon et perpendiculairement. En tenant compte l'équation de Smit-Beljers (2. 5) et de celle régissant la densité d'énergie libre (2.4), la valeur du champ de résonance H_{res} peut être déduite des équations suivantes:

Pour une variation angulaire dans le plan (Φ=Φ_H=45)

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left\{H_{res}(\theta_{H} - \theta) + \left(-4\pi M + H_{2\perp} + \frac{H_{4\perp}}{2} - \frac{H_{4\parallel}}{4}\right)\cos 2\theta + \left(\frac{H_{4\perp}}{2} + \frac{H_{4\parallel}}{4}\right)\cos 4\theta\right\} \times \left\{H_{res}\cos(\theta_{H} - \theta) + \left(-4\pi M + H_{2\perp} + \frac{H_{4\parallel}}{2}\right)\cos^{2}\theta + \left(H_{4\perp} + \frac{H_{4\parallel}}{2}\right)\cos^{4}\theta - H_{4\parallel} - H_{2\parallel}\right\}.$$
(2. 7)

Pour une variation angulaire perpendiculaire au plan ($\theta = \theta_H = 90^\circ$)

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left\{H_{res}\cos(\phi - \phi_{H}) + 4\pi M - H_{2\perp} + H_{4//}\frac{3 + \cos 4\phi}{4} + H_{2//}\sin^{2}\left(\phi - \frac{\pi}{4}\right)\right\} \times \left\{H_{res}\cos(\phi - \phi_{H}) + H_{4//}\cos 4\phi - H_{4//}\cos\left(2\phi - \frac{\pi}{2}\right)\right\}.$$
(2.8)

Dans le cas où le champ magnétique et l'aimantation sont orientés dans l'une des directions des quatre axes de haute symétrie (H // [001], [100], [110] et [1-10]), les équations précédentes (2.7) et (2.8) sont simplifiés selon les formes suivantes:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left(H_{res} - 4\pi M + \frac{2K_{2\perp}}{M} + \frac{2K_{4\perp}}{M}\right) \left(H_{res} - 4\pi M + \frac{2K_{2\perp}}{M} + \frac{2K_{4\perp}}{M} - \frac{2K_{2//}}{M}\right), \quad (2.9)$$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left(H_{res} + \frac{2K_{4//}}{M}\right) \left(H_{res} + 4\pi M - \frac{2K_{2\perp}}{M} + \frac{2K_{4\perp}}{M} + \frac{K_{2//}}{M}\right),\tag{2.10}$$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left(H_{res} - \frac{2K_{4//}}{M} - \frac{2K_{2//}}{M}\right)\left(H_{res} + 4\pi M - \frac{2K_{2//}}{M} + \frac{K_{4//}}{M}\right),\tag{2.11}$$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left(H_{res} - \frac{2K_{4//}}{M} + \frac{2K_{2//}}{M}\right)\left(H_{res} + 4\pi M - \frac{2K_{2\perp}}{M} + \frac{K_{4//}}{M} + \frac{2K_{2//}}{M}\right). \tag{2.12}$$

A partir des équations (2.9), (2.10), (2.11) et (2.12) sont déterminées les quatre constantes d'anisotropie correspondant aux quatre directions de haute symétrie ([001], [100] et [1-10]) respectivement.

2.3 Dispositif expérimental

Pour réaliser des mesures RFM, on colle l'échantillon magnétique sur une tige en Quartz et on l'insère au centre d'une cavité micro-ondes (voir figure 2.4 [20]). Deux ponts micro-ondes (de 9,5 GHz (bande X) et 35 GHz (bande Q)) sont disponibles avec une puissance variable jusqu'à 200 mW. Les cavités micro-ondes sont cylindrique (TE₀₁₁) pour les mesures en Bande Q et rectangulaires (TE₁₀₂) pour la Bande X.

Dans la cavité, l'échantillon est soumis à un champ magnétique continu de manière à créer l'effet Zeeman LE sur les niveaux 3d. Le champ magnétique micro -onde est appliqué perpendiculairement au champ continu. Le moment magnétique total de la couche pressasse alors à la fréquence de Larmor autour de la direction du champ total H_{tot}. Cette précession du moment magnétique est décrite par l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert [7] ou tous les moments magnétiques de la couche sont alignés autour de H_{tot}. A cette fréquence de précession l'onde est absorbée. En pratique, après avoir fixé la fréquence micro-onde, on balaye le champ externe jusqu'à observer l'absorption de l'onde à H_{res}. On effectue des mesures en température variable de 4 à 300 Kelvin. On mesure par la suite le signal RFM en contrôlant l'absorption micro-ondes en fonction du champ magnétique. L'absorption micro-onde est enregistrée à l'aide d'un détecteur à diode.

Dans le but d'améliorer le signal/bruit de l'expérience, la mesure RFM est effectuée en utilisant un champ magnétique modulé à 100 kHz. Par conséquent, le signal RFM mesuré est proportionnel à la première dérivée de la partie imaginaire de la sensibilité ($d\chi^{"}/H$). Le champ de résonance $H_{\rm res}$ est déterminé par le passage à zéro de $d\chi^{"}/H$, et la largeur des raies ΔH (intervalle des champs) entre les extrema de $d\chi^{"}/H$.

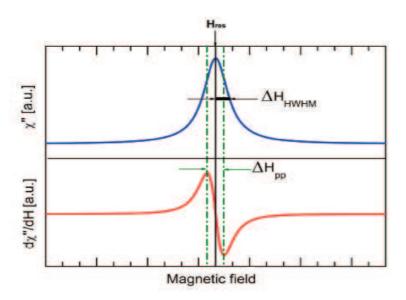


Figure 2. 3 : Spectres typiques d'absorption (courbe du haut) et de la dérivée première de l'absorption (courbe du bas) obtenus à fréquence fixe et en faisant fluctuer le champ magnétique statique externe [21].

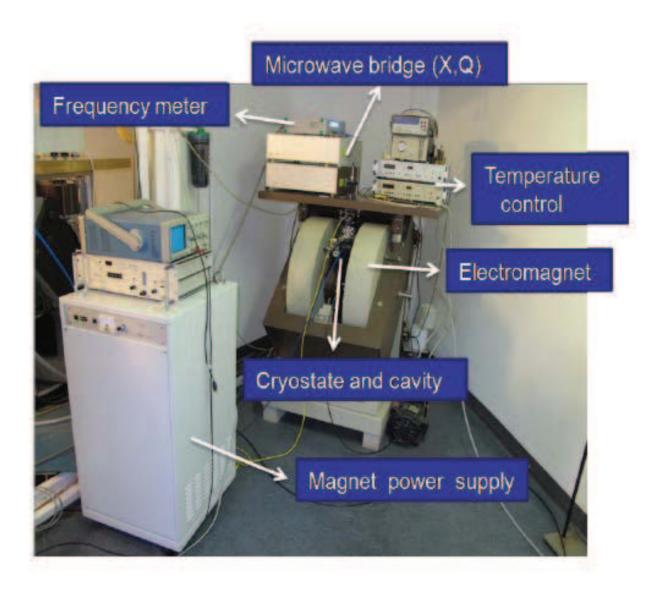


Figure 2. 4 : Dispositif expérimental [20]

En conclusion, dans ce chapitre, nous avons introduit la technique expérimentale de résonance ferromagnétique utilisée dans ce travail. Les aspects théoriques mis en jeu pour l'étude d'un système par résonance ferromagnétique sont présentés.

Chapitre 3 : Présentation des échantillons

Dans ce chapitre on fera une présentation détaillée des propriétés structurales et magnétiques sur chacun des échantillons ($Ga_{1-x}Mn_xAs$ et Co_xFe_{1-x} .). La majorité des informations concernant ces deux échantillons ont été puisées dans les références [22], [23]. [24].

3.1 Semi-conducteurs magnétiques Dilué (DMS) Ga_{1-x}Mn_xAs

En dopant des semi-conducteurs avec des éléments magnétiques on peut créer une nouvelle catégorie de matériaux. Ces derniers sont dit semi-conducteurs magnétiques dilués (DMS) dont la particularité est l'apparition d'une compétition entre les couplages de moments magnétiques et les couples électrons (Mn)-trous. Il y a quelques décennies, l'intérêt des DMS a été suscité par les travaux réalisés sur les semi-conducteurs II-VI [25].

Les semi-conducteurs III-V, en particulier ceux dopés au manganèse, font aujourd'hui l'objet de nombreux travaux et publications. L'arséniure d'indium dopé au Mn fût le premier composé étudié en couche mince. L'existence d'une phase homogène In_{1-x}Mn_xAs ferromagnétique a été rapporté en 1989 par le groupe de H. Ohno [26]. Ce même groupe a montré par la suite en 1992 que le ferromagnétisme était induit par la présence de trous [27]. Après ces résultats intéressants et encourageants, plusieurs chercheurs se sont intéressés à étudier les semi-conducteurs III-V dopés au Mn et particulièrement le composé Ga_{1-x}Mn_xAs. Depuis 1996, plusieurs travaux expérimentaux et théoriques, sanctionnés par de nombreuses publications internationales, sont consacrés à l'étude de Ga_{1-x}Mn_xAs [28].

Notre étude sera consacrée aux semi-conducteurs III-V dilué dopés au manganèse Ga_{1-x}Mn_xAs. On commencera par étudier la structure cristalline, ainsi que la configuration électronique des ions Mn. Puis on s'intéressera à l'origine du ferromagnétisme présent dans ces structures.

3.1.1 Structure cristallographique

La structure de l'arséniure de gallium dopé manganèse (Ga,Mn)As est une structure cristalline de type blende de zinc. Dans cette structure, les atomes de gallium (Ga) ont été remplacés aléatoirement par ceux de manganèse (Mn) [29].

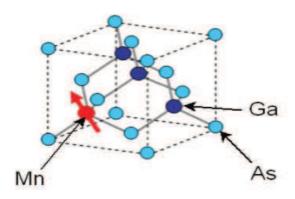


Figure 3. 1: Structure cristallographique du GaMnAs [30].

3.1.2 Condition de croissance

Dans les conditions de croissance de GaAs qui se réalise généralement à une température avoisinant les 600°C, la solubilité de manganèse dans la matrice de GaAs est de 0,1 % uniquement.

Au-delà de cette limite (limite thermodynamique), pour améliorer le dopage il est nécessaire de faire recours à une technique de croissance hors-équilibre comme l'épitaxie par jets moléculaires à basse température (LT-MBE). La figure 3.2 représente le diagramme de phase établi par *H. Ohno* [31], de la qualité cristalline du (Ga,Mn)As en fonction des paramètres de croissance. Ce diagramme montre que la fenêtre de dopage et de température du substrat qui permet de déposer des couches minces de (Ga,Mn)As sans phases magnétique (clusters de MnAs) ni apparition de phase polycristalline est relativement réduite.

Dorénavant, grâce à l'optimisation des paramètres de croissance, il est possible d'incorporer plus de 10 % de manganèse sans précipiter MnAs. Toutefois, cette valeur de dopage ne correspond pas à la concentration effective des atomes de manganèse participant au ferromagnétisme du fait de l'apparition de défauts lors de la croissance [22].

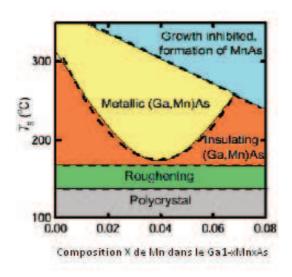


Figure 3. 2 : Diagramme de phase de la qualité cristalline du (Ga,Mn)As en fonction des paramètres de croissance ($T_{substrat}$, X_{Mn}) [31]. Figure tirée de [18].

3.1.3 Configuration électronique de l'ion Mn

Les propriétés électroniques et magnétiques sont fortement dépendantes de la position cristallographique des ions manganèse. Le composé sera ferromagnétique ou non, de type p ou de type n, selon que le manganèse se situe sur les sites des cations (élément III) ou en site interstitiel. Pour les semi-conducteurs III-V de structures zinc-blende ou Wurtzite, Il a été montré que le manganèse substitue les cations [32]. Une partie de ces ions se placent en site interstitiel pour des grandes concentrations (x>5%) de manganèse [33]. Dans la maille de (Ga,Mn)As, tétraèdre dont les sommets sont occupés par des atomes d'arsenic, l'atome de manganèse est incorporé au centre à la place d'un atome de gallium. L'ion Mn²⁺ se trouvant

alors en coordination tétraédrique, est soumis à l'action d'un champ cristallin qui va induire une levée de dégénérescence de ces niveaux 3d formant ainsi deux bandes $e_g (d_z^2, d_{x-y}^2)$ et $t_{2g} (d_{xy}, d_{xz}, d_{yz})$.

En substituant un cation trivalent (Ga^{3+}), l'atome de manganèse de configuration électronique $3d^54s^2$ peut prendre plusieurs configurations électroniques : d^4 , d^5 plus un trou faiblement lié autour du manganèse (d^5+h) et d^5 . Les deux premières configurations sont neutres (notées A^0) alors que la dernière est chargée négativement (notée A^-) [22]. Par des mesures de résonance électronique paramagnétique [34] et de spectroscopie infrarouge, il a été montré que l'état fondamental du manganèse dans la matrice de GaAs correspond à la configuration $A^0(d^5+h)$. Le moment cinétique orbital du manganèse est nul (L=0) et son spin S=5/2 (facteur de Landé g_{Mn} =2). Toutes les orbitales 3d occupées portent un spin orienté dans la même direction et constituent alors le moment local S=5/2 [22].

Des mesures de spectroscopie tunnel et de spectroscopie infrarouge [35] ont montré que l'atome de manganèse constitue un centre accepteur situé à 113 Mev au-dessus du sommet de la bande de valence de GaAs. L'origine de l'énergie de liaison, entre le centre accepteur et le trou, est le potentiel coulombien d'attraction et l'hybridation p-d entre les orbitales de l'atome de manganèse et de son porteur (h). Pour des concentrations en manganèse faibles, la densité de porteurs est insuffisante pour écranter le potentiel coulombien crée par les atomes de manganèse. Il y'a peuplement des états d'impuretés créés autour du centre accepteur et les porteurs de charge restent localisés. Lorsque la concentration en atomes de manganèse augmente (x > 2 %), cette bande d'impuretés fusionne avec le haut de la bande de valence et les porteurs sont localisés. Cela coïncide avec une transition de type métal-isolant [22].

3.1.4 Origines du ferromagnétisme

Les phases ferromagnétiques dans (Ga,Mn)As ont été observées expérimentalement à partir de x_{Mn} = 1% [36].

Deux types d'interactions magnétiques sont à l'origine du ferromagnétisme dans le semiconducteur magnétique dilué (Ga,Mn)As. Ces interactions sont d'une part entre les porteurs délocalisés et les atomes de manganèse, et d'autre part entre les impuretés magnétiques comme représentées sur la figure 3.3 (tirée de [21]).

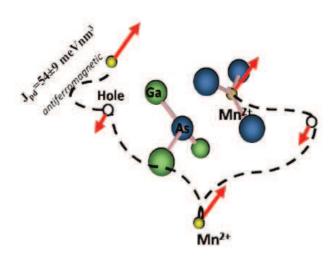


Figure 3. 3 : Présentation de deux interactions: une interaction directe antiferromagnétique entre les trous itinérants et les moments magnétiques Mn localisés et une interaction indirecte ferromagnétique entre les moments magnétiques Mn résultant de leur couplage aux trous [21].

Les mécanismes induisant le ferromagnétisme sont différents selon la concentration des porteurs. Pour une densité de trous élevée, ces trous sont délocalisés et le ferromagnétisme peut être décrit par le modèle de Zener. Dans le cas contraire ou les trous sont localisés ; faibles densités de trous ; le ferromagnétisme est induit par la formation de polarons magnétiques.

Dans les GaMnAs et dans un premier temps, l'origine du ferromagnétisme induit par les porteurs a été expliquée par le mécanisme de double échange. Zener propose qu'un "spin splitting" des bandes est à l'origine de la polarisation des spins localisés et que le couplage d'échange entre ces derniers (les spins localisés) et les porteurs induit une phase ferromagnétique [37]

3.1.5 Structure de bande

Dans la théorie de l'approximation k.p, la structure de bande de (Ga,Mn)As est décrite par un modèle à huit bandes (deux bandes de conduction Γ_6 et six bandes de valence (Γ_7 et Γ_8)). Cette structure de bande est déterminée à partir des énergies et des fonctions propres obtenues par diagonalisation de l'hamiltonien total H_{tot} suivant [22] :

$$H_{tot} = H_{k \cdot p} + H_{echange} + H_{contrainte} + H_{zeeman}. \tag{3.1}$$

Ces quatre contributions représentent respectivement l'hamiltonien k.p de Kohn-Luttinger, d'un terme d'échange, de l'hamiltonien des contraintes et de l'hamiltonien Zeeman.

3.1.5.1 Hamiltonien de Kohn-Luttinger

Sans contrainte et échange, les bandes de trous lourds (j_z = ±3/2) ainsi que celles des trous légers (j_z = ±1/2), formant la bande Γ_8 , sont quatre fois dégénérées au point de haute symétrie Γ de la zone de Brillouin. Elles sont essentiellement composées des orbitales p des arsenics. Le couplage spin-orbite sépare ces dernières de la bande Γ_7 .

3.1.5.2 Hamiltonien d'échange

Les Hamiltoniens d'échange H_{sd} et H_{pd} entre les bandes de conduction et de valence, et les électrons 3d du manganèse sont donnés comme suivant :

$$H_{sd} = -x_{M_n} N_0 \alpha \left\langle \vec{S} \right\rangle \cdot \vec{s}, \tag{3.2}$$

$$H_{pd} = -x_{M_n} N_0 \beta \langle \vec{S} \rangle \cdot \vec{s}. \tag{3.3}$$

On peut également exprimer ces Hamiltoniens en fonction de l'aimantation, ou du paramètre $B_{\scriptscriptstyle G}$ en utilisant :

$$\overrightarrow{M} = x_{M_n} N_0 g_{M_n} \mu_{\beta} \overrightarrow{S},$$

$$B_G = \frac{\beta M}{6g \mu_{\beta}}.$$
(3.4)

Pour les couches étudiées dans ce travail, B_G est de l'ordre de 20 meV.

Pour l'heure, il n'existe aucune mesure expérimentale de l'interaction d'échange sd dans (Ga,Mn)As, généralement considérée comme ferromagnétique et égale à celle des semi-conducteurs magnétiques II-VI, $N_0\alpha=+0\cdot 2eV$ [38]. L'interaction d'échange pd est considérée proportionnelle au paramètre de maille de la matrice ($\frac{1}{a_0^3}$), l'intégrale β est aussi supposée égale à celle des II-VI. Les différentes techniques expérimentales l'ayant estimée ont donné des mesures étalées en signe et en amplitude.

Dans le cas d'une aimantation parallèle à z et non-nulle, il y a éclatement des niveaux des bandes de valence et de conduction:

$$\Delta E_{c} = x_{M_{n}} N_{0} \alpha \langle S_{z} \rangle \sigma_{z},$$

$$\Delta E_{v} = x_{M_{n}} N_{0} \frac{\beta}{3} \langle S_{z} \rangle j_{z}.$$
(3.5)

La séparation en énergie des trous lourds; $j_z=\pm\frac{3}{2}$; est trois fois plus grande que celle des trous légers($j_z=\frac{1}{2}$)

.

3.1.5.3 Hamiltonien de contrainte

La symétrie cubique du matériau est brisée par la déformation tétragonale de la maille (imposée par le substrat) induisant une lève de dégénérescence entre trous lourds (HH) et légers (LH) d'une quantité $2bQ_{\varepsilon}$. Dans cette dernière formule b représente le coefficient de déformation. En négligeant la déformation hydrostatique, on peut exprimer Q_{ε} en fonction des déformations ε_{ij} et des constantes élastiques C_{ij} :

:

$$Q_{\varepsilon} = \varepsilon_{zz} - \frac{\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}}{2} = \varepsilon_{xx} \left[1 - 2 \frac{C_{12}}{C_{11}} \right]. \tag{3.6}$$

Le signe de la contrainte épitaxiale a une conséquence directe sur la position relative des bandes de trous lourds et légers en $\vec{k}=\vec{0}$: elle est inversée pour une couche en compression (en tension). En l'absence d'échange et présence des contraintes épitaxiales, l'éclatement des bandes HH/LH au point Γ de la zone de Brillouin est de 20 meV environ.

3.1.6 Anisotropie magnétique

Comme on vient de le voir, la répartition électronique de l'ion manganèse est relativement isotrope puisque sa configuration électronique est en d⁵ et son moment cinétique est uniquement dû au moment intrinsèque de spin (S = 5/2). L'effet du champ cristallin sur l'orientation des spins des manganèses n'est que secondaire et il n'est pas à l'origine de l'anisotropie magnétique de GaMnAs.

L'anisotropie magnétique de GaMnAs est déterminée par l'anisotropie des porteurs. L'anisotropie magnétique du Ga_{1-X}Mn_xAs dépend de plusieurs paramètres tels que les contraintes et la densité de porteurs. L'effet de ces paramètres sur cette anisotropie magnétique a été étudié théoriquement (*Dietl et al.* [39] *Abolfarth et al.* [40]). L'axe de facile aimantation est soit dans le plan ou hors du plan suivant que la couche ferromagnétique est en compression ou en tension. Les résultats de *Shen et al.* [41] ont montré qu'une couche de Ga_{1-X}Mn_xAs présente un axe de facile aimantation dans le plan de la couche si elle est déposée sur un substrat GaAs et hors du plan si elle est déposée sur (Ga,In)As.

Le substrat (Ga,In)As utilisé crée une déformation tétragonale de la maille de (Ga,Mn)As impliquant une brisure de la symétrie cubique.

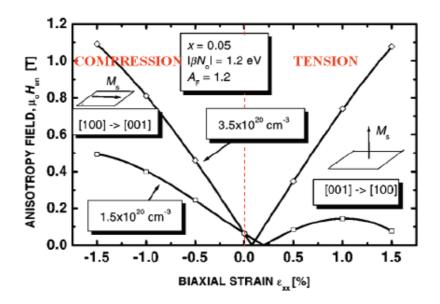


Figure 3. 4 : Champ moyen du champ d'anisotropie en fonction de la déformation bi-axiale \mathcal{E}_{xx} , pour une couche de $Ga_{0,95}Mn_{0,05}As$ d'après *Dietl et al [39]*..

Le champ d'anisotropie en fonction de la déformation bi-axiale ε_{xx} est représenté sur la figure 3.4. Le symbole [100] \rightarrow [001] indique que l'axe facile est selon [100], et que le champ est appliqué selon [001]. Pour un dopage élevé, l'axe de facile aimantation est dans le plan pour une couche en compression et est perpendiculaire au plan pour une couche en tension.

3.2 Alliage Co_XFe_{1-X}

Avant d'effectuer les mesures magnétiques sur le second échantillon Co_xFe_{1-X} , nous avons jugé utile de faire un rappel sur les notions de bases et importantes du magnétisme de surface des atomes de fer (Fe) et de cobalt (Co). Le but de cette étude est d'approfondir les connaissances fondamentales des propriétés magnétiques des métaux de transition 3d sous forme de couche mince par la mesure de l'énergie d'anisotropie magnéto cristalline. Des mesures d'anisotropie magnétique sur des films minces ont déjà été réalisées sur le Fe

épitaxié sur GaAs [5]. Dans ce travail, des mesures seront faites sur une couche mince Co_XFe_{1-X} épitaxié sur GaAs. Les résultats de cette étude seront comparées à ceux obtenus en référence [5] dans le cas du Fe/GaAs.

3.2.1 Généralités sur les métaux de transition (Cobalt, Fer)

Les métaux de transition sont caractérisés par une bande d étroite (quelques eV) de densité d'états très élevée, chevauchant la bade s de faible densité d'état. Dans cette dernière, les électrons sont étendus dans l'espace et sont bien décrits par le modèle d'électrons presque libres. La masse effective de ces électrons est proche de la masse intrinsèque de l'électron. Quant aux électrons de la bande d qui sont relativement localisés ; de masse effective plus grande ; sont mieux décrits par approximation de liaisons fortes.

3.2.2 Structure électronique de l'alliage ferromagnétique Cobalt-fer

Le diagramme d'énergie d'un alliage peut être représenté très schématiquement en considérant que les niveaux atomiques correspondant à chaque élément sont hybridés, à l'instar d'une molécule diatomique (figure 3.5) [23] L'exemple du Fe-Co est donné sur la figure 3.6 [23].

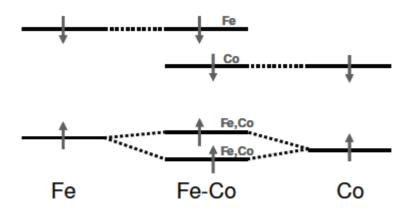


Figure 3. 5 : Représentation schématique du diagramme d'énergie d'un alliage FeCo [23].

On constate que sur la figure 3.5, les niveaux discrets marquent le centre des bandes d. Par l'interaction d'échange, ces niveaux discrets sont scindés en deux sous-niveaux $d\uparrow$ et $d\downarrow$. On constate que dans le cas du Fe, le décalage est plus grand que dans le cas du Co. Cette différence est due à la différence des valeurs de moments magnétiques qui est de 2.15 μ_B /atome dans le cas du Fe et de de 1.65 μ_B /atome dans le cas du Co.

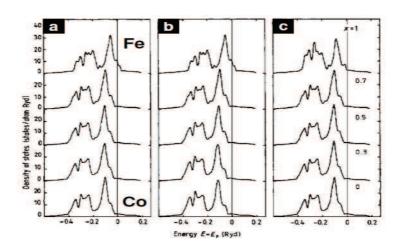


Figure 3.6: Densité d'états majoritaire dans les alliages bcc Fe_xCo_{1-x} désordonnés (calcul LCAO-CPA d'après [42]). (a) DOS totale ; (b) LDOS sur un site de Fe ; (c) LDOS sur un site de Co. Figure tirée[23].

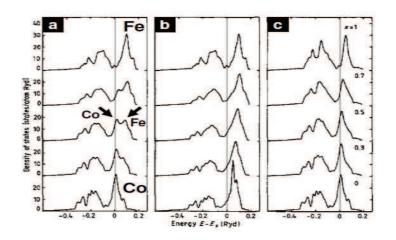


Figure 3. 7 : Densité d'états minoritaire dans les alliages bcc FexCo1-x désordonnés (calcul LCAO-CPA d'après [42]). (a) DOS totale ; (b) LDOS sur un site de Fe ; (c) LDOS sur un site de Co Figure tirée [23]..

La figure 3.6 représente la densité d'états majoritaire dans les alliages bcc Fe_xCo_{1-x} désordonnés (calcul LCAO-CPA [42]). Sur cette figure, on remarque que la structure de la DOS ne change presque pas avec la composition de l'alliage, et qu'elle est identique sur les sites de Fe et de Co. L'effet d'ajouter le Co est seulement l'élévation du niveau de Fermi et donc le remplissage graduel de la bande $d\uparrow$. Le remplissage de bande $d\uparrow$ se fait jusqu'à une concentration de Co d'environ 30%...Pour des concentrations de Co supérieures de 30%., uniquement la DOS minoritaire évolue.

La séparation en énergie importante des états minoritaires $dFe \downarrow$ et $dCo \downarrow$ n'autorise quant à elle qu'une très faible hybridation [23]. Les niveaux propres du Fe et du Co sont conservés, ils sont plus ou moins décalés en énergie selon la densité électronique moyenne de l'alliage. La figure 3.7 montre la densité d'états minoritaire dans les alliages bcc FexCo1-x désordonnés. Les résultats de cette figure confirment que sur les deux sites les densités d'état de spin minoritaire sont effectivement différentes.

3.2.3 Origine du magnétisme dans les métaux de transition (Cobalt et Fer)

Le fer et le cobalt sont des métaux de transition 3d qui ont une propriété remarquable d'avoir une aimantation spontanée en absence de champ magnétique à des températures inférieures à la température de Curie (Tc). Ces métaux sont des métaux ferromagnétiques. Lorsque la température diminue, l'aimantation spontanée augmente et atteint une valeur maximale à T=0K.

La susceptibilité magnétique χ est définie par [24]:

 $\chi = M(H \rightarrow 0)/H$

où M(H) dénote l'aimantation crée par le champ magnétique H

Cette susceptibilité magnétique est fortement liée à la température. Elle tend vers l'infinie pour des températures tendant vers la température de Curie. Elle est gouvernée par la loi :

 $\chi = C/(T-T_C)$

avec C représente la constante de Curie du matériau considéré.

A des températures T élevées et supérieures à la température de Curie (T_C), les moments magnétiques ont tendance à être désorientés par l'agitation thermique. Dans ce cas, le matériau devient paramagnétique en perdant son aimantation spontanée.

Une aimantation spontanée ne peut exister que si les moments magnétiques portés par les atomes se mettent collectivement en ordre [24]. Dans le but d'expliquer cette mise en ordre, en 1907 Weiss a fait l'hypothèse de l'existence d'une interaction favorisant l'alignement des moments magnétiques des différents atomes, à laquelle il a donné le nom de champ moléculaire [43]. Ce concept de champ moléculaire, nécessitant de considérer le matériau comme une assemblée de dipôles magnétiques en interaction, a permis à Weiss d'expliquer l'ensemble des caractéristiques essentielles des matériaux ferromagnétiques (aimantation spontanée, transition de phase). La théorie du champ moléculaire a abouti à des valeurs de la température critique plus faibles que les valeurs expérimentales mesurées. C'est grâce à la mécanique quantique que l'origine physique de la mise en ordre des moments magnétiques, s'alignant parallèlement entre eux lorsque le matériau présente une aimantation spontanée, a été donnée.

En effet, *Heisenberg en 1928* a démontré que l'origine de l'interaction induisant cet ordre des moments magnétiques est purement quantique. Le principe d'exclusion de Pauli et la répulsion coulombienne entre électrons sont à l'origine de cette interaction [44].

Les interactions d'échange entre les spins de deux atomes voisins peuvent être modélisée par une énergie d'échange (modèle Heisenberg) : .

$$E_{ij}$$
= $-2J_{ij} S_i S_j$.

E_{ij} : énergie d'échange entre deux atomes voisins repérés par les indices i et j.

 S_i et S_i représentent respectivement les spins de l'atome i et de l'atome j.

 J_{ii} dénote l'intégrale d'échange. Il peut prendre une valeur positive ou une valeur négative.

L'intégrale d'échange J_{ij} est considérée dans ce modèle comme étant isotrope. L'énergie d'échange dépend de l'angle entre les spins S_i et S_j , et non pas de leurs l'orientations rapport aux axes cristallographiques.

3.2.4 Quelques aspects magnétiques du Co et du Fe

Concernant le cas des métaux de transition Fe et Co étudiés dans ce mémoire, le moment magnétique est dû au fait que le nombre d'électrons de spin majoritaire et celui des spins minoritaires peuplant les bandes 3d ne sont pas identiques. Ces bandes sont relativement étroites et ne sont occupées que partiellement. Elles décrivent des états électroniques de Bloch qui sont caractérisés par une hybridation entre les orbitales atomiques de symétrie s, p et d. Une approche phénoménologique du ferromagnétisme montre que la condition d'apparition du ferromagnétisme est définie par la compétition entre [24] :

- le gain d'énergie d'interaction associé au déséquilibre entre les populations des deux types de spins qui occupent les bandes 3d (Principe de Pauli).
- l'accroissement d'énergie cinétique lié au transfert d'électrons depuis les bandes 3d
 ↓ vers les bandes 3d ↑.

3.2.5 Magnétisme des couches magnétiques ultraminces

Pour le cas des couches magnétiques ultraminces, la présence de surfaces et d'interfaces modifie de façon significative et non négligeable le comportement magnétique. Dans le cas des métaux de transition Fe et Co ferromagnétiques, pour lesquels l'aimantation est portée par les électrons d (délocalisés dans le cristal), la présence de surfaces et d'interfaces a un impact important sur les moments magnétiques.

3.2.5.1 Effets de surface

Le nombre de premiers voisins pour un atome situé à la surface est bien inférieur celui dans le cas matériau massif. Ceci a pour conséquence une réorganisation locale de la densité électronique qui s'accompagne d'une diminution de la largeur des bandes d au voisinage de la surface [24].

Le tableau 2.1 [24] compare les moments magnétiques en volume et en surface de certains métaux de transition: le moment est toujours augmenté en surface. Sur ce tableau, on constate que la valeur du moment magnétique est moins important pour les surfaces denses ((110) pour le fer, (111) pour le Co), que pour les surfaces moins compactes (100). Les couches libres ont des moments magnétiques plus élevés que les métaux massifs.

	Cr cc	Fe cc	Co cfc	Ni cfc
surface (100)	2,49	2,98	1,95	0,68
surface (110)		2,65		
surface (111)			1,82	0,63
Volume	0,59	2,15	1,76	0,56

Tableau 2.1: Moments magnétiques (μ_B /atome) de volume et de surface de certains métaux de transition 3d [24].

3.2.5.2 Effets d'interface

Les interfaces ont aussi un effet sur les propriétés magnétiques. Ces effets induits par les interfaces sur le magnétisme des films ultra-minces peuvent avoir trois origines différentes [24]:

 Modification du paramètre de maille : Une variation des paramètres de maille peut être provoquée par les déformations des matériaux. Une contraction de la maille conduit à un élargissement des bandes d (une diminution du moment). Une dilatation de la maille tend par contre à accroître les moments magnétiques dans la couche déposée.

- Stabilisation de phases cristallographiques n'existant pas dans les matériaux massifs: Cas du fer (cc), épitaxié sur Cu (100) sa structure devient cfc (celle du substrat) [45], et les propriétés magnétiques changent.
- Hybridation à l'interface: Les calculs montrent qu'un plan atomique de fer libre est ferromagnétique avec un moment proche de 3 _B/atome [46]. Déposé sur de tungstène (W), la forte hybridation avec W conduit ce plan à devenir antiferromagnétique, avec un moment de 0,93μB/atome.

3.2.6 Courbe de Slater Pauling

Dans ce travail, les échantillons utilisés sont constitués de couches minces limitées par des interfaces fer/cobalt. La proximité des atomes de fer et de cobalt peut conduire à des effets d'alliage et approcher le comportement présenté par la courbe de Slater-Pauling (la figure 3.9) [47] :

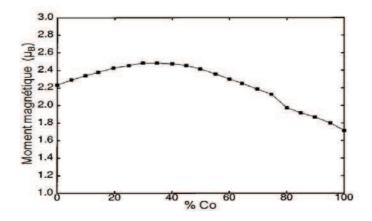


Figure 3. 8: Courbe de Slater-Pauling représentant la variation du moment atomique moyen en fonction de la concentration en Co pour les alliages Fe_xCo_{1-x} [47].

L'alliage Fe_xCo_{1-x} présente un moment magnétique qui augmente en fonction de la concentration en cobalt jusqu'à atteindre 2.45 μ pour une concentration en atomes de Co d'environ 30%. A partir de cette valeur, ce moment magnétique diminue.

Pour expliquer cette évolution non monotone, les variations du moment magnétique de chacune des deux espèces chimiques sont considérées [48]. L'évolution des moments magnétiques portés par les atomes de fer et de cobalt en fonction de la composition de l'alliage Fe_xCo_{1-x} est montrée sur la figure 3.9 [48].

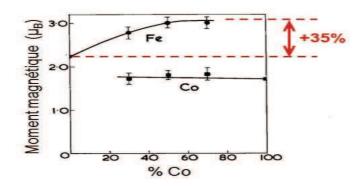


Figure 3. 9 : Evolution des moments magnétiques portés par les atomes de fer et de cobalt en fonction de la composition de l'alliage $Fe_xCo_{1-x} \, [48].$

Pour les atomes de fer, le moment magnétique augmente continuellement avec la concentration en cobalt (Sa valeur est presque de $3\mu_B$ pour une concentration en cobalt de 50%). Quant aux atomes de Co, leur moment magnétique qui est presque indépendant de la composition de l'alliage, reste toujours inférieur à celui des atomes de fer.

En somme ; dans ce travail nous avons considéré deux échantillons différents qui sont le semi-conducteur magnétique dilué le $Ga_{1-x}Mn_xAs$ ainsi que l'alliage Co_xFe_{1-x} . Les propriétés magnétiques et la structure cristallographique de ces deux échantillons,, qu'on va étudier dans le chapitre quatre, sont décrits

Conclusion

Au cours de ce mémoire de magister on a étudié les propriétés magnétiques du semiconducteur magnétique dilué GaMnAs et des couches minces métalliques de CoFe de différentes épaisseurs (variant de 20nm à 3.5nm). Le premier échantillon on l'a obtenu de Laura Thevenard du laboratoire (INSP, université Paris 6), et les couches minces de CoFe ont été préparées par des collaborateurs de l'université de Nottingham (UK). L'anisotropie magnétique de ces systèmes est étudiée en fonction :

- Des contraintes qui résultent du désaccord de maille entre le substrat et les films épitaxiés.
- De l'effet de l'interface qui est la seconde contribution à l'anisotropie.

Dans un premier temps, nous avons donné pour les besoins de cette étude les fondements physiques de la spintronique. Les concepts fondamentaux de l'électronique de spin sont ainsi rappelés (asymétrie de spin des porteurs de courant, approximation de Mott, diffusion dépendant du spin, origine de la conduction polarisée,).

Dans le chapitre 2, nous avons présenté la technique expérimentale de résonance ferromagnétique (RFM), technique expérimentale qui s'intéresse à la séparation des niveaux d'énergie d'un système de spin sous l'effet d'un champ magnétique extérieur. Nous nous sommes intéressés aussi aux aspects théoriques mis en jeu pour l'étude d'un système par résonance ferromagnétique.

Le chapitre trois est dédié à une présentation détaillée des propriétés structurales et magnétiques sur chacun des échantillons candidats ($Ga_{1-x}Mn_xAs$ et Co_xFe_{1-x} .).

Dans le dernier chapitre, nous avons présentés et discuté les principaux résultats que nous avons obtenus. En somme :

L'étude réalisée sur le GaMnAs nous a permis de démontrer que l'anisotropie magnétique est très sensible à la contrainte épitaxiale. Pour le Ga_{0.93}Mn_{0.07} As/GalnAs les contraintes sont en extension. A basse température, nous avons pu montrer par des mesures de résonance ferromagnétique et des calculs des champs d'anisotropie et des

constantes d'anisotropies, que les constantes d'anisotropie uniaxiale perpendiculaire au plan du film $K_{2\perp}$ et le champ d'anisotropie perpendiculaire $H_{2\perp}$ sont de signe positif et leurs contributions sont plus importants que la contribution des autres constantes. Les résultas obtenus par résonance ferromagnétique sont en très bon accord avec ceux obtenus par SQUID.

En comparant nos résultats à ceux obtenus sur le GaMnAs/GaAs [6], on peut conclure qu'il est possible de choisir aisément la direction de l'axe de facile aimantation en jouant sur le substrat utilisé. D'autres substrats, comme GaAs (311) par exemple, permettraient d'avoir une composante de l'aimantation à la fois dans le plan, et en dehors du plan de la couche [59].

Les résultats de mesures de résonance ferromagnétique effectuée sur CoFe/GaAs ont montré que l'anisotropie de volume domine toujours pour des épaisseurs de (20 et 11) nm. Pour des épaisseurs inférieures, il existe une contribution importante à l'anisotropie magnétique due aux propriétés magnétiques de l'interface.

Références Bibliographiques

- [1] A. FERT, "Image de la Physique", 74 (2000).
- [2] A. Fert, J.M. George, H. Jaffrès, R. Mattana et P. Seneor, Europhysics News, 34 (2003).
- [3] A. Barthèlèmy, A. Fert et F. Petroff, "Handbook of Magnetic Materials", K. H. J. BUSCHOW North-Holland, 12, 1 (1999).
- [4] M. Elsen, H. Jaffres, R. Mattana, L. Thevenard, A. Lemaitre et J.M. George, Phys. Rev. B., 76, 144415 (2007).
- [5] Kh. Zakeri, Th. Kebe, J. Lindner et al. Journal of Magnetism and Magnetic Materials 299, (2006).
- [6] Kh. Khazen, J. Von Bardeleben, M. Cubukcu et J. L. Cantin et al., Phys. Rev. B 78, 195210 (2008).
- [7] J. J. Thomson, Philosophical Magazine, 5/44, 293-316 (1897).
- [8] S. A. Goudsmit, J. Phys. France, 28 (1967).
- [9] N. F. Mott, Proc. Roy. Soc., A 153, 699 (1936).
- [10] A. Fert, I. A. Campbell, Phys. Rev. Lett., 21, 1190 (1968).
- [11] B. Loegel et F. Gautier, J. Phys. Chem. Solids, 32, 2723 (1971).
- [12] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, et H. Sowers, Phys. Rev. Lett., 57, 2442 (1986).

- [13] N. M. Baibichet, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau et F. Petroff, Phys. Rev. Lett., 61, 2472 (1988).
- [14] V. Charbois, "Détection mécanique de la résonance ferromagnétique" thèse de doctorat, université Paris 7, 2003.
- [15] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach et W. Zinn, Phys. Rev. B, 39, 4828 (1989).
- [16] H. X. Tang, R. K. Kawakami, D. D. Awschalom et M. L. Roukes, Phys. Rev. Lett., 90, 107201 (2003).
- [17] M. Farle, Report on Progress in Physics, 61,755 (1998).
- [18] L. Thevenard, "Étude des propriétés ferromagnétiques de (Ga,Mn)As au moyen de l'hydrogénation", thèse de doctorat, université Paris 6, 2007.
- [19] M. J. Wilson, M. Zhu, R. C. Myers, D. D. Awschalom, *P. Schiffer, and* N. Samarth, Phys. Rev. B 81, 045319 (2010).
- [20] M. Cubukcu, "Manipulation of magnetic anisotropy in ferromagnetic semiconductors", thèse de doctorat, Paris 6, 2010.

[21] K. KHAZEN, "Ferromagnetic Resonance Investigation of GaMnAs Nanometric Layers", thèse de doctorat, Paris 6, 2008.

- [22] P. Balestriere, "Dynamique de l'aimantation assistée par un champ électrique dans des dispositifs à base de (Ga,Mn)As", thèse de doctorat, Université Paris-sud, 2011.
- [23] F. Bonell, "Analyse du transport dans les jonctions tunnel magnétiques épitaxiées à barrière de MgO(001) par manipulation des interfaces, de la barrière et des électrodes", thèse de doctorat, Université Henri Poincaré, Nancy-Université, 2009.
- [24]R. Serra, "Moments magnétiques et structure électronique au voisinage des interfaces : étude par spectroscopie de pertes d'énergie d'électrons et calculs ab-initio", thèse de doctorat, Université Toulouse III Paul Sabatier, 2009.

- [25] J. Kossut et W. Dobrowolsky, "Handbook of Magnetic Materials". Elsevier Science, North-Holland, 7, 231 (1993).
- [26] H. Munekata, H. Ohno, Von Molnar, A. Segmuller, L.L. Chang et L. Esaki, Phys. Rev. Lett., 63, 1849 (1989).
- [27] H. Ohno, H. Munekata, T. Penny, S. Von Molnar et L.L Chang, Phys. Rev. Lett., 68, 2664 (1992).
- [28] H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto et Y. Lye, Appl. Phys. Lett. 69, 363 (1996).
- [29] A. Shen, H. Ohno, F. Matsukura, Y. Sugawara, N. Akiba, I. Kuroiwa, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto, and Y. Iye, J. Cryst. Growth, 175, 1069 (1997)
- [30] R. Bouzerar, "Théorie pour les systèmes désordonnés de spins localisés en interaction avec des porteurs itinérants : Les semiconducteurs magnétiques dilués" thèse de doctorat, Université de Picardie Jules Verne (Amiens), 2008
- [31] H. Ohno: J. Magn. Magn. Mater. 200, 110 (1999)
- [32] R. Shioda, K. Ando, T. Hayashi et M. Tanaka, Phys. Rev. B, 58, 1100 (1998).
- [33] J. Blinowski et P. Kacman, Phys. Rev. B., 67, 121204 (2003).
- [34] J. Schneider, U. Kaufmann, W. Wilkening, M. Baeumler, and F. Kohl, Phys. Rev. Lett. **59**, 240 (1987)
- [35] M. Linnarsson, E. Janzén, B. Monemar, M. Kleverman et A. Thilderkvist, Phys. Rev. B., 55, 6938 (1997).

- [36] S. J. Potashnik, K.C. Ku, R. Mahendiran, S.H. Chun, R.F. Wang, N. Samarth, et P. Schier. Phys. Rev.B, 66, 012408 (2002).
- [37] C. Zener, Phys. Rev. B., 81, 440 (1951).
- [38] J. A. Gaj, R. Planel et G. Fishma, Solid State Comm., 29, 435 (1979).
- [39] T. Dietl, H. Ohno et F. Matsukura, Phys. Rev. B., 63, 195205 (2001).
- [40] M. Abolfath, T. Jungwirth, J. Brum et A. H. Macdonald, Phys. Rev. B., 63, 054418 (2001).
- [41] A. Shen, H. Ohno, F. Matsukura, Y. Sugawara, N. Akiba, T. Kuroiwa, A. Oiwa, A. O. S. Katsumoto et Y. IYE, J. Cryst. Growth, 175/176, 1069 (1997).
- [42] R. Richter et H. Eschrig, J. Phys. F.: Met. Phys., 18, 1813 (1988).
- [43] P. Weiss. J. Phys. Rad., 4, 469 (1907).
- [44] W. Heisenberg, Z. Phys., 49 (1928).
- [45] M. T. Kief et W. F. Egelhoff, Phys. Rev. B, 47, 10785 (1993).
- [46] A. J. Freeman, Ru-Qian Wu et J. Magn. Magn. Mat., 100: 497 (1991).
- [47] J. M. Maclaren, J. of App. Phys, 85, 8 (1999).
- [48] M. F. Collins, Philosophical Magazine 8, 401 (1963)
- [49] J. Schneider, U. Kaufmann, W. Wilkening, M. Baeumler et F. Kohl, Phys. Rev. Lett., 59, 240 (1987).
- [50] X.Liu et J.K. Furdyna, J. Phys. Condens. Matter, 18, R245, R279 (2006).

- [51] C. Sliwa et T. Dietl, Phys. Rev B., 74, 245215 (2006).
- [52] X. Liu, L. Lim, L. V. Titova, M. Dobtowolska, J. K. Furdyna, M. Kutrowski et T. Wojtowicz, J. Appl. Phys. 98, 063904 (2005).
- [53] Kh. Khazen, J. Von Bardeleben, J. L. Cantin, L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin et A. Lemaitre. Phys. Rev. B., 77, 165204 (2008).
- [54] L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, A. Lemaitre, Kh. Khazen, et J. Von Bardeleben, Phys. Rev. B., 75, 195218 (2007).
- [55] Gary A. Prinz, Science, 250, 1096 (1990).
- [56] K. Ohta, T. Maruyama, T. Nozaki, M. Shiraishi, T. Shinjo, Y. Suzuki, S.-S. Ha, C.-Y. You, and W. Van Roy, Appl. Phys. Lett. 94, 032501 (2009)
- [57] F. Schreiber, J. Pflaum, Z. Frait, T. Mühge, et J. Pelzl, Solid State Commun, 93, 965-968 (1995).
- [58] A. T. Hindmarch, A.W. Rushforth, R.P. Campion, C.H. Marrows, et B.L. Gallagher Arxiv, 1106.0606 (2011).
- [59] K. Y. Wang, K. W. Edmonds, L. X. Zhao, M. Sawicki, R. P. Campion, B. L. Gallagher and C. T. Foxon, Phys. Rev. B, 72, 115207 (2005).