



HAL
open science

Contrôle électrique de l'injection de spin dans les diodes électroluminescentes avec un injecteur à couple spin-orbite

Pambiang Abel Dainone

► **To cite this version:**

Pambiang Abel Dainone. Contrôle électrique de l'injection de spin dans les diodes électroluminescentes avec un injecteur à couple spin-orbite. Physique [physics]. Université de Lorraine, 2024. Français. NNT : 2024LORR0125 . tel-04848931

HAL Id: tel-04848931

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-04848931v1>

Submitted on 19 Dec 2024

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

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



**UNIVERSITÉ
DE LORRAINE**

**BIBLIOTHÈQUES
UNIVERSITAIRES**

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact bibliothèque : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr
(Cette adresse ne permet pas de contacter les auteurs)

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



Université de Lorraine, Collegium Sciences et Technologies, Institut Jean Lamour
Ecole Doctorale C2MP " Chimie - Mécanique - Matériaux- Physique "

Thèse

présentée pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE

en Physique

par

Pambiang Abel DAINONE

Contrôle électrique de l'injection de spin dans les diodes électroluminescentes avec un injecteur à couple spin-orbite

Soutenue publiquement le 26 septembre 2024 à Nancy, devant le jury composé de :

M. Yuan LU Chargé de recherche CNRS - IJL, Nancy	Directeur de thèse
M. Mathieu STOFFEL Maître de Conférences à l'Université de Lorraine - IJL, Nancy	Codirecteur de thèse
M. Stéphane MANGIN Professeur à l'Université de Lorraine-IJL, Nancy	Président du jury
M. Aurélien MANCHON Professeur à l'Université de Aix-Marseille – CINaM, Marseille	Rapporteur
M. Philippe SCHIEFFER Professeur à l'Université de Rennes - IPR, Rennes	Rapporteur
Mme. Isabelle SAGNES Directrice de recherche au CNRS – C2N, Paris	Examinatrice
M. Mairbek CHSHIEV Professeur à l'Université de Grenoble Alpes – CEA, Grenoble	Examinateur

Institut Jean Lamour - UMR 7198 - Département P2M - Equipe 104

Université de Lorraine - Pôle M4 : matière, matériaux, métallurgie, mécanique

‘À ma maman, sans toi je ne serais pas l'homme que je suis. Merci pour tout.’

Remerciements

Cette thèse est le fruit de l'énorme effort de nombreuses personnes. Avant de vous inviter à découvrir ce manuscrit, je voudrais exprimer ma gratitude sincère à tous ceux qui ont contribué aux projets et m'ont soutenu durant ces années de doctorat.

En premier lieu, je remercie les membres du jury, notamment les rapporteurs Aurélien Manchon et Philippe Schieffer, pour avoir accepté de lire et corriger mon manuscrit. Je suis également reconnaissant envers les examinateurs Stéphane Mangin, Isabelle Sagnes et Mairbek Chshiev pour leur disponibilité et leur évaluation de ce travail.

Un merci tout particulier au Dr. Yuan Lu et au Dr. Mathieu Stoffel, qui m'ont accueilli dès mon stage de master sur ce sujet passionnant et plein de défis. Votre confiance m'a permis de poursuivre avec vous en thèse. Merci, Yuan, d'avoir cru en moi malgré mes débuts difficiles avec les techniques expérimentales. J'apprécie énormément la liberté d'initiative et de prise de décision que tu laisses à tes étudiants, car cela m'a permis de développer mes propres idées que tu n'as pas cessé de soutenir et d'explorer toutes les pistes que je trouvais prometteuses pour ce sujet. Ton enthousiasme, ton optimisme, ta passion pour la recherche, ta rigueur et ton dévouement ont été une source d'inspiration. Merci aussi pour ton aide précieuse, tant logistique que financière, et pour avoir pris le temps de revoir ce manuscrit et d'apporter des suggestions. Si aujourd'hui, presque tous les objectifs de cette thèse ont été atteints, c'est grâce à tes vastes qualités. Merci, Mathieu, pour ta rigueur, ta pédagogie, ta bonne humeur quotidienne et ta patience. Merci de m'avoir formé et souvent accompagné pour les mesures d'EL, de m'avoir expliqué des notions liées à la physique des semi-conducteurs, et de m'avoir suivi durant presque quatre ans en étant toujours disponible. Grâce à cela, j'ai pu améliorer notre banc optique et réaliser des mesures inattendues. Merci pour les discussions enrichissantes sur la vie et la société, et pour ton aide précieuse dans la relecture et l'amélioration de ce manuscrit.

Je tiens à remercier tous les membres de l'équipe 104 pour leur accueil chaleureux et leur expertise. Un remerciement spécial à Xavier Devaux, grand spécialiste en microscopie, pour les analyses structurales de mes échantillons par HRTEM/STEM. Ta rigueur et ton savoir-faire m'ont aidé à améliorer mes fabrications et à comprendre en détail les problèmes rencontrés ainsi que les solutions à y apporter.

Je souhaite exprimer ma profonde gratitude à tous les membres des centres de compétences avec qui j'ai collaboré, notamment ceux du CC Davm : Alexandre Bouche, Ludovic Pasquier, Olivier Lerbet et Danielle Pierre. Merci Alex d'avoir pris du temps pour me former sur la PVD et d'avoir souvent été présent pour les manips. Personne ne saura combien nous avons galéré ensemble sur cette machine pour la rendre aussi opérationnel, combien de fois nous l'avons ouverte chaque semaine – un véritable travail de sportif. Je ne te remercierai jamais assez pour ta disponibilité, ton optimisme et ton sens de l'humour. Merci pour ces longues discussions pendant les manips et ces fous rires. Tu as certainement égayé ces trois années de thèse. Tu es sans aucun doute la personne la plus cool que j'ai rencontrée durant cette période. Merci Ludovic pour la formation à l'utilisation de la plateforme CC-Davm, ta disponibilité pour les maintenances de la MBE, ta patience, ta bonne humeur et ton sens de l'humour. Je tiens également à remercier Olivier pour son aide lors des maintenances de la MBE et autres interventions sur la plateforme, ainsi que Danielle, la responsable du tube. Merci d'avoir formé une si bonne équipe, d'être toujours à l'écoute des besoins des utilisateurs et pour la très bonne gestion de la plateforme.

Je remercie tous les membres du CC3M, et en particulier Sylvie Migot-Choux, pour la formation sur le FIB.

Je tiens à remercier tous les membres du CC Magnétisme et Cryogénie. Merci Stéphane Suire pour la formation à la technique de caractérisation du VSM, du SQUID-VSM. Merci d'avoir aidé à améliorer la manip d'EL et pour le remplissage des bouteilles d'hélium.

Je tiens à remercier chaleureusement les membres du CC Minalor, et en particulier l'ancienne membre Gwladys Lengaigne, pour l'excellente formation qu'elle m'a dispensée sur les différentes installations de la salle blanche. Je suis également reconnaissant envers Laurent Badie et Demba Ba pour avoir pris le relais par la suite et pour leur soutien constant en me proposant des solutions aux nombreux problèmes de fabrication que j'ai rencontrés. Merci à Pascal Boulet du CC Xgamma pour les analyses de diffraction effectués sur mes échantillons ainsi que leurs interprétations.

Je ne peux pas conclure ces remerciements des centres de compétences sans mentionner Olivier Franzin du CC Ermione. Un grand merci à toi pour avoir toujours été présent pour m'aider à résoudre les gros problèmes liés aux ordinateurs et aux différents logiciels.

Je tiens également à remercier tous nos collaborateurs, en particulier ceux du LPCNO : Pierre Renucci, Delphine Lagarde et Laurent Lombez pour les mesures d'EL, ainsi que ceux du

Laboratoire Albert Fert : Jean-Marie Georges, Henri Jaffrès et Nicholas Figueiredo pour les mesures de MOKE. Merci pour votre accueil si chaleureux dans vos laboratoires, pour le temps partagé lors des expérimentations et en dehors, pour vos suggestions et idées précieuses. Merci à Markus Lindemann et Nils Gerhardt du laboratoire de Photonique et de Technologie TéraHertz de l'Université de Bochum en Allemagne pour les mesures de TPRL

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude aux pionniers de la convention de double diplôme entre l'Université de Lorraine et l'Université de Dschang. Je pense tout particulièrement au professeur Daniel Malterre de l'Université de Lorraine, qui a toujours été présent pour me guider et me prodiguer des conseils précieux en recherche. Merci, Prof. pour ces discussions passionnantes sur la physique et sur la vie en général. Je souhaite également remercier le professeur Fai Lukong Cornelius et le professeur Martin Tchoffo de l'Université de Dschang pour leur suivi académique irréprochable et leurs enseignements.

Je remercie très profondément tous mes amis, mes aînés de la convention, les post doctorants et doctorants de l'équipe en particulier Abir Nachawaty, Priyanka Tiagy, Tianyi Ma et Tongxin Chen qui m'ont aidé et permis de m'intégrer rapidement. Je souhaite également exprimer une gratitude immense envers ma famille, mon adorable mère, mon père qui n'est plus de ce monde, mes merveilleuses sœurs et mon frère. Vous m'avez tant donné : valeurs, amour, soutien, joie de vivre, principes... Vous êtes de loin les meilleures. Pour finir, je souhaite exprimer ma profonde gratitude envers la personne très spéciale qui partage ma vie, Melissa. Même si la distance nous sépare en ce moment, tu as toujours été présente pour moi. Merci pour ton soutien inébranlable, ton amour, ton grain de folie, tes encouragements quotidiens, ta patience, ta force mentale et ta gentillesse. Tu es vraiment exceptionnelle.

Table des matières

Introduction générale	1
I État de l'art : De la spintronique à la spin-optoélectronique	5
I.1 La spintronique dans les métaux	5
I.1.1 Magnétorésistance géante (GMR)	6
I.1.2 Magnétorésistance tunnel (TMR)	8
I.2 La spintronique dans les semi-conducteurs	11
I.2.1 Structure de bande de l'arséniure de gallium (GaAs)	13
I.2.2 Le problème de désaccord d'impédance	14
I.2.2.1 Accumulation de spin à l'interface FM/NM	14
I.2.2.2 Injection de spin à travers une barrière tunnel	17
I.3 Spin-LED à base de GaAs : état de l'art	19
I.3.1 Principe d'une spin-LED	19
I.3.2 Les règles de sélection optique et efficacité d'injection	21
I.3.3 Etat de l'art sur les spin-LEDs à base de GaAs	24
I.3.4 Applications potentielles des spin-LEDs	30
I.4 Les mécanismes de retournement de l'aimantation par les couples	32
I.4.1 Dynamique de l'aimantation : équation de LLG	32
I.4.2 Le couple de transfert de spin (STT)	34
I.4.3 Le couple spin-orbite (SOT)	36
I.4.3.1 Mise en évidence expérimentale	37
I.4.3.2 Effet Rashba	41
I.4.3.3 Effet Hall de spin	44
I.5 Les objectifs de la thèse	49
I.6 Conclusion	49
II Les techniques expérimentales	51
II.1 Elaboration des injecteurs de spin	51
II.1.1 La plateforme d'élaboration	51
II.1.2 Les techniques de dépôt et de contrôle	52
II.1.2.1 Epitaxie par jets moléculaires (MBE)	52
II.1.2.2 Les moyens d'évaporation	54
II.1.3 Pulvérisation cathodique (PVD)	57
II.2 Caractérisation des injecteurs de spin	59
II.2.1 Caractérisations structurales	59
II.2.1.1 La diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante	59
II.2.1.2 La diffraction des rayons X	61
II.2.1.3 Le microscope à force atomique (AFM)	62
II.2.1.4 Microscopie électronique en transmission (MET)	63
II.2.2 Caractérisation chimique (XPS)	65
II.2.3 Caractérisation magnétique (VSM et SQUID VSM)	66
II.3 Micro-fabrication de la spin-LED	69
II.3.1 La spin-LED standard	71
II.3.2 La SOT spin-LED	74

II.4	Mesures de transport sous champ magnétique	75
II.5	Caractérisation du retournement de l'aimantation par MOKE	75
II.5.1	Rappels sur les effets magnéto optiques	76
II.5.2	L'effet Kerr magnéto optique	78
II.5.3	Configurations possibles de l'effet Kerr	79
II.6	Mesures de photoluminescence résolues en temps	80
II.7	Mesures d'électroluminescence résolues en polarisation	81
II.8	Conclusion	81
III	Développement d'un nouvel injecteur de spin à base de MgO/Fe₄N/Au.....	83
III.1	Intérêt de l'injecteur MgO/Fe ₄ N/Au	83
III.2	Croissance de films minces de MgO/Fe _x N _y /Au sur substrat de GaAs (001).....	86
III.2.1	Analyse structurale	86
III.2.2	Stœchiométrie de l'échantillon	88
III.2.3	Morphologie des films minces de MgO/Fe _x N _y /Au	90
III.3	Optimisation de la tricouche MgO/Fe _x N _y /Au	91
III.3.1	Optimisation du film mince de Fe _x N _y	91
III.3.2	Optimisation de la couche de MgO	96
III.3.3	La tricouche MgO/Fe _x N _y /Au optimisée	97
III.3.3.1	Analyse structurale	97
III.3.3.2	Stœchiométrie de l'échantillon.....	98
III.3.3.3	Propriétés microstructurales	100
III.3.3.4	Propriétés magnétiques	103
III.4	Mise en évidence du retournement électrique de l'aimantation	105
III.5	Mesures d'électroluminescence résolues en polarisation	106
III.6	Conclusion	108
IV	Spin-LEDs à base de GaAs avec l'injecteur CoFeB.....	110
IV.1	Structure de la LED	111
IV.2	Optimisation de l'injecteur de spin	113
IV.2.1	Effet de l'épaisseur de la couche de CoFeB	114
IV.2.2	Effet des recuits (RTA)	116
IV.3	Propriétés microstructurales	119
IV.4	Mesures d'électroluminescence résolue en polarisation de la spin-LED standard	122
IV.4.1	Effet du champ magnétique	122
IV.4.2	Effet de la tension appliquée	123
IV.4.3	Effet de la température	126
IV.5	La SOT spin-LED	130
IV.5.1	Mesures d'électroluminescence résolues en polarisation	131
IV.5.1.1	Effet du champs magnétique	131
IV.5.1.2	Effet de la tension appliquée	132
IV.5.2	Les obstacles au retournement électrique de l'aimantation	133
IV.5.3	Retournement électrique de l'aimantation sur une LED	136
IV.5.3.1	Mise en évidence expérimentale	136
IV.5.3.2	Caractérisation du retournement par MOKE	140
IV.5.4	Démonstration du contrôle électrique de la polarisation circulaire de la lumière	142
IV.5.4.1	Contrôle électrique de la polarisation	142

IV.5.4.2 Robustesse du retournement électrique de l'aimantation	145
IV.5.5 Retournement de l'aimantation en présence d'un courant vertical	146
IV.5.6 Vers un retournement plus rapide de l'aimantation : développement d'un injecteur à base de MgO/CoFeB/W/Cr	148
IV.6 Conclusion	151
Conclusion et perspectives	153
Résumé	158
Liste des publications	161
Bibliographie	162

Liste des abréviations

AFM : Microscopie à force atomique

ADF : Champ sombre annulaire

BF : Champ clair

CIP : Courant dans le plan

CPP : Courant perpendiculaire au plan

DMI : Interaction de Dzyaloshinskii – Moriya

DMS : Semi-conducteur magnétique dilué

DP : Dyakonov-Perel

EELS : Spectroscopie de pertes d'énergie des électrons

FIB : Faisceau d'ion focalisé

FFT : Transformée de Fourier rapide

GMR : Magnéto-résistance géante

HAADF : Champ sombre annulaire aux grands angles

H₃PO₄ : Acide phosphorique

H₂O₂ : Le peroxyde d'hydrogène (l'eau oxygénée)

IPA : Isopropanol

IBE : Gravure par faisceau d'ions

LED : Diode électroluminescente

MTJ : Jonction tunnel magnétique

MBE : Épitaxie par jets moléculaires

MCD : Dichroïsme circulaire magnétique

MOKE : Effet Kerr magnéto-optique

MRAM : Mémoire vive magnétique

MQW : Plusieurs couche de puits quantique

MQD : Plusieurs couche de boîte quantique

NM : Matériau non magnétique

PMA : Anisotropie magnétique perpendiculaire

QD : une seule couche de boîtes quantiques

QW : Une seule couche de puits quantiques

RHEED : Diffraction d'électrons rapides réfléchis

RTA : Four à recuit rapide

SHE : Effet Hall de spin

SDL : Longueur de diffusion de spin

SC : Semi-conducteur

STEM : Microscopie électronique en transmission à balayage

SQW : Une seule couche de puit quantique

SQUID : Dispositif à interférence quantique supraconductrice

TMR : Magnéto-résistance tunnel

TEM : Microscopie électronique en transmission

VSM : Magnétomètre à échantillon vibrant

XPS : Spectroscopie de photoélectrons X

Introduction générale

La croissance explosive des applications des technologies de l'information et de la communication (TIC), impliquant l'intelligence artificielle (IA), le Big Data, l'Internet des objets (IoT) et la 5G, nécessite une bande passante élevée avec une efficacité énergétique améliorée, fournie par les systèmes de communication optique. Un goulot d'étranglement critique pour les communications optiques actuelles est la vitesse de modulation des liaisons optiques tout en réduisant globalement la consommation énergétique. Ce goulot d'étranglement peut cependant être surmonté en utilisant la conversion entre le spin du porteur et le spin du photon dans les lasers à semi-conducteurs. Ceci donne lieu à un changement de paradigme en spintronique qui peut ouvrir la voie à de nouvelles applications à température ambiante (RT) bien au-delà de la magnétorésistance géante. Les diodes électroluminescentes à injection de spin (spin-LEDs), qui peuvent émettre une lumière polarisée circulairement grâce à la combinaison d'une structure LED et d'un injecteur ferromagnétique, sont au cœur des futures télécommunications optiques basées sur la polarisation circulaire de la lumière. L'injection de porteurs polarisés en spin dans les lasers, grâce à la conservation du moment angulaire, permet de moduler très rapidement la polarisation circulaire de la lumière émise (à plus de 200 GHz). Cette modulation est bien plus rapide que celle des meilleurs lasers classiques (30-40 GHz) et consomme beaucoup moins d'énergie. Cependant, jusqu'à présent, la modulation de la polarisation circulaire par le contrôle électrique de l'injection de spin n'a pas encore été démontrée. Il s'agit là d'un enjeu crucial pour des applications de masse. L'objectif de ce projet de thèse est de combler cette lacune. La conversion spin-photon avec le contrôle non volatile de l'aimantation ouvrira une voie pour intégrer sur un même substrat à la fois le transfert, le traitement et le stockage de l'information. En 1999, Fiederling¹⁸ et Ohno¹⁹ ont étudié l'injection de spin dans un semi-conducteur. Depuis cette date, la polarisation circulaire était généralement

Introduction générale

mesurée à basse température et un champ magnétique de quelques Teslas était nécessaire pour orienter l'aimantation hors du plan. Des efforts considérables ont ensuite été mis en œuvre afin de s'affranchir de tout champ magnétique extérieur mais aussi afin d'assurer un fonctionnement à température ambiante. Très récemment (2020), une injection de spin efficace a été obtenue dans le cas de spin LEDs comportant une couche de boîtes quantiques (QD) (In, Ga) As/GaAs dopées p à la rémanence. Le taux de polarisation circulaire (P_c) mesuré à la rémanence atteint environ 19 % jusque 100 K. Ce résultat est obtenu grâce à la combinaison d'un injecteur de spin à base de CoFeB/MgO possédant une anisotropie magnétique perpendiculaire et d'une LED possédant une couche de boîtes quantiques (QD) (In, Ga) As/GaAs dopée p dans la région active. Les mesures de polarisation à la rémanence permettent de s'affranchir d'un champ magnétique. Cependant, la polarisation circulaire est toujours modulée par un champ magnétique. Par ailleurs, les spin-LEDs ne peuvent pas fonctionner à température ambiante, ce qui constitue un verrou technologique à lever pour de futures applications. Très récemment, le groupe de K. Etou⁵⁸ a démontré une injection efficace de spin dans une diode contenant trois couches de boîtes quantiques InAs/GaAs en utilisant le Fe comme injecteur. Le degré de polarisation circulaire mesuré est de 8% à température ambiante. Cependant, les mesures ont été effectués sous champ magnétique, l'aimantation de l'injecteur étant orientée dans le plan des couches. Ces travaux montrent qu'il est possible de mesurer la polarisation circulaire avec un injecteur à base de CoFeB possédant une anisotropie magnétique perpendiculaire mais aussi qu'il est possible d'obtenir un taux de polarisation circulaire significatif à température ambiante. Pour de futures applications potentielles, il est crucial de ne plus manipuler l'aimantation par un champ magnétique extérieur. Dans cette thèse menée à l'Institut Jean Lamour dans le groupe « Nanomatériaux pour l'optoélectronique », nous utilisons une nouvelle approche pour surmonter les problèmes énoncés précédemment. Premièrement, nous développerons des injecteurs possédant une anisotropie magnétique perpendiculaire qui nous permettront de faire des

Introduction générale

mesures à la rémanence. Nous allons en parallèle optimiser la structure de la LED afin de pouvoir détecter l'émission de lumière à température ambiante. Enfin, nous montrerons que l'aimantation de l'injecteur (et donc la polarisation circulaire de la lumière émise) peut être contrôlée électriquement sans nécessité d'un champ magnétique extérieur. Le manuscrit suivant est divisé en quatre chapitres :

Dans le chapitre 1, nous introduirons les concepts physiques liés à la spintronique, aux semi-conducteurs et à la spin optoélectronique. Nous introduirons l'importance de cette nouvelle technologie à la croisée entre la photonique, le magnétisme et les semiconducteurs, les limitations actuelles des spin-LEDs ainsi que les défis à révéler pour rendre ce dispositif opérationnel dans un futur proche. Nous passerons en revue tous les travaux effectués sur des spin LED à base GaAs depuis 1999 montrant l'évolution au cours des années. Nous décrirons la dynamique de l'aimantation ainsi que les couples de transfert de spin et ceux de spin-orbite. Enfin, l'utilisation des couples permettant de manipuler l'aimantation des couches ferromagnétiques sera discutée

Dans le deuxième chapitre, on donnera un aperçu des techniques expérimentales utilisées au cours de cette thèse. Le développement de différents injecteurs de spin par différentes méthodes de croissance a été réalisé à l'IJL via la plateforme CC dauvm. Les couches minces à partir desquelles ont été fabriquées les diodes électroluminescentes, ont été élaborés en grande partie au Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N, Martina Morassi, Aristide Lemaitre) et à l'Institute Of Semiconductors (IOS Beijing, Bo Xu). Nous présenterons le principe des mesures d'EL résolues en polarisation effectués à l'IJL et au LPCNO (Toulouse). Les techniques de caractérisation telles que l'effet Hall de spin pour le retournement, le MOKE, la TRPL et l'EL résolue en polarisation menés respectivement à l'IJL, au laboratoire Albert Fert, à l'Institut de Photonique et de Technologie TéraHertz et au LPCNO (et à l'IJL) seront également présentés.

Introduction générale

Dans le chapitre 3, nous présenterons le développement d'un nouvel injecteur très prometteur basé sur le Fe_4N . Nous déterminerons les conditions expérimentales qui nous permettent d'obtenir des couches minces de Fe_4N possédant une bonne qualité cristalline. Les mesures magnétiques montrent que le Fe_4N est constitué de deux sous-couches, une couche possédant une anisotropie magnétique hors du plan et une autre dans le plan. Les mesures de magnéto-transport montrent que la composante hors du plan peut être retournée. En revanche les mesures d'électroluminescence montrent une polarisation circulaire nulle.

Dans le chapitre 4, nous nous focaliserons sur l'injecteur de spin à base de CoFeB/Ta qui a déjà fait l'objet de nombreuses études depuis des années. Nous présenterons les résultats expérimentaux concernant cet injecteur dont la croissance est déjà bien maîtrisée dans notre groupe. Nous présenterons les problèmes liés au retournement électrique de l'aimantation avec cet injecteur. Cela nous conduira au développement d'un nouvel injecteur à base de $\text{CoFeB}/\text{Ta}/\text{Cr}$. Ce dernier nous permettra de démontrer pour la première fois le contrôle électrique de l'aimantation et donc le contrôle de la polarisation circulaire de la lumière émise à température ambiante. Nous discuterons quelques améliorations possibles de cet injecteur, en particulier la substitution du Ta par du W qui convertit plus efficacement un courant de charge en un courant de spin.

Nous terminerons par une conclusion générale et des perspectives pouvant permettre de poursuivre ce travail.

Chapitre I

État de l'art : De la spintronique à la spin-optoélectronique

Dans ce chapitre, nous allons introduire les éléments nécessaires pour la compréhension des résultats. La première partie sera consacrée à la spintronique dans les métaux. Nous décrirons le phénomène de GMR, de TMR puis nous aborderons les limites de la spintronique dans les métaux pour le transport de l'information. Dans la deuxième partie nous introduirons la spintronique dans les semi-conducteurs et ses avantages par rapport aux métaux ainsi que tous les principaux verrous à lever pour une injection de spin efficace dans les semi-conducteurs. Nous finirons par l'état de l'art des travaux effectués jusque-là dans ces systèmes, les limites actuelles ainsi que les objectifs de cette thèse

I.1 La spintronique dans les métaux

Dans l'électronique conventionnelle, la charge de l'électron est placée au centre des dispositifs ignorant l'existence du spin de l'électron pendant des décennies. Cependant, les travaux de Mott en 1936¹ ont révélé que dans les matériaux magnétiques, la probabilité de diffusion des électrons dépend du spin. Cet effet a été étudié théoriquement et expérimentalement dans les années 1968. Il a été découvert que dans les métaux

ferromagnétiques $3d$, la conduction peut être comprise en utilisant un modèle à deux courants. La conductance du canal de spin majoritaire et celle du canal de spin minoritaire peuvent être différentes de plus d'un facteur dix². Ces dernières années, un nouveau paradigme de l'électronique basé sur le degré de liberté du spin de l'électron a émergé. Le domaine de la "spintronique" utilise en plus de la charge de l'électron comme dans l'électronique conventionnelle, son spin. De cette manière, l'information peut être codée non seulement dans la charge de l'électron, mais aussi dans son spin, c'est-à-dire par l'alignement d'un spin (soit "vers le haut" soit "vers le bas") par rapport à une référence qui peut soit être un champ magnétique appliqué ou l'orientation de l'aimantation d'un film magnétique.

I.1.1 La magnétorésistance géante (GMR)

La magnétorésistance géante (GMR) a été découverte en 1988 de façon indépendante par deux équipes différentes menés par A. Fert³ et P. Grunberg⁴. La première équipe a étudié les propriétés de transport de multicouches $(\text{Fe/Cr})_{60}$ préparées par épitaxie par jets moléculaires sur des substrats de GaAs (001) tandis que la deuxième équipe a considéré des tricouches Fe/Cr/Fe. La figure I.1 montre l'évolution de la résistance (normalisée à celle mesurée à champ nul) en fonction du champ magnétique appliqué. A champ nul, une forte résistance est mesurée. Celle-ci décroît cependant rapidement lorsque le champ magnétique augmente, illustrant ainsi l'effet de magnétorésistance géante. Cette découverte majeure, qui a valu le prix Nobel de Physique à Fert et Grunberg en 2007, a marqué l'avènement de l'électronique de spin ou spintronique. En variant l'épaisseur de la couche de Cr, le couplage d'échange indirect entre les deux couches adjacentes de Fe peut être soit antiferromagnétique (dans ce cas les aimantations des deux couches sont antiparallèles, figure I.2(a)) ou ferromagnétique (dans ce cas, les aimantations des deux couches sont parallèles, figure I.2(b)). La probabilité que les électrons de spin \uparrow (up) et \downarrow (down) traverse un métal non magnétique est égale.

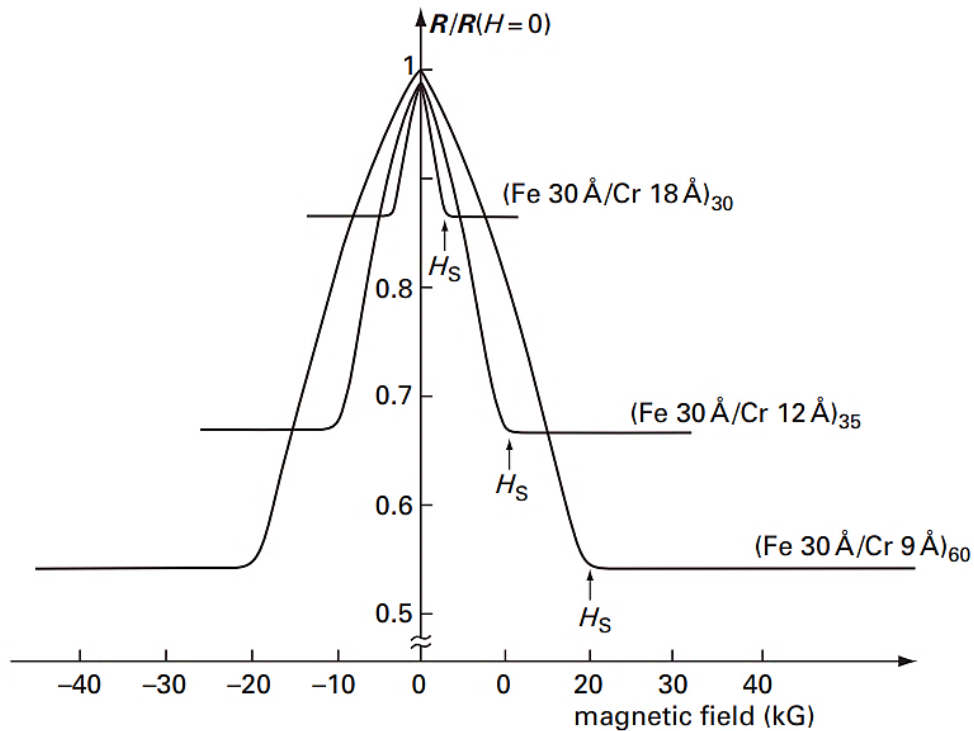


Figure I.1 : Evolution de la résistance (normalisée par rapport à celle mesurée à champ nul) en fonction du champ magnétique pour des multicouches $[\text{Fe}(30\text{\AA})/\text{Cr}(x \text{ nm})]_N$ avec $N = 30, 35$ et 60 à 4.2 K^3 .

En effet dans ce genre de métal, il existe un nombre égal d'états de spin \uparrow (up) que de spin \downarrow (down) au niveau de Fermi. Par contre dans le cas d'un métal ferromagnétique, la densité d'états au niveau de Fermi est dissymétrique pour les deux directions de spin. Les électrons dont le spin est aligné parallèlement à l'aimantation sont faiblement diffusés, tandis que ceux dont le spin est antiparallèle à l'aimantation sont fortement diffusés. La résistance est plus grande lorsque les aimantations des couches ferromagnétiques sont antiparallèles. Cela signifie que les électrons de spin \uparrow ou \downarrow sont diffusés dans l'une ou l'autre couche ferromagnétique. En revanche, lorsque les aimantations des deux couches magnétiques sont antiparallèles, les électrons de conduction dont le spin est parallèle à l'aimantation peuvent se déplacer à travers la structure sans être diffusés de manière significative, réduisant ainsi la résistance globale du matériau.

En modifiant l'orientation relative des aimantations (passage d'une configuration parallèle à antiparallèle), il se produit une variation significative de résistance.

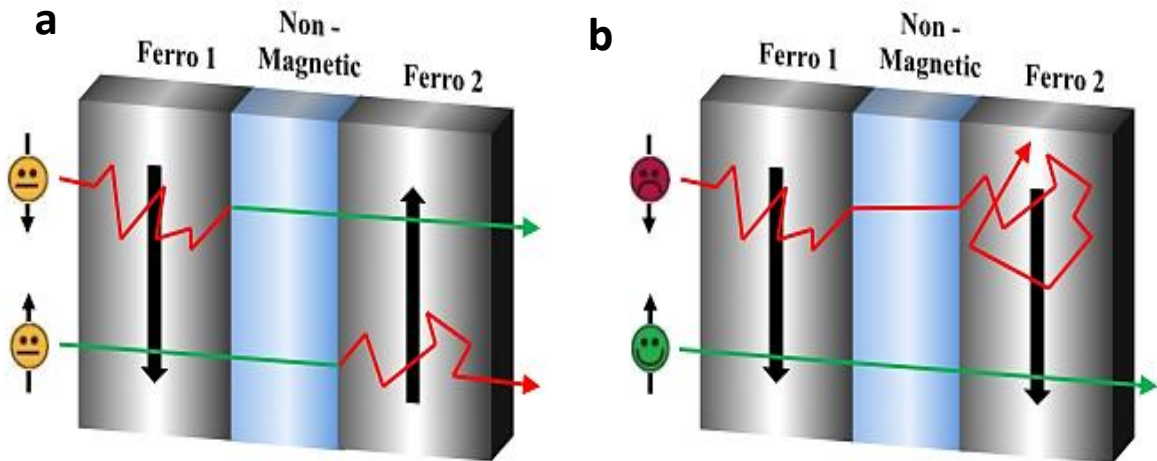


Figure I.2 : Processus de diffusion se produisant dans les multicouches Ferro 1/Non Magnetic/Ferro 2. La structure se compose de deux couches ferromagnétiques identiques Ferro 1 et Ferro 2 séparé d'une couche métallique non magnétique. Si les aimantations sont antiparallèles (a), les électrons de spin-up et de spin-down sont fortement diffusés dans les couches Ferro 1 ou Ferro 2. Si les aimantations sont parallèles (b), les électrons de spin parallèle à l'aimantation peuvent circuler à travers la tricouche sans subir de diffusion significative, d'où une résistance plus faible⁵

I.1.2 Magnéto-résistance tunnel (TMR)

Si l'on substitue maintenant la couche non magnétique des tricouches décrites précédemment par un oxyde, on parle de jonctions tunnel magnétiques. Si l'épaisseur de l'oxyde est faible, les électrons peuvent en effet passer d'une couche ferromagnétique à l'autre par effet tunnel. La magnéto-résistance tunnel est généralement très élevée lorsque les deux aimantations sont antiparallèles et plus faible lorsque les deux aimantations sont parallèles. Cet effet est directement lié à la densité d'états des couches magnétiques comme le montre la figure I.3. Lorsque les aimantations des deux matériaux ferromagnétiques sont parallèles (Fig. 2(a)), aux densités d'états au niveau de Fermi notés a_1 pour les spins up et $1-a_1$ pour les spins down pour FM1 correspondent respectivement les densités a_2 et $1-a_2$ pour FM2. Dans ce cas, un nombre important d'états libres dans l'électrode FM2 pourront être rempli par un grand nombre d'électrons qui traversent la barrière depuis l'électrode FM1 (voir Fig I.3(a)). Cela implique une forte densité de courant tunnel pour l'état parallèle.

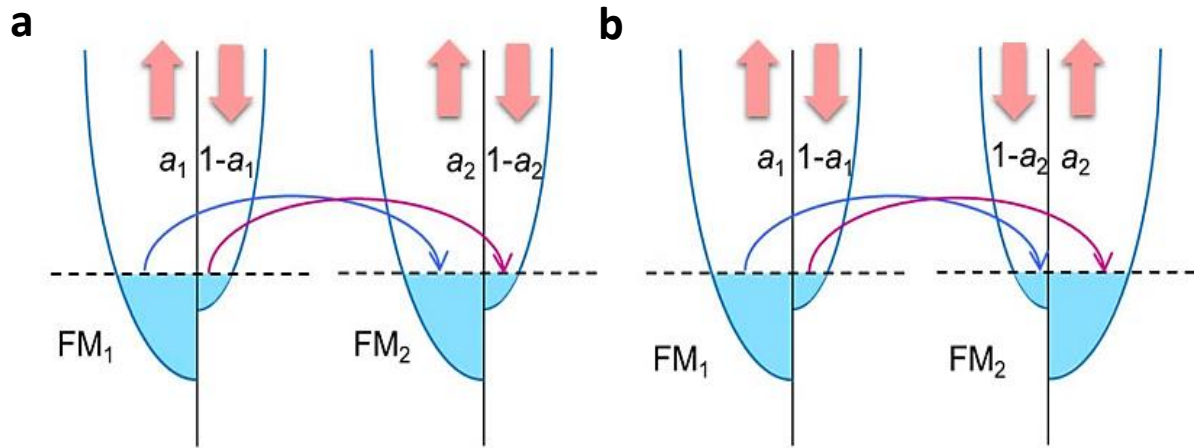


Figure I.3 : Densités d'états dans une structure FM₁/Oxyde/FM₂ lorsque les aimantations des deux couches ferromagnétiques sont parallèles (a) et antiparallèles. (b)⁶

Lorsque les deux matériaux ferromagnétiques sont alignés antiparallèlement (Fig. I.3(b)), les densités d'états au niveau de Fermi sont différentes pour les électrodes FM₁ et FM₂. Dans ce cas de figure, à une forte (faible) densité d'états pour FM₁ correspondra une faible (forte) densité d'états pour FM₂. C'est le cas pour les deux canaux de spins, ce qui implique une densité de courant tunnel faible. En 1975, Jullière a proposé un modèle qui permettait de prédire l'évolution de la magnétorésistance tunnel dans une structure ferromagnétique/ isolant/ ferromagnétique (FM/I/FM)⁷. La variation de résistance dans la jonction FM/I/FM peut s'écrire :

$$\text{TMR} = \frac{\Delta R}{R_p} = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} = \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2} \quad (\text{I.1})$$

où R_{ap} et R_p sont les résistances lorsque les aimantations des deux couches ferromagnétiques sont respectivement antiparallèles et parallèles, et P_1 et P_2 sont les polarisations de spin des deux couches ferromagnétiques. Jullière a étudié les propriétés de transport de jonctions Fe/GeO/Co. Il mesure une variation de résistance de l'ordre de 14% mais seulement à 4,2 K, ce qui n'est pas utile pour des applications. En étudiant des jonctions CoFe/Al₂O₃/Co, Moodera et al.⁸ ont été les premiers à obtenir une variation relative de résistance supérieure à 10 % à température ambiante (Fig. I.4).

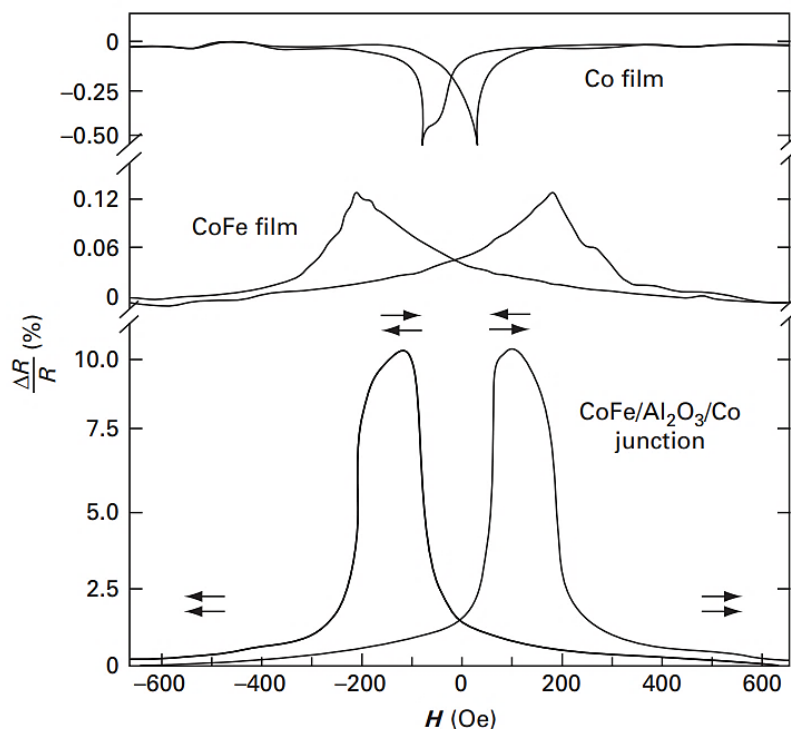


Figure I.4 : Evolution du taux de magnétorésistance en fonction du champ magnétique appliqué dans un film de Co, un film de CoFe et une jonction CoFe/Al₂O₃/Co à 295 K.⁸

En se basant sur des calculs *ab initio*, Mathon et Umerski⁹ montrent qu'il est possible d'obtenir un rapport TMR supérieur à 1000 % dans des tricouches Fe (001) /MgO (001) /Fe (001). Ils montrent que la conductance tunnel dépend fortement de la symétrie des états de Bloch et de la qualité de la barrière tunnel. En 2004, Parkin et al.¹⁰ et Yuasa et al.¹¹ ont fabriqué des jonctions tunnel magnétiques (MTJ) de haute qualité avec une barrière de MgO. À température ambiante, un rapport TMR allant jusqu'à 220 % a été obtenu dans une MTJ de type CoFe/MgO/CoFe, tandis qu'un rapport TMR atteignant 180 % a été mesuré dans une MTJ de type Fe/MgO/Fe. Au fil du temps, plusieurs groupes ont utilisé différentes techniques de croissances ainsi que des matériaux ferromagnétiques différents pour optimiser le taux de TMR. Actuellement, il est possible d'obtenir des taux de TMR de l'ordre de 500% à température ambiante et même de 1010% à 5 K pour des jonctions tunnel CoFeB/MgO/CoFeB¹². Les notions de TMR et de GMR sont importantes car elles permettent de mieux comprendre la spintronique dans les semi-conducteurs ainsi que l'injection de spin dans les semiconducteurs par effet tunnel.

I.2 La spintronique dans les semi-conducteurs

Pour améliorer les performances en microélectronique, l'approche poursuivie jusqu'à présent a été de réduire la taille des dispositifs afin d'augmenter la densité des circuits. Cette tendance, connue sous le nom de loi de Moore¹³, a cependant déjà atteint ses limites. Par conséquent, de nouveaux paradigmes doivent être développés pour les technologies futures. Parmi ceux-ci, l'électronique de spin ou spintronique est une des voies d'exploration possible¹⁴. La magnétorésistance géante décrite dans la première partie de ce chapitre met en œuvre cette technologie dans les têtes d'enregistrement magnétique et les mémoires non volatiles. Cet effet a ensuite été étendu aux jonctions tunnel métal ferromagnétique/isolant/métal ferromagnétique afin d'augmenter la variation relative de résistance et ainsi les performances des dispositifs. La spintronique basée sur les semi-conducteurs offre de nombreuses opportunités qui sont inaccessibles aux structures spintroniques basées uniquement sur les métaux. Cela est dû aux caractéristiques pour lesquelles les semi-conducteurs sont si bien connus à savoir l'existence d'une bande interdite souvent ajustable sur une large gamme spectrale dans les composés ternaires ; les propriétés optiques associées sur lesquelles repose une vaste industrie optoélectronique ; à la capacité à contrôler les concentrations des porteurs via le dopage¹⁵. L'association du degré de liberté de spin des porteurs avec l'ingénierie de la bande interdite ouvre la voie à de nouvelles fonctionnalités et performances pour les dispositifs à semi-conducteurs. Elle a notamment permis le développement d'une nouvelle branche de la physique appelée spin-optoélectronique. L'association de l'électronique basée sur les semiconducteurs, de la photonique et du magnétisme peut conduire à l'émergence de nouveaux dispositifs multifonctionnels basés sur le spin tels que le spin-FET (transistor à effet de champ), la spin-LED (diode électroluminescente à injection de spin), la spin-RTD (diode tunnel résonnante), ainsi que des commutateurs/modulateurs optiques pouvant fonctionner à des fréquences térahertz¹⁶. (Fig. I.5)

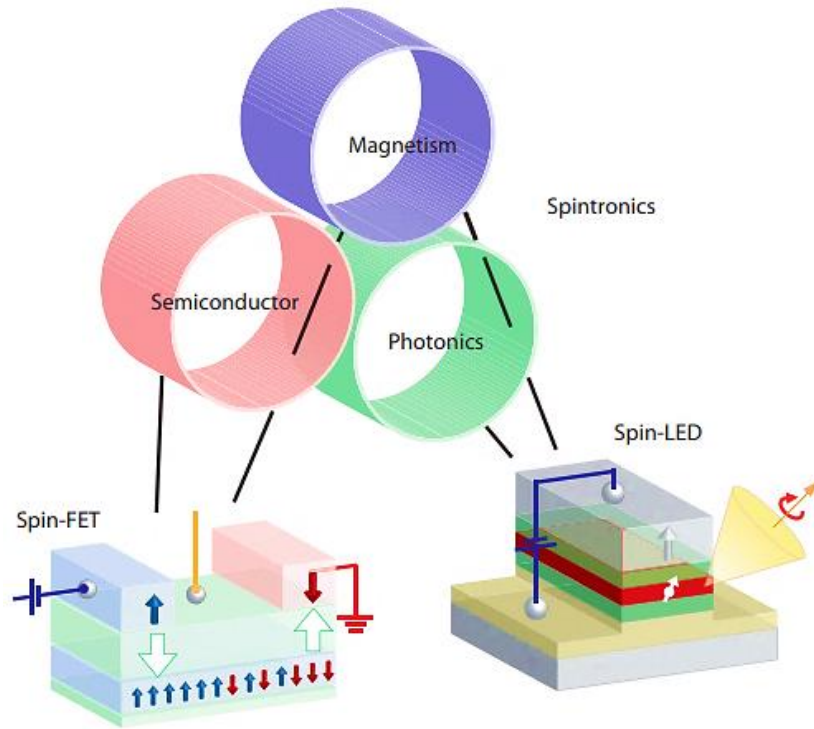


Figure I.5 : Illustration conceptuelle des dispositifs électroniques basés sur le spin. Dans un spin-FET, des électrons polarisés en spin sont injectés depuis une électrode ferromagnétique appelée source dans un semi-conducteur puis détectés à l'aide d'une deuxième électrode ferromagnétique appelée drain. Dans une spin-LED, une émission de lumière polarisée circulairement se produit après injection d'un courant polarisé en spin¹⁶.

L'ajout du degré de liberté de spin à l'électronique conventionnelle basée sur la charge des semi-conducteurs permettra d'améliorer de façon substantielle les performances des dispositifs électroniques. Ainsi, le transport basé sur des courants de spin purs pourrait conduire à un transfert d'informations sans dissipation. D'autres avantages seraient la non-volatilité, une vitesse de traitement des données accrue et une consommation d'énergie électrique réduite par rapport aux dispositifs semi-conducteurs conventionnels. Pour faire fonctionner un dispositif utilisant le spin, trois processus clé sont nécessaires : l'injection électrique efficace de porteurs de charges polarisés en spin à partir d'un contact ferromagnétique dans un semi-conducteur, le contrôle et la manipulation de spins pour atteindre la fonctionnalité désirée et enfin la détection efficace de spin. L'état de l'art résumant tous les travaux réalisés sur les spin-LEDs depuis 1999 (date du premier dispositif) est développé plus tard.

I.2.1 Structure de bande de l'arséniure de Gallium (GaAs)

Pour un semiconducteur tridimensionnel, on parle de gap direct lorsque le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction sont situés au même vecteur d'onde k dans l'espace réciproque. Dans le cas contraire, on parle de gap indirect. La nature du gap est particulièrement importante en optoélectronique. Lors de la transition d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction ou lors de la recombinaison entre un électron de la bande de conduction avec un trou de la bande de valence, il est très important de conserver l'impulsion. Dans le cas d'un semiconducteur à gap direct, lors la transition d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction, l'impulsion est automatiquement conservée vue que l'impulsion d'un photon est négligeable devant celle d'un électron. De même, un électron de la bande de conduction peut se recombiner de façon radiative avec un trou de la bande de valence en émettant un photon d'énergie égale au gap. Dans cette thèse, nous nous concentrons uniquement sur le GaAs qui est un semiconducteur à gap direct. Il fait partie de la famille des composés III-V car le gallium fait partie des éléments de la colonne III et l'arsenic de la colonne V dans la classification périodique des éléments. Il possède une structure zinc blende et du fait de son gap direct, c'est un très bon émetteur de lumière. L'approximation parabolique au point $\vec{k} = \vec{0}$ de la structure de bande du GaAs est donnée figure I.6(b). Notons que pour un semiconducteur massif de type zinc blende comme le GaAs, les états électroniques correspondant aux trous lourds et aux trous légers sont dégénérés au point Γ mais possèdent des courbures différentes. Chaque bande ou sous-bande d'énergie est associée à un moment angulaire, noté J . La bande de conduction a un caractère de type s , la dégénérescence de spin est égale à 2. Un électron peut donc occuper des états de moment angulaire de spin $m_j = \pm 1/2$. La bande de valence a un caractère de type p , la dégénérescence de spin est cette fois égale à 4. Le trou peut donc occuper des états de moment angulaire $m_j = \pm 1/2, \pm 3/2$, correspondants aux « trous légers » et aux « trous lourds ». Lors de la recombinaison radiative des paires électrons-

trous, la projection du moment angulaire du photon émis m_j vaut ± 1 . Par convention, un photon possédant un moment angulaire $m_j = +1$ a une polarisation circulaire droite σ^+ et celui avec $m_j = -1$ a une polarisation circulaire gauche σ^- .

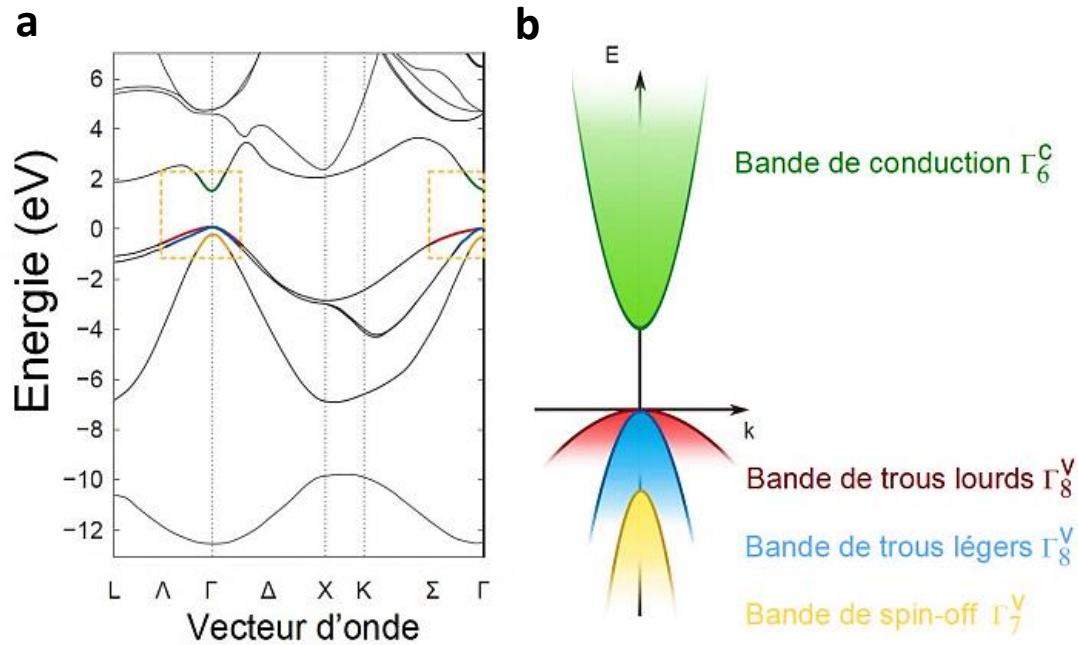


Figure I.6 : Structure de bande du GaAs : a) Calcul k-p sur l'ensemble de la zone de Brillouin, b) Approximation parabolique au voisinage du point Γ ($\vec{k} = \vec{0}$)¹⁷.

I.2.2 Le problème de désaccord d'impédance

I.2.2.1 Accumulation de spin à l'interface FM/NM

Dans le domaine de la spin-optoélectronique, l'injection efficace de spin à partir d'un matériau ferromagnétique ou d'un semi-conducteur magnétique dilué est cruciale. Une injection efficace a été obtenue avec des semi-conducteurs magnétiques dilués tels que le ZnMnSe¹⁸ ou le GaMnAs¹⁹. Cependant, la température de Curie très faible des semiconducteurs magnétiques dilués est un obstacle pour le fonctionnement des dispositifs à température ambiante ^{20, 21}. Une alternative pourrait être l'utilisation de métaux de transition ferromagnétiques tels que le Co ou le Fe. En plus d'avoir des polarisations de spin élevés, ces métaux sont caractérisés par une température de Curie bien supérieure à la température

ambiante, ce qui fait d'eux d'excellent candidats pour l'injection de spin à température ambiante. Dans ce cas, on se heurte cependant à un autre problème : la différence de conductivité entre le métal et le semi-conducteur nuit à l'injection efficace de spin dans les semi-conducteurs. En raison de sa conductivité très faible, le semi-conducteur ne peut accepter que très peu de porteurs par rapport à ceux que le métal peut fournir. Des nombres égaux d'électrons de spin \uparrow et de spin \downarrow sont injectés, de sorte que peu importe la polarisation initiale du métal ferromagnétique, la polarisation de spin est nulle dans le semi-conducteur. C'est ce qu'on appelle le problème de désaccord d'impédance. Certains chercheurs ont tenté de comprendre le mécanisme de dépolarisation empêchant une injection efficace dans le SC et de proposer des solutions^{22,23,24}. En 2000, Schmidt et al.²⁵ ont été les premiers à mettre en évidence la difficulté d'injecter électriquement des spins dans un semi-conducteur à partir d'une couche ferromagnétique utilisée pour polariser les électrons. On peut décrire ce problème en utilisant un modèle à deux canaux généralement utilisé pour décrire l'écoulement d'un courant polarisé en spin dans les métaux ferromagnétiques²⁶. Dans ce modèle, les électrons de spin "majoritaire" ou "spin-up" circulent dans un canal, tandis que les électrons de spin "minoritaire" ou "spin-down" circulent dans l'autre canal. Le concept d'accumulation de spin est illustré dans la figure I.7. Lorsqu'un courant de charge traverse l'interface entre un matériau ferromagnétique et un matériau non magnétique, une accumulation de spin se produit à l'interface. Du côté du métal ferromagnétique, le courant est plus important pour l'un des deux canaux de spin. Du côté non magnétique, le courant est égal dans pour les deux canaux de spin. L'ajustement nécessaire implique qu'à proximité de l'interface, les électrons de spin \uparrow se transforment en spin \downarrow , ce qui implique un transfert de courant entre le canal de spin \uparrow vers le canal de spin \downarrow , créant une zone appelée zone d'accumulation de spin. Ce transfert est possible grâce à l'accumulation de spin dans la région de l'interface, c'est-à-dire une séparation $\Delta\mu$ entre les potentiels électrochimiques des porteurs de spin \uparrow et \downarrow , comme le montre la figure I.7(b)

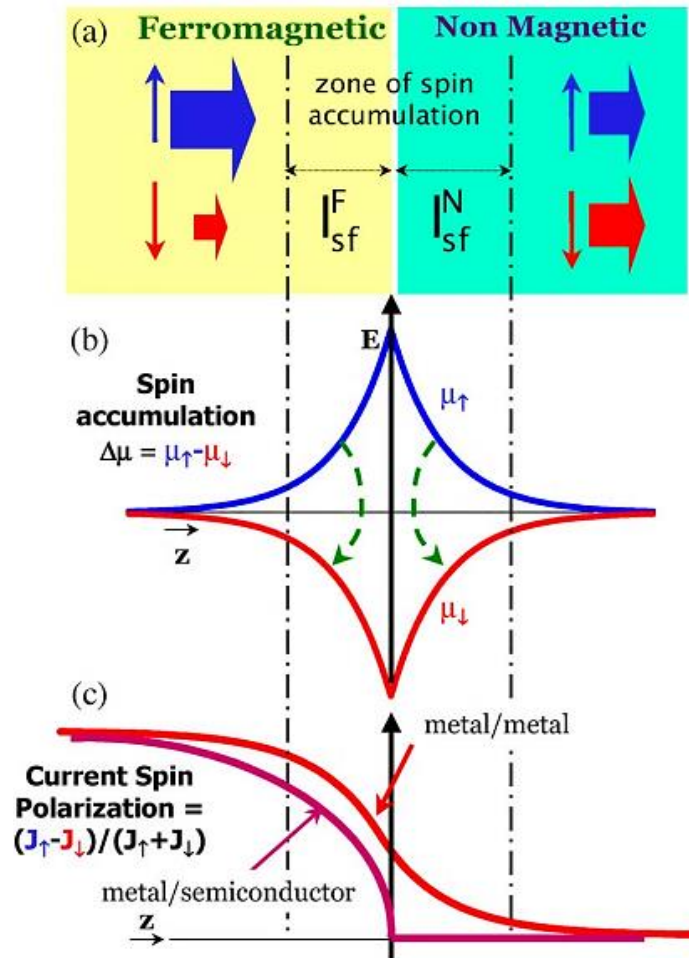


Figure I.7 : (a) Courant de spin \uparrow et de spin \downarrow loin de l'interface FM/NM (b) Séparation des potentiels chimiques μ_{\uparrow} et μ_{\downarrow} près de l'interface FM/NM. Les flèches vertes en pointillé symbolisent le transfert de courant entre les deux canaux par les retournements de spin. (c) Variation de la polarisation du spin du courant lorsque qu'il y a un équilibre approximatif entre les retournements de spin des deux côtés (métal FM/métal NM) et lorsque les retournements de spin du côté FM sont prédominants (par exemple, métal/semi-conducteur)²⁶

La différence de potentiel chimique et la distribution hors équilibre des électrons polarisés en spin entraînent des retournements de spin nécessaires pour ajuster les flux entrants et sortants des électrons de spin \uparrow et spin \downarrow . La dépolarisation progressive du courant du côté NM est due aux retournements de spin liés à l'accumulation de spin à l'interface FM/NM. Lorsque le FM et le NM sont deux métaux avec une densité d'états et une longueur de diffusion de spin à peu près équivalentes (Co et Cu par exemple), le nombre de retournements de spin est à peu près le même de chaque côté. La polarisation de spin à l'interface correspond à la moitié de sa valeur

maximale dans le métal ferromagnétique, soit environ $\beta/2$ ²². En revanche, lorsque le FM est un métal et le NM un semi-conducteur, la densité d'états est beaucoup plus élevée dans le FM. Pour des temps de relaxation de spin similaires dans le FM et NM, cela conduit à un nombre de retournements de spin beaucoup plus élevés dans le FM, de sorte que la dépolarisation du courant électronique se produit dans le FM avant l'interface (Fig. I.7(c)). La même dépolarisation se produit également si les densités d'états sont similaires mais la durée de vie du spin est beaucoup plus courte dans le ferromagnétique. Plusieurs groupes ont effectué des calculs pour aborder cette question et fournir un traitement plus quantitatif. La polarisation du courant à l'interface est définie par^{22,22,24}:

$$(SP)_{Interface} = \frac{J_{\uparrow} - J_{\downarrow}}{J_{\uparrow} + J_{\downarrow}} = \frac{\beta}{1 + r_N / r_F} \quad (I.2)$$

J_{\uparrow} et J_{\downarrow} correspondent aux densités de courant des électrons de spin \uparrow et de spin \downarrow , respectivement. Les résistances spécifiques r_i sont définies par le produit de la résistivité correspondante $\rho_i \propto N(E_F)^{-1}$ et de la longueur de diffusion de spin l_{sf}^i avec $r_N = \rho_N^* l_{sf}^N$ et $r_F = \rho_F^* l_{sf}^F$ pour le matériau non magnétique et ferromagnétique, respectivement. Les résistivités des canaux de spin majoritaires (\uparrow) et minoritaires (\downarrow) dans le matériau non magnétique et le ferromagnétique sont données sous la forme $\rho_{\uparrow(\downarrow)} = 2\rho_N^*$ et $\rho_{\uparrow(\downarrow)} = 2[1 \mp \beta]\rho_F^*$. A partir de l'équation (I.2), on constate que le courant est presque complètement dépolarisé lorsqu'il entre dans le semi-conducteur puisque $r_N \gg r_F$. Une même dépolarisation se produit également lorsque la longueur de diffusion de spin est beaucoup plus longue dans le semi-conducteur.

I.2.2.2 Injection de spin à travers une barrière tunnel

Afin de rétablir la polarisation de spin à l'intérieur du semi-conducteur, il est nécessaire d'augmenter l'accumulation de spin du côté NM par rapport à sa valeur côté FM. Cette

dissymétrie dans la répartition des spins peut être induite par une résistance d'interface sélective en spin de la forme $r_{\uparrow(\downarrow)} = 2r_b^*(1 \mp \gamma)$ (semblable à une résistance de jonction tunnel ; γ est la notation habituelle pour l'asymétrie de spin d'interface dans CPP-GMR). L'introduction d'une résistance à l'interface induit, en général, une discontinuité suffisamment importante et dépendante du spin, des potentiels électrochimiques à l'interface. Par ailleurs, elle conduit à une augmentation de l'accumulation de spin du côté NM autorisant ainsi plus de retournements de spin du côté NM. Il en résulte une restauration de la polarisation du courant dans NM. Avec une telle résistance d'interface dépendante du spin, la polarisation de spin du courant à l'interface dans la limite des petits courants s'écrit^{22,22,24}:

$$(SP)_{Interface} = \frac{J_{\uparrow} - J_{\downarrow}}{J_{\uparrow} + J_{\downarrow}} = \frac{\beta r_F + \gamma r_b^*}{r_F + r_N + r_b^*} \quad (I.3)$$

Celle-ci diminue de façon exponentielle du côté non magnétique. L'équation (I.3) exprime l'augmentation progressive de la polarisation de spin à mesure que la résistance interfaciale r_b^* augmente pour les électrons entrants et sortants de NM. La figure I.8 montre la variation de la polarisation pour la valeur seuil de la résistance $r_b^* = r_N$. Nous voyons à partir de l'équation (I.3) que la polarisation de spin à l'interface est donnée par $\gamma/2$. Dans la limite $r_b^* \gg r_N + r_F$ d'après l'équation (I.3), la polarisation de spin à l'interface est simplement le coefficient d'asymétrie de spin de la résistance d'interface γ . La résistance très élevée requise par la condition précédente associée à un coefficient d'asymétrie de spin significatif, peut être obtenue avec une jonction tunnel, c'est-à-dire en introduisant une couche isolante ultra-fine entre le métal ferromagnétique et le semi-conducteur. Deux types de barrières tunnel ont été utilisés avec succès. La première consiste en une barrière Schottky métal/SC dopé permettant ainsi d'adapter la courbure de bande dans le semi-conducteur^{27,28,29}. Le deuxième type de barrière tunnel est composé d'une couche mince d'isolant (oxydes, Al_2O_3 ou MgO) qu'on insère entre la couche ferromagnétique et le semi-conducteur non magnétique^{30,31,32}.

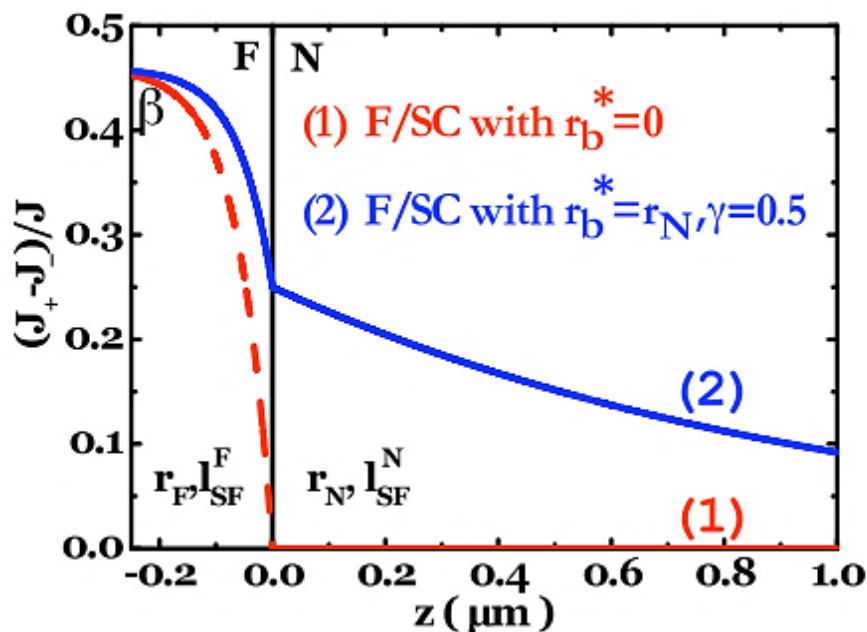


Figure I.8 : Polarisation du spin à l'interface entre un métal ferromagnétique FM et un semi-conducteur NM²⁶.

I.4 Spin-LED à base de GaAs : état de l'art

I.4.1 Principe d'une spin-LED

Une diode électroluminescente à injection de spin (ou spin-LED) est constituée d'une diode électroluminescente classique p-i-n sur laquelle on dépose un injecteur de spin. L'injecteur de spin lui-même est constitué de trois couches : une couche isolante, en général le MgO qui sert de barrière tunnel et qui permet de s'affranchir du problème de désaccord de conductance entre le métal et le semi-conducteur, une couche ferromagnétique qui permet d'injecter des électrons polarisés en spin et d'un métal lourd dont le rôle sera discuté plus tard. La structure LED proprement dite est constituée d'une zone dopée n et d'une zone dopée p séparés par une région intrinsèque, non dopée (Fig. I.9). Cette dernière est constituée soit de couches de puits quantiques soit, dans notre cas, d'une couche unique de boîtes quantiques InAs/GaAs. Dans une LED classique, les électrons et les trous se recombinent dans la région intrinsèque

conduisant à l'émission de lumière lorsque la diode est polarisée dans le sens direct. Cette lumière est non polarisée, car tous les états de spin des porteurs sont également peuplés.

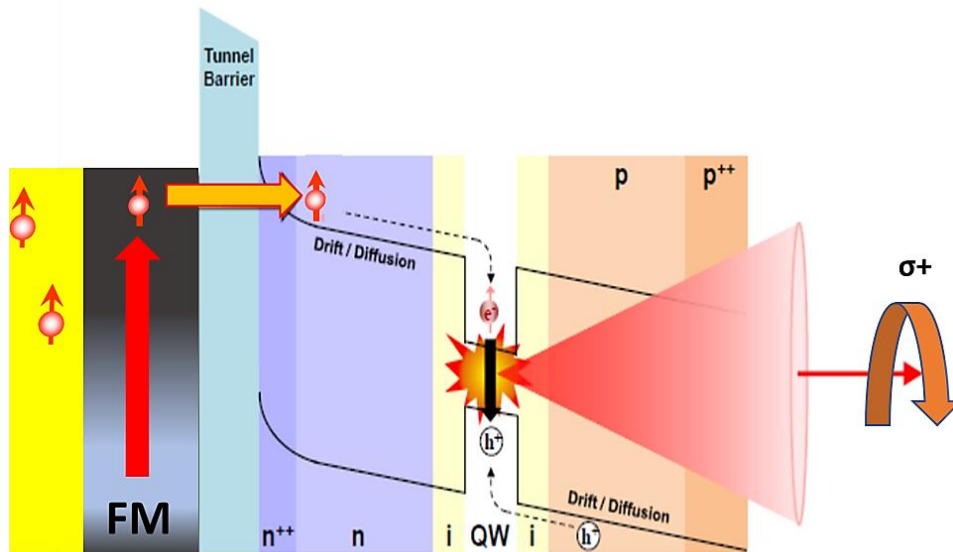


Figure I.9 : Schéma du principe de fonctionnement d'une spin-LED [adapté de⁵]

Si l'on rajoute un injecteur de spin sur une LED, le courant de charge devient polarisé en spin lors de la traversée de la couche ferromagnétique. Ce courant de spin va ensuite traverser la barrière de MgO par l'effet tunnel, puis il va être injecté dans la bande de conduction du semi-conducteur. Après diffusion, les électrons polarisés en spin vont se recombiner de façon radiative dans la région intrinsèque avec des trous non polarisés en spin. Ceci conduit à l'émission d'une lumière polarisée circulairement qui dépend du sens de l'aimantation de la couche ferromagnétique. L'aimantation de la couche ferromagnétique permet de contrôler le spin des électrons injectés et par conséquent la polarisation circulaire de la lumière émise. Une information de spin est donc convertie en une émission de lumière polarisée circulairement. Trois configurations de mesure sont possibles pour la caractérisation des sources de lumière polarisée circulairement (Fig. I. 10) : Celle de Faraday, de Voigt et celle utilisant l'effet Hanle oblique. Pour une détection de surface (i.e configuration de Faraday) que nous utiliserons dans cette thèse, il est important d'avoir une aimantation orientée perpendiculairement au plan des couches. Il s'agira donc d'optimiser la couche ferromagnétique (épaisseur, température de

recuit) afin d'obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire. La couche de Ta déposé au-dessus de la couche ferromagnétique de CoFeB aura trois fonctions : premièrement, elle permet d'absorber les atomes de B qui diffusent dans la couche de Ta pendant le recuit. Cela va permettre la cristallisation du CoFeB sur MgO et l'obtention de l'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA). Deuxièmement, elle sert à protéger la couche ferromagnétique contre toute oxydation et troisièmement, elle a été choisie pour son fort couplage spin-orbite.

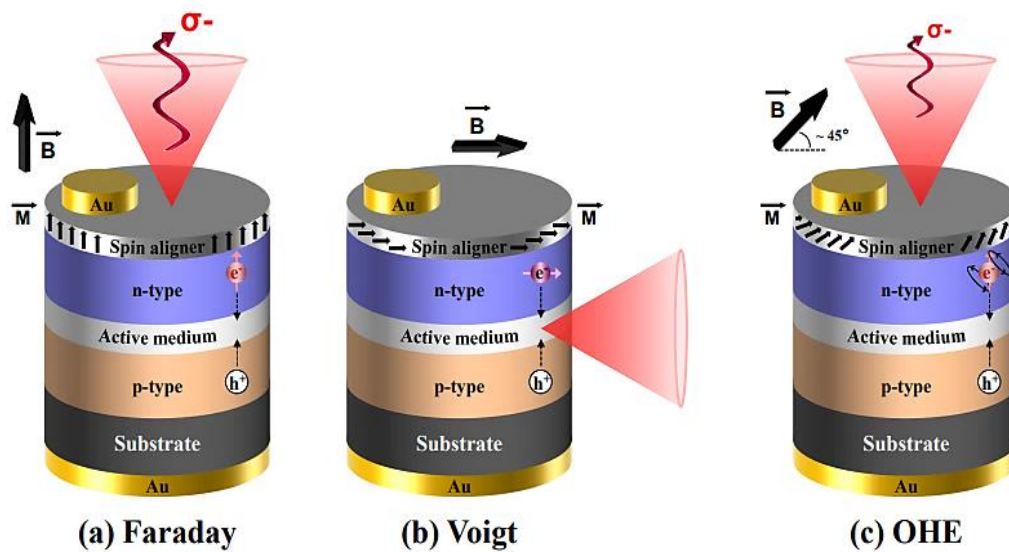


Figure I.10 : Représentation schématique d'une spin-LED pour les configurations de (a) Faraday, (b) Voigt et (c) effet Hanle oblique⁵.

I.2.3 Les règles de sélection optique et l'efficacité d'injection

Dans les spin-LEDs, l'émission de lumière polarisée circulairement provient de recombinaisons radiatives entre électrons polarisés en spin et trous non polarisés confinés dans des puits ou des boîtes quantiques. La polarisation de spin est directement liée à la polarisation optique à travers les règles de sélection quantique optique régissant les recombinaisons radiatives. Il existe une relation de proportionnalité entre la polarisation de spin du courant injecté P_s et la polarisation de la lumière émise P_c lorsque l'aimantation de la couche ferromagnétique et la direction de mesure optique sont parallèles à l'axe de quantification des

puits quantiques (direction de croissance)⁵. Pour un semiconducteur massif de type zinc blende comme le GaAs, les états électroniques correspondant aux trous lourds et aux trous légers sont dégénérés au point Γ comme discuté précédemment. Les règles de sélection optiques du moment angulaire m_j ($\Delta m_j = \pm 1$) sont sélectives en spin. Quatre processus de recombinaison différents sont autorisés, deux d'entre eux impliquent un trou lourd, les autres impliquent un trou léger. D'après les règles de sélection optiques, un électron avec $m_j = +1/2$ ne peut se recombiner qu'avec un trou léger avec $m_j = -1/2$ ou un trou lourd avec $m_j = +3/2$, conduisant à l'émission d'un photon de polarisation circulaire σ^+ pour le trou léger et σ^- pour le trou lourd (Figure I.11(a)). Pour l'électron avec $m_j = -1/2$, les signes ainsi que l'orientation des polarisations sont inversés. D'après la règle d'or de Fermi, la probabilité de transition est proportionnelle au carré de l'élément de matrice pris entre l'état initial et l'état final. Dans le cas d'un électron avec $m_j = +1/2$, la probabilité de recombinaison avec un trou lourd ($m_j = +3/2$) est trois fois plus importante qu'avec un trou léger ($m_j = -1/2$). Cela conduit à l'émission de lumière polarisée circulairement gauche (σ^-). Dans le cas d'un électron avec $m_j = -1/2$, la probabilité de recombinaison avec un trou lourd ($m_j = -3/2$) est trois fois plus importante qu'avec un trou léger ($m_j = +1/2$). Cela conduit à l'émission de lumière polarisée circulairement droite (σ^+). Si les électrons dans la bande de conduction sont partiellement polarisés en spin, la polarisation de spin est définie comme suit :

$$P_s = \frac{n^\uparrow - n^\downarrow}{n^\uparrow + n^\downarrow} \quad (I.4)$$

où n^\uparrow ($m_j = 1/2$) et n^\downarrow ($m_j = -1/2$) sont les densités de spin up et spin down respectivement. Dans ce cas, la recombinaison radiative avec des trous non polarisés conduira à une polarisation circulaire de la lumière émise. La polarisation circulaire nette P_c de la lumière émise est facilement déterminée à partir des intensités mesurées des composantes d'hélicité positive et négative de l'électroluminescence $I(\sigma^+)$ et $I(\sigma^-)$.

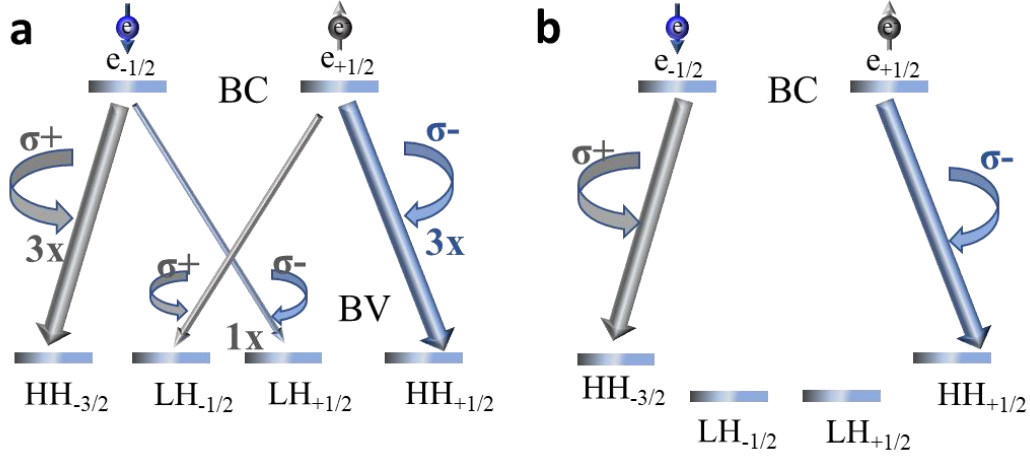


Figure I.11 : a) Transitions interbandes radiatives et polarisations optiques correspondantes permises par les règles de sélection $\Delta m_j = \pm 1$ (géométrie de Faraday) pour le cas du GaAs massif. LH (HH) représente les sous-bande des trous légers (trous lourds), $e_{+1/2}$ ($e_{-1/2}$) : électron de spin « up » (« down » respectivement). b) Transitions interbandes radiatives et polarisations optiques dans le cas d'une hétérostructure comportant des puits quantiques InGaAs/GaAs. La dégénérescence de la bande de valence au point Γ est partiellement levée, de sorte que les états correspondants aux trous lourds ($m_j = \pm 3/2$) sont situés à plus faible énergie que les états correspondants aux trous légers ($m_j = \pm 1/2$).

$$P_c = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)} = \frac{(3n^\downarrow + n^\uparrow) - (3n^\uparrow + n^\downarrow)}{(3n^\downarrow + n^\uparrow) + (3n^\uparrow + n^\downarrow)} = \frac{1}{2} \frac{n^\downarrow - n^\uparrow}{n^\uparrow + n^\downarrow} = -\frac{1}{2} P_s \quad (\text{I.5})$$

Le degré de polarisation circulaire de la lumière émise correspond à 50 % de la polarisation des spins électroniques. Ce résultat est valable tant que l'on considère à la fois les transitions vers les trous légers et les trous lourds.

Cependant, dans une hétérostructure comportant des puits quantiques (MQW), les contraintes élastiques et/ou le confinement quantique va permettre de lever la dégénérescence de la bande de valence au point Γ . Par conséquent, les niveaux d'énergie correspondants aux trous lourds et aux trous légers vont alors être séparés de plusieurs meV. Cette différence d'énergie est beaucoup plus grande que l'énergie thermique à basse température ($\sim 0,36$ meV à 4,2 K)¹⁵, de sorte que les états correspondants aux trous légers à plus haute énergie ne sont pas occupés (Fig. I.11(b)). Dans ce cas, seuls les trous lourds participent au processus de recombinaison radiative et P_c est calculé comme précédemment :

$$P_c = \frac{n^\downarrow - n^\uparrow}{n^\uparrow + n^\downarrow} = -P_s \quad (\text{I.6})$$

Dans ce cas, P_c est égal à la polarisation du spin des électrons et peut atteindre -1. Néanmoins, notons qu'après l'injection à l'interface, les porteurs de spin polarisés parcourent une certaine distance jusqu'à la zone active, puis la recombinaison radiative a lieu après un certain temps qu'on note τ appelé temps de vie radiatif. Durant ce laps de temps, il existe des processus de relaxation du spin qui limitent le temps de vie du spin. Plusieurs mécanismes sont à l'origine de ces processus de relaxation: les mécanismes Elliot-Yafet, Dyakonov-Perel ou Bir-Aronov-Pikus qui sont développés en détails dans les références^{5,15}. La polarisation du spin décroît exponentiellement avec le temps selon $\exp(-t/\tau_S)$, où τ_S est le temps de vie du spin. Si le temps de vie du spin τ_S est plus petit que le temps de recombinaison des porteurs τ , le degré de polarisation P_c diminue. Le degré de polarisation circulaire P_c est généralement proportionnel à la polarisation des spins électroniques. On a généralement :

$$P_C = \frac{P_e}{1 + \frac{\tau}{\tau_S}} = F P_e \quad (I.7)$$

Où P_e est la polarisation de spin des porteurs injectés dans le semi-conducteur ; F est un facteur de renormalisation qui tient compte de la variation relative du temps de vie du spin τ_S et du temps de vie des porteurs de charges τ .

I.4.2 Etat de l'art sur les spin-LEDs à base de GaAs

Les premières mises en évidence expérimentales de l'injection de spin dans une diode électroluminescente ont été publiées en même temps et de façon indépendante par Fiederling et al.¹⁸ et Ohno et al.¹⁹ en 1999. Ces auteurs ont utilisé des semi-conducteurs magnétiques dilués (DMS) comme injecteur de spin sur une diode comportant des puits quantiques. Depuis ces travaux, beaucoup d'études ont été menées conduisant à une évolution très rapide dans ce domaine. Nous avons recensé dans le tableau ci-dessous les principaux travaux sur les spin-LED publiés depuis 1999. Deux types de dispositifs ont été étudiés selon la façon dont la

lumière émise est détectée. Pour le premier type de dispositifs, la lumière est détectée à partir de la surface (géométrie de Faraday, Fig. I.10(a)). Pour le deuxième type de dispositifs, la lumière émise est détectée à partir du côté (géométrie de Voigt, Fig. 10(b)). La plupart des spin-LED sont basés sur la géométrie de Faraday. Celle-ci présente l'avantage d'une relation directe entre l'état de spin des porteurs injectés et l'émission de lumière polarisée circulairement. De plus, elle permet de collecter aisément la lumière émise tout en permettant l'intégration d'une plus grande densité de dispositifs. En utilisant cette géométrie, Fiederling et al. ont obtenu un taux de polarisation circulaire de 86 % à 1,5 K en utilisant comme injecteur de spin un semi-conducteur magnétique dilué BeZnMnSe (DMS). Sa température de Curie étant très faible, il n'est pas possible d'injecter efficacement des porteurs de charge polarisés en spin à température ambiante. Il en est de même pour Ohno et al. qui ont utilisé le semi-conducteur ferromagnétique GaMnAs comme injecteur et ont obtenu une injection de spin dans le GaAs avec une efficacité de l'ordre de 1% à basse température. En utilisant un injecteur ferromagnétique à base de CoFe/MgO déposé sur une LED à puit quantique, Jiang et al.³³ ont obtenu un taux de polarisation circulaire $P_c = 32\%$ à 290 K. Dans ce cas, un fort champ magnétique externe de 5 T a été utilisé pour orienter l'aimantation perpendiculairement au plan des couches. En utilisant une barrière Schottky Fe/(Al)GaAs, Hanbicki et al.³⁴ ont obtenu un taux de polarisation circulaire $P_c = 30\%$ à 240 K. Dans ce cas, un champ magnétique de 3 T a également été utilisé pour orienter l'aimantation perpendiculairement au plan des couches. Cependant, pour de futures applications, il sera nécessaire de contrôler la polarisation de la lumière émise sans champ magnétique externe. En d'autres termes, l'injecteur de spin doit posséder une anisotropie magnétique perpendiculaire afin de pouvoir faire des mesures à la rémanence. Cela peut paraître difficile à réaliser en utilisant la géométrie de Faraday. En revanche, la géométrie de Voigt permet d'aligner la direction d'émission et celle de l'aimantation. Cependant, elle nécessite des structures actives adaptées pour obtenir une polarisation circulaire de la lumière.

État de l'art : De la spintronique à la spin-optoélectronique

En 2005, Chabarati et al.³⁵ ont développé un injecteur de spin basé sur le Mn dopé possédant une anisotropie magnétique perpendiculaire. Ils ont obtenu un taux de polarisation circulaire égale à 6 % à 28 K et à la rémanence. En 2008, Hovel et al.³⁶ ont obtenu un taux de polarisation circulaire $P_c = 3\%$ à température ambiante en utilisant comme injecteur de spin une multicouche à base de terres rares $\text{Cr}/(\text{Fe}/\text{Tb})_{10}$. En 2016, un nouveau record mondial pour les spin-LED fonctionnant à la rémanence et à température ambiante a été obtenu par Tao et al.³⁷. Ces auteurs ont obtenu un taux de polarisation circulaire $P_c = 8\%$ à température ambiante en utilisant comme injecteur de spin une tricouche $\text{MgO}/\text{CoFeB}/\text{Ta}$ sur une structure LED comportant des puits quantiques $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ en géométrie de Faraday. Cependant, dans tous ces travaux, le champ magnétique est toujours utilisé pour contrôler l'aimantation de l'injecteur de spin et donc la polarisation circulaire. Ceci constitue une limitation forte pour des applications futures. Dans cette thèse, nous utilisons une nouvelle approche qui consiste à privilégier la géométrie de Faraday pour développer des injecteurs de spin possédant une anisotropie magnétique perpendiculaire.

Table 1. Spin-LED dans la géométrie de Faraday (adapté de Ref.³⁸)

Injecteur de spin	Anisotropie magnétique	Contact	Emetteur	Polarisation circulaire (%)	Ref.
BeMnZnSe	Dans le plan	Contact ohmique	AlGaAs/GaAs QW	43% (3T, 5K)	Fierderling 1999 ¹⁸
ZnMnSe	Dans le plan	Contact ohmique	AlGaAs/GaAs QW	50% (5T, 4.2K)	Jonker 2000 ³⁹
ZnMnSe	Dans le plan	Contact ohmique	GaAs/InGaAs QW	35% (6T, 5K)	Loffler 2005 ⁴⁰
ZnMnSe	Dans le plan	Contact ohmique	GaAs/InAs single QD	60% (4T, 3.7K)	Ghali 2007 ⁴¹
ZnMnSe	Dans le plan	Contact ohmique	GaAs/InAs single QD	83% (2T, 5K) 96% (6T, 5K)	Asshoff 2011 ⁴²

État de l'art : De la spintronique à la spin-optoélectronique

CdCr ₂ Se ₄	Dans le plan	Contact ohmique	AlGaAs/GaAs QW	4% (1T, 5K)	Kioseoglou 2004 ⁴³
GaMnAs	Dans le plan	Contact ohmique	GaAs/InGaAs QW	4% (2.5T, 5K)	Young 2002 ⁴⁴
MnAs	Dans le plan	Barrière Schottky	GaAs/InGaAs QW	1% (1T, 80K)	Ramsteiner 2002 ⁴⁵
MnAs	Dans le plan	Barrière Schottky	GaAs/InAs single QD	8% (1.5T, 5K)	Bhattacharya 2010 ⁴⁶
Co ₂ MnGe	Dans le plan	Barrière Schottky	AlGaAs/GaAs QW	13% (1T, 2K)	Dong 2005 ⁴⁷
Co _{2.4} Mn _{1.6} Ga	Dans le plan	Barrière Schottky	GaAs/InGaAs QW	13% (0.5T, 5K)	Hickey 2005 ⁴⁸
Co ₂ FeSi	Dans le plan	Barrière Schottky	AlGaAs/GaAs QW	17% (2T, 20K)	Ramsteiner 2008 ⁴⁹
Fe	Dans le plan	Barrière Schottky	GaAs/InGaAs QW	2% (5T, 300K)	Zhu 2001 ⁵⁰
Fe	Dans le plan	Barrière Schottky	AlGaAs/GaAs QW	13% (3T, 4.5K)	Hanbicki 2002 ³⁴
Fe	Dans le plan	Barrière Schottky	AlGaAs/GaAs QW	30% (2.5T, 2K) 10% (2.5T, 295K)	Adelmann 2005 ⁵¹
Fe	Dans le plan	Barrière MgO	AlGaAs/GaAs QW	9% (1.3T, 300K)	Manago 2007 ⁵²
Fe	Dans le plan	Barrière Schottky	GaAs/InAs multi wetting layer	27% (2T, 5K)	Li 2007 ⁵³
Fe	Dans le plan	Barrière AlO _x	AlGaAs/GaAs single and multi (110) QW	4% (3T, 40K) SQW 2.6% (3T, 300K) MQW	Yokota 2015 ⁵⁴
Fe	Dans le plan	Barrière Al ₂ O ₃ et Barrière Schottky	AlGaAs/GaAs 50nm	20% (2T, 5K) (Al ₂ O ₃ barriere) 15% (2T, 5K) (Barrière Schottky)	van't Erve 2004 ⁵⁵
Fe	Dans le plan	Barrière Schottky	GaAs/InAs QD	5% (2T, 5K)	Li 2005 ⁵⁶
Fe	Dans le plan	Barrière Schottky	GaAs/InAs QD	4% (0.06T, 15K)	Itskos 2006 ⁵⁷
Fe	Dans le plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs MQD	8% (2.2T, 298K)	Etou 2021 ⁵⁸

État de l'art : De la spintronique à la spin-optoélectronique

Fe	Dans le plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs QD couplé to Ga(N, As) QW	7% (2.2T, 295K)	Etou 2023 ⁵⁹
Co	Dans le plan	Barrière Schottky	AlGaAs/GaAs QW	4% (0.8T, 22K)	Liu 2003 ⁶⁰
Co	Dans le plan	Barrière Al ₂ O ₃	GaAs/InAs QD	15% (2T, 1.7K)	Lombes 2007 ⁶¹
Co,Fe,NiFe	Dans le plan	Barrière Al ₂ O ₃	AlGaAs/GaAs QW	0.5% (1.3T, 300K)	Manago 2002 ⁶²
CoFe	Dans le plan	Barrière Al ₂ O ₃	AlGaAs/GaAs 100nm	2 (0.6T, 80K)	Motsnyi 2002 ⁶³
CoFe	Dans le plan	Barrière Al ₂ O ₃	AlGaAs/GaAs QW	4% (0.5T, 80K)	Motsnyi 2003 ⁶⁴
CoFe	Dans le plan	Barrière AlO _x	AlGaAs/GaAs 100nm	1% (0.6T, 300K)	Dorpe 2003 ⁶⁵
NiFe	Dans le plan	CoFe/Al ₂ O ₃ /CoFe/NiFe	GaAs/InGaAs QW	10% (2T, 1.4K)	Jiang 2003 ⁶⁶
Co ₇₀ Fe ₃₀	Dans le plan	Barrière MgO	AlGaAs/GaAs QW	52% (5T, 100K) 32% (5T, 290K)	Jiang 2005 ³³
Co ₇₀ Fe ₃₀	Dans le plan	Barrière MgO	AlGaAs/GaAs QW	30% (0.8T, 290K)	Salis 2005 ⁶⁷
CoFeB	Dans le plan	Barrière MgO	AlGaAs/GaAs QW	32% (0.8T, 100K)	Lu 2008 ⁶⁸
CoFeB	Dans le plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs QW	24% (0.8T, 25K)	Barate 2014 ⁶⁹
CoFeB	Dans le plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs QW	21% (0.8T, 25K) 20% (0.8T, 250K)	Barate 2017 ⁷⁰
Fe	Dans le plan	Barrière Al ₂ O ₃	Si p-i-n	3.5% (2T, 5K)	Jonker 2007 ⁷¹
GaCrN	Dans le plan	Contact ohmique	GaN/InGaN 40nm	6% (1T, 5K) 2.5% (0.05T, 200K)	Banerjee 2013 ⁷²
Ni-Fe ₃ O ₄ nanoparticl es	Dans le plan	Schottky contact	GaN/InGaN MQW	11% (0.35T, 300K)	Chen 2014 ⁷³
Fe	Dans le plan	Barrière Al ₂ O ₃	In _{0.01} Ga _{0.99} N/In _{0.25} Ga _{0.75} N MQW	9% (0.8T, 300K)	Wu 2019 ⁷⁴
NiFe	Dans le plan	Schottky contact	MoS ₂ /WSe ₂	20% (5T, 4.2K)	Sanchez 2016 ⁷⁵

État de l'art : De la spintronique à la spin-optoélectronique

LSMO	Dans le plan	Barrière Schottky	MAPbBr ₃	1% (0.2T, 10K)	Wang 2019 ⁷⁶
Mn-doped InAs QD	Hors du plan	Contact ohmique	GaAs/InGaAs QD	6% (0T, 28K)	Chakrabarti 2005 ³⁵
FePt	Hors du plan	Barrière MgO	AlGaAs/GaAs QW	1.5% (0T, 300K) 11% (1T, 300K)	Sinsarp 2007 ⁷⁷
δ -MnGa	Hors du plan	Barrière Schottky	AlGaAs/GaAs QW	3.5% (0T, 20K)	Adelmann 2006 ⁷⁸
Fe/Tb	Hors du plan	Barrière Schottky	GaAs/InGaAs QW	0.4% (0T, 90K)	Gerhardt 2006 ⁷⁹
Fe/Tb	Hors du plan	Schottky et MgO	AlGaAs/GaAs QW	3.5% (0T, 300K)	Hövel 2008 ³⁶
Fe/Tb	Hors du plan	Barrière MgO	GaAs/InAs QD	2.2% (0T, 295K)	Höpfner 2012 ⁸⁰
Co/Pt	Hors du plan	Barrière MgO	AlGaAs/GaAs QW	2.5% (0T, 20K)	Zarpello 2012 ⁸¹
CoFeB	Hors du plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs MQWs	20% (0T, 25K) 8% (0T, 300K)	Liang 2014 ⁸²
CoFeB	Hors du plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs QW	10% (0T, 10K) 8% (0T, 300K)	Tao 2016 ³⁷
CoFeB	Hors du plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs QD	35% (0T, 9K) (SQD) 25% (0T, 9K) (MQDs)	Cadiz 2018 ⁸³
CoFeB/Mo	Hors du plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs QW	10% (0T, 10K)	Tao 2018 ⁸⁴
CoFeB	Hors du plan	Barrière MgO	GaAs/InGaAs QD	19% (0T, 100K)	Giba 2020 ⁸⁵
MnGa	Hors du plan	Barrière Schottky	GaN/InGaN QW	0.3% (0T, 80K)	Zube 2018 ⁸⁶
GaMnAs	Hors du plan	Barrière Schottky	WS ₂	8% (0T, 10K)	Ye 2016 ⁸⁷
Fe ₃ GeTe ₂	Hors du plan	Barrière hBN	WSe ₂	8% (0T, 78K)	Li 2022 ⁸⁸
Chiral (R-/S-MBA) ₂ PbI ₄	CISS effect	Contact ohmique	CsPb (Br/I) ₃ Nano-crystal	2.6% (0T, 300K)	Kim 2021 ⁸⁹

Table 2. Spin-LED en géométrie d'émission par les bords

Injecteur de spin	Anisotropie magnétique	Contact	Emetteur	Polarisation circulaire (%)	Ref.
GaMnAs	Dans le plan	Contact ohmique	GaAs/InGaAs QW	1% (0T, 6K)	Ohno 1999 ¹⁹
GaMnAs	Dans le plan	Contact ohmique	GaAs/InGaAs QW	0.9% (0T, 5K)	Johnston-Halperin 2002 ⁹⁰
GaMnAs	Dans le plan	Contact ohmique	GaAs/InAs QD	1% (0T, 5K)	Chye 2002 ⁹¹
Fe	Dans le plan	Barrière AlO _x	AlGaAs/InGaAs 500nm	14.5% (0T, 5K)	Nishizawa 2013 ⁹²
Fe	Dans le plan	Barrière AlO _x	AlGaAs/InGaAs 500nm	10% (0T, 5K)	Nishizawa 2014 ⁹³
Fe	Dans le plan	Barrière AlO _x	AlGaAs/GaAs 500nm	10% (0T, 300K)	Nishizawa 2018 ⁹⁴

I.4.3 Applications potentielles des spin-LEDs

Les progrès dans les technologies de l'information et de la communication ont eu un impact considérable sur notre vie quotidienne. Ils s'accompagnent d'une augmentation massive de la puissance nécessaire pour stocker, traiter et transmettre d'énormes quantités de données. Ce problème peut être résolu en codant l'information non seulement dans la charge des électrons, comme le font les dispositifs électroniques conventionnels, mais aussi dans le moment angulaire intrinsèque des électrons (spin). Il est prévu que les mémoires d'ordinateur spintroniques remplaceront les mémoires actuelles. L'information codée dans le spin peut être transmise de façon optique d'où l'intérêt des spin-LEDs. Les sources de lumière polarisées sont particulièrement adaptées à de nombreuses applications. À un niveau fondamental, les sources de lumière polarisées permettent la détection directe des spins dans les hétérostructures semiconductrices. De plus, les spin-LED convertissent l'information de spin électronique en

une émission de lumière polarisée circulairement. Il existe aujourd'hui un fort potentiel d'applications dans les technologies semiconductrices avancées. Nous mentionnons ci-dessous quelques exemples :

- Le transport optique de l'information, permettant de transmettre l'information de spin d'un dispositif à un autre séparés par une longue distance. L'information peut être stockée dans une mémoire magnétique et lue avec une émission de lumière⁹⁵.
- Les spin-LEDs peuvent être utilisées comme commutateurs optiques avancés. La commutation utilisant la polarisation circulaire de la lumière au lieu des états marche/arrêt devrait être beaucoup plus rapide.
- La polarisation circulaire de la lumière émise par les spin-LEDs peuvent également être utilisée pour déterminer la chiralité de l'ADN et pour détecter des cancers⁹⁶
- Les affichages stéréoscopiques basés sur la lumière polarisée circulairement droite et gauche ont déjà été mis en pratique, notamment dans la réalité virtuelle pour les attractions de divertissement.⁹⁷.
- Les spin LEDs peuvent être utilisés dans le domaine de la cryptographie^{98,99}. Dans ces techniques, l'information porté par le spin est transportée en utilisant les deux états de polarisations. Dans les télécommunications optiques classique, l'information est transportée en modulant l'intensité lumineuse. Des informations cryptographiques supplémentaires augmentent à mesure que le chiffrement devient plus compliqué. En revanche, l'utilisation de la polarisation circulaire de la lumière comme la méthode de cryptage offre une alternative efficace pour transmettre les données sans nécessiter une forte augmentation de la quantité d'information. Étant donné que les polarisations circulaires et linéaires peuvent être altérées ou perdues lors d'une interception, cette approche permet de détecter efficacement les tentatives d'écoute clandestines.

Les spin-LEDs pourraient être la première application de la spintronique à base de semi-conducteurs.

Pour toutes ces applications, le fonctionnement des spin-LEDs à température ambiante et sans champ magnétique extérieur est requis. Le développement d'un injecteur de spin possédant une anisotropie magnétique perpendiculaire, pouvant permettre le fonctionnement d'une spin-LED à la rémanence, est donc d'une importance primordiale. Le contrôle de la polarisation de la lumière sans champ magnétique externe ainsi que la détection de la polarisation circulaire de la lumière sont d'autres verrous à lever pour de futures applications.

I.4 Les mécanismes de retournement de l'aimantation par le couplage spin orbite

Cette partie est consacrée à la description de la dynamique de l'aimantation en présence d'un champ magnétique ainsi que des différents mécanismes permettant de comprendre le retournement électrique de l'aimantation via le couplage spin orbite.

I.4.1 Dynamique de l'aimantation : L'équation de Landau-Lifchitz-Gilbert (LLG)

L'équation de Landau-Lifschitz-Gilbert décrit la dynamique de l'aimantation \mathbf{M} autour d'un champ magnétique dans un matériau ferromagnétique. Elle constitue un modèle mathématique fondamental permettant d'étudier l'impact d'un champ magnétique sur un matériau ferromagnétique. À l'origine, L. Landau et E. Lifchitz ont introduit une première équation phénoménologique décrivant la dynamique de l'aimantation lors de leur étude sur le moment magnétique des matériaux ferromagnétiques en 1935¹⁰⁰. Cette équation initiale incluait un terme d'amortissement pour tenir compte des effets relativistes. En 1954, Gilbert a modifié

ce terme d'amortissement en utilisant une approche lagrangienne, plus conforme aux observations expérimentales¹⁰¹. En présence d'un champ magnétique, l'équation s'écrit :

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mu_0(\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \frac{\alpha}{M_s} \left(\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) \quad (\text{I.8})$$

où γ est le rapport gyromagnétique, M_s l'aimantation à saturation, μ_0 la perméabilité du vide, α est le paramètre d'amortissement de Gilbert, \mathbf{H}_{eff} le champ magnétique effectif défini à partir du champ magnétique extérieur appliqué et des énergies d'interaction, qui peut prendre, par exemple, la forme suivante :

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = -\mathbf{H}_0 + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 \mathbf{M} + \mathbf{H}_{\text{dip}} + \mathbf{H}_{\text{ani}} + \mathbf{H}_{\text{DMI}} \quad (\text{I.9})$$

avec \mathbf{H}_0 le champ magnétique externe, $\frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 \mathbf{M}$ le champ démagnétisant, \mathbf{H}_{dip} le champ dipolaire, \mathbf{H}_{ani} le champ d'anisotropie et \mathbf{H}_{DMI} le champ correspondant à l'interaction de Dzyaloshinskii-Moriya. \mathbf{H}_{eff} peut contenir d'autres termes dus à des effets quantiques, etc...

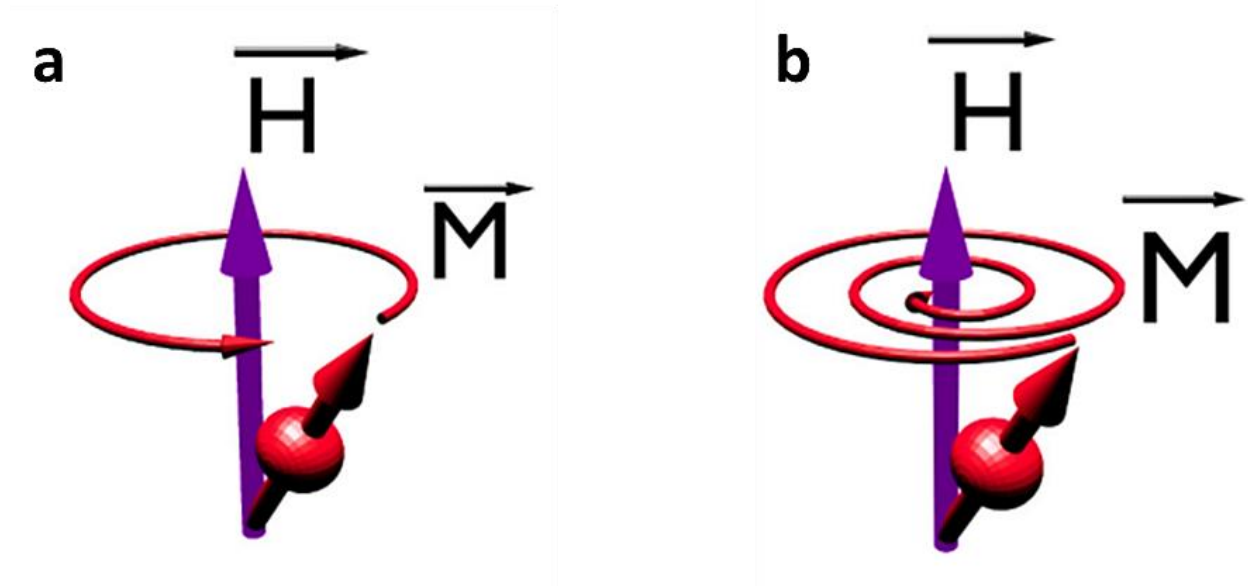


Figure I.12 : a) Précession d'un moment magnétique \mathbf{M} autour d'un champ magnétique effectif \mathbf{H} en l'absence d'amortissement. b) En présence d'amortissement, la précession du moment magnétique est amortie et \mathbf{M} finit par s'aligner avec \mathbf{H} ¹⁰².

Le premier terme de l'équation (I.8) représente la précession de l'aimantation autour du champ magnétique effectif, comme illustré figure I.12(a). Le deuxième terme correspond à l'amortissement de Gilbert, décrit par le paramètre α . L'amortissement permet d'aligner progressivement le moment magnétique avec le champ magnétique effectif, comme illustré à la figure I.12(b). Il tend à diminuer la précession de l'aimantation et à la stabiliser dans la direction du champ magnétique effectif.

I.4.2 Le couple de transfert de spin (STT)

L'objectif du couple de transfert de spin est de renverser l'aimantation d'une couche magnétique avec un courant polarisé en spin dans des multicouches FM1/NM/FM2. Nous savons qu'à l'interface des films FM et NM, une diffusion dépendante du spin se produit. Les électrons ayant la même polarité de spin que la couche FM (appelés électrons de spin majoritaires) sont moins diffusés à l'interface que ceux ayant la polarité de spin opposée (électrons de spin minoritaires). Cela rejoint l'effet de magnétorésistance géante (GMR) décrit dans la première partie de ce chapitre. L'effet inverse peut également se manifester : lorsqu'un courant polarisé en spin traverse un matériau ferromagnétique, le moment angulaire des électrons de conduction interagit avec l'aimantation du matériau, provoquant l'alignement de celle-ci avec les spins des électrons (Fig. I.13). L'effet de couple de transfert de spin est illustré figure I.14. Des électrons sont injectés perpendiculairement aux plans des couches. La première couche ferromagnétique, désignée sous le nom de M1, est épaisse et caractérisée par une aimantation fixe. Elle agit comme un filtre à spin, c'est la couche polarisante. Comme la couche NM est très mince, les électrons polarisés lors de la traversée de la couche M1, vont conserver leur polarisation de spin. Ils vont ensuite rencontrer une deuxième couche ferromagnétique, plus mince et avec une aimantation libre (M2), c'est la couche à retourner. Lorsque des électrons polarisés en spin pénètrent dans la couche FM2, ils vont s'aligner suivant la direction de l'aimantation de cette dernière. Il se produit un transfert de moment de spin et l'aimantation de

la couche FM2 subit un couple résultant de l'interaction entre les électrons polarisés en spin (courants de spin) et l'aimantation. Si ce couple est suffisamment fort, il peut entraîner un retournement de l'aimantation ou induire des états de précession dans la couche FM2.

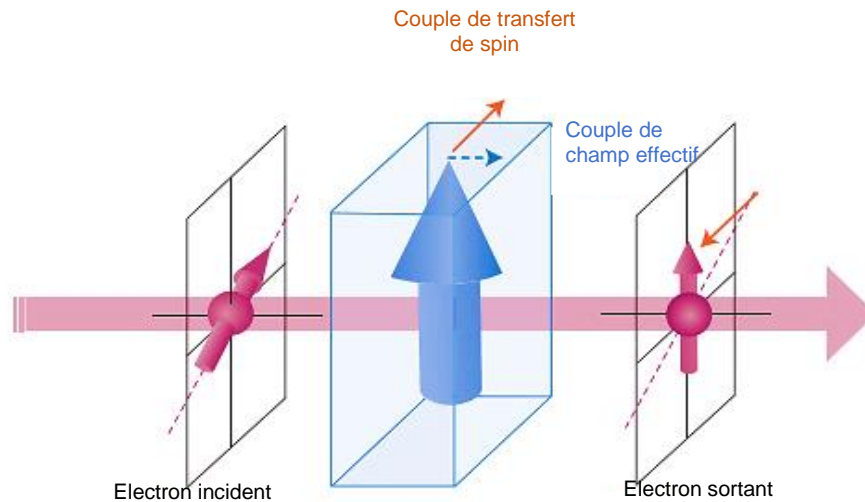


Figure I.13 : Illustration du couple de transfert de spin. Quand un courant polarisé en spin traverse un matériau ferromagnétique, l'interaction entre le courant de spin et l'aimantation de la couche ferromagnétique induit un changement de direction du spin de l'électron sortant par rapport à l'électron entrant. La différence de polarisation de spin induit, à la fois un couple dans le plan des directions de spin de l'électron incident et sortant (couple de transfert de spin) et un couple perpendiculaire à ce plan, appelé couple de type champ. La flèche verticale en gras représente l'aimantation de la couche ferromagnétique.¹⁰³

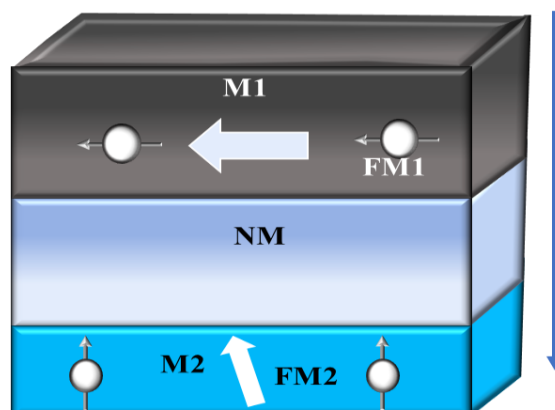


Figure I.14 : Tricouche magnétique FM1/NM/FM2 traversée par un courant I avec FM1 (FM2) le matériau ferromagnétique 1 (2) et NM le matériau non-magnétique. Les aimantations $M1$ et $M2$ sont représentées par des flèches blanches et les électrons et leur spin par des disques blancs surmontés d'une flèche. [Adapté de ¹⁰⁴]

J. Slonczewski et L. Berger ont été les premiers à prédire théoriquement ce phénomène en 1996^{105,106}. Un courant polarisé en spin traversant une multicouche magnétique peut ainsi transférer du moment angulaire. Cela a pour effet d'induire un couple résultant de l'interaction entre le courant de spin et l'aimantation du matériau ferromagnétique d'où le nom d'effet de transfert de spin. Pour observer ce phénomène, il est typiquement nécessaire de réduire les épaisseurs des couches à quelques nanomètres, et d'augmenter la densité de courant au-delà de 10^7A.cm^{-2} . Les chercheurs ont observé que le passage d'un courant polarisé en spin à travers une couche ferromagnétique peut induire un couple. En terme analytique, le couple de transfert de spin est équivalent au courant de spin transversal à M2, qui est absorbé. Si l'on tient compte de l'effet de transfert de spin, il faut modifier l'équation LLG et rajouter un terme supplémentaire. Cela nous donne :

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mu_0(\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \frac{\alpha}{M_s} \left(\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) + \frac{a_j J}{M_s} (\mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{p})) \quad (\text{I.10})$$

Où le coefficient $a_j = \frac{P_{\text{spin}} g \mu_B}{2te}$ dépend de la polarisation de spin P_{spin} , g est le facteur de Landé, μ_B est le magnéton de Bohr, e la charge de l'électron, t l'épaisseur de la couche libre, \mathbf{p} la polarisation du courant incident sur la couche FM2 et J est la densité de courant injectée. Son optimisation est significative pour réduire la consommation d'énergie du dispositif et éviter les ruptures de barrière. Nous n'entrerons pas trop en détails sur l'étude du retournement par effet de transfert de spin car au cours de cette thèse, nous nous concentrerons davantage sur le couple spin orbite pour le retournement de l'aimantation.

I.4.3 Le couple spin-orbite (SOT)

Lorsqu'un électron se déplace par rapport au noyau, celui-ci subit un mouvement relatif équivalent par rapport à l'électron. Ce mouvement du noyau, qui possède des charges, va générer un champ magnétique effectif. Ce champ magnétique effectif interagit avec le spin de

l'électron, conduisant au couplage du mouvement de l'électron (ou du son moment orbital) avec son propre moment de spin. Ce phénomène est appelé couplage spin-orbite. Dans le contexte du couple de transfert de spin, il a été observé que le courant se polarise en spin lorsqu'il traverse un matériau ferromagnétique grâce à l'interaction d'échange. Une autre méthode pour convertir un courant de charge en courant de spin est l'utilisation de l'interaction spin-orbite, qui peut être significative dans les métaux lourds ou aux interfaces FM/NM, par exemple. Lorsqu'un courant de charge pénètre dans un métal lourd présentant un fort couplage spin-orbite, des courants de spin transversaux peuvent être générés par l'effet Hall de spin (SHE) ou l'effet Rashba. Ce courant de spin sera absorbé par l'aimantation de la couche ferromagnétique induisant ainsi un couple qui pourra retourner l'aimantation. Nous utiliserons dans la suite de cette thèse cet effet pour manipuler électriquement l'aimantation de l'injecteur de spin.

I.4.3.1 Mise en évidence expérimentale

En 2009, Chernyshov et al.¹⁰⁷ ont pour la première fois mis en évidence l'existence d'un couple de type champ effectif en utilisant le GaMnAs, un semi-conducteur ferromagnétique cristallin de structure zinc-blende, similaire au GaAs. Cette structure cristalline hexagonale non centro-symétrique donne lieu à l'effet Rashba. Ces auteurs ont montré que l'aimantation peut être manipulée par la polarisation des spins des porteurs induite par l'effet spin-orbite qui donne naissance à un couple de champ effectif induit par l'effet Rashba. C'est seulement en 2011 que Miron et al.¹⁰⁸ ont apporté la preuve expérimentale de ce couple à température ambiante en étudiant le déplacement de parois magnétiques piégées dans des nanofils de Pt/Co/AlO_x. Ces derniers, qui ont une largeur de 500 nm et une longueur de 5 μm sont contactés par deux électrodes qui permettent d'injecter des impulsions de courant d'une durée de 100 ns (figure I.15). Ils ont démontré que des champs magnétiques intenses peuvent être induits dans des films métalliques ferromagnétiques dépourvus de symétrie d'inversion de structure par effet Rashba. Grâce à la combinaison des interactions spin-orbite et d'échange, un courant électrique circulant

dans le plan d'une couche de Co avec des interfaces Pt et AlO_x asymétriques produit un champ magnétique transversal effectif. L'aimantation du Co, qui est hors du plan avec une valeur à saturation proche de $M = 1,090 \text{ kA/m}^{-1}$, est très stable après oxydation. Les mesures d'effet Hall extraordinaire ont montré une forte anisotropie perpendiculaire à la rémanence.

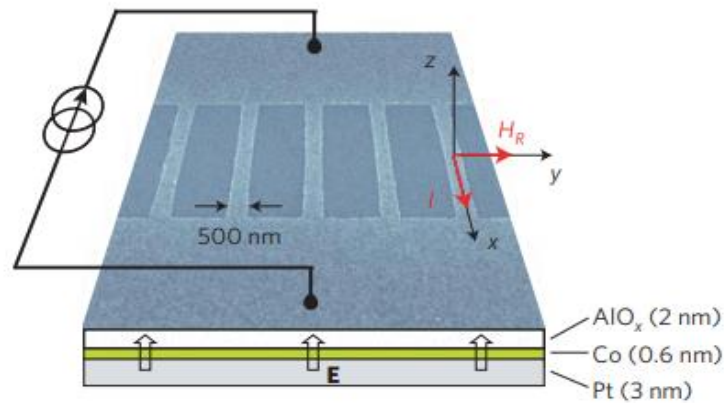


Figure I.15 : Image de microscopie électronique à balayage du réseau de nanofils de Pt/Co/AlO_x et coupe transversale verticale schématisée de la couche. Les flèches indiquent la direction du courant (I), du champ électrique interfacial (E) et de H_R . Le signe de E est déterminé à partir de l'orientation mesurée de I et de H_{sd} en supposant une polarisation positive des électrons de conduction près du niveau de Fermi¹⁰⁸.

La propagation des domaines magnétiques dans les nanofils a été observée à l'aide de la microscopie Kerr polaire. À partir d'une aimantation initialement saturée hors du plan, des impulsions de courant uniques d'amplitude croissante et de durée constante de 100 ns ont été injectés dans les nanofils jusqu'à ce que la nucléation de domaines inversés soit observée. Si aucun champ magnétique extérieur n'est appliqué $H_{ext} = 0$ (Fig. I.16(a)), des changements locaux de contraste indiquent que la nucléation de domaines inversés s'est produite dans environ la moitié des fils. Lorsqu'on applique un champ magnétique externe positif de l'ordre de +47.5mT (Fig. I.16(b)), la nucléation de domaines est observée dans tous les nanofils. Si maintenant on inverse la direction du champ à -47.5mT (Fig. I.16(c)), la logique voudrait que l'on observe aussi un retournement de l'aimantation. Cependant, nous ne pouvons observer une

inversion de l'aimantation dans cette configuration. Cette asymétrie ne peut être conciliée ni avec l'action du champ d'Oersted, qui est parallèle à $-y$ et inférieur à 1 mT, ni avec une simple activation thermique due au chauffage par effet Joule. Afin de prouver si le comportement observé est associé à la direction du mouvement des électrons, les mêmes mesures ont été répétées pour des courants négatifs. La comparaison des figures montre qu'à zéro champ magnétique, on observe les mêmes phénomènes de nucléation, un retournement partiel semblable à celui déjà observé avec des courants positifs est obtenu.

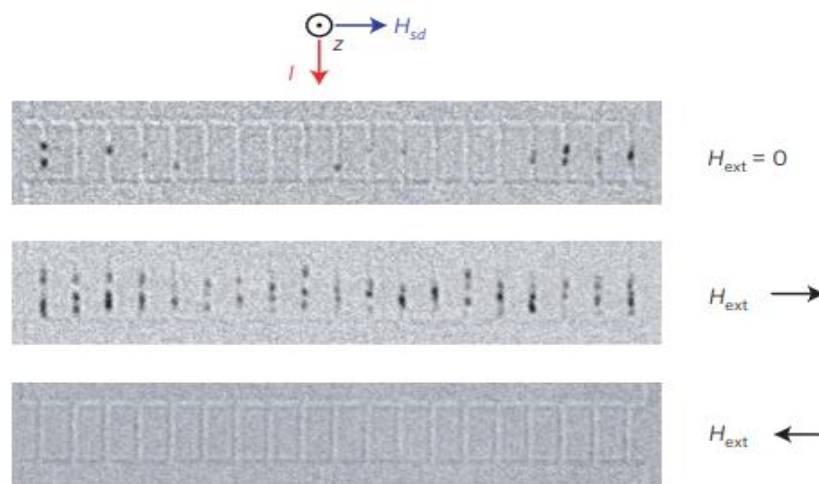


Figure I.16 : Images de microscopie Kerr enregistrées après l'injection d'une impulsion de courant positif avec un champ externe positif appliqué parallèlement à y . L'amplitude de l'impulsion est fixée à $7.8 \times 10^7 \text{ A cm}^{-2}$ dans tous les cas¹⁰⁸.

Quand un champ magnétique externe du même ordre est appliqué, on observe alors l'effet inverse. Pour des champs positifs, dans cette configuration on n'observe pas de renversement de l'aimantation (semblable au premier cas lorsque le courant est positif avec un champ négatif) mais lorsqu'on inverse la direction du champ la nucléation est favorisée. On a alors un champ effectif lié au sens du courant qui crée un couple agissant sur l'aimantation. Le champ magnétique effectif n'étant pas colinéaire à l'axe facile d'anisotropie, il ne permet donc pas, à priori, de retourner l'aimantation. Il joue néanmoins sur la barrière énergétique qui sépare les deux états d'aimantation. Il est à noter que si H_R est dans le même sens que le champ externe

appliqué H_{ext} alors la nucléation de domaines est facilitée. En revanche, s'ils sont de sens opposé, la barrière énergétique entre les deux états d'aimantation augmente et la nucléation de domaines ne peut avoir lieu. En comparant les effets observés dans les structures symétriques de Pt/Co/Pt et asymétriques de Pt/Co/ AlO_x les auteurs ont pu estimer que la valeur de ce champ effectif avoisine 1 T pour des densités de courant d'environ 10^{12} A/m².

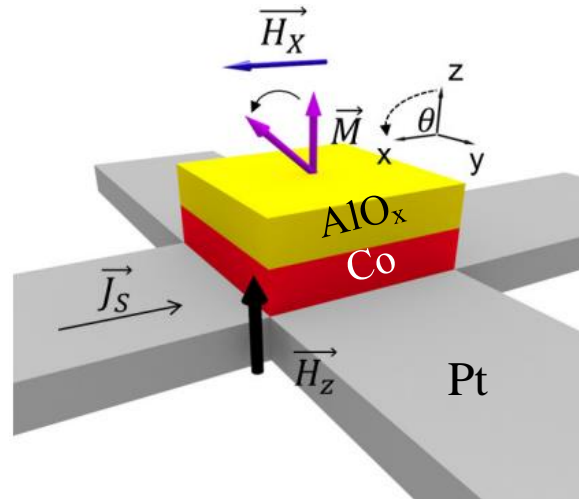


Figure I.17 : Illustration du retournement de l'aimantation par SOT dans un empilement métal non-magnétique lourd/ métal ferromagnétique/ oxyde¹⁰².

Par la suite, le même groupe a mis en évidence l'existence d'un second couple, perpendiculaire au précédent, qui est exercé sur l'aimantation lors de l'injection d'un courant dans une tricouche Pt/Co/ AlO_x . Le cobalt et l'alumine sont ici lithographiés sous la forme d'un plot carré de 500 nm de côté sous lequel le platine forme une croix de Hall. Ces auteurs ont montré que ce couple pouvait entraîner le retournement de l'aimantation dans la multicouche Pt/Co/ AlO_x en présence d'un champ magnétique H_x appliqué le long de la direction parcourue par le courant¹⁰⁹. L'expérience est illustrée dans la figure I.17. Un plot de cobalt recouvert d'alumine Al_2O_3 est positionné au centre d'une croix de Hall en platine. Un champ magnétique H_x est appliqué dans le plan des couches. Une impulsion de courant est injectée dans l'une des branches entraînant ainsi le retournement de l'aimantation. Ce retournement dépend à la fois de la direction du champ magnétique et du courant. Des expériences ultérieures ont démontré que

ce retournement pouvait être expliqué par un couple appelé couple de Slonczewski. D'autres équipes ont ensuite mesuré les couples spin orbite en utilisant des métaux lourds capables de convertir efficacement des courants de charges en courant de spin. Deux mécanismes physiques liés au fort couplage spin-orbite et à l'asymétrie d'inversion de la structure ont été proposés pour expliquer ces deux couples : l'effet Hall de spin et le couplage spin-orbite Rashba.

I.4.3.2 L'effet Rashba

L'effet Rashba consiste en la levée de dégénérescence de spin des niveaux d'énergie en présence de surfaces ou d'interfaces. Depuis que Bychkov et Rashba¹¹⁰ ont suggéré en 1984 une relation simple entre la charge et le spin, le couplage spin-orbite de Rashba (SOC) est devenu un sujet majeur d'intérêt dans le domaine de la spintronique. La capacité de contrôler le spin d'un électron à l'aide d'un champ électrique externe revêt une importance cruciale pour la spintronique à l'échelle nanoscopique et ses diverses applications.

Tout d'abord, sous l'effet de la symétrie de renversement du temps (τ), le vecteur d'onde \mathbf{k} change de signe, et la direction de la polarisation de spin est inversée. En revanche, la symétrie d'inversion spatiale (ι) n'affecte pas la polarisation de spin mais le vecteur d'onde \mathbf{k} change de signe.

On a donc :

$$\mathbf{k} \xrightarrow{\hat{\tau}} -\mathbf{k}, \quad \uparrow (\downarrow) \xrightarrow{\hat{\tau}} \downarrow (\uparrow) \quad (\text{I.11a})$$

$$\mathbf{k} \xrightarrow{\hat{\iota}} -\mathbf{k}, \quad \uparrow (\downarrow) \xrightarrow{\hat{\iota}} \uparrow (\downarrow) \quad (\text{I.11b})$$

Si nous considérons $E_{\mathbf{k},\uparrow}$ comme le niveau d'énergie d'un porteur avec un vecteur d'onde \mathbf{k} et une polarisation de spin \uparrow , et que nous appliquons successivement les symétries de renversement du temps et l'inversion d'espace nous obtenons :

$$E_{k,\uparrow} \xrightarrow{\hat{t}} E_{-k,\downarrow} \xrightarrow{\hat{t}} E_{k,\downarrow} \quad (\text{I.12})$$

E_k est donc doublement dégénéré en spin, comme le stipule le théorème de Kramers¹¹¹. En revanche, si le système ne possède pas de symétrie temporelle ou d'inversion d'espace, les niveaux d'énergie $E_{k,\uparrow}$ et $E_{k,\downarrow}$ sont non dégénérés. L'effet Rashba est généré par la rupture de la symétrie d'inversion spatiale. Dans les cristaux présentant une symétrie d'inversion brisée, les états électroniques sont séparés par le couplage spin-orbite. Le couplage spin-orbite de Rashba (H_{SO}) est décrit par un couplage entre le spin de l'électron σ et son vecteur d'onde k .

$$H_{SO} = \alpha_R (\boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{k}) \hat{\mathbf{z}} \quad (\text{I.13})$$

Où α_R est le paramètre de Rashba qui détermine l'ampleur de l'effet, et $\hat{\mathbf{z}}$ la normale à la surface, c'est-à-dire le vecteur unitaire hors plan. Le couplage spin-orbite de Rashba est significatif uniquement si la polarisation de spin se trouve dans le plan et si elle est perpendiculaire au vecteur d'onde. Le champ Rashba effectif engendre deux effets distincts. Premièrement, l'orientation du champ effectif, dépendant de k , varie en direction et en amplitude pour les différents électrons de conduction au niveau de Fermi. Cette rotation est différente pour les électrons de spin \uparrow et \downarrow car leurs vitesses ne sont pas les mêmes et donc le champ Rashba ressenti va dépendre de la polarité en spin. Cependant, si tous les spins ont un axe de quantification différent, la somme sur toute la sphère de Fermi des variations de direction des spins est nulle puisque les électrons de spin \uparrow et \downarrow ont des contributions opposées. Deuxièmement, en tenant compte du fait que les électrons de conduction sont soumis à un champ de dérive, qui a pour origine le courant qui traverse le matériau, cela va entraîner un décalage des sphères de Fermi associées respectivement aux spins \uparrow et \downarrow . On peut observer le décalage de la bande des électrons majoritaires sur la figure I.19 pour un champ électrique de dérive orienté selon $-ex$ (cercle rouge en trait plein déplacé par rapport au cercle rouge en pointillés). Les vecteurs d'onde n'ont plus la même valeur absolue, et si l'on recalcule l'intégrale des champs Rashba sur

toute la surface de Fermi, on obtient une valeur différente de zéro correspondant au champ Rashba ressenti par les électrons.

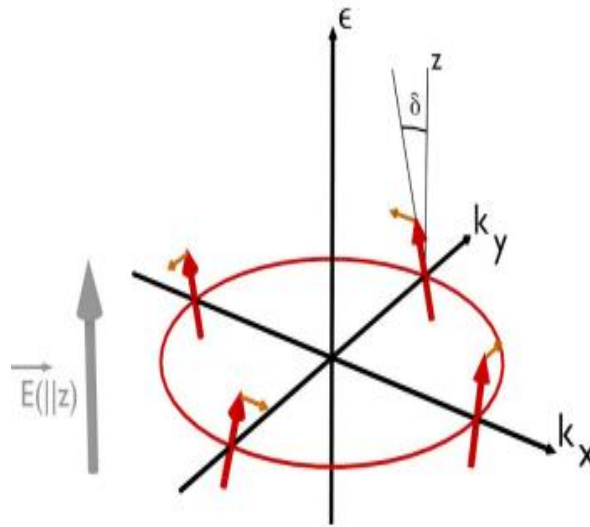


Figure I.18 : Effet du couple Rashba sur les spins des électrons majoritaires (flèches rouges) au niveau de Fermi E_F (cercle rouge). Les flèches de couleur orange indiquent le champ magnétique ressenti par les spins des électrons¹⁰⁰.

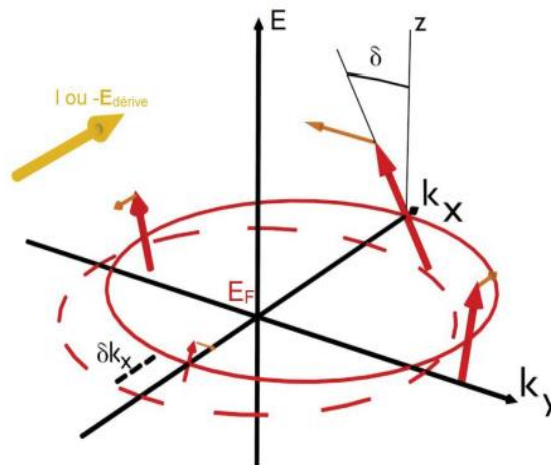


Figure I.19 : Effet du couple Rashba de champ effectif sur les spins des électrons majoritaires (flèches rouges) au niveau de Fermi E_F (cercle rouge). Les flèches de couleur orange (contenues dans un plan parallèle à $(0, k_x, k_y)$) indiquent l'orientation du champ magnétique Rashba ressenti par les spins des électrons. L'intégration de tous ces champs sur la surface de Fermi donne cette fois un résultat non nul¹⁰².

Les sphères de Fermi étant de tailles différentes pour des électrons de spin up et down dans un matériau magnétique, il en résulte une accumulation de spin non nulle orientée dans le plan

perpendiculaire au courant de charge. Cette accumulation de spin entraîne, du fait de l'interaction d'échange, un couple sur l'aimantation, dont l'effet est similaire à un champ effectif perpendiculaire au courant de charge. Cet effet Rashba peut ainsi expliquer le terme de champ effectif observé expérimentalement¹⁰².

I.4.3.3 Effet Hall de spin

En 1971, Dyakonov et Perel^{112,113} ont prédit la possibilité de créer un courant de spin à partir d'un courant de charge dans un certain type de matériau. Ce phénomène a été nommé effet Hall de spin (en anglais, SHE), par analogie à l'effet Hall classique. C'est seulement en 2004 que Kato et al.¹¹⁴ ont expérimentalement mis en évidence pour la première fois cet effet dans un semiconducteur. Le mécanisme peut être décrit de la façon suivante : Lorsqu'un de courant de charge j_c traverse un métal lourd avec un fort couplage spin-orbite ou un semi-conducteur dopé, l'effet Hall de spin génère une densité de courant de spin pure j_s . La densité de courant de spin est orthogonale au courant de charge j_c et à la direction de la polarisation de spin des électrons.

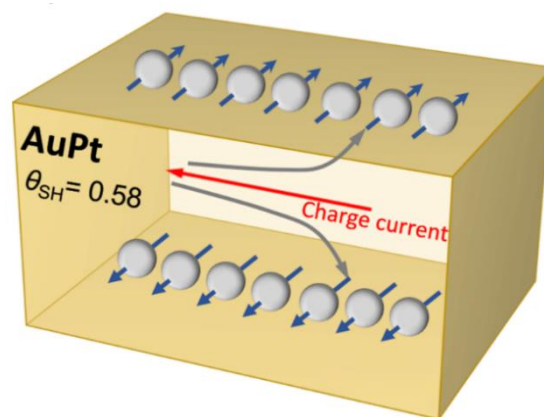


Figure I.20 : Mécanisme de l'effet Hall de spin permettant de convertir un courant de charge en un courant de spin¹¹⁵.

La relation phénoménologique liant le courant de charge au courant de spin est donnée par :

$$j_s = \theta_{sh} j_c \quad (\text{I.14})$$

avec θ_{sh} l'angle de Hall de spin. L'angle de Hall de spin représente l'efficacité de conversion d'un courant de charge en courant de spin.

Généralement, l'angle de Hall est souvent exprimé comme le rapport entre la conductivité de Hall de spin (σ_{sh}) et la conductivité électrique du matériau (σ_c) $\sigma_{sh} = \theta_{sh} \sigma_c$.

Des forts effets Hall de spin ont été observés dans des métaux lourds tels que le Pt^{116,117}, le W^{118,119,120} et le Ta^{121,122} caractérisés par un fort couplage spin-orbite. Certains auteurs ont par ailleurs étudié la variation de l'angle de Hall dans des systèmes YIG/métaux de transition 3d (Cr, Ni, Cu...). En plus de leur grande conductivité électrique, les métaux 3d comme le Cr et le Ni sont caractérisés par des angles de Hall assez grand pouvant atteindre la moitié de celui du β -Ta¹²³. Hormis les métaux de transition 3d, d'autres matériaux présentent des angles de Hall encore plus importants. C'est le cas des isolants topologiques pour lesquels des angles de Hall très grands ont été mesurés pouvant varier de 10 à 100. Par exemple, le composé $(\text{Bi}_{0.5}\text{Sb}_{0.5})_2\text{Te}_3$ possède un angle de Hall égal à 450¹²⁴. Cependant, les isolants topologiques conservent leurs propriétés à basse température et possèdent une résistance beaucoup plus élevée que les métaux de transition 3d. Trois mécanismes différents peuvent donner naissance à l'effet Hall de spin. Deux d'entre eux dit extrinsèques sont liés à une asymétrie de diffusion dépendante du spin. Les effets dit intrinsèques sont liés à l'environnement à l'état solide ayant une contribution non nulle même en l'absence d'impuretés. Ces trois mécanismes sont décrits ci-dessous.

- La diffusion asymétrique (skew-scattering en anglais)

Lorsque des électrons de conduction se déplacent avec la vitesse v arrivent au voisinage d'une impureté, le champ électrique coulombien \mathbf{E} rayonné par l'impureté va agir sur les électrons, en créant un champ magnétique \mathbf{B} dans le référentiel qui lui est associé selon l'équation :

$$\mathbf{B} \approx \frac{v \times \mathbf{E}}{c^2} \quad (\text{I.15})$$

L'interaction entre le spin et ce champ magnétique conduit à une diffusion inélastique des électrons. Pendant cette diffusion, à la fois le champ électrique \mathbf{E} et la vitesse v varient. Le champ électrique \mathbf{E} varie car la distance par rapport à l'impureté change, et la vitesse varie, car le porteur qui est soumis au champ électrique subit une accélération. Par conséquent, le champ magnétique \mathbf{B} est spatialement non uniforme. La présence d'un champ \mathbf{E} et d'un champ \mathbf{B} engendre une force dite de Lorentz \mathbf{F} qui est opposée pour les états de spin opposés. Il en résulte une asymétrie de diffusion dépendante du spin (skew scattering, en anglais). Des analogies peuvent être perçues avec l'expérience fondamentale de Stern et Gerlach¹²⁵ : dans ce cas la non-uniformité du champ magnétique était obtenue avec un aimant spécialement conçu à cet effet. Dans la diffusion asymétrique, l'atome diffuseur lui-même génère le champ magnétique non uniforme sur les électrons en mouvement. Il en résulte une déviation spatiale des porteurs qui dépend de leur moment angulaire, comme illustré dans la figure I.21 (a).

- Le saut latéral (ou « side jump »)

Le saut latéral (ou "side jump", en anglais) est un déplacement latéral des porteurs de charge, dépendant de leur état de spin, lors de la diffusion. Au cours d'une collision avec une impureté, un paquet d'ondes subit un déplacement Δy de son centre de gravité dans une direction perpendiculaire à la variation d'impulsion $\Delta \vec{p}$. Cet effet est lié à la distorsion locale de la fonction d'onde de l'électron lorsque ce dernier se trouve à proximité du champs électrique rayonné par l'impureté.

- Effet Intrinsèque

Cette contribution dépend uniquement de la structure de bande et est indépendante de la diffusion, d'où le nom de contribution intrinsèque. Elle apparaît lorsque qu'un courant de charge circule dans un matériau possédant un fort couplage spin orbite. En 1954, Karplus et Luttinger (KL) ont proposé une théorie pour expliquer l'effet intrinsèque¹²⁶. En se basant sur ces travaux, Kontani et al. ont proposé un modèle pour expliquer l'effet Hall de spin intrinsèque¹²⁷.

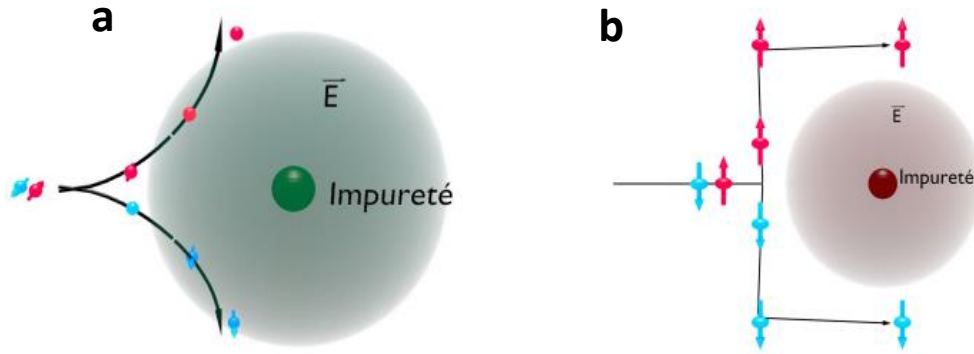


Figure I.21 : (a) Illustration du mécanisme de diffusion asymétrique ; (b) Illustration du mécanisme de saut latéral¹⁰²

Les auteurs montrent que l'effet Hall de spin (SHE) résulte des transitions inter-bandes et du couplage spin-orbite dans les métaux de transition non-magnétiques. Considérons un électron de spin \uparrow se déplaçant dans un métal possédant des orbitales d . Un électron dans une orbitale d_{xz} peut passer dans une orbitale de type d_{yz} , et de façon réciproque à l'aide du couplage spin-orbite¹²⁷. En fonction de la direction du saut entre les deux orbitales effectué par l'électron et le signe du couplage spin-orbite, un champ magnétique effectif est généré. Lorsque le saut se produit dans la même direction, les électrons de spins \uparrow et \downarrow vont ressentir des flux magnétiques effectifs opposés. Les électrons vont ainsi être déviés dans deux directions opposées. Dans le cas d'une bicouche métal lourd/ferromagnétique, lorsque le métal lourd est parcouru par un courant de charge, à cause de l'effet Hall de spin, il y aura accumulation de spin aux deux interfaces du métal lourd. Ce courant de spin vertical créé sera absorbé par le métal ferromagnétique puis transféré à l'aimantation par effet de transfert de spin. Il en résulte des couples qui vont agir sur l'aimantation. L'effet Hall de spin conduit donc à l'existence de deux couples qui agissent sur l'aimantation : un couple de type Slonczewski et un couple de type champ effectif décrit par les équations (I.16(a)) et (I.16(b)) respectivement.

$$\tau_{SO} = \frac{\gamma \hbar J_c \theta_{sh}}{2e M_{stFM}} \mathbf{M} (\times \mathbf{e}_y \times \mathbf{M}) \quad (\text{I.16(a)}) \quad ; \quad H_{SO} = \frac{\gamma \hbar J_c \theta_{sh}}{2e M_{stFM}} \mathbf{M} \times \mathbf{e}_y \quad (\text{I.16(b)})$$

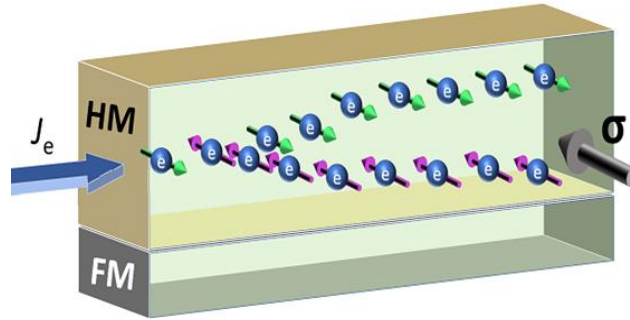


Figure I.22 : Illustration de l'effet Hall de spin dans une bicouche métal lourd non magnétique (HM)/ métal ferromagnétique (FM).

Pour des tricouches Ta(W)/CoFeB/MgO, plusieurs études de retournement de l'aimantation ont été faites. L'objectif était d'optimiser le courant nécessaire au retournement de la couche de CoFeB et d'augmenter par la même occasion la vitesse de retournement. Certains auteurs ont utilisé un biseau de Ta permettant de créer un champ effectif dans le plan qui brise la symétrie de la couche ferromagnétique. Ils ont démontré le retournement de l'aimantation sans champ magnétique externe dans le plan¹²⁸. Dans les systèmes métal lourd (W, Ta)/CoFeB seule la phase beta possède un angle de Hall élevé. Les phases β -W et β -Ta ont cependant une résistivité élevée ce qui est susceptible d'endommager le dispositif lorsque le courant nécessaire au retournement de l'aimantation est très élevé. Cui et al.¹²⁹ ont montré que l'ajout de Cr à l'interface Co/Cr dans des tricouches Pt/Co/Ta pouvait augmenter de manière significative l'anisotropie magnétique perpendiculaire. Cela permet également d'augmenter l'angle de Hall de la tricouche mais aussi de réduire considérablement le courant critique à 10^6A/cm^2 . Ce résultat montre déjà l'intérêt d'ajouter des métaux de transitions $3d$ dans les mécanismes de retournement via le couplage spin orbite.

I.5 Les objectifs de la thèse

Toutes les études concernant les spin-LEDs utilisent un champ magnétique pour retourner l'aimantation de la couche ferromagnétique. Pour des applications concrètes des spin-LEDs, il est cependant primordial de s'affranchir de tout champ magnétique extérieur. Dans ce travail

de thèse, nous nous proposons de contrôler électriquement l'aimantation de la couche ferromagnétique en utilisant le couplage spin-orbite dans un métal lourd et l'effet Hall de spin. Plusieurs études ont déjà utilisé l'effet Hall de spin pour manipuler l'aimantation des couches ferromagnétiques. Dans toutes ces études, différents matériaux sont testés afin d'augmenter l'efficacité du retournement. L'objectif visé est de réduire le courant critique pour le retournement de l'aimantation et d'augmenter la vitesse de propagation des domaines. Cependant, les substrats utilisés sont des isolants. Dans notre cas, l'injecteur est déposé directement sur une diode électroluminescente. Le contrôle de la polarisation circulaire de la lumière émise en modulant électriquement la direction d'injection du spin reste encore un problème complexe. L'objectif de cette thèse est d'étudier le contrôle électrique de l'injection de spin dans une spin-LED en étudiant de nouveaux types d'injecteurs de spin présentant des effets SOT. Ce travail permettra non seulement de démontrer le contrôle électrique de l'injection de spin dans la spin-LED, mais aussi d'améliorer la compréhension de la physique liée au couple spin-orbite, à l'injection de spin et à l'anisotropie magnétique perpendiculaire.

I.6 Conclusion

Nous avons décrit dans chapitre les concepts fondamentaux de la spintronique basée sur les métaux à savoir la GMR et la TMR ainsi que la spintronique basée sur des semi-conducteurs. Au fil des années, depuis la première découverte des spin-LEDs en 1999, des progrès significatifs ont été réalisés et des problèmes cruciaux ont été surmontés dans ce domaine. L'injection efficace de spin dans les diodes électroluminescentes, ainsi que la manipulation et la détection ultérieure de la polarisation de spin injectée, sont essentielles au développement de dispositifs avancés utilisant la spintronique dans les semi-conducteurs. Cependant, malgré ces avancées, plusieurs problèmes restent à résoudre et plus précisément le contrôle de l'hélicité

État de l'art : De la spintronique à la spin-optoélectronique

de la lumière émise en manipulant l'aimantation de l'injecteur de spin sans champs magnétique externe. Cette problématique sera abordée dans cette thèse.

Chapitre II

Généralités sur les techniques expérimentales

Dans ce chapitre, nous allons décrire tout d'abord les méthodes de croissance des injecteurs de spin, ainsi que les différentes techniques de caractérisation in-situ et ex-situ. Pour chaque technique d'analyse, nous donnerons quelques fondements théoriques ainsi que les informations essentielles qu'elles apportent.

II.1 Elaboration des injecteurs de spin

Deux méthodes d'élaboration sont utilisées pour la croissance des injecteurs de spin. Nous utilisons la pulvérisation cathodique pour élaborer l'injecteur MgO/CoFeB/Ta. Par ailleurs, nous avons aussi développé au cours de cette thèse un nouvel injecteur de spin à base de MgO/Fe₄N/Au. Ce dernier a été élaboré en utilisant l'épitaxie par jet moléculaire (MBE) assistée par plasma

II.1.1 La plateforme de dépôt

Trois des dispositifs expérimentaux utilisés au cours de thèse sont reliés au tube ultravide de l'Institut Jean Lamour. Il s'agit de chambres interconnectées entre elles par un tube sous

ultravide de 70 m de longueur et dans lequel règne une pression de l'ordre de 10^{-10} mbar. Le tube est divisé en tronçons de 10 m de long qui sont séparés par des vannes. La chambre d'épithaxie par jets moléculaires est reliée au tronçon 1, alors que la chambre d'analyse XPS et la chambre de pulvérisation cathodique sont reliés au tronçon 4. Le transfert d'un échantillon d'une chambre à l'autre se fait grâce à un chariot mobile pouvant être déplacé dans le tube par un électroaimant. L'avantage du tube est qu'il permet de faire plusieurs croissances et caractérisations in-situ sans nécessité d'exposer les échantillons à l'air.

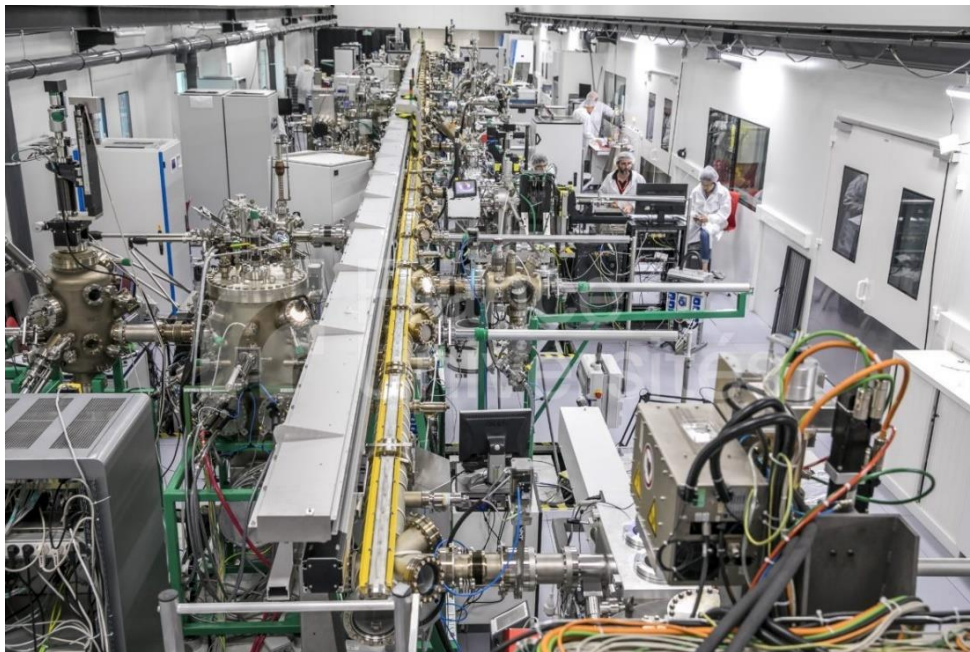


Figure II.1 : Photographie du tube de transfert sous ultravide à l'Institut Jean Lamour, Université de Lorraine-France.

II.1.2 Les techniques de dépôt et de contrôle

II.1.2.1 L'épithaxie par jets moléculaires

L'épithaxie par jets moléculaires (ou MBE, pour Molecular Beam Epitaxy en anglais) est une technique de croissance de matériaux en couches minces. Cette technique consiste à envoyer un jet d'atomes ou de molécules à la surface d'un substrat pouvant être chauffé ou refroidi sous ultravide. Cet environnement est nécessaire afin d'éviter toute contamination du

substrat et de minimiser les chocs subis par les atomes/molécules évaporées. On peut estimer le libre parcours moyen des atomes en utilisant la théorie cinétique des gaz parfaits. A température ambiante, la formule suivante est obtenue¹³⁰ :

$$L(m) = \frac{5.10^{-3}}{P(\text{Pa})} \quad (\text{II.1})$$

Pour une pression durant l'évaporation de l'ordre de 5.10^{-9} à 5.10^{-10} mbar, le libre parcours moyen est d'environ 10^4 à 10^5 m, autrement dit très largement supérieur aux dimensions de l'enceinte de préparation. Les atomes/molécules évaporés ne subissent donc aucune collision avec des molécules résiduelles avant d'atteindre le substrat.

Durant l'épitaxie le substrat impose au matériau en cours de croissance son orientation cristalline. On distingue deux types d'épitaxie :

- l'homoépitaxie qui consiste à déposer un cristal sur un cristal de nature chimique identique.
- l'hétéroépitaxie : le matériau déposé et le substrat sont de nature chimique différentes et ont un paramètre de maille différent.

L'épitaxie par jets moléculaires, à partir de sources solides consiste à évaporer le matériau que l'on veut déposer (Fe, Au, MgO) puis à le condenser sur un substrat. Lors de l'épitaxie, les atomes déposés diffusent puis s'ordonnent de façon à former un matériau monocristallin sur un substrat, lui-même monocristallin.

La chambre d'épitaxie utilisée au cours de cette thèse a été fabriquée par la société MECA2000. Elle est constituée d'une chambre principale et d'une chambre d'évaporation spécialement conçue pour le dépôt de métaux alcalins. Elle est connectée à un sas d'introduction qui permet l'introduction rapide d'échantillons.

La chambre principale comporte les éléments suivants :

- Sources d'évaporation : 2 canons de 6 creusets + 3 cellules de Knudsen + une source plasma N_2 ;

- Diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED) ;
- Contrôle du flux à l'échelle de la couche atomique par balance à quartz ;
- Contrôle de la température de dépôt jusqu'à 700°C (poste chaud) et jusqu'à 80K (poste froid) ;
- Matériaux disponibles : V, Au, Fe, Co, Cr, NiFe, Nb, Tb, Ag, Ni, Cu, Bi, MgO, MgAl₂O₄ ;

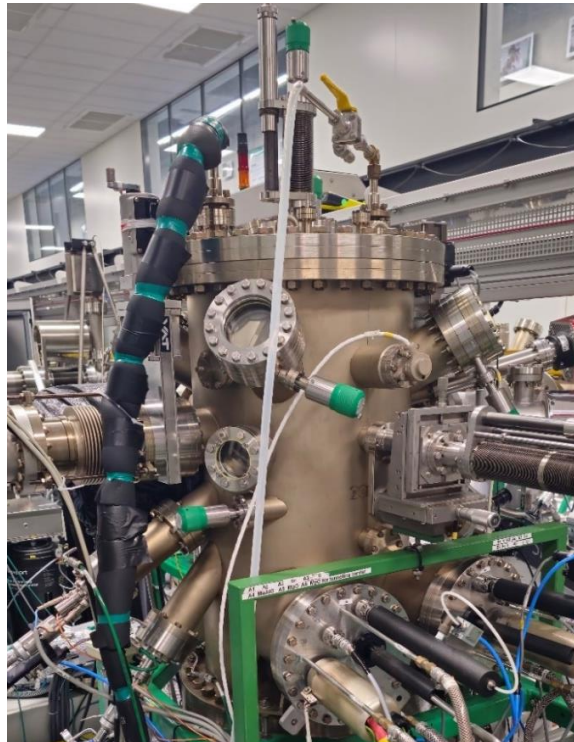


Figure II.2 : Vue d'ensemble de la chambre d'épitaxie par jets moléculaires

II.1.2.2 Les moyens d'évaporation

- Cellule d'effusion (ou cellule de Knudsen)

Le matériau à évaporer est placé dans un creuset entouré par un filament en tungstène (W). Le courant circulant dans ce filament va permettre de chauffer par rayonnement le creuset ce qui va conduire à l'évaporation du matériau contenu dans le creuset. Les cellules d'évaporation sont conçues pour des faibles taux de dépôt (dans notre cas, le fer est déposé à 0.35nm/s). Elles sont caractérisées par une grande stabilité thermique ($\pm 1^\circ\text{C}$), et donc garanties d'une vitesse d'évaporation constante. (Fig. II.3)

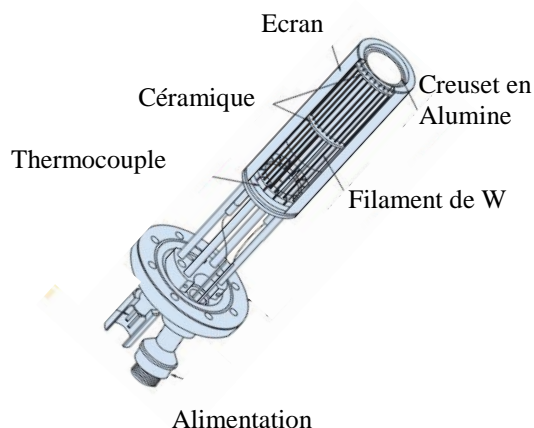


Figure II.3 : Illustration d'une cellule d'effusion

- Canon à évaporation (MgO, Au)

La figure II.4 montre le principe de fonctionnement d'un canon à évaporation. Les électrons émis par un filament en tungstène (W) sont accélérés par une haute tension (9 kV) puis défléchis à l'aide d'un champ magnétique avant d'être focalisés sur un creuset contenant le matériau à évaporer (Au, MgO, Cu ...). Le faisceau d'électrons conduit à l'évaporation locale ou à la sublimation du matériau. Par ailleurs, un système de balayage en X et Y du faisceau électronique permet de balayer totalement la surface du creuset rendant possible une fusion complète du matériau. Un cache en inox, également refroidi à l'eau, permet de limiter l'augmentation de la pression pendant le fonctionnement du canon. Il est muni d'ouvertures réduisant l'angle d'évaporation afin d'éviter un dépôt sur les parois et autres équipements de la chambre d'évaporation. Les canons à évaporation couvrent une large gamme de vitesses de croissance allant de la fraction de monocouche (mc)/min. à plusieurs mc/s. Dans notre étude, l'Au et le MgO ont été déposés à l'aide de ces canons. Le taux d'évaporation est contrôlé par une microbalance à quartz.

- Source de plasma d'azote par micro-onde

La source de plasma ECR (electron cyclotron resonance) commercialisée par la société SPECS fonctionne en mode hybride (elle laisse passer des atomes et des ions en même temps).

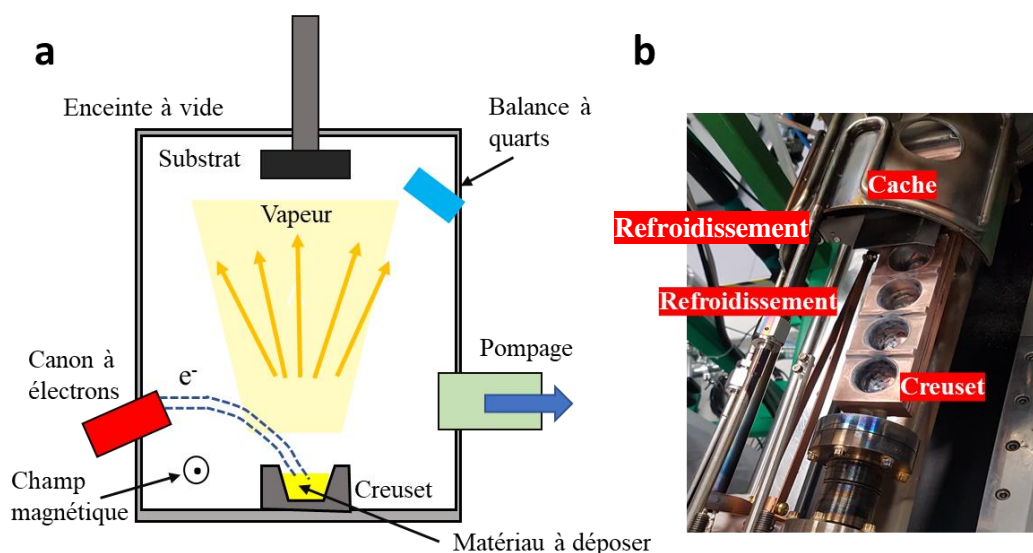


Figure II.4 : (a) Principe de fonctionnement du canon à évaporation par faisceau d'électrons. (b) Photographie du canon à évaporation.

Elle a été installée sur la chambre d'épitaxie en 2021. Cette source, qui permet de générer des plasmas à partir de différents gaz, est un composant entièrement compatible avec l'ultravide. (Figure II.5). Le principe de fonctionnement est basé sur la génération par un magnétron de micro-ondes ayant une fréquence de 2.45GHz. Ces micro-ondes générées par le magnétron sont couplées via un coupleur résonant dans une structure coaxiale qui guide les micro-ondes dans le vide jusqu'à la chambre à plasma en nitrure de bore (BN) ou en alumine. L'énergie fournie par les micro-ondes est utilisée pour créer un plasma gazeux à partir duquel les ions sont extraits. La densité du plasma est augmentée par la résonance cyclotron générée par un champ magnétique de 86 mT. Ce dernier est produit par une bobine disposée autour de la chambre à plasma. Les électrons subissent un mouvement cyclotronique à la fréquence $\omega = \frac{eB}{m_e}$. Ce mouvement en spirale augmente considérablement la longueur du trajet électronique et donc la probabilité de collision et d'ionisation avec d'autres molécules. Lorsque la fréquence micro-onde d'entrée sera égale à la fréquence cyclotron, un plasma va être généré. Le plasma est physiquement confiné par la chambre et s'y trouve préférentiellement en raison de la pression de gaz locale plus élevée et de l'effet ECR du au champ magnétique. Une tension d'extraction

est ensuite appliquée afin d'extraire les ions positifs et la variation du courant du magnétron augmente la densité du plasma.

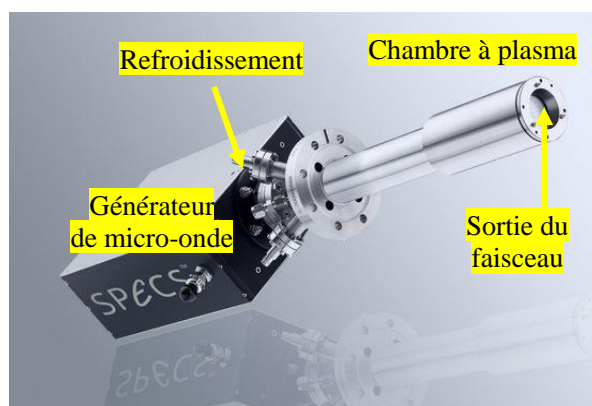


Figure II.5 : Photographie de la source plasma ECR (du manuel SPECS)

II.1.2 La pulvérisation cathodique (PVD)

Dans cette partie, nous décrivons la pulvérisation cathodique qui est utilisée pour la croissance de l'injecteur MgO/CoFeB/Ta. C'est une technique de dépôt physique en phase vapeur (PVD, Physical Vapour Deposition en anglais) qui permet de déposer des couches minces d'une épaisseur minimale de 0,1nm. Elle est très utilisée dans l'industrie pour la fabrication à grande échelle de films minces notamment grâce à son taux de croissance rapide et à la bonne qualité des films. La PVD utilisée au cours de cette thèse possède trois magnétrons sur lequel trois cibles sont montées à savoir le MgO, CoFeB et Ta. Les substrats de GaAs (001) utilisés sont tout d'abord préparés dans la chambre d'épitaxie par jets moléculaires. Après dépôt d'une couche mince de MgO d'épaisseur 2nm, les substrats sont transférés sous ultraviolette dans la chambre de pulvérisation dans laquelle règne une pression de l'ordre de 10^{-9} mbar. Après introduction d'Argon à une pression typique de 9.3×10^{-3} mbar, une haute tension est appliquée entre le substrat connecté à l'anode et le matériau cible connecté à la cathode. Il en résulte une décharge électrique qui conduit à l'ionisation du gaz à proximité de la cible. Les ions Ar^+ formés dans le plasma sont accélérés avant de bombarder la cible. Le matériau constituant la cible est alors pulvérisé.

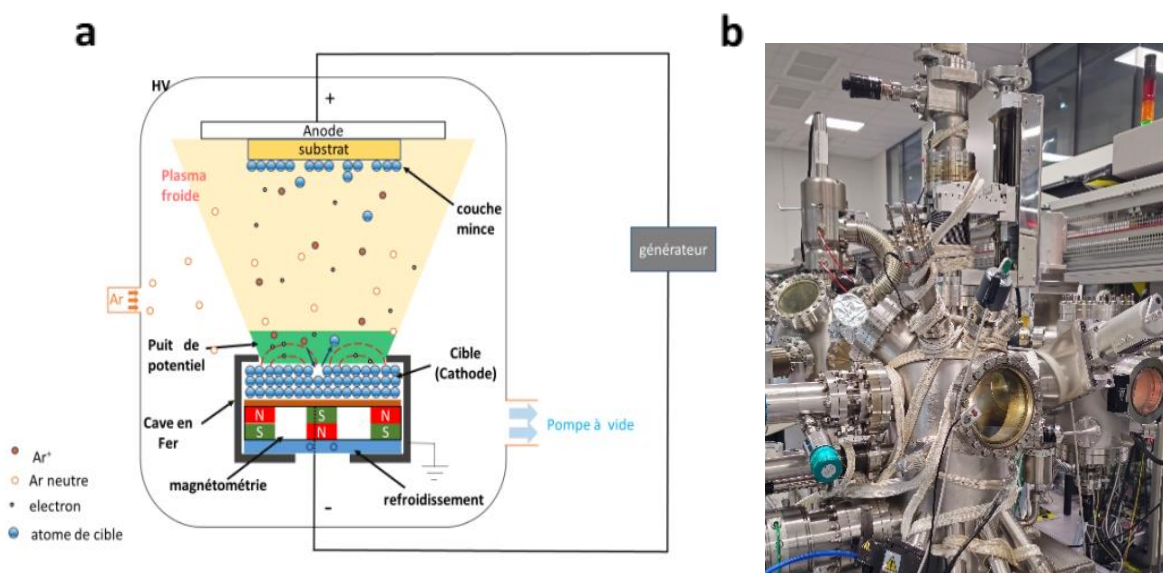


Figure II.6 : a) Schéma de principe de la pulvérisation cathodique ; b) Photographie de la chambre de pulvérisation cathodique.

Les atomes éjectés de la cible se répartissent dans toute la chambre. Une partie de ces atomes va adhérer sur la surface du substrat pour y former une couche mince homogène. Dans le cas d'une cible métallique, il est nécessaire d'appliquer une tension continue (DC) entre le substrat et la cible. Les charges positives accumulées à la surface de la cible en raison du bombardement ionique se dissipent naturellement et n'impactent donc pas significativement le processus de pulvérisation. En revanche, dans le cas d'un matériau isolant, les charges positives ont tendance à s'accumuler à la surface de la cible, ce qui entrave le bombardement continu des ions Ar⁺ et diminue le taux de pulvérisation. Une source de tension alternative (AC) est alors nécessaire. Lorsqu'une tension positive est appliquée, les ions Ar⁺ bombardent efficacement le matériau cible, entraînant la pulvérisation des atomes de la cible qui vont ensuite se déposer sur le substrat. En revanche, lorsque la tension devient négative, les électrons libres heurtent la cible, neutralisant ainsi les charges positives accumulées à la surface de la cible et facilitant la poursuite du processus de pulvérisation. Pour augmenter l'efficacité du plasma, un champ magnétique est appliqué au niveau de la cathode pour augmenter la possibilité de collision entre les électrons et le gaz rare. Une circulation d'eau froide permet d'éviter l'échauffement des cibles.

II.2 Caractérisation des injecteurs de spin

II.2.1 Caractérisations structurales

II.2.1.1 La diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante

La diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED) permet de caractériser in-situ et en temps réel la croissance de films minces. En raison de la faible pénétration du faisceau électronique et des interactions entre celui-ci et les atomes rencontrés, le RHEED permet d'analyser la surface des matériaux cristallins. Cette méthode a l'avantage d'être non destructive. Son principe consiste à diffuser élastiquement un faisceau d'électrons monocinétiques de haute énergie sur la surface d'un cristal. Les électrons (produits par un canon à électrons) sont accélérés par une différence de potentiel de 30kV et arrivent à la surface de l'échantillon avec une incidence très faible (entre 1 à 5°) (Fig. II.8 (a)) ce qui conduit à une zone d'interaction électron-matière limitée à quelques plans atomiques sous la surface. Les électrons diffractés vont frapper un écran fluorescent placé perpendiculairement à la direction du faisceau incident. La géométrie utilisée (Fig. II.8 (a)) et les distances canon-échantillon et échantillon-écran (~30 cm), permettent le suivi en temps réel, de l'évolution d'une surface lors d'un dépôt. C'est l'un des énormes avantages de cette technique. Les électrons sont en partie réfléchis et en partie diffusés élastiquement par la surface. Les électrons diffusés peuvent être diffractés dans le cas d'une surface d'un matériau cristallin : on parle alors de diffraction par réflexion. Cette diffraction produit un cliché, appelé « diagramme de diffraction », recueilli sur un écran phosphorescent placé en regard du canon à électrons. L'interprétation d'un cliché RHEED nécessite d'introduire la sphère d'Ewald. Son principe de construction est représenté sur la figure II.8 (b). Les électrons incidents étant très énergétiques, leur longueur d'onde associée sera faible de l'ordre de 10^{-1} Å. Par conséquent, le rayon de la sphère d'Ewald (donné par $2\pi/\lambda$) sera très grand et sa courbure sera faible.

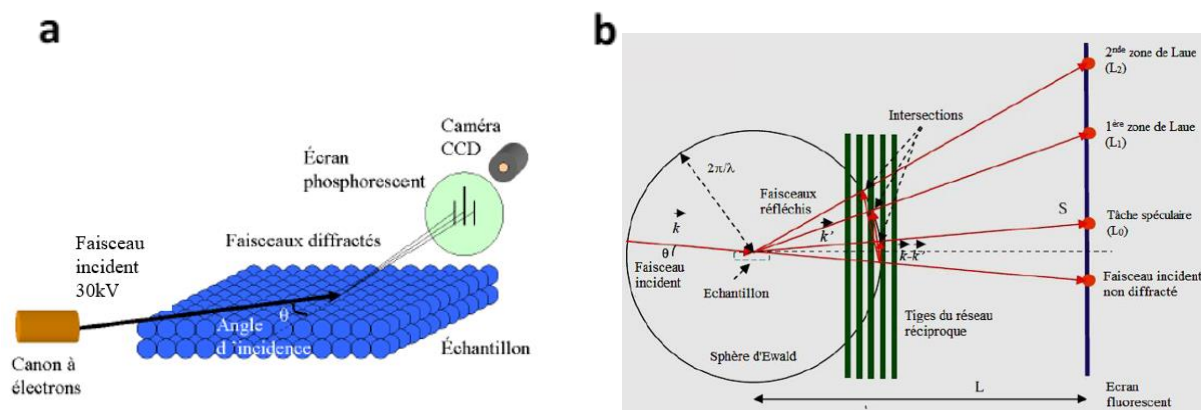


Figure II.8 : a) Schéma de principe de la diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED) ; b) Construction d'Ewald pour un diagramme de diffraction RHEED¹³¹.

L'intersection de cette sphère avec le réseau réciproque va donner lieu, dans la zone de Laue d'ordre 0, à des segments allongés (ou tiges, du fait de sa faible courbure) qui sont perpendiculaires au plan de la surface analysée. Sur la figure II.8(b), on présente également les autres zones de Laue. Pour plus d'informations concernant cette technique, on peut se référer à la thèse de Hussein Mortada¹³¹. La figure II.9 représente les clichés RHEED obtenus sur différentes surfaces étudiées au cours de cette thèse. L'analyse fine des diagrammes donne des informations précises sur :

- Le mode de croissance à partir des oscillations d'intensité des tiges de diffraction : Franck van der Merwe (2D), Stranski-Krastanow (2D /3D) ou Volmer-Weber (3D). Dans le cas d'une croissance 2D, les oscillations d'intensité permettent également de déterminer la vitesse de dépôt.
- Les reconstructions de surfaces : le cliché RHEED d'une surface plane cristalline reconstruite est constituée de tiges fines (figure 9(a)). Dans le cas des études menées sur les matériaux semi-conducteurs III-V (GaAs (001) dans ce cas), les observations se feront essentiellement selon les azimuts [110] et [100] caractéristiques de la structure zinc blende. En effet, comme nous le verrons plus tard, l'observation selon ces azimuts fournit des informations importantes sur les reconstructions de surface et sur la relation d'épitaxie entre la couche déposée et le substrat de GaAs ;

- L'évolution du paramètre de maille lors de la croissance (et donc sur les contraintes) :
La distance entre les tiges de diffraction (-1,0) et (1,0) est inversement proportionnelle au paramètre de maille en surface du réseau cristallin ;

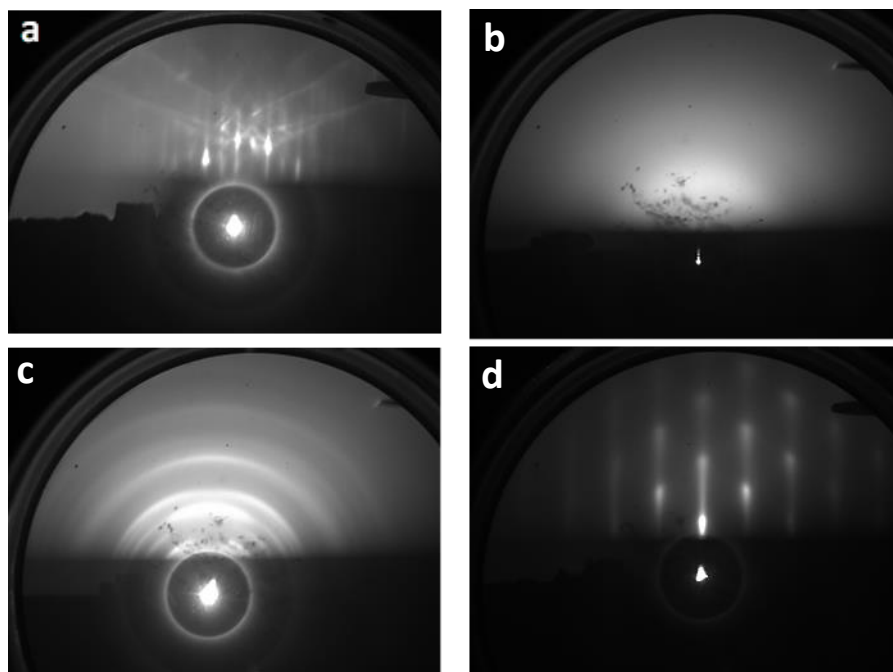


Figure II.9 : Cliché de diffraction d'une surface a) monocristalline plane, b) amorphe, c) polycristalline, d) rugueuse.

Une couche amorphe est identifiée par un fond continu (Fig. II.9(b)). Une croissance polycristalline est caractérisée par la coexistence de grains monocristallins désorientés les uns par rapport aux autres. Le cliché RHEED correspondant (Fig. II.9 (c)) est caractérisé par la présence d'anneaux de Debye-Scherrer. Enfin, une croissance rugueuse est caractérisée par un cliché de diffraction constitué de taches de diffraction, typiques d'une diffraction par transmission (Fig. II.9(d)).

II.2.1.2 La diffraction des rayons X

La qualité cristalline de nos échantillons a été analysée par diffraction des rayons X (DRX), Nous utilisons un diffractomètre Bruker AXS D8 Advance dans une géométrie Bragg-Brentano $\theta/2\theta$, avec un rayonnement monochromatisé Cu-K α 1 ($\lambda=1,5406 \text{ \AA}$) et un détecteur sensible à

la position LynxEye. Le faisceau de rayons X incident est dirigé vers l'échantillon qui est monté sur un goniomètre permettant de déplacer l'échantillon avec précision. Lorsque l'échantillon est orienté de façon à satisfaire les conditions de diffraction pour une série de plans atomiques (hkl), (donné par la loi de Bragg, $2d_{hkl} \sin \theta = n\lambda$), les rayons X sont diffractés par la structure atomique. On peut alors détecter les pics de diffraction en déplaçant le détecteur à la position appropriée. Ici, d_{hkl} représente la distance entre les plans de la même famille (hkl), n est un entier correspondant à l'ordre de la diffraction, λ est la longueur d'onde du rayonnement incident, et θ est l'angle entre le faisceau incident et les plans de diffraction. Le diagramme de diffraction obtenu en fonction de l'angle θ est donc caractéristique des distances interplanaires (hkl) avec des intensités propres pour chaque réflexion.

II.2.1.3 Le microscope à force atomique (AFM)

L'AFM permet d'avoir une image topographique en 3D. Il est utilisé pour analyser la morphologie d'un échantillon. L'imagerie AFM est basée sur la mesure des forces d'interaction entre une pointe et la surface que l'on veut étudier. Le principe de l'AFM (Fig. II.10) est basé sur la mesure des différentes forces d'interaction entre une pointe fixée à l'extrémité d'un levier souple, appelé "micro-levier", et les atomes de la surface d'un matériau (forces de répulsion ionique, forces de van der Waals, forces électrostatiques, forces de friction, forces magnétiques ...). En présence de forces d'interaction répulsives pointe-surface, le micro-levier qui balaie la surface subit une déflexion verticale. Ces déflexions, qui sont enregistrées optiquement grâce à la réflexion d'un faisceau laser sur le micro-levier, vont nous permettre d'accéder donc à la topographie de la surface.

L'image, ainsi recueillie, va nous donner accès à la rugosité et plus généralement à la morphologie de la surface étudiée. La dimension des images peut aller de (1 micron x 1 micron) à une centaine de micromètres carrés.

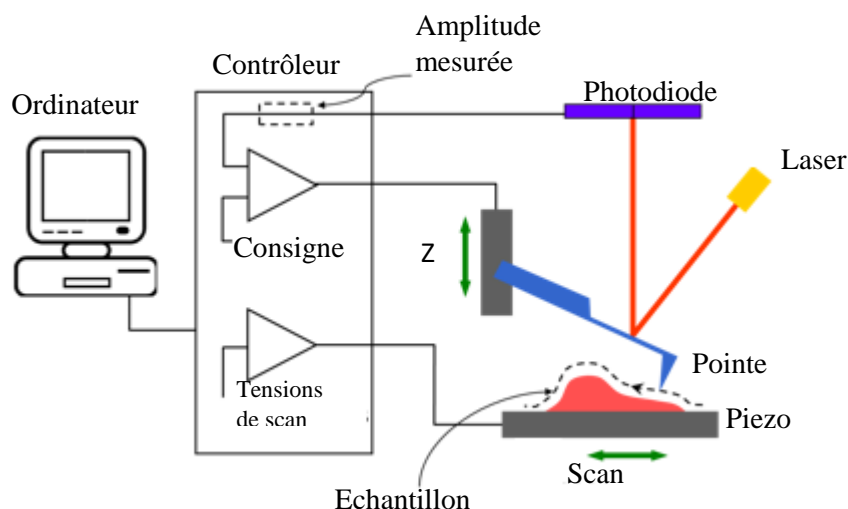


Figure II.10 : Principe de fonctionnement d'un microscope à force atomique.

II.2.1.4 Microscopie électronique en transmission (MET)

La microscopie électronique à transmission (TEM) est une technique très puissante qui nous donne directement accès à la structure de l'échantillon à l'échelle atomique. Elle nous aide à examiner les interfaces des couches déposés, la cristallinité et l'épaisseurs nette des couches ainsi que l'arrangement atomique de la structure. Le microscope utilisé au cours de cette thèse est un microscope JEOL ARM200F équipé d'un correcteur d'aberration, d'un filtre énergétique GATAN GIF *quantum* pour révéler la structure et la distribution des éléments. Le microscope comprend un canon à électrons pour l'émission du faisceau électronique, un réseau de plusieurs lentilles électromagnétiques, fonctionnant sous vide et des détecteurs qui permettent d'analyser les électrons et les photoélectrons.

Pour une bonne caractérisation en microscopie électronique en transmission, la préparation des échantillons est primordiale. Les lames pour l'observation en MET ont été préparées en utilisant un faisceau d'ions focalisé (FIB). Nous avons utilisé le FEI Hélios Nanolab 600i dual beam installé à l'IJL. La préparation d'une lame par FIB nécessite plusieurs étapes : Après avoir rentré notre échantillon dans la chambre de préparation sous vide, on choisit une zone où doit être prélevée la lame FIB.

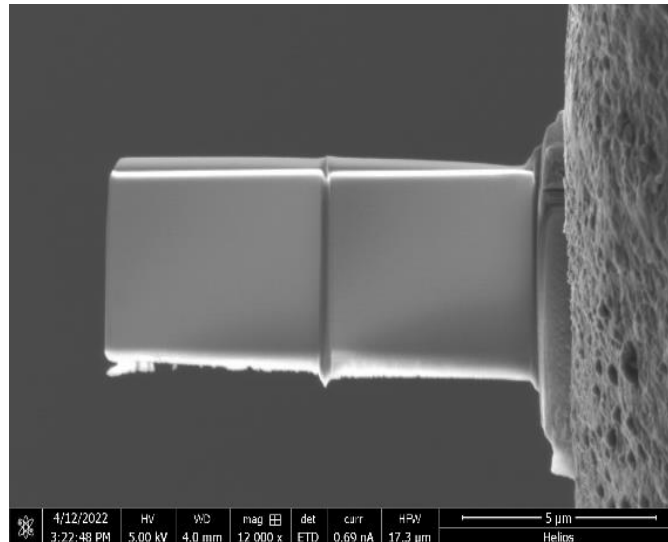


Figure II.11 : Image d'une lame mince préparée par FIB après amincissement.

On s'assure ensuite de faire une bonne mise au point avec le microscope électronique à balayage. Comme la surface de notre injecteur est métallique, un dépôt de carbone n'est pas nécessaire afin d'éviter l'accumulation de charge à la surface. Plusieurs étapes suivent :

- On délimite une zone de dimensions $15 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ avant de déposer $0.22 \mu\text{m}$ de Pt dit électronique et $1.6 \mu\text{m}$ de Pt dit ionique ;
- On creuse ensuite deux tranchées d'une part et d'autre du dépôt de Pt puis on fait un premier amincissement de la lame ;
- Ensuite, on insère un micromanipulateur soudé avec du Pt sur la lame, puis on fait une découpe ;
- On retire la lame découpée pour le souder à nouveau sur une grille MET en cuivre puis on libère le micromanipulateur ;
- On amincit la lame en retirant de la matière d'une part et d'autre en réduisant progressivement le courant ionique et la tension accélération et en augmentant l'angle d'amincissement ;
- Pour finir, l'échantillon doit être suffisamment mince pour permettre la transmission des électrons (moins de 100 nm).

La lame ainsi préparée est ensuite placée sous un faisceau électronique accéléré à 200kV. En traversant l'échantillon, le faisceau d'électrons interagit avec les atomes qui le constituent et donne lieu à divers rayonnements. L'analyse des électrons transmis nous permet d'accéder à la structure de l'échantillon et obtenir l'image en champ clair. En revanche, l'image en fond sombre est formée à partir du faisceau diffracté. La fabrication d'une lame FIB ainsi que la description du microscope sont plus détaillées dans la référence¹³².

II.2.2 Caractérisation chimique (XPS)

Le processus de photoémission peut être décrit en trois étapes : les rayons X interagissent avec les électrons des couches atomiques et des photoélectrons (ainsi que des électrons Auger) sont générés par effet photoélectrique (étape 1). Une partie de ces photoélectrons migrent vers la surface et sont soumis à divers processus de perte d'énergie (interaction électrons-électrons, électrons-phonons, électrons-plasmons...) (étape 2). Pour être détectés, les photoélectrons doivent encore franchir la barrière de potentiel que constitue la surface (étape 3). Seuls ces derniers pourront être analysés suivant leur énergie. Il est important de noter que seuls les photoélectrons provenant d'un derme d'épaisseur 3-4 nm pourront être analysés. La spectroscopie de photoélectrons X est donc une technique d'analyse de surface. Chaque élément chimique est caractérisé par un ensemble de pics XPS qui sont observés à des valeurs d'énergie de liaison caractéristiques. L'intensité d'un pic est proportionnelle à la quantité de cet élément particulier dans le volume analysé mais aussi à la section efficace de photoémission. Pour compter avec précision le nombre d'électrons photoémis, les détecteurs XPS doivent fonctionner dans des conditions d'ultravide (10^{-11} mbar dans ce cas)

L'énergie cinétique d'un photoélectron est obtenue à partir du schéma des niveaux d'énergie illustré à la figure II.12 (b). Un rayon X d'énergie caractéristique $h\nu$ transfère son énergie à un électron d'énergie de liaison E_L (par rapport au niveau de Fermi, E_F). L'énergie cinétique de cet électron dans le vide est donnée par :

$$E_c = h\nu - E_L - \theta_E \quad (\text{II.2})$$

Où θ_E est le travail de sortie de l'échantillon. Le spectromètre ayant son propre travail de sortie θ_{Sp} , l'énergie cinétique E_c' mesurée par l'analyseur est donnée par

$$E_c' = h\nu - E_L - \theta_E - (\theta_{Sp} - \theta_E) = h\nu - E_L - \theta_{Sp} \quad (\text{II.3})$$

$$E_c' = h\nu - E_L - \theta_{Sp} \quad (\text{II.4})$$

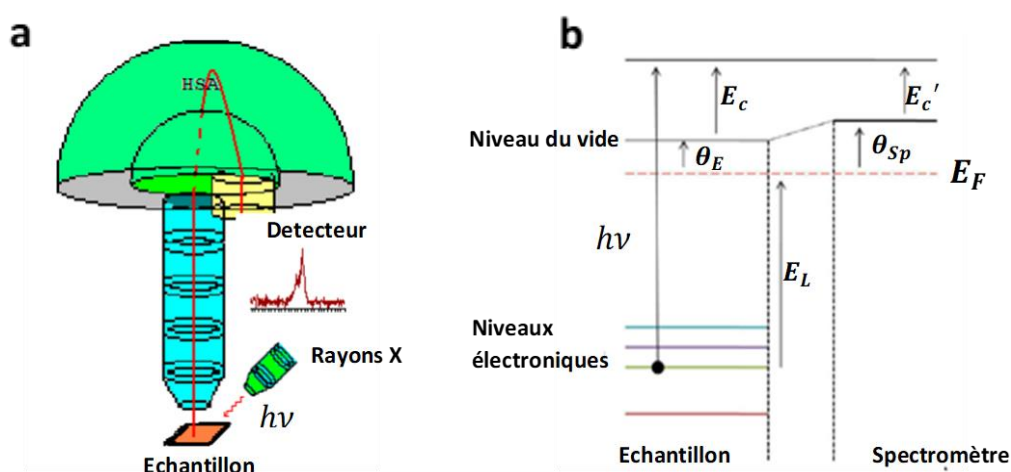


Figure II.12 : (a) Géométrie de la mesure de photoémission X, (b) Diagramme énergétique du principe de photoémission X.

Afin de s'assurer de l'homogénéité d'une couche mince, il peut être utile de faire une mesure XPS lorsque l'échantillon est placé perpendiculairement à l'axe du détecteur et lorsque celui-ci est incliné de 60° par rapport à l'axe du détecteur. Dans ce dernier cas, la mesure sera encore plus sensible à la surface alors que dans le premier cas, la mesure sera plus sensible au « volume ». Au cours de cette thèse, nous avons effectué des mesures avec les deux configurations.

II.2.3 Caractérisation magnétique (VSM et SQUID VSM)

Un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) décrit pour la première fois par Foner est un instrument très sensible pour mesurer un moment magnétique. La précision est d'environ 10^{-8} $\sim 10^{-9}$ A.m².

Le VSM est constitué d'un électro-aimant pouvant générer un champ magnétique jusqu'à 2.5T, d'un porte-échantillon connecté à un moteur vibrant et de bobines de détection situées entre les pôles magnétiques (Fig. II.13).

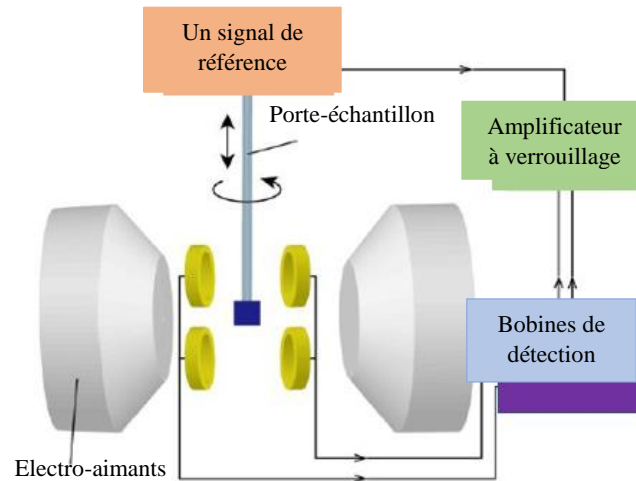


Figure II.13 : Représentation schématique d'un VSM¹³³.

Le VSM est basé sur la loi de Faraday qui stipule qu'une force électromotrice est générée dans une bobine lorsque le flux magnétique à travers la bobine varie au cours du temps.

$$E = -d\Phi/dt \quad (\text{II.5})$$

Dans la configuration de mesure, l'échantillon se déplace à proximité de deux bobines de détection, comme indiqué sur la figure II.13. L'oscillateur fournit un signal sinusoïdal qui est traduit par un transducteur en une vibration verticale. L'échantillon qui est fixé sur la tige en quartz vibre verticalement avec une fréquence et une amplitude donnée. Si l'échantillon est placé dans un champ magnétique uniforme H (produit par l'électro-aimant), une aimantation M sera induite dans l'échantillon. Dans un VSM, l'échantillon est placé entre des bobines de détection convenablement placées, également maintenues à l'angle souhaité (perpendiculaire ou parallèle au champ). L'échantillon vibrant subit un mouvement sinusoïdal. Une fois que la vibration commence, l'aimantation de l'échantillon est analysée au fur et à mesure que des changements se produisent par rapport à la synchronisation du mouvement. Une variation de

flux magnétique induit une force électromotrice dans les bobines de détection qui est proportionnelle au moment magnétique de l'échantillon. Les modifications du signal détecté sont converties par le logiciel en aimantation M représentée en fonction de l'intensité du champ magnétique H , souvent appelée cycle d'hystérésis. Une fois que le matériau a été amené à saturation, le champ magnétique peut être ramené à zéro et le matériau conservera une aimantation, dite aimantation rémanente. Le signal détecté, étant un signal alternatif de fréquence fixe, il est mesuré à l'aide d'un amplificateur à détection synchrone. Les mesures sont généralement effectuées à température ambiante.

Le SQUID-VSM (Superconducting Quantum Interference Device Vibrating Sample Magnetometer, en anglais) est une technique qui permet de mesurer le moment magnétique global d'un échantillon (poudre céramique, verre, liquide, couche mince...) avec une très grande sensibilité de l'ordre 10^{-8} emu. Actuellement, les SQUIDs fournissent les meilleures résolutions pour caractériser les moments magnétiques des échantillons. Le SQUID consiste en un anneau supraconducteur avec une petite couche isolante connue sous le nom de jonction Josephson. Dans une chambre remplie d'Hélium (4.2K), on dispose de trois bobines supraconductrices en parallèle plongées dans un champ magnétique homogène pouvant atteindre 7 T. Lorsque l'échantillon est déplacé grâce à la tête VSM, son aimantation va induire un courant électrique dans les bobines supraconductrices. Ces dernières sont reliées à l'anneau constituée de jonctions Josephson qui forment un circuit supraconducteur fermé. Le flux passant à travers l'anneau est quantifié une fois que l'anneau est devenu supraconducteur. La jonction Josephson permet au flux traversant dans l'anneau de changer par quantités discrètes, grâce à l'effet Josephson. La tension de détection est modifiée à mesure que le flux est incrémenté par des quantités de $\Delta\Phi = 2,067 \times 10^{-15}$ Wb. Le dispositif peut ainsi être utilisé pour mesurer des changements très faibles de flux magnétique. Le SQUID est un dispositif adapté à la mesure de très petites variations de champ magnétique comme les échantillons de cette thèse.

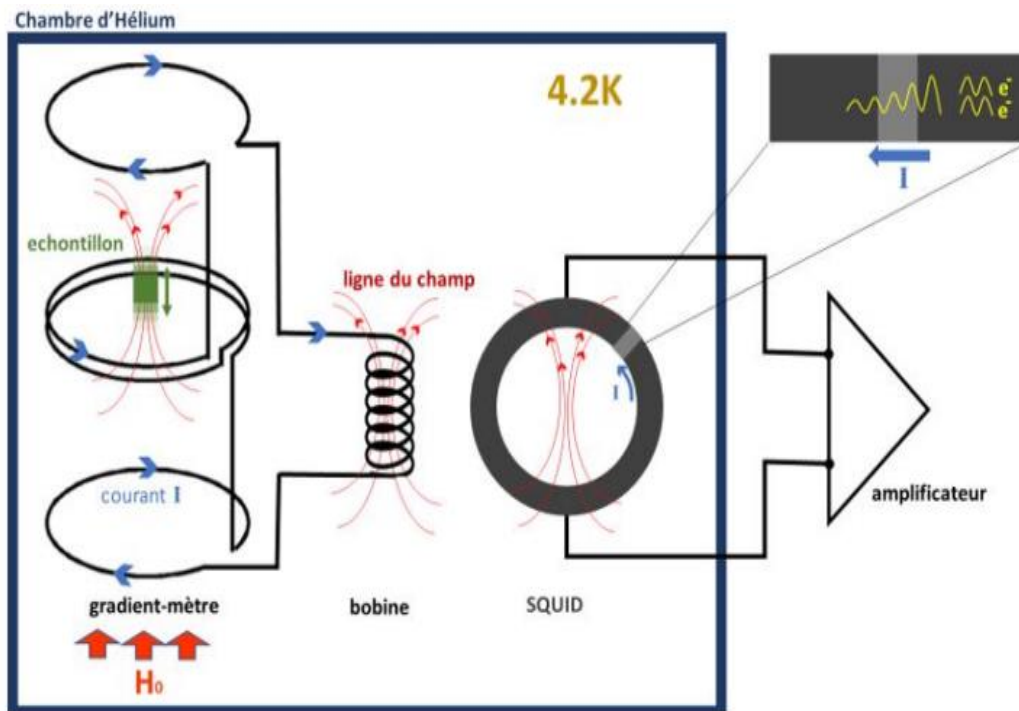


Figure II.14 : Représentation schématique d'un SQUID-VSM¹³⁴

II.3 Micro-fabrication de la spin-LED

Au cours de cette thèse, deux différents types de spin-LEDs ont été fabriqués, la spin-LED dite standard et la SOT spin-LED. Nous détaillerons les raisons ultérieurement.

II.3.1 La spin-LED standard

Nous rappelons que l'injecteur ferromagnétique est constitué en général de trois couches : barrière tunnel / couche ferromagnétique / métal lourd. La fabrication du dispositif commence d'abord par le nettoyage de la surface des échantillons à l'acétone puis à l'isopropanol afin d'éliminer toutes les contaminations lors de l'exposition à l'air. La lithographie UV est un processus fondamental qui permet de transférer les motifs d'un masque à une résine photosensible à l'échelle micrométrique. Le masque utilisé, constitué d'une plaque de quartz transparente partiellement recouverte de chrome opaque, joue un rôle crucial lors de l'exposition. Positionné entre l'échantillon et la source de lumière UV, il détermine la zone

d'irradiation de la résine photosensible sur la surface de l'échantillon. Suite à l'exposition, au développement, le motif présent sur le masque est transféré sur la résine photosensible. Le système de photolithographie que nous avons utilisé ici est le MJB4 de SUSS MicroTec situé au CC Minalor, IJL(Nancy).

Nous décrivons ci-dessous les étapes de la fabrication de la spin-LED standard :

➤ Définition des mesas

1. Enrésinement de l'échantillon avec une résine positive, la S1813 ;
2. Exposition de l'échantillon à la lumière UV(MJB4) ;
3. Développement de l'échantillon dans la solution révélatrice MF319 ;
4. Gravure ionique à l'argon de l'échantillon jusqu'à la surface du GaAs puis gravure chimique du substrat de GaAs avec une solution de $\text{H}_3\text{PO}_4(2.5\%) + \text{H}_2\text{O}_2(2.5\%) + \text{H}_2\text{O}(95\%)$ (concentration) jusqu'au p-GaAs. Seules les parties non recouvertes par la résine sont gravées. Nous obtenons après gravure, un plot vertical de 500 microns de diamètre qui constituera le mesa de la spin-LED ;
5. Pour finir, nettoyage de l'échantillon aux ultrasons avec de l'acétone pour retirer la résine restante puis rinçage à l'isopropanol.

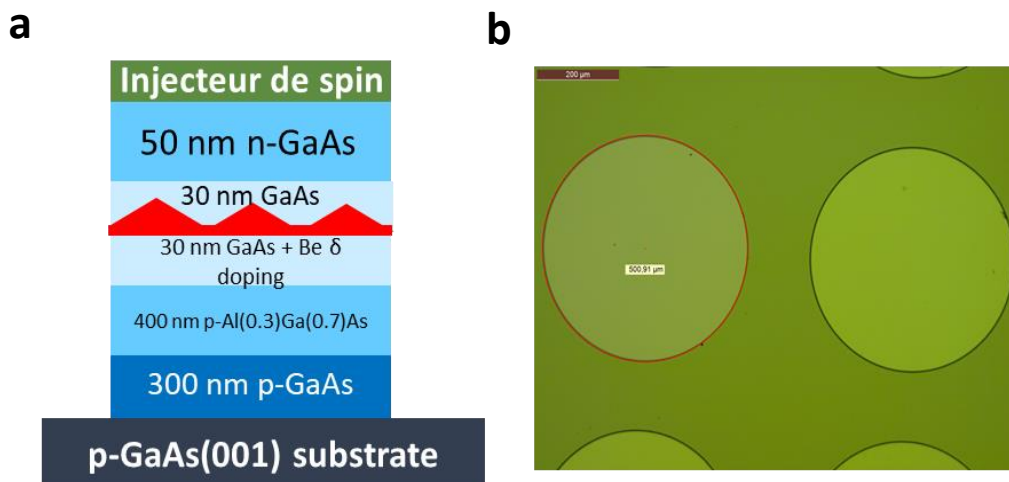


Figure II.15 : Définition des mesas : (a) Vue de profil schématique de la structure ; (b) Image de microscopie optique (Vue de dessus).

➤ Métallisation

1. Enrésinement de l'échantillon avec une résine positive, la S1813 ;
2. Exposition de l'échantillon à la lumière UV (MJB4) ;
3. Développement de l'échantillon dans la solution révélatrice MF319 ;
4. Dépôt des électrodes Ta(10nm) /Pt(150nm) sur l'échantillon par pulvérisation cathodique ;
5. Retrait de la résine en utilisant un dissolvant (le remover 1165) puis rinçage à l'eau déionisée ;

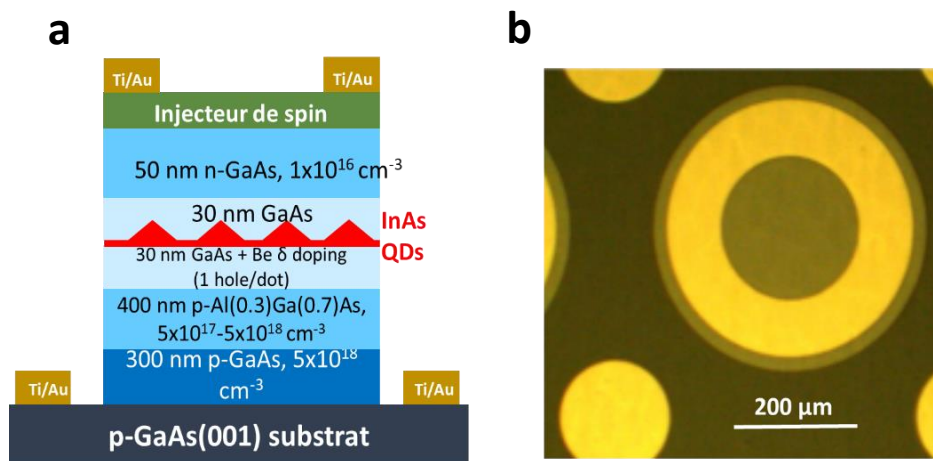


Figure II.16 : Métallisation : (a) Vue de profil schématique de la spin LED standard ; (b) Image de microscopie optique du dispositif spin-LED (Vue de dessus).

II.3.2 La SOT spin-LED

➤ Définition des croix de Hall

La première étape consiste à définir les croix de Hall, pour cela :

1. Enrésinement de l'échantillon avec une bicouche de résine photosensible (le LOR3A + la S1813) ;
2. Exposition de l'échantillon au travers d'un masque à la lumière UV(MJB4) ;
3. Développement des structures dans la solution révélatrice MF319 ;

4. Gravure ionique à l'argon de l'échantillon jusqu'à la surface du GaAs. Seules les parties non-couvertes de l'injecteur de spin par la résine sont gravées.
5. Dépôt de 150 nm de SiO₂ par pulvérisation cathodique ;
6. Nettoyage de l'échantillon aux ultrasons avec le dissolvant (le remover 1165) pour retirer la résine restante, rinçage à l'eau déionisée (Fig. II.17)

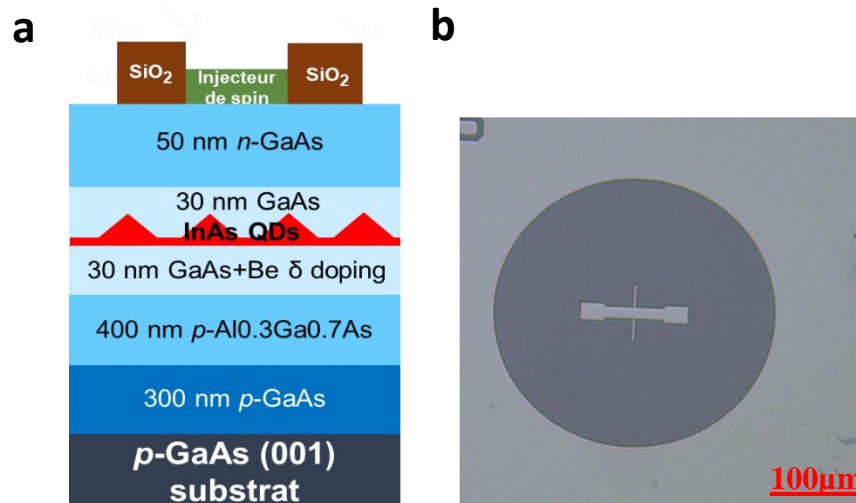


Figure II.17 : Croix de Hall après dépôt de SiO₂ et retrait de la résine ;(a) Vue de profil schématique ; (b) Image de microscopie optique (vue de dessus).

➤ Définition des contacts supérieurs

1. Enrésinement de l'échantillon avec une couche de résine photosensible positive S1813 ;
2. Exposition de l'échantillon à la lumière UV au travers d'un masque avec le système de lithographie UV(MJB4) ;
3. Développement des structures dans la solution révélatrice MF319 ;
4. Dépôt des électrodes Ta(10nm) /Pt(150nm) sur l'échantillon par pulvérisation cathodique ;
5. Retrait de la résine en utilisant la solution de dissolvant puis rinçage à l'eau déionisée (Fig. II.18)

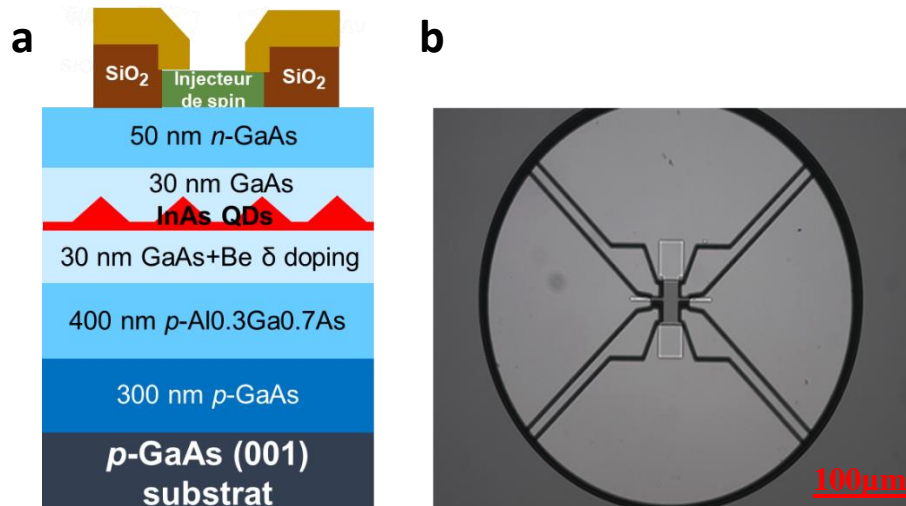


Figure II.18 : Métallisation : (a) Vue de profil schématique ; (b) Image de microscopie optique vue de dessus.

➤ **Définition du mesa**

1. Enrésinement de l'échantillon avec une couche de résine photosensible S1813 ;
2. Exposition de l'échantillon à la lumière UV au travers d'un masque avec le système de lithographie UV(MJB4) ;
3. Développement des structures dans la solution révélatrice MF319 ;
4. Gravure ionique à l'argon de l'échantillon jusqu'à la surface du GaAs puis gravure chimique du substrat de GaAs dans une solution de H₃PO₄(2.5%) +H₂O₂(2.5%) +H₂O (90%) jusqu'au p-GaAs. Seules les parties non couvertes par la résine sont gravées ;
5. Pour finir, nettoyage de l'échantillon aux ultrasons avec l'acétone et rinçage à l'isopropanol.

➤ **Définition des électrodes inférieures (dispositif final)**

1. Enrésinement de l'échantillon avec la résine photosensible positive S1813 ;
2. Exposition de l'échantillon à la lumière UV au travers d'un masque avec le système de lithographie UV(MJB4) ;
3. Développement de l'échantillon dans la solution révélatrice MF319 ;

4. Dépôt des électrodes Ta/Pt sur l'échantillon par pulvérisation cathodique ;
5. Retrait de la résine en utilisant un dissolvant puis rinçage à l'eau déionisée.

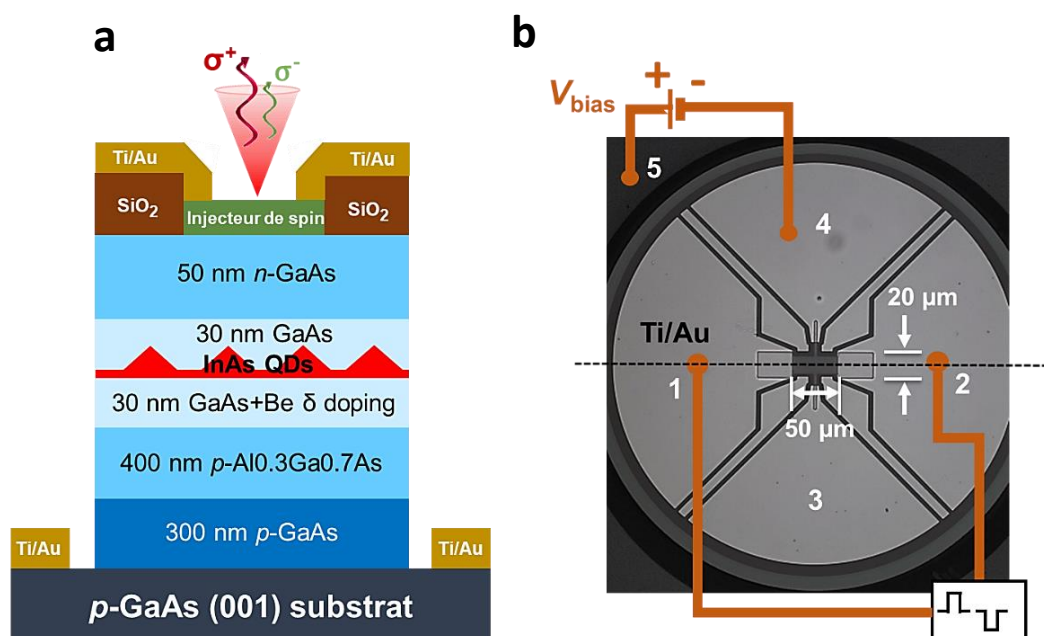


Figure II.19 : (a) Vue de profil schématique de la SOT spin-LED comportant une couche active de boîtes quantiques InAs/GaAs ; (b) Vue de dessus du dispositif final. Une impulsion de courant est injectée dans le canal transversal de l'injecteur (entre les électrodes 1 et 2) pour retourner l'aimantation, tandis qu'une tension verticale est appliquée entre les électrodes 4 et 5 pour l'émission de lumière

II.4 Mesures de transport sous champ magnétique

Pour caractériser le retournement électrique de l'aimantation de notre injecteur de spin (dessinés sous forme de croix de Hall avec 4 contacts), des mesures de transport sous champ magnétique ont été effectuées. La figure II.20 montre le cryostat développé par la société JANUS dans lequel l'échantillon est placé entre deux bobines de Helmholtz capable de générer un champ magnétique homogène variable pouvant atteindre 5kOe. Placé au centre des bobines, l'échantillon est connecté à des appareils de mesures externes tels que les sources de courants via une boîte de mesure. Pour envoyer une impulsion de courant permettant de retourner électriquement l'aimantation, deux 'Keithley' ont été utilisés, le K2450 pour des impulsions longues de durée minimum 1ms et le K6221 pour des impulsions plus courtes pouvant atteindre 10 μ s.

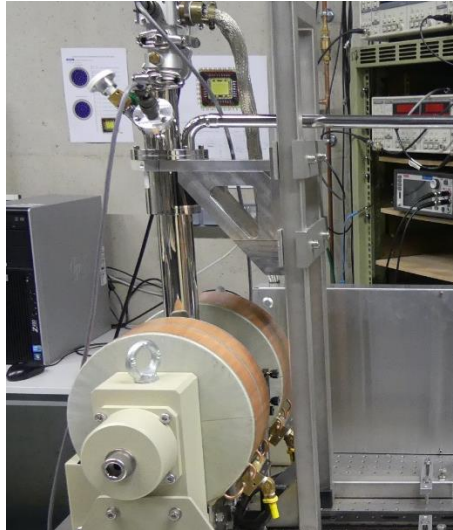


Figure II.20 : Photographie du cryostat utilisé pour les mesures de transport sous champ magnétique.

II.5 Retournement de l'aimantation au MOKE

II.5.1 Rappels sur les effets magnéto-optiques

Les effets magnéto-optiques rendent compte en général de l'influence de l'aimantation d'un matériau magnétique sur une onde électromagnétique incidente. Il existe plusieurs effets magnéto optiques comme l'effet Faraday, l'effet Voigt etc....La réponse optique des milieux magnétiques est différente selon le cas de figure (transmission, absorption etc.)

L'effet présenté ici décrit le changement de polarisation de la lumière incidente lorsqu'elle est réfléchiée par la surface d'un matériau magnétique. Avant de considérer l'effet Kerr magnéto optique, nous faisons un petit rappel des différentes polarisations de la lumière.

Etats de polarisation d'une onde électromagnétique

On peut représenter une onde électromagnétique par un trièdre direct $(\vec{E}, \vec{B}, \vec{k})$. Les champs électriques et magnétiques \vec{E} et \vec{B} , sont orientés perpendiculairement à la direction de propagation \vec{k} . La polarisation correspond à la direction du champ électrique \vec{E} . On distingue généralement trois états de polarisation différents.

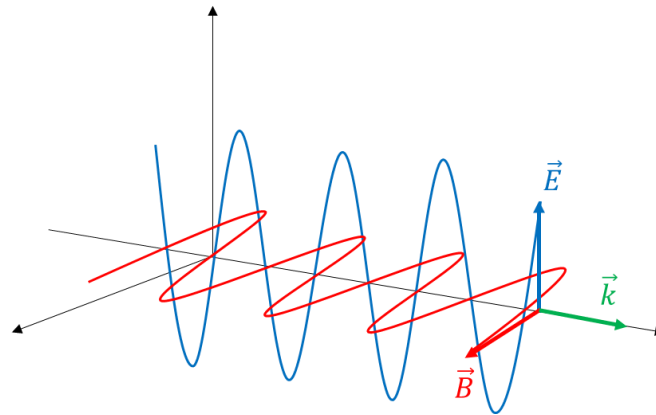


Figure II.21 : Caractéristiques d'une onde électromagnétique

Polarisation linéaire (ou rectiligne) :

Les ondes incidentes sont en phase. Le champ électrique \vec{E} conserve une direction constante dans le plan d'onde lors de la propagation

Polarisation elliptique :

Les ondes incidentes sont déphasées les unes par rapport aux autres. Le champ électrique \vec{E} décrit une ellipse au cours de la propagation de l'onde.

Polarisation circulaire :

Il s'agit d'un cas particulier de la polarisation elliptique. Le champ électrique \vec{E} décrit un cercle au cours de la propagation de l'onde. Par rapport à l'observateur, lorsque le champ \vec{E} tourne vers la droite, on parle de polarisation circulaire droite. Lorsque le champ \vec{E} tourne vers la gauche, on parle de polarisation circulaire gauche.

II.5.2 L'effet Kerr magnéto optique

L'effet Kerr magnéto-optique correspond à un changement de polarisation de l'onde incidente après réflexion sur une surface magnétique. La lumière incidente polarisée linéairement est polarisée elliptiquement après réflexion sur une surface magnétique. (Fig. II.22). L'angle de rotation du plan de polarisation de la lumière est proportionnel à l'aimantation M du matériau magnétique.

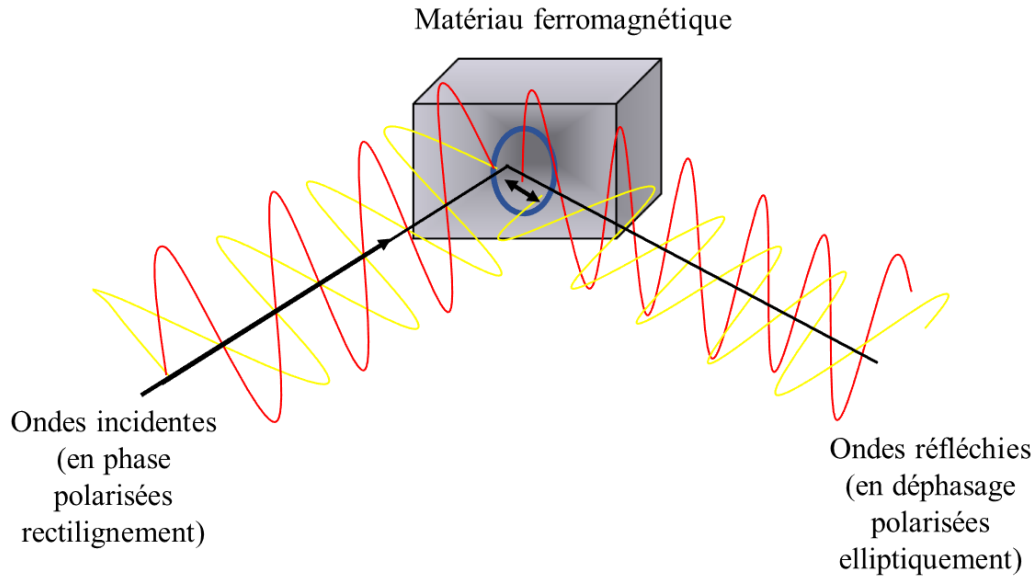


Figure II.22 : Principe de l'effet Kerr magnéto-optique.

Pour rappel, on sait que la propagation de la lumière dans un milieu est décrite par les équations de Maxwell. Dans un milieu aimanté, sans densité de courant et sans densité volumique de charges les équations de Maxwell sont de la forme :

$$\mathbf{rot} \mathbf{E}(\mathbf{r},t) = -i\omega\mathbf{B}(\mathbf{r},t) = -i\omega\mu_0 \mathbf{H}(\mathbf{r},t) \quad (\text{II.6})$$

$$\mathbf{rot} \mathbf{B}(\mathbf{r},t) = \mathbf{rot}(\mu_0 \mathbf{H}(\mathbf{r},t)) = i\omega\mu_0\varepsilon_0\varepsilon \mathbf{E}(\mathbf{r},t) \quad (\text{II.7})$$

$$\mathbf{div}\mathbf{E}=0 \quad (\text{II.8})$$

$$\mathbf{div}\mathbf{B}=0 \quad (\text{II.9})$$

Sachant que $\mathbf{rot}(\mathbf{rot}\mathbf{E})=\mathbf{grad}(\mathbf{div}\mathbf{E})-\Delta\mathbf{E}$ et donc : $\mathbf{rot}(\mathbf{rot} \mathbf{E}(\mathbf{r},t)) = -i\omega\mu_0\mathbf{rot} \mathbf{H}(\mathbf{r},t)$, on en déduit

$$-\Delta\mathbf{E} = -\omega^2\mu_0\varepsilon_0\varepsilon \mathbf{E} \quad (\text{II.10})$$

$$\Delta\mathbf{E} - k_0^2 \varepsilon \mathbf{E} = 0 \quad (\text{II.11})$$

Cette l'équation d'onde décrit l'interaction de l'onde électromagnétique avec un matériau magnétique.

$k_0 = \omega^2\mu_0[\varepsilon]$: l'amplitude du vecteur d'onde

$[\epsilon]$: le tenseur de permittivité diélectrique du milieu magnétique

Lorsque l'aimantation est nulle (au-dessus de la température de Curie), le tenseur devient diagonal. Il n'y a donc aucun effet magnéto-optique visible. Dans ce cas, il n'y aura pas de changement de polarisation lorsque l'onde électromagnétique interagit avec l'échantillon. En dessous de la température de Curie, l'aimantation est non nulle conduisant à l'apparition des termes non diagonaux dans le tenseur.

La forme générale du tenseur de permittivité est $[\epsilon]$:

$$[\epsilon] = n^{*2} \cdot \begin{bmatrix} 1 & -i \cdot Q \cdot M_z & i \cdot Q \cdot M_y \\ i \cdot Q \cdot M_z & 1 & -i \cdot Q \cdot M_x \\ -i \cdot Q \cdot M_y & i \cdot Q \cdot M_x & 1 \end{bmatrix}$$

n^* : l'indice de réfraction

Q : coefficient magnéto-optique (constante de Voigt)

M_x , M_y et M_z sont les composantes de l'aimantation parallèles aux 3 axes. En incidence oblique, la lumière polarisée linéairement se décompose en deux ondes électromagnétiques polarisées circulairement gauche et droite. Par conséquent, la lumière réfléchie devient polarisée elliptiquement avec une rotation d'un angle θ_k .

II.5.3 Configurations possibles de l'effet Kerr

Il existe trois types d'effets Kerr selon l'orientation de l'aimantation \mathbf{M} à la surface de l'échantillon par rapport au plan d'incidence.

L'effet Kerr polaire : dans ce cas, l'aimantation est orientée dans le plan d'incidence perpendiculairement à la surface de l'échantillon (Fig. II.23(a)). Pour déterminer la composante de l'aimantation polaire, la lumière incidente polarisée rectilignement tombe en incidence normale sur la surface de l'échantillon, la polarisation tourne d'un angle θ_k après réflexion. En inversant l'aimantation, le sens de rotation s'inverse aussi.

L'effet Kerr transverse : l'aimantation est orientée dans le plan de surface de l'échantillon perpendiculairement au plan d'incidence. Pour déterminer la composante de l'aimantation transverse, la lumière incidente arrive sur l'échantillon d'une manière oblique et dans ce cas il n'y aura pas d'effet de rotation pour la polarisation. Lorsqu'on inverse l'aimantation, si la polarisation incidente est p alors il y aura une variation de l'intensité réfléchie. (Fig. II.23(b))

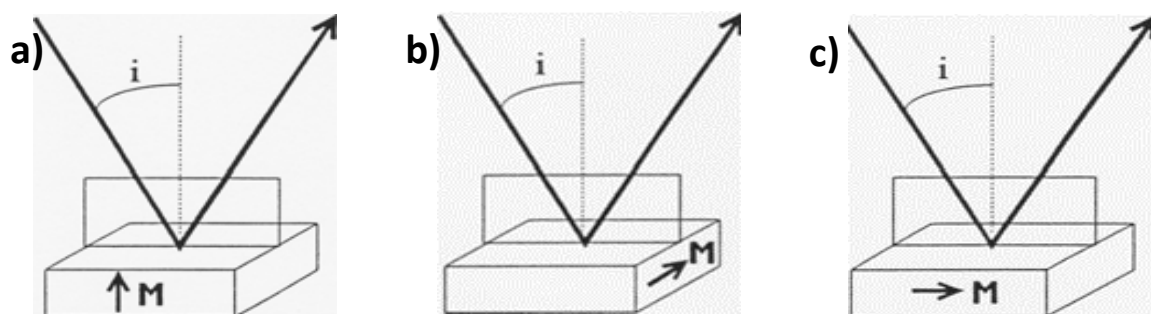


Figure II.23 : Configurations de l'effet Kerr ; a) polaire ; b) transverse ; c) longitudinal.

L'effet Kerr longitudinal : l'aimantation est orientée dans le plan de l'échantillon et dans le plan d'incidence. Pour mesurer l'aimantation longitudinale, si la lumière incidente tombe sur l'échantillon d'une manière oblique, la lumière réfléchie va tourner d'un angle θ_k . L'inversion de l'aimantation inverse le sens de rotation. (Fig. II.23(c))

II.6 Mesures de PL résolues en temps

Les mesures de photoluminescence (PL) résolues en temps ont été effectués en collaboration avec le laboratoire de Photonique et de Technologie TéraHertz de l'Université de Bochum en Allemagne. L'échantillon a été monté dans un cryostat à flux d'azote liquide (LN2). Des impulsions laser ultra-courtes provenant d'un laser Ti : saphir de largeur d'impulsion 2 ps ont été utilisées pour l'excitation circulaire polarisée à une longueur d'onde centrale de 810 nm (1,531 eV). Le signal de photoluminescence (PL) a été analysé avec une résolution temporelle de 2,7 ps (5 nm) en utilisant une caméra streak (Hamamatsu C5680, cathode S-1) combinée à

un spectromètre (Bruker Chromex 250IS). Pour analyser le degré de polarisation circulaire, le signal de PL a été dirigé vers une lame à retard $\lambda/4$ (QWR) et un polariseur linéaire (LP). Deux mesures avec un angle de 45° et 135° entre les axes du LP et du QWR ont été effectuées successivement, donnant les intensités $I(45)$ et $I(135)$. Pour obtenir les déclins de luminescence, la longueur d'onde du pic d'intensité du signal de PL a été détectée et le signal a été intégré dans une plage de longueurs d'ondes où il est supérieur à $1/e$ du maximum. La détection du pic et l'intégration ont été effectuées séparément pour la PL des boîtes quantiques (QD) et la PL du GaAs. Le degré de polarisation circulaire (CPD) défini par l'équation (I.7) peut ensuite être calculé.

II.7 Mesures d'EL résolues en polarisation

L'électroluminescence correspond à l'émission de lumière par un matériau semi-conducteur lorsqu'il est soumis à une excitation électrique. L'échantillon est placé dans un cryostat développé par la société Cryoscan. Il est connecté électriquement à un générateur de fonction capable de générer des tensions dont l'amplitude peut atteindre 5V. Les mesures d'EL ont été réalisées dans deux laboratoires. La spin LED standard a été caractérisée à l'IJL et la SOT spin-LED au LPCNO de Toulouse. Pour nos mesures d'électroluminescence (EL), le signal est détecté en géométrie de Faraday (détection de surface) et analysé par un monochromateur (IHR 320, Horiba ou Acton SP2500 Princeton Instruments) équipé d'un réseau 80 traits/mm (blazé à 870 nm) et détecté par une caméra CCD à base de silicium (Pylon Excelon 400 BR de Princeton Instruments). L'injection de porteurs de charge polarisés en spin se traduit par une différence d'intensité entre la lumière émise polarisée circulairement gauche et droite. La lumière émise est collectée par une première lentille, passe à travers une lame quart d'onde et un polariseur linéaire avant d'être analysée puis détectée. La lame quart d'onde transforme la lumière polarisée circulairement en lumière polarisée linéairement, qui est ensuite analysée avec un

polariseur linéaire. Après transmission à travers la lame quart d'onde, la lumière polarisée circulairement droite devient polarisée linéairement à $+45^\circ$ et la lumière polarisée circulairement gauche devient polarisée linéairement à -45° par rapport à l'axe neutre de la lame quart d'onde (Fig. II.24). Le polariseur linéaire suivant doit être placé avec un angle de $+45^\circ$ par rapport à l'axe neutre afin de mesurer l'intensité de la lumière polarisée circulairement droite. Pour mesurer l'intensité de la lumière polarisée circulairement gauche, la lame quart d'onde doit être tournée de 90° . La lumière sortante est ensuite collectée par une seconde lentille puis focalisée sur la fente d'entrée du monochromateur. Elle est finalement détectée par la caméra CCD.

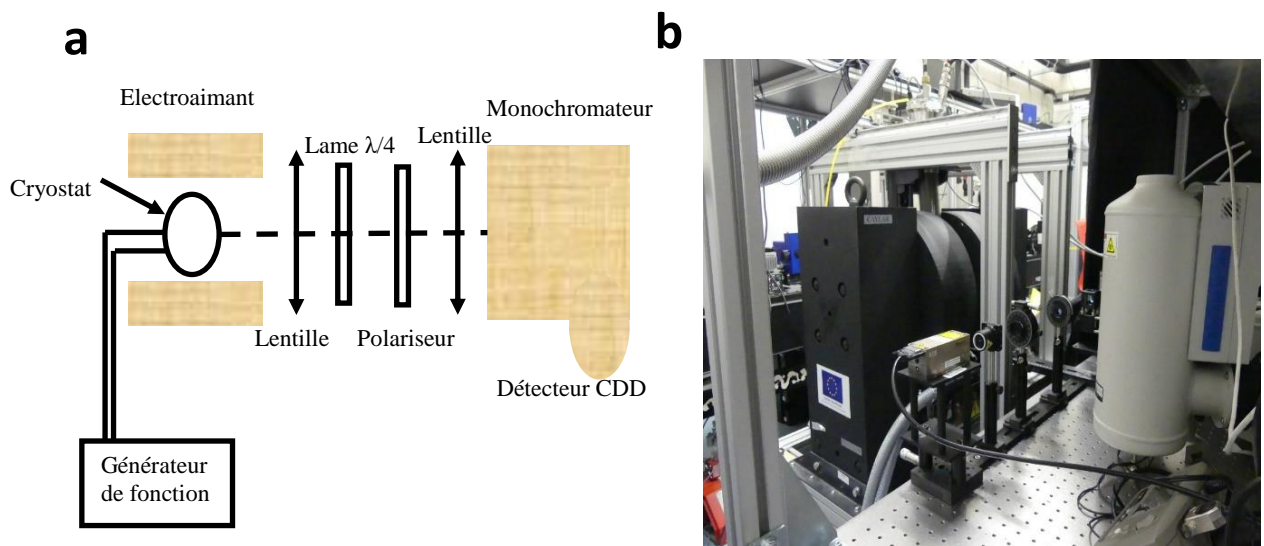


Figure II.24 : a) Dispositif utilisé pour les mesures d'électroluminescence (EL) résolues en polarisation ; b) Photographie du dispositif.

II.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons décrit les différentes techniques d'élaboration, la fabrication des spin-LEDs (standard et SOT) basée sur les techniques de salle blanche (lithographie, gravure, métallisation) ainsi que les différentes techniques de caractérisation utilisées par la suite.

Chapitre III

Développement d'un nouvel injecteur de spin à base de MgO/Fe₄N/Au

III.1 Intérêt de l'injecteur MgO/Fe₄N/Au

Le nitrure de fer Fe₄N a suscité un intérêt croissant ces dernières années en raison notamment de sa conductance électrique fortement polarisée en spin de presque 100% comparable à celle des alliages de Heusler, de sa polarisation en spin négative au niveau de Fermi, de sa température de Curie élevée (760K) et de sa faible coercivité^{135,136,137}. La croissance du γ -Fe₄N a été étudiée à l'aide de nombreuses techniques de croissance différentes telles que la pulvérisation cathodique¹³⁸, l'évaporation réactive¹³⁹, le dépôt en phase vapeur d'halogénures à pression atmosphérique¹⁴⁰, l'épitaxie par jet moléculaire assistée par plasma¹⁴¹ et le dépôt par laser pulsé¹⁴². Alors que les techniques basées sur la pulvérisation cathodique conduisent souvent à la coexistence de plusieurs phases telles que α -Fe₄N et γ -Fe₄N¹³⁸, une phase Fe₄N pure a été obtenue par évaporation de Fe sous atmosphère d'azote sur des substrats de Si (001) chauffés à 450°C¹³⁹. La croissance de couches minces de Fe₄N a été étudiée sur différents substrats tels que MgO (001)^{143,144}, Cu (100)¹⁴⁵, NaCl (100)¹⁴⁶, GaN¹⁴⁷, LaAlO₃ ou SrTiO₃^{148,149}. Afin d'éviter une éventuelle interdiffusion à l'interface substrat/couche mince et

donc d'améliorer les propriétés magnétiques des films de Fe₄N, certains auteurs ont étudié la croissance de films minces de Fe₄N sur un substrat de Si (001) recouvert par une couche tampon de TiN¹⁵⁰ ou de Fe¹⁵¹. La croissance de Fe₄N a par ailleurs été étudiée sur des substrats de GaAs(001) recouverts par une couche tampon de Fe¹⁵¹ ou sur des substrats de MgO (001) préalablement recouverts par du Cr ou de l'Ag¹³⁶. Les films étaient principalement polycristallins mais une croissance épitaxiale de Fe₄N a également été rapportée¹⁵². Dans la phase γ -Fe₄N, les atomes de fer sont positionnés sur un sous-réseau cubique à face centrées avec un atome d'azote au centre de chaque cube. Il s'agit d'une phase de structure cubique qui existe à 300°C pour des concentrations atomiques en azote comprises entre 19.4% et 20.6%. Les propriétés magnétiques des films minces de Fe₄N ont mis en évidence une anisotropie dans le plan avec un axe de facile aimantation parallèle à la direction $\langle 100 \rangle$ ^{136,142,146}. Des calculs théoriques ont néanmoins montré qu'une anisotropie magnétique perpendiculaire peut être obtenue soit par distorsion du réseau cristallin dans les hétérostructures tétraogonales Fe₄N/BiFeO₃¹⁵³, soit par oxydation à l'interface Fe₄N/MgO¹⁵⁴. Expérimentalement, une anisotropie magnétique perpendiculaire a été obtenue pour des couches minces de Au/Fe₄N¹⁵⁵ et de Pt/Fe₄N¹⁵⁶ déposées sur des substrats de MgO (001) (Fig. III.1).

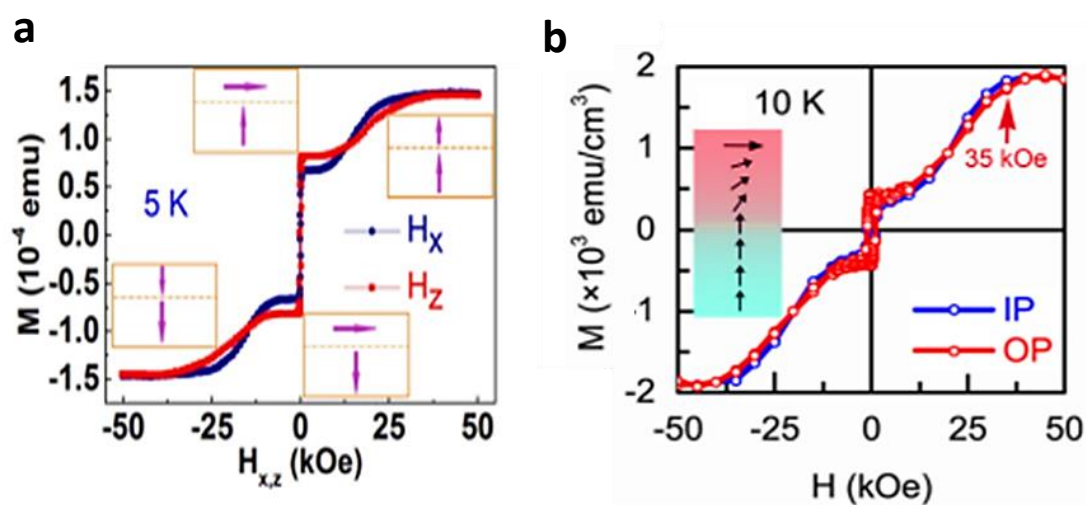


Figure III.1 : Cycle d'hystérésis mesuré dans le plan (en bleu) et hors plan (en rouge) pour ;(a) Au(3nm)/Fe₄N(3nm)/MgO à 5K¹⁵⁵ ; (b) : Pt(3nm)/Fe₄N(3nm)/MgO à 10K¹⁵⁶.

Les auteurs expliquent leur mesure par une structure magnétique complexe associant anisotropie dans le plan et hors plan. Ce résultat inhabituel s'explique par la présence de deux sous-couches de Fe₄N. La première à l'interface avec le substrat présente une anisotropie magnétique perpendiculaire due à la distorsion tétragonale du Fe₄N et au couplage entre la couche mince de γ -Fe₄N et le substrat de MgO. La seconde présente une anisotropie dans le plan due à la relaxation des contraintes et à un couplage plus faible entre la couche mince de Fe₄N et le substrat de MgO. Le fait de pouvoir obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire fait du composé Fe₄N un bon candidat pour des dispositifs spintroniques. La commutation électrique de l'aimantation a été étudié sur des bicouches Au/Fe₄N déposés sur un substrat de MgO¹⁵⁵. Le couplage d'échange entre les deux sous-couches de Fe₄N génère un champ efficace dans le plan qui permet de retourner l'aimantation sans champ extérieur.

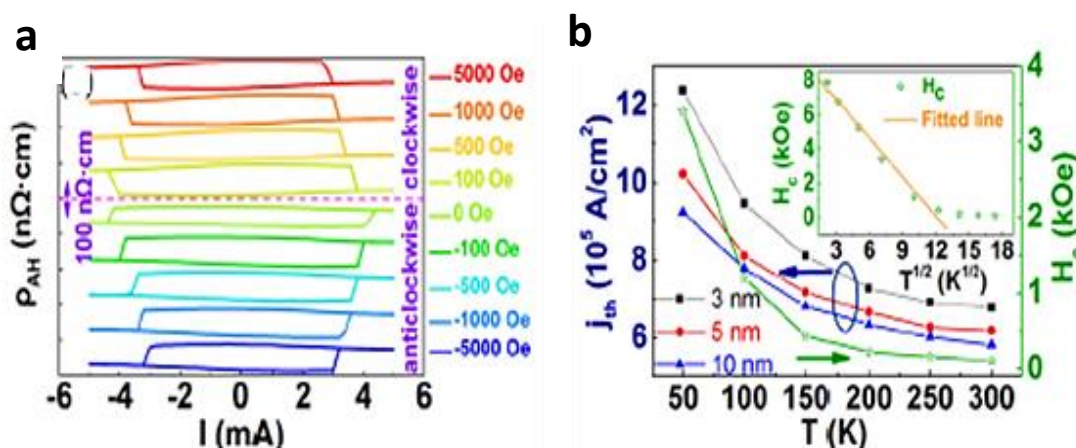


Figure III.2 : (a) Résistivité de Hall anormale en fonction du courant pour différents champs magnétiques b) Densité de courant seuil pour la commutation sans champ en fonction de la température¹⁵⁵.

Lorsqu'un courant extrêmement faible de l'ordre de $6,8 \times 10^5 A/cm^2$ traverse la couche de Fe₄N, l'aimantation de cette couche peut être renversée via l'effet Rashba ou l'effet Hall de spin (SHE) dans la couche d'Or en raison de son fort couplage spin-orbite. Bien que l'angle de Hall de spin de l'or (Au) soit plus faible que celle des métaux lourds tels que le platine (Pt) et le tantale (Ta), ces résultats montrent néanmoins qu'il est possible de produire des couples de spin induits par SOT pour retourner l'aimantation sans champ extérieur¹⁵⁵. Lorsque le Fe₄N est couplé avec

un autre matériau possédant un couplage spin-orbite plus faible, comme le cuivre (Cu), le retournement de l'aimantation n'est pas observé. Celui-ci résulte donc du couple spin-orbite (SOT) généré par l'or (Au). Le courant critique dans ce système est bien inférieur à celui d'autres systèmes de métaux lourds (HM)/métaux ferromagnétiques (FM) (par exemple Ta/CoFeB¹²¹, Pt/Co¹⁵⁷). On peut observer sur la figure III.2(a) un retournement de l'aimantation même à champ magnétique nul. Pour résumer, en plus de posséder une anisotropie magnétique perpendiculaire, une densité de courant très faible suffit pour retourner l'aimantation sans champ magnétique extérieur. Le Fe₄N est donc un bon candidat pour de futurs dispositifs spintroniques à faible consommation d'énergie. Si de telles couches sont déposées sur une diode électroluminescente à base de GaAs, le retournement électrique de l'aimantation via le couple spin-orbite pourrait être utilisée pour contrôler le spin des porteurs de charge injectés et ainsi la polarisation circulaire de la lumière émise pourrait être modulée. Ces dispositifs pourraient fonctionner sans application d'un champ magnétique externe, ce qui représenterait une avancée majeure vers des applications réalistes des spin-LEDs.

III.2 Croissance de films minces de MgO/Fe_xN_y/Au sur substrat de GaAs (001)

III.2.1 Analyse structurale

La figure III.3 montre les clichés RHEED enregistrés selon les directions [110] et [001] du substrat de GaAs (001) à chaque étape de la croissance. Afin de protéger la surface, le substrat de GaAs est initialement recouvert d'arsenic. Dans un premier temps, il est nécessaire de désorber l'As en chauffant le substrat de GaAs jusqu'à environ 400°C. Après recuit à 400°C, nous obtenons une reconstruction c (4×2) (Fig. III.3a-b), qui est typique d'une surface de GaAs (001). Il y a donc bien eu désorption d'arsenic. La présence de tiges de diffraction est typique d'une surface plane. On note également la présence de lignes de Kikuchi qui indiquent la bonne

qualité cristalline du substrat. Après dépôt de 3nm de MgO (Fig. IV.3c-d), les tiges apparaissent légèrement modulées en intensité ce qui indique une certaine rugosité de la surface. Le diagramme est très différent de celui obtenu sur le substrat de GaAs (001), en particulier la distance entre les tiges (-10) et (10) est plus grande, ce qui suggère une diminution du paramètre de maille dans le plan de croissance.

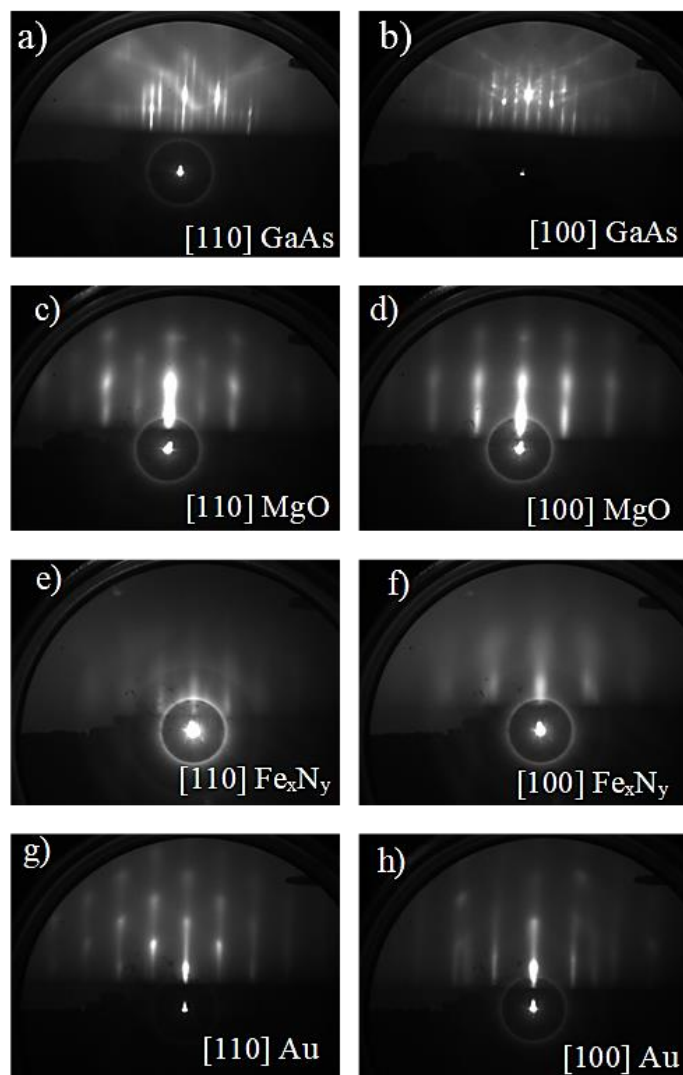


Figure III.3 : Evolution du diagramme RHEED suivant les azimuts [100] et [110] du GaAs (001) après désorption de l'Arsenic a) et b), après dépôt de MgO c) et d), après dépôt de Fe_xN_y, e) et f), après dépôt d'Au g) et h).

Il est bien connu que le MgO cristallise dans une structure cfc avec un paramètre de maille de 4.20Å alors que le GaAs cristallise dans une structure cubique de type zinc blende avec un

paramètre de maille de 5.62Å. Le désaccord de paramètre de maille (ou misfit) théorique est obtenu d'après la formule :

$$\Delta a = \frac{a_{\text{GaAs}} - a_{\text{MgO}}}{a_{\text{GaAs}}} = \frac{5.60 - 4.20}{5.60} = 25\% \quad (\text{III.1})$$

Ce désaccord assez considérable ne favorise pas, à priori, la croissance épitaxiale du MgO sur le GaAs (001). Le cliché apparaît différent pour les deux directions azimutales, on peut avoir soit MgO [100] //GaAs [100] soit MgO [110] //GaAs [110]. Après dépôt du Fe_xN_y, (Fig. III.3 e-f) on observe un fond diffus important suggérant la coexistence de régions amorphes et de régions cristallines. La couche de Fe_xN_y ne semble donc pas homogène. Après dépôt de 3nm d' Au à 250°C (Fig. III.g-h), le cliché RHEED apparaît modulé en intensité, ce qui indique une certaine rugosité de surface éventuellement accompagnée de la formation d'îlots 3D

III.2.2 Stœchiométrie de l'échantillon

Après dépôt de 3nm de Fe_xN_y, l'échantillon est transféré sous vide dans une chambre d'analyse XPS. Cette technique nous permet d'identifier les espèces chimiques présentes à la surface de l'échantillon. La figure III.4 montre un spectre général mesuré avec une énergie des photons égale à 1253.6 eV (MgKα). Les mesures ont été réalisées en plaçant l'échantillon perpendiculairement à l'axe du détecteur (sensibilité plus grande au « volume », θ=0°). Plusieurs pics peuvent être observés : on note la présence de fer (Fe), d'azote (N) mais aussi un peu d'oxygène (O). Ce dernier élément, qui est non intentionnel, pourrait éventuellement provenir d'une contamination (impuretés dans la ligne d'azote ou pression trop élevée lors du transfert de l'échantillon vers la chambre d'analyse). Afin de déterminer la stœchiométrie des films minces de Fe_xN_y, les spectres XPS des niveaux de cœur Fe2*p* (rouge) et N1*s* (bleu) ont été étudiés (Fig. III.4, insert). Les pics de Fe2*p*_{3/2} et Fe2*p*_{1/2}, qui se situent respectivement à 707 et 720 eV, correspondent à du Fe non oxydé présent dans les nitrures de fer^{155,158}. L'énergie de

liaison de N1s est d'environ 398 eV, ce qui correspond à une liaison Fe-N covalente faible dans Fe_xN_y en bon accord avec les résultats de la littérature¹⁵⁹.

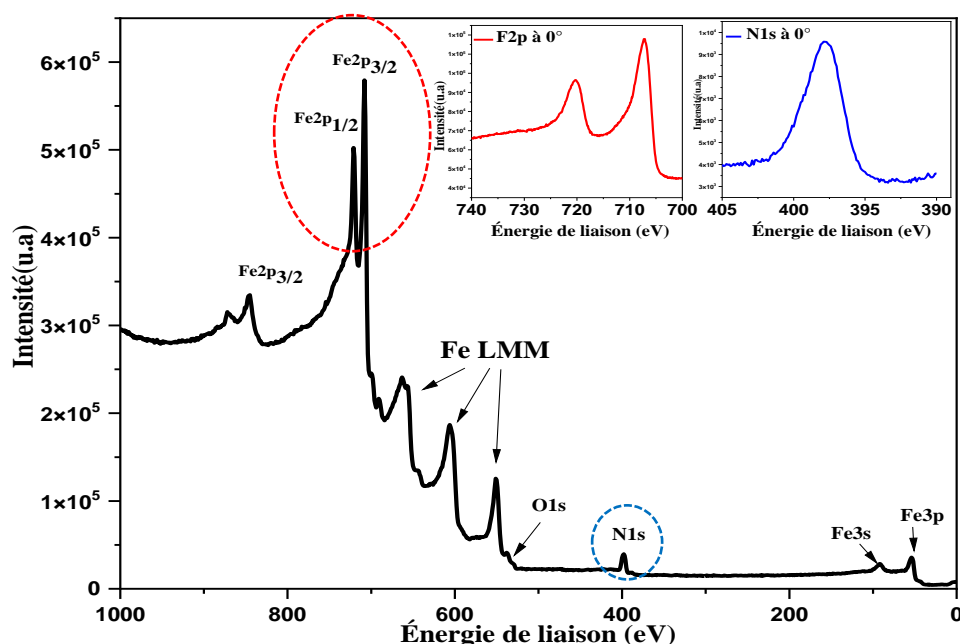


Figure III.4 : Spectre général XPS mesurés avec $h\nu = 1253$ eV , l'échantillon étant orienté perpendiculairement à l'axe du détecteur. Insert : Spectres XPS des niveaux de cœur : Fe2p à 0°(rouge) et N1s à 0°(bleu)

Connaissant les aires des niveaux de cœur (obtenues à l'aide du logiciel CASA XPS), et en tenant compte des sections efficaces de photo ionisation des niveaux d'énergie, il est possible de déterminer les concentrations atomiques en utilisant la relation :

$$P_{X_0} = \frac{\frac{A_{X_0}}{\sigma_{X_0}}}{\sum_{i=0}^n \frac{A_{X_i}}{\sigma_{X_i}}} \quad (III.2)$$

Où X_0 est l'élément à quantifier, P_{X_0} le pourcentage de l'élément X_0 , A_{X_0} l'aire du pic associé à l'élément X_0 , X_i l'élément chimique i , A_{X_i} l'aire du pic associé à l'élément chimique X_i . σ_{X_0} et σ_{X_i} sont respectivement les sections efficaces de photo-ionisation des éléments chimiques X_0 et X_i . Le tableau ci-dessous donne la stœchiométrie de la couche mince de Fe_xN_y pour deux géométries de mesure (i.e. échantillon orienté perpendiculairement à l'axe du détecteur

Développement d'un nouvel injecteur de spin à base de MgO/Fe₄N/Au

(sensibilité plus grande au « volume », $\theta=0^\circ$) et orienté à $\theta=60^\circ$ (sensibilité plus grande à la surface)) en considérant les niveaux de cœur Fe2*p* et N1*s*. Plusieurs informations peuvent être extraites de ces mesures : tout d'abord, la couche mince contient bien de l'azote avec des concentrations variant entre 22% et 30%.

Angle d'analyse	Stœchiométrie (concentration atomique)		Section efficace ¹⁵⁹	
	Fe2 <i>p</i>	N1 <i>s</i>	Fe2 <i>p</i>	N1 <i>s</i>
60°	70%	30%	0.3529 barns	0.039 barns
0°	78%	22%		

Il est donc possible d'élaborer des films minces de Fe_xN_y à partir d'une source plasma ECR. De plus, les concentrations obtenues ne sont pas identiques à 0° et 60°, ce qui signifie que la surface est plus riche en azote et moins riche en fer. Les films minces obtenus ne sont donc pas homogènes. Un travail d'optimisation est donc encore nécessaire afin d'obtenir une couche mince parfaitement homogène avec une stœchiométrie compatible avec Fe₄N.

III.2.3 Morphologie des films minces de MgO/Fe_xN_y/Au

La figure III.5(a) montre une image AFM obtenue après dépôt de 3nm d' Au à 250°C sur la bicouche MgO/Fe_xN_y. La surface n'est pas plane, en cohérence avec les observations RHEED (présence de taches de diffraction). Elle est constituée d'îlots ayant partiellement coalescé. La figure III.5(b) montre un profil obtenu le long du trait horizontal noir représenté sur la figure III.5(a). Celui-ci met clairement en évidence une surface rugueuse. La rugosité moyenne RMS (Root Mean Square) est évaluée à 1.6nm. Il est donc nécessaire d'optimiser encore la croissance de cette couche afin d'obtenir une surface plane. Une des possibilités pourrait être de réduire la température du substrat lors du dépôt de la couche mince d' Au. Par la suite, l' Au sera déposé à une température de 80°C.

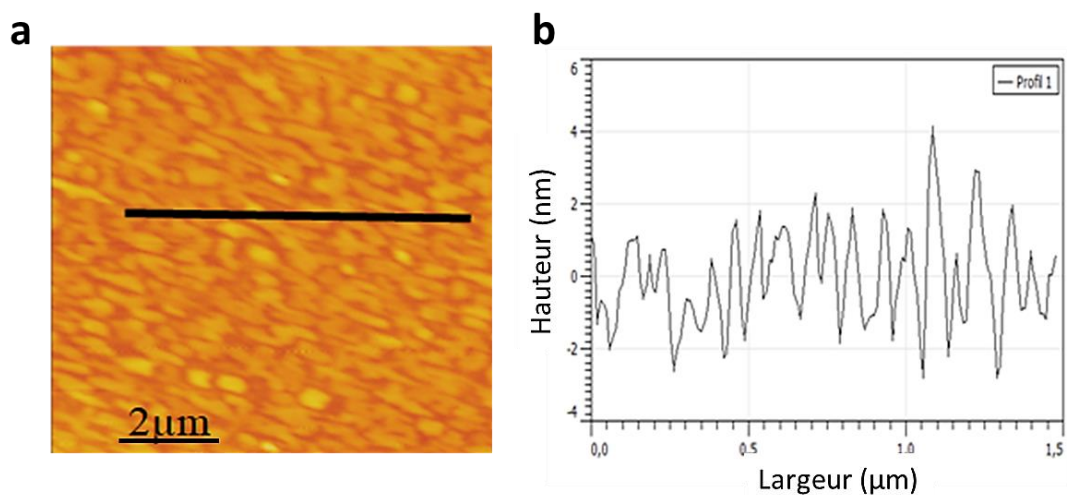


Figure III.5 : a) Image AFM (2µm×2µm) de la surface après dépôt d'Au. b) Profil obtenu le long du trait noir indiqué dans l'image AFM.

III.3 Optimisation de la tricouche MgO/Fe_xN_y/Au

IV.3.1 Optimisation du film mince de Fe_xN_y

Les diagrammes RHEED ont montré que la surface obtenue après dépôt de Fe_xN_y n'était pas bien cristallisée (Fig. III.3 (e) et (f)). De plus, le film mince présente une forte inhomogénéité comme l'attestent les mesures XPS effectués à 0° et 60°. Dans cette partie, nous allons optimiser différents paramètres tels que le courant du magnétron qui est lié au courant ionique et au flux d'azote, la température du substrat lors du dépôt de Fe_xN_y et pour finir l'épaisseur du film. L'objectif est ici de réussir à faire la croissance épitaxiale de la tricouche MgO/Fe₄N/Au sur un substrat de GaAs (001) puis d'obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire.

➤ Courant du magnétron

La figure III.6 montre les concentrations atomiques pour le fer et l'azote déterminées par XPS (a) ainsi que le rapport Fe/N (b) en fonction du courant magnétron pour deux angles d'analyse (i.e. 0° et 60°). Lorsque le courant du magnétron augmente, la concentration du fer

diminue tandis que celle de l'azote augmente. Plus on diminue le courant du magnétron, plus le courant ionique diminue et donc le flux d'azote expliquant ainsi la diminution de la concentration d'azote. La figure III.6(b) nous permet de conclure que la meilleure stoechiométrie (i.e. Fe/N=4) est obtenue pour des courants magnétron de 25 et 30mA.

La figure III.7 présente l'évolution des diagrammes RHEED pour des films minces de Fe_xN_y élaborés avec des courants de magnétron compris entre 25mA et 40mA. Lorsque l'on diminue le courant du magnétron, le fond diffus est moins prononcé et les tiges de diffraction sont plus nettes mettant ainsi en évidence une amélioration de la qualité cristalline.

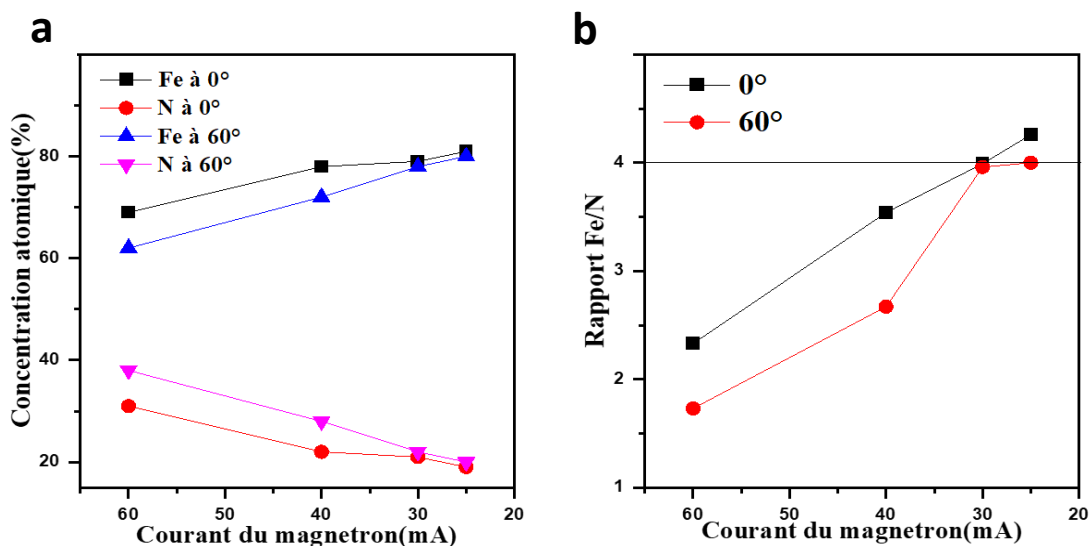


Figure III.6 : a) Concentrations atomiques en fonction du courant du magnétron déterminées par l'analyse XPS. b) rapport Fe/N en fonction du courant du magnétron.

Les tiges de diffractions obtenues pour des films minces de Fe_xN_y réalisés avec des courants magnétron de 25 (et/ou 30 mA) sont assez larges (contrairement à un monocristal qui est généralement caractérisé par des tiges fines) suggérant que la couche est bien texturée. Le meilleur résultat est obtenu pour un courant magnétron compris entre 25 et 30mA, ce qui est toujours en très bon accord avec les résultats obtenus par XPS.

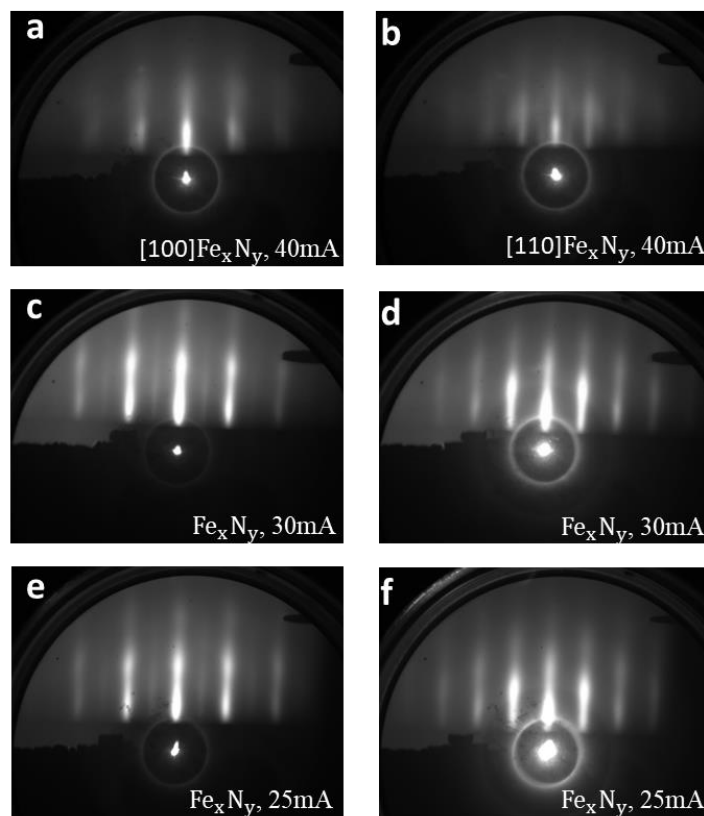


Figure III.7 : Evolution du diagramme RHEED suivant deux directions azimutales après dépôt de Fe_xN_y réalisés avec différents courant de magnétron : a) et b) 40mA, c) et d) 30mA e) et f) 25mA.

La figure III.8 montre les cycles d'hystérésis mesurés avec le VSM hors du plan (a) et dans le plan (b) pour des films de Fe_xN_y d'épaisseur 3nm préparés avec des courants de magnétron variant entre 25mA et 40mA. Les caractérisations magnétiques des échantillons montrent que pour des courants supérieurs à 40 mA, l'aimantation est orientée complètement dans le plan sans aucune composante hors plan. Pour un courant de magnétron de 35mA, il est possible d'obtenir une composante hors plan avec un champ coercitif plus large. Pour des courants de magnétron de 30 mA et 25 mA, un champ faible est suffisant pour saturer l'aimantation hors du plan. Cependant, l'amplitude de la composante hors plan diminue pour un courant de magnétron de 25mA. Nous pouvons donc conclure qu'un courant de magnétron de 30 mA permet d'optimiser les propriétés magnétiques. On note la présence simultanée de deux

composantes, une dans le plan avec une amplitude très élevée et hors du plan avec une amplitude plus faible.

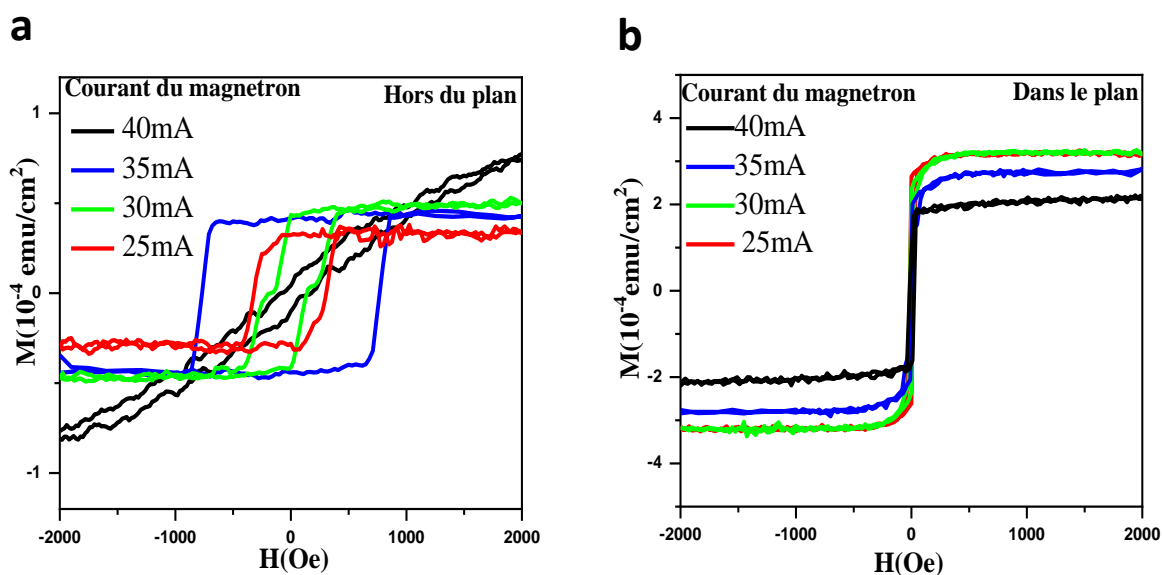


Figure III.8 : Courbes M-H mesurées à 300K pour l'échantillon Au(3nm) / Fe_xN_y (2nm) /MgO (2,5 nm) //GaAs préparés avec différents courant du magnétron ; a) : hors du plan b) : dans le plan.

➤ **Température du substrat lors du dépôt de Fe_xN_y**

Afin d'optimiser les conditions permettant d'obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire, nous fixons le courant du magnétron à 30mA et nous faisons varier la température du substrat lors du dépôt de la couche mince de Fe_xN_y. La figure III.9 montre les cycles M-H mesurés dans le plan(a) et hors du plan (b) pour des films minces de Fe_xN_y réalisés à différentes températures. On peut constater que l'aimantation à saturation augmente dans le cas du film de Fe_xN_y réalisé à une température de 450°C (composantes dans le plan et hors plan). Cependant, le champ coercitif de la composante hors plan est très large (environ 800 Oe) par rapport à l'échantillon réalisé à 400°C. Un tel champ coercitif élevé peut constituer un obstacle pour la propagation des parois de domaines et donc pour le renversement de l'aimantation. Cette condition n'est donc pas favorable. Nous allons donc choisir par la suite une température du substrat de 400°C pour la croissance des films minces de Fe_xN_y.

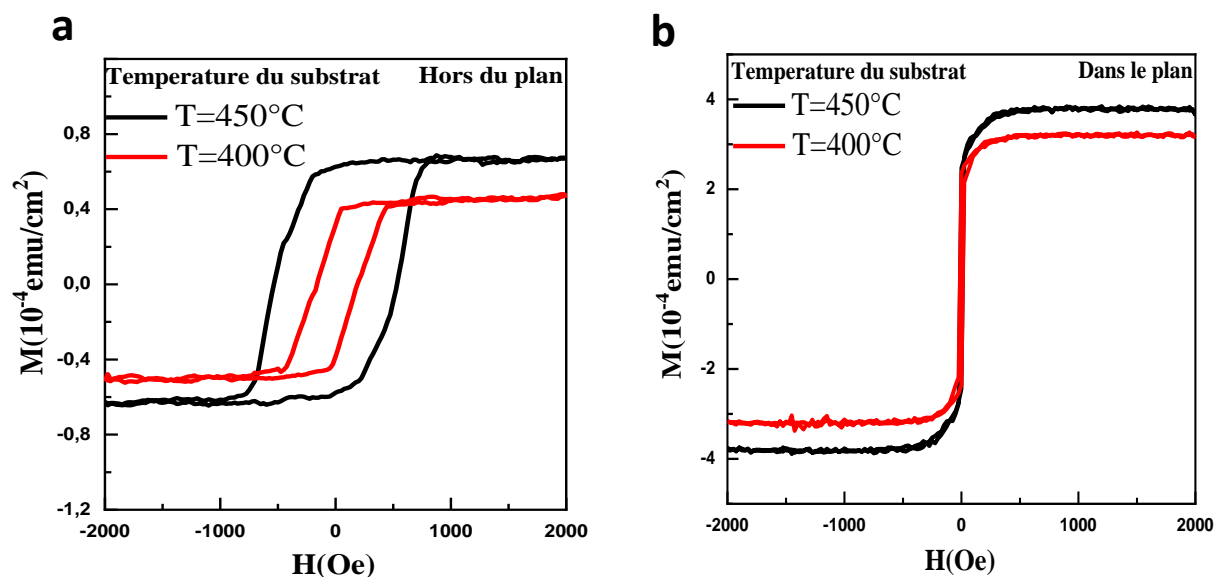


Figure III.9 : Courbes M-H mesurées à 300K pour l'échantillon Au(3nm) / Fe_xN_y (2nm) /MgO (2,5 nm) //GaAs réalisé avec différentes températures du substrat ; (a) : hors du plan, (b) : dans le plan

➤ Epaisseur du dépôt

L'épaisseur du dépôt est un paramètre essentiel si l'on souhaite obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire. La figure III.10 montre l'évolution des courbes M-H hors du plan a) et dans le plan b) pour des films minces de Fe_xN_y dont l'épaisseur est comprise entre 2nm et 3.5nm. Lorsque les mesures sont effectuées dans le plan, l'aimantation à saturation croît linéairement avec l'épaisseur de Fe₄N. En effectuant les mesures hors du plan, l'aimantation à saturation suit une évolution linéaire jusqu'à 3nm puis diminue brutalement pour des épaisseurs supérieures. A cause du couplage à l'interface entre le MgO et le Fe₄N^{155,156}, les moments magnétiques vont s'orienter hors du plan des couches. Pour une épaisseur de 3.5nm, le couplage interfacial devient plus faible. Un phénomène de relaxation a lieu qui se traduit par une diminution brutale de l'aimantation hors plan. Le désaccord de paramètre de maille entre le Fe₄N et le MgO étant assez grand (9.7%), la croissance devient incohérente au-delà d'une certaine épaisseur critique. Pour une épaisseur de 3.5nm, les contraintes seront relaxées par

l'introduction de défauts tels que des dislocations¹⁵⁶. Ceci pourrait expliquer la chute du moment hors plan pour cette épaisseur.

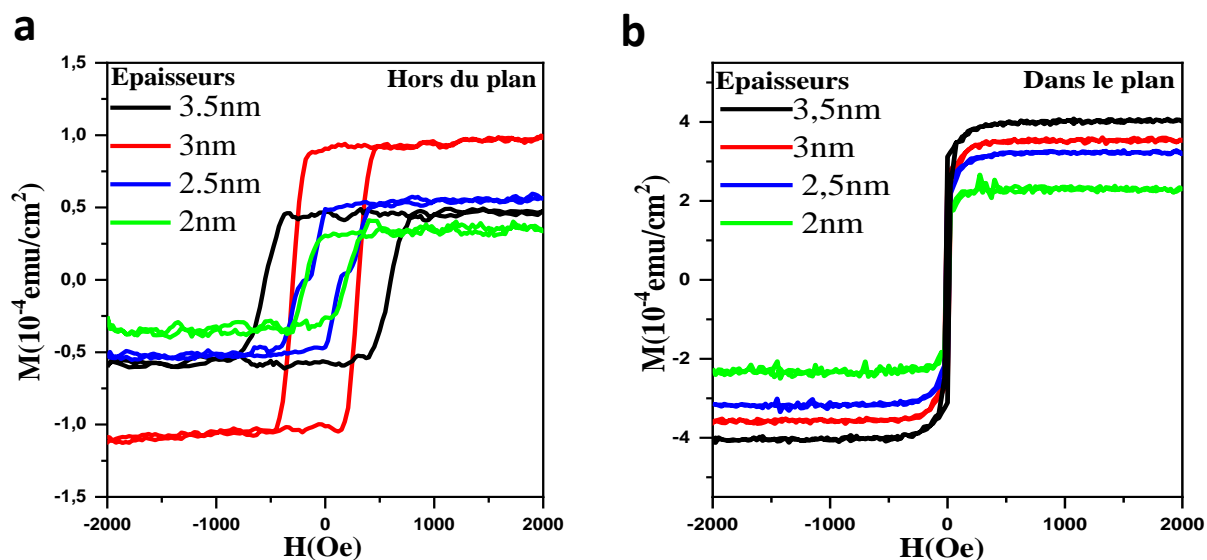


Figure III.10 : Courbes M-H mesurées à 300K pour l'échantillon Au(3nm) / Fe_xN_y /MgO (3nm) //GaAs pour différentes épaisseurs de Fe_xN_y ; (a) : dans le plan, (b) : hors du plan

III.3.2 Optimisation de la couche de MgO

Les conditions de dépôt du MgO, qui joue le rôle de barrière tunnel, doivent être optimisée pour améliorer l'efficacité de l'injection de spin et la qualité du Fe₄N. La figure III.11 montre les clichés RHEED obtenus après dépôt de MgO à température ambiante (a) et de Fe₄N à 400°C (b). Pour un dépôt de MgO à température ambiante suivi d'un recuit à 400°C, le MgO n'est pas bien cristallisé et le film mince de Fe₄N semble polycristallin et très rugueux.

Un dépôt de meilleure qualité est obtenu lorsque le MgO et le Fe₄N sont tous déposés à une température du substrat de 400°C (c) et (d). A partir du diagramme RHEED, nous obtenons la relation d'épitaxie Fe₄N [100] //MgO [100] et Fe₄N [110] //MgO [110].

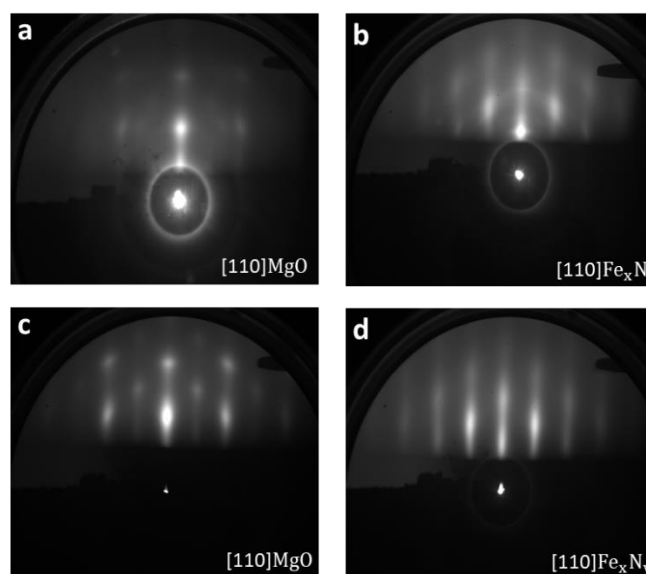


Figure III.11 : Diagrammes RHEED obtenus après dépôt : de MgO à température ambiante et de Fe_xN_y à 400°C (a et b) ; de MgO et Fe_xN_y à 400°C (c et d).

III.3.3 La tricouche MgO/Fe_xN_y/Au optimisée

La tricouche optimisée a été réalisée avec les paramètres suivants :

Courant du magnétron	Température du substrat lors du dépôt du MgO	Température du substrat lors du dépôt de Fe _x N _y	Température de dépôt de la couche d'or	Epaisseur de la couche de Fe _x N _y
30mA	400°C	400°C	80°C	3nm

III.3.3.1 Analyse structurale

La figure III.12 (a) montre un cliché RHEED de la surface du substrat de GaAs (001) dans la direction azimutale [110] après désorption d'arsenic à 400°C. On peut clairement identifier une reconstruction c(4x2) indiquant que l'As a bien été entièrement désorbé. Le cliché RHEED apparaît fortement modifié après le dépôt d'une couche de MgO de 3 nm d'épaisseur (Fig. III.12 (b)). Après dépôt d'une couche de Fe_xN_y, le cliché RHEED (Fig. III.12 (c)) est encore modifié et un fond diffus semble se superposer aux tiges de diffraction.

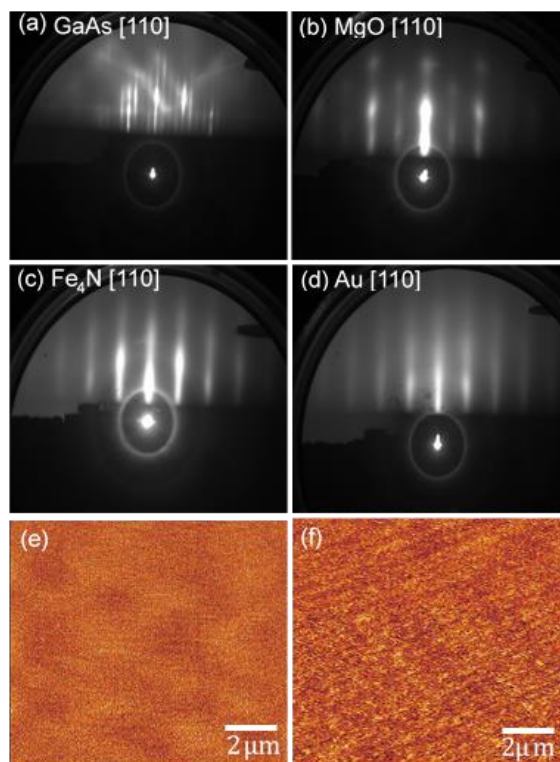


Figure III.12 : Clichés RHEED mesurés le long de la direction azimutale [110] de GaAs (001) après désorption d'As (a), et après dépôt successif de 3 nm de MgO (b), 3 nm de Fe_xNy (c) et 3 nm d'Au (d). Images AFM obtenues après dépôt successif de 3 nm Fe_xNy (e) et 3 nm Au (f).

Cela peut indiquer la coexistence possible de régions cristallines et amorphes dans la couche mince de Fe_xNy. L'image AFM obtenue après dépôt de la couche mince de Fe_xNy (Fig. III.12 (e)) est caractérisée par une rugosité d'environ 0,2 nm, ce qui indique une surface plane. Enfin, le cliché RHEED obtenu après dépôt de 3 nm d'Au (Fig. III.12 (d)) est toujours constitué de tiges mais leur intensité est beaucoup plus faible, indiquant une moins bonne cristallinité de l'Au par rapport à celle de Fe_xNy. L'image AFM obtenue après croissance de la tricouche complète est présentée sur la figure III.12 (f). La rugosité est d'environ 0,17 nm, confirmant que la surface supérieure est plane après le dépôt d'Au (la rugosité était estimée à 1.6nm lorsque l'Au était déposé à 250°C).

III.3.3.2 Stœchiométrie de l'échantillon

Pour déterminer la stœchiométrie de la couche mince de Fe_xNy, nous analysons la composition chimique de la couche optimisée par spectroscopie de photoémission X (XPS). La

figure III.13(a) montre le niveau de cœur Fe2*p*, qui est divisé en deux sous-niveaux Fe 2*p*_{3/2} et Fe 2*p*_{1/2} en raison du couplage spin-orbite. Ces pics sont compatibles avec ceux du Fe nitruré et non oxydé, il n'y a pas d'oxydation du fer. Le niveau de cœur de l'azote N 1*s*, (Fig. III.13 (b)), est caractérisé par un pic unique centré à 398 eV. En considérant les aires des pics des niveaux de cœur Fe2*p* et N1*s* ainsi que les sections efficaces de photoionisation des niveaux Fe2*p* et N1*s*, nous avons déterminé les concentrations relatives de Fe et de N. Nos mesures donnent une teneur en Fe d'environ 78 % et une teneur en N d'environ 22%, très proches de la stœchiométrie d'un alliage Fe₄N. Contrairement aux premiers échantillons testés qui présentaient une inhomogénéité, nous obtenons dans le cas de la couche de Fe_xN_y optimisé la même stœchiométrie en surface et en volume, mettant en évidence une très bonne homogénéité de la couche mince.

Afin de confirmer la composition chimique et la qualité cristalline des films minces de Fe₄N, nous avons effectué des mesures de diffraction des rayons X (DRX). La figure III.13 (c) montre la mesure XRD (géométrie θ -2 θ) d'une bicouche Fe_xN_y (3 nm) /MgO (3 nm) déposée sur un substrat de GaAs (001) à 400°C. Outre les réflexions (200) et (220) provenant du substrat de GaAs (001), on peut identifier deux autres pics situés vers 24° et 48°, qui peuvent être attribués sans ambiguïté aux réflexions (100) et (200) de la maille primitive du nitrure de fer Fe₄N (Groupe d'espace : Pm-3m) en accord avec la référence¹⁵⁶. A partir de la position de ces deux pics de diffraction, nous pouvons déterminer le paramètre de maille du réseau qui vaut $a = 3,79$ Å. Celui-ci correspond bien au nitrure de fer Fe₄N. Autour du pic de diffraction Fe₄N (002), on peut clairement observer des oscillations de Laue, ce qui montre la bonne qualité cristalline de la couche mince de Fe₄N. Nos mesures confirment ainsi la formation d'un nitrure de fer de stœchiométrie Fe₄N. Pour étudier la texture des films minces de Fe₄N, nous avons effectué des mesures en balancement autour du pic Fe₄N (200) (Fig. III.13(d)). La largeur totale à mi-hauteur est d'environ 3.3°, ce qui indique que la couche mince de Fe₄N possède une bonne mosaïcité.

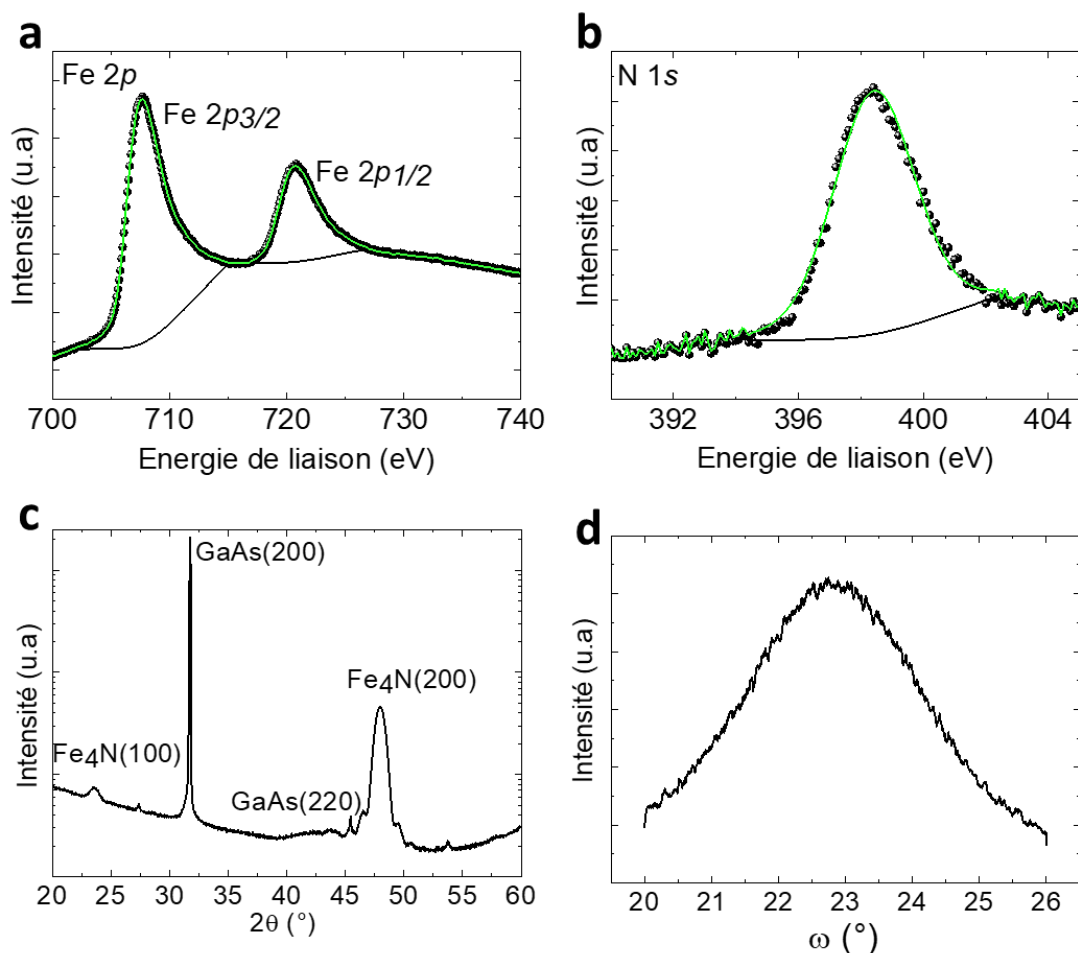


Figure III.13 : : Niveaux de cœur Fe 2p (a) et N 1s (b) mesurés avec $h\nu = 1253 \text{ eV}$ après dépôt de 3 nm de Fe_xN_y à 450°C sur MgO/GaAs (001). c) Diffractogramme mesuré sur un film mince de Fe_xN_y d'épaisseur 3 nm déposé sur un substrat MgO/GaAs (001). b) Mesure de balancement autour du pic Fe₄N (100).

III.3.3.3 Propriétés microstructurales

Les propriétés microstructurales des tricouches Au/Fe₄N/MgO/GaAs (001) ont été étudiées par microscopie électronique en transmission à balayage. La figure III.14 (a) montre une image STEM en champ clair (BF) de la tricouche Au/Fe₄N/MgO, l'épaisseur nominale de la couche de Fe₄N étant fixée à 1 nm. Les différentes couches se distinguent par leur contraste et leur orientation cristalline. Les clichés FFT (insert de la Fig III.14(a)) révèlent que les couches de MgO, Fe₄N et Au sont texturées. L'interface entre la couche mince de MgO et celle de Fe₄N est bien définie. En revanche, l'interface entre la couche mince de Fe₄N et celle d'au semble

plus rugueuse ce qui suggère, une croissance initiale en îlots 3D du nitrure de fer Fe₄N. L'énergie de surface des métaux est généralement plus grande que celle des oxydes. Par conséquent, les métaux ne vont pas mouiller complètement la surface des oxydes d'où un mode de croissance en îlots 3D. Pour mieux comprendre le mode de croissance de Fe₄N, nous avons effectué une caractérisation chimique des interfaces en utilisant STEM combiné à de l'EELS résolu spatialement.

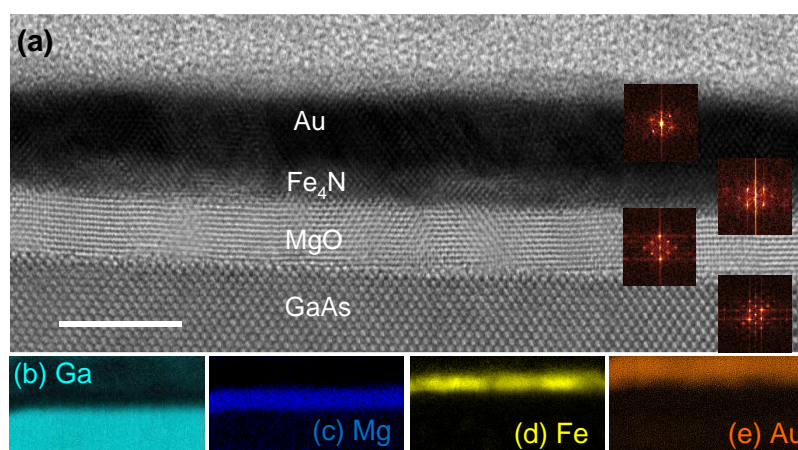


Figure III.14 : (a) Image en champ clair (BF) STEM de Au / 1 nm Fe₄N / 3 nm MgO / GaAs (001). Les FFT correspondantes pour chaque couche sont données en insert. (b) - (e) Cartographies chimiques pour Ga, Mg, Fe et Au telles que déduites de l'analyse STEM-EELS.

Les cartographies chimiques pour Ga, Mg, Fe et Au sont présentées figures III.14 (b) à (e). Les interfaces assez nettes mettent en évidence une interdiffusion minimale entre les différentes couches. La cartographie chimique du Fe met en évidence une discontinuité de cette couche (Fig. III.14 (d)). Cette observation confirme d'une part la croissance en îlots et nous permet d'autre part de déterminer à la fois leur taille latérale (5,3 nm) et leur hauteur maximale (1,3 nm).

Pour mieux comprendre le mode de croissance de la couche mince de Fe₄N, nous avons analysé la microstructure d'une autre tricouche Au/Fe₄N/MgO/GaAs (001) comportant une couche de Fe₄N d'épaisseur nominale 3 nm. La figure III.15 (a) montre une image STEM-HAADF de cette tricouche. Contrairement au contraste de l'image BF, la couche supérieure d'au apparaît

ici brillante car c'est l'élément le plus lourd de l'hétérostructure. Les différentes couches sont bien identifiées et les interfaces paraissent assez abruptes. Les clichés FFT présentés en insert sont compatibles avec les structures GaAs (F-43m), MgO (Fm-3m), Fe₄N (Pm-3m) et Au (Fm-3m), appartenant toutes à un groupe spatial cubique. La figure III.15 (b) correspond à une image STEM-BF en champs clair montrant que chaque couche est texturée. La couche mince de Fe₄N est composée de grains de même épaisseur que la couche, qui ont tous la même orientation cristallographique.

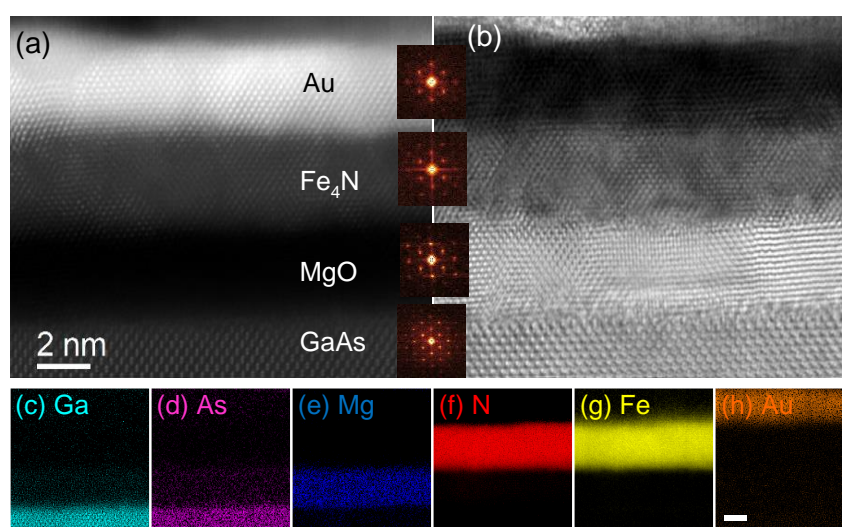


Figure III.15 : Image STEM HAADF (a) et image en champ clair STEM correspondante (b) d'une tricouche Au (3 nm) / Fe₄N (3 nm) / MgO/GaAs (001). Les clichés FFT correspondants pour chaque couche sont donnés (c) - (h) Cartographies chimiques pour Ga, As, Mg, N, Fe, Au telles que déduites de l'analyse STEM-EELS.

Ces observations nous permettent de proposer un modèle pour la croissance de Fe₄N sur MgO/GaAs (001). Au cours de la phase de la germination, des îlots 3D commencent à se former. Lorsque l'épaisseur de Fe₄N augmente, une croissance colonnaire est initiée à partir des îlots conduisant ainsi à une forte texturation et à la formation de grains. Ces derniers sont légèrement désorientés les uns par rapport aux autres mais la croissance est épitaxiale. A partir des clichés FFT, nous pouvons déduire les relations cristallographiques suivantes entre les différentes couches : GaAs (100) [110] //MgO (100) [110] //Fe₄N (100) [011] //Au (210) [2 -30]. Des informations supplémentaires sur l'interdiffusion aux interfaces peuvent être obtenues par

STEM-EELS. Les figures III.15 (c) à (h) montrent les cartographies chimiques pour les différents éléments Ga, As, Mg, N, Fe et Au, respectivement. Un examen approfondi des cartographies du Ga, As et Mg nous permet de conclure qu'à l'interface avec le MgO, le GaAs est terminé par un plan d'As. La couche mince de 3nm de Fe₄N est caractérisée par une distribution homogène du Fe. Les profils de concentration pour les différents éléments permettent de déterminer la composition de la couche mince de nitrure de Fer. On obtient un rapport atomique de 4:1 pour Fe:N avec une dispersion inférieure à 1%, ce qui confirme la formation du composé Fe₄N, en très bon accord avec les mesures XPS et DRX. En outre, ces profils mettent en évidence des interfaces plutôt abruptes à l'exception de l'interface entre la couche mince de Fe₄N et la couche supérieure d'au. On peut clairement observer la diffusion d'atomes de Fe dans l'au sur une épaisseur de l'ordre de 1 à 2 nm et ce, malgré la température du substrat limitée à 80°C pendant le dépôt d'au.

III.3.3.4 Propriétés magnétiques

Dans cette partie, nous présentons la caractérisation magnétique de la tricouche optimisée. La figure III.16 montre les courbes M-H mesurées au VSM à température ambiante lorsque le champ est appliqué dans le plan (Fig. III.16 (a)) et hors du plan (Fig. III.16 (b)). On constate bien ici que l'aimantation a une composante dans le plan M_x et une composante hors plan M_z . Ces résultats plutôt inhabituels peuvent être interprétés par un modèle à deux couches. La couche mince de Fe₄N peut en effet être décrite comme la superposition de deux sous-couches, une première sous-couche possédant une aimantation dans le plan et une deuxième sous-couche caractérisée par une faible aimantation hors plan. Cependant, les deux composantes de l'aimantation n'ont pas la même amplitude contrairement aux résultats de la littérature [155,156](#). La composante dans le plan sature à 100 Oe, alors qu'un champ d'environ 295 Oe est nécessaire pour saturer la composante hors plan.

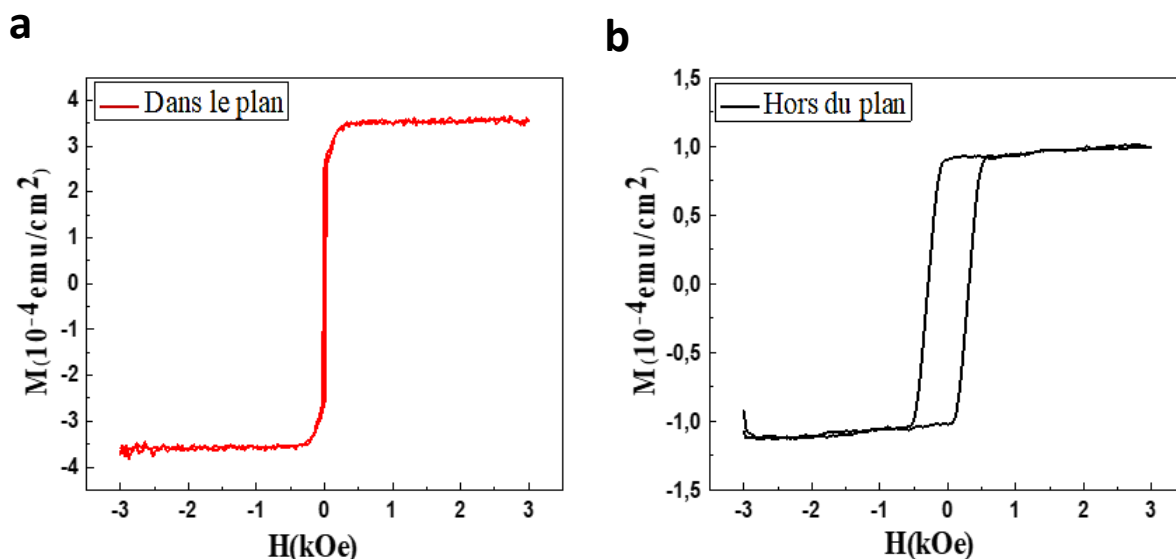


Figure III.16 : Courbes M-H mesurées à 300K pour l'échantillon Au(3nm) / Fe₄N (3nm) /MgO (3nm) //GaAs (001) a) dans le plan et b) hors du plan.

L'aimantation à saturation dans le plan est trois fois plus grande que l'aimantation à saturation hors plan lorsque l'on applique un champ faible. Ceci veut dire que le champ appliqué hors du plan n'est pas suffisant pour saturer complètement l'aimantation de la couche.

La figure III.17(a) montre une mesure SQUID effectuée sur le même échantillon pour un champ magnétique pouvant atteindre 5 T (i.e., bien supérieur à celui obtenu avec le magnétomètre à échantillon vibrant, VSM). Cette mesure permet d'obtenir une meilleure résolution. On peut alors constater que l'aimantation est saturée pour un champ appliqué de 1.3T et que la rémanence est très faible. Le cycle M-H en insert permet de mettre en évidence une faible composante hors plan. Cette dernière sature très rapidement alors qu'un champ plus intense ($> 1 \text{ T}$) est nécessaire pour saturer complètement l'échantillon. Lorsque le champ est appliqué dans le plan, l'aimantation sature très rapidement pour un champ de 100 Oe. De plus, l'aimantation à saturation est identique à celle observée à la rémanence. L'axe facile d'aimantation est donc clairement dans le plan des couches. L'injecteur de spin possède cependant une faible anisotropie magnétique perpendiculaire en raison du au couplage interfacial entre le MgO/Fe₄N.

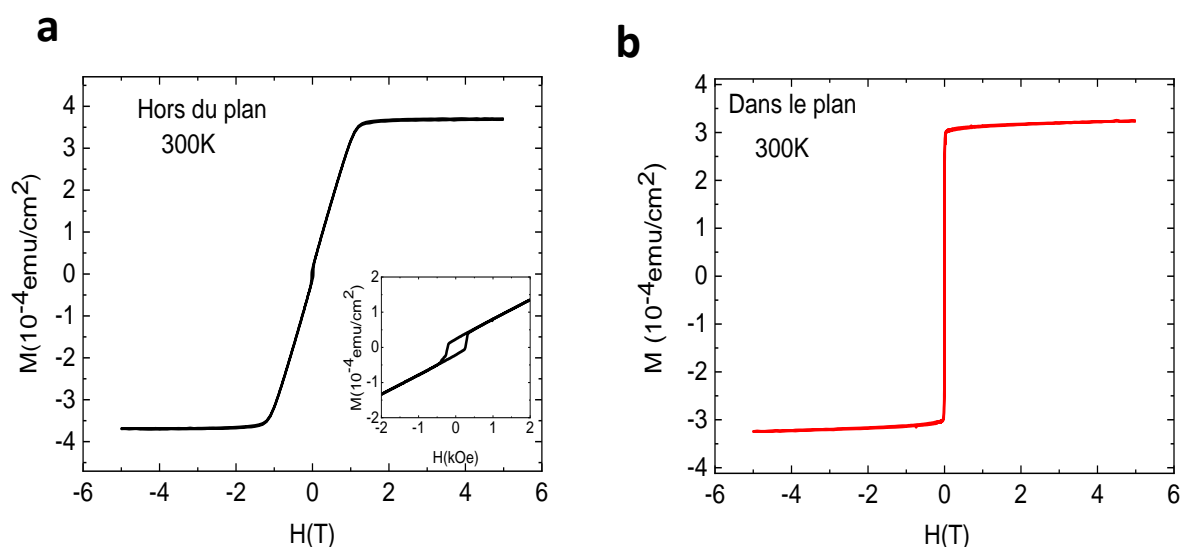


Figure III.17 : Courbes M-H mesurées à 300K pour l'échantillon Au(3nm) / Fe₄N (3nm) /MgO (3nm) //GaAs (001) avec un champ de 5T appliqué a) hors plan et b) dans le plan.

III.4 Mise en évidence du retournement électrique de l'aimantation

Nous avons montré que notre injecteur de spin à base de Fe₄N possède une faible anisotropie magnétique perpendiculaire. Nous pouvons donc mesurer la résistance de Hall transverse qui est uniquement sensible à la composante hors-plan de l'aimantation. Les échantillons sont micro-structurés en forme de croix de Hall avec des dimensions de 20 μm de largeur et 50 μm de longueur en utilisant la lithographie UV et la gravure ionique décrites dans le chapitre II. Des électrodes Ta(10nm) /Pt (150 nm) sont utilisées pour connecter électriquement le dispositif. Pour les mesures de magnéto-transport, nous utilisons le 'Keithley K2450' d'une part comme source de courant et d'autre part pour mesurer la tension de Hall. La durée de l'impulsion appliquée est de 100ms et son amplitude varie avec la température. Un courant constant de 1 mA est appliqué pour mesurer la résistance de Hall. Les premières mesures ont été effectués au Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics par Tianyi MA et par la suite à l'institut Jean Lamour. La figure III.18(a) présente l'aimantation normalisée dans le plan (en vert) et hors du plan (rouge) lorsque l'on applique un champ magnétique faible. La figure

III.18(b) présente la résistance de Hall en fonction de l'amplitude de l'impulsion de courant pour des champs magnétiques appliqués dans le plan variant entre +100Oe à -100Oe. L'observation de cycles d'hystérésis carrés nous montre qu'il est possible de retourner l'aimantation de la couche mince de Fe₄N avec une amplitude de courant d'environ 13mA. Il est important de noter que l'aimantation peut être complètement retournée même à champ magnétique nul. L'origine du retournement sans champ dans le plan est attribuée au couplage d'échange entre les deux sous-couches de Fe₄N. Celui-ci donne lieu à un champ effectif supplémentaire dans le plan, permettant ainsi de commuter l'aimantation de façon déterministe sans champ appliqué.

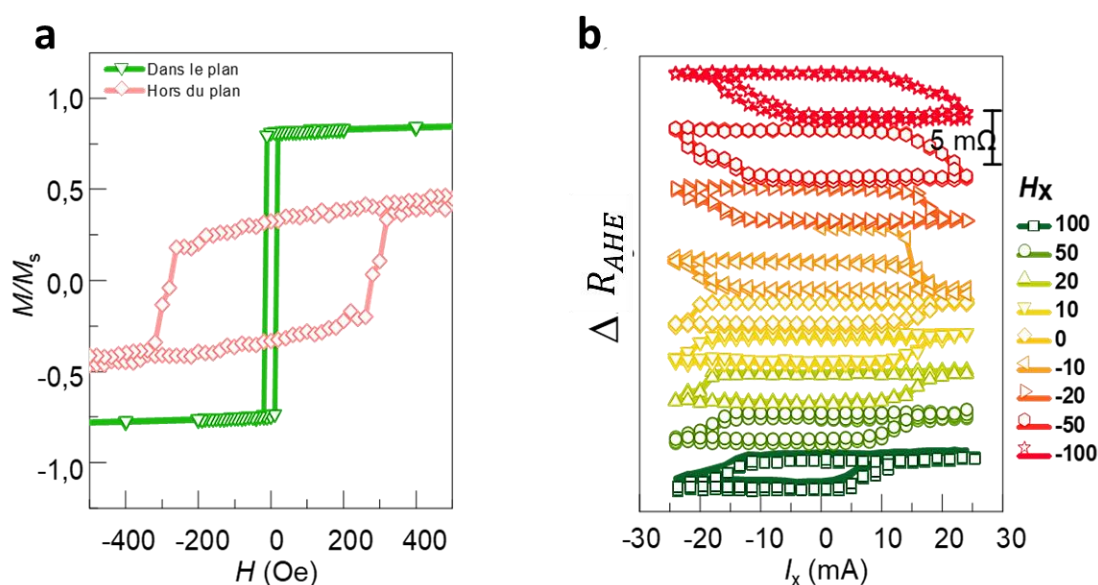


Figure III.18 : a) Cycles M-H mesurés hors du plan (rouge) et dans le plan (vert) ; b) R_{AHE} en fonction de l'amplitude de l'impulsion de courant pour différents champs magnétiques appliqués dans le plan.

III.5 Mesures d'EL résolues en polarisation

Bien que l'aimantation de l'injecteur de spin Fe₄N (composante hors plan) puisse être commutée électriquement à faible courant et à champ magnétique nul, il reste encore à déterminer si un tel injecteur peut permettre d'injecter efficacement un courant polarisé en spin

dans un semi-conducteur. Les mesures de TMR (magnétorésistance tunnel) décrites dans la référence¹³⁶ montrent que le Fe₄N possède une forte polarisation négative de -39% au niveau de Fermi. Cette valeur de polarisation nous montre qu'il est possible d'injecter de manière efficace des électrons polarisés en spin au travers de la barrière tunnel de MgO. La dernière étape consiste maintenant à déposer la tricouche MgO/Fe₄N/Au sur une LED comportant une couche unique de boîtes quantiques afin de mesurer la polarisation circulaire de la lumière émise.

La figure III.19 (a) montre les spectres d'électroluminescence résolus en polarisation pour la spin-LED comportant un injecteur à base de Fe₄N sous un champ magnétique hors plan de 1,9 T à 10 K. La polarisation circulaire P_c en fonction de la longueur d'onde a également été extraite. Le taux de polarisation P_c atteint 7% à 868 nm tandis qu'il atteint seulement 1% au maximum des spectres (867 nm). Le taux de polarisation semble augmenter proportionnellement au champ magnétique appliqué (Fig. III.20 (c)). Il ne varie pas pour des tensions appliquées comprises entre 2,2 V à 2,8 V (Fig. III.20 (d)). Afin de vérifier si le taux de polarisation mesuré est dû aux effets MCD ou Zeeman ou à l'injection de spin, nous avons effectué des mesures de photoluminescence résolues en polarisation en utilisant un laser He-Ne polarisé linéairement. Comme le montre la figure III.20 (b), le signal de PL est également caractérisé par un taux de polarisation maximum de 9 % à 868 nm et de -1 % à 867 nm, ce qui est compatible avec les mesures EL. Ces résultats montrent que le taux de polarisation circulaire est donc principalement dû à la contribution MCD ou Zeeman, mais pas à l'injection de spin. Cela pourrait être lié à la faible efficacité de polarisation de spin du Fe₄N du fait de la structure complexe de l'aimantation ou aux défauts d'interface induit par la diffusion d'azote dans le MgO. Un travail d'optimisation des interfaces s'avère encore nécessaire pour augmenter la TMR et injecter efficacement les spins en utilisant cet injecteur qui semble très prometteur pour des applications futures.

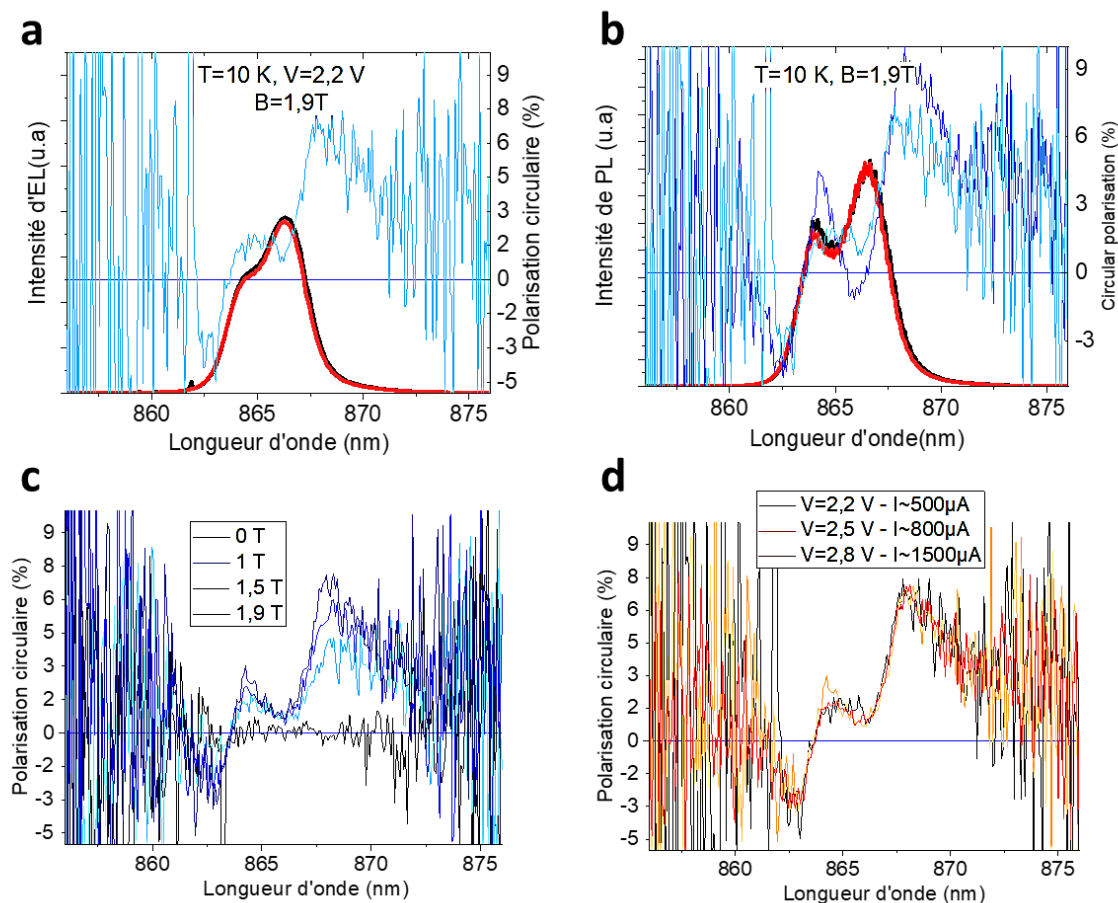


Figure III.20 : (a) Spectres d'EL résolus en polarisation pour une spin LED comportant un injecteur à base de Fe₄N mesurés sous un champ magnétique hors plan de 1,9T à 10K. (b) Spectres de PL résolus en polarisation (c) Pc en fonction de la longueur d'onde pour différents champs magnétiques mesurés à 10K.(d) Pc en fonction de la longueur d'onde mesurée pour différentes tensions de polarisation à 10K.

III.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons démontré que la croissance épitaxiale d'une tricouche Au/Fe₄N/MgO est possible sur des substrats de GaAs (001) en utilisant la MBE assistée par plasma. Au stade initial de la croissance, le nitrure de fer Fe₄N forme des îlots 3D qui évoluent ensuite en grains ayant tous la même orientation cristallographique. Les propriétés magnétiques montrent qu'il existe une faible composante de l'aimantation hors plan. Cette composante peut être retournée électriquement sur une diode électroluminescente en utilisant une impulsion de courant d'amplitude 13mA. Bien que le retournement électrique de l'aimantation soit possible

Développement d'un nouvel injecteur de spin à base de MgO/Fe₄N/Au

sur une LED à base de GaAs, aucune polarisation circulaire n'a cependant été mesurée. L'injecteur Au/Fe₄N/MgO, qui est potentiellement intéressant pour la spintronique, ne peut donc pas être fonctionnalisé dans des dispositifs spin-optoélectroniques actuellement.

Dans tous les travaux présents dans ce chapitre, j'ai une contribution majeure répertoriée ci-dessous :

- Croissance et optimisation de la couche de Fe_xN_y par MBE pour obtenir la bonne phase ;
- Caractérisation des échantillons par AFM, RHEED, XPS, VSM, SQUID-VSM ;
- Préparation des lames FIB pour les analyses STEM (qui sont effectués par Xavier DEVAUX)
- Micro-fabrication des échantillons par lithographie UV ;
- Les mesures de magnéto-transport (avec l'aide de **Tianyi MA** pour les premiers échantillons)
- Les mesures d'électroluminescence avec la contribution de **Pierre RENUCCI** et **Delphine LAGARDE** du LPCNO

Chapitre IV

Spin-LEDs à base de GaAs avec l'injecteur CoFeB

Dans ce chapitre, nous allons nous concentrer sur l'injecteur à base de CoFeB dont la croissance est très bien maîtrisée par l'équipe. De fortes polarisations circulaires ont déjà été obtenues^{68,69,70,83,84,85} mais l'aimantation était toujours manipulée à l'aide d'un champ magnétique. Nous étudierons tout d'abord une spin-LED standard constituée d'une LED à base de GaAs et d'un injecteur de spin à base de MgO/CoFeB/Ta. Nous présenterons dans un premier temps la structure de la LED à base de GaAs comportant une couche unique de boîtes quantiques d'InAs dans la région intrinsèque. Nous déterminerons ensuite les conditions expérimentales permettant d'obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire pour la couche de CoFeB. Enfin, nous présenterons les mesures d'électroluminescence résolues en polarisation qui mettent en évidence le contrôle de la polarisation avec un champ magnétique extérieur. Dans une deuxième partie, nous montrerons que l'injecteur de spin constitué de MgO/CoFeB/Ta/Cr permet de contrôler électriquement l'injection de spin dans la LED grâce à

l'effet SOT et ceci à température ambiante. Il devient ainsi possible de s'affranchir de tout champ magnétique extérieur, ce qui constitue une avancée majeure vers des applications concrètes des spin-LEDs.

IV.1 Structure de la LED

Une LED est généralement constituée d'une hétérostructure semi-conductrice comprenant un région dopée n avec un excès d'électrons et une région dopée p avec un excès de trous séparés par une région semi-conductrice intrinsèque. Les multicouches à partir desquelles ont été fabriqués les LEDs utilisées au cours de cette thèse ont été élaborées au Centre de nanosciences et de nanotechnologies de Paris Saclay par Martina MORASSI et Aristide LEMAITRE par épitaxie par jet moléculaire (MBE). Elles comportent une seule couche de boîtes quantiques InAs dans la région active. La structure complète est la suivante : p+-GaAs:Zn (001) substrat ($p=3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)/300 nm p-GaAs:Be ($p=2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)/400 nm p-Al_{0.3}Ga_{0.7}As:Be ($p=2 \times 10^{18}$ - $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)/30 nm i-GaAs avec Be δ -dopage au centre/InAs QD/30 nm i-GaAs/50 nm n-GaAs : Si ($n=1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$).

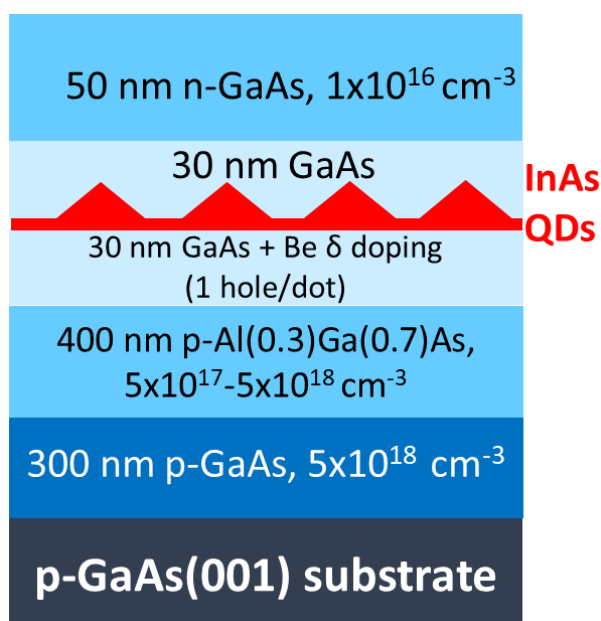


Figure IV.1 : Structure de la LED

Le rôle du delta-dopage au Be est de former des boîtes quantiques dopés p. L'objectif est ici de contrôler précisément la concentration de dopants dans les boîtes quantiques, de façon à avoir un trou par boîte en moyenne. Il y a deux raisons pour lesquelles les boîtes quantiques dopés p sont nécessaires. La première raison est que la durée de vie du spin τ_s dans les boîtes quantiques dopées p est beaucoup plus longue que dans les boîtes quantiques dopés n. Lorsqu'un électron est injecté dans une boîte quantique (QD) chargée positivement, la formation d'un trion (X^+) minimise l'interaction d'échange entre l'électron et le trou, ce qui peut entraîner un temps de relaxation de spin plus long. Cela peut donner lieu à une polarisation circulaire plus élevée¹⁶⁰. La deuxième raison est que l'état propre des boîtes quantiques neutres est polarisé linéairement du fait d'une interaction d'échange électron-trou anisotrope. Il en résulte une polarisation circulaire faible voire nulle de la lumière émise. En revanche, dans les boîtes quantiques dopées p, les interactions d'échange entre l'électron et les deux trous s'annulent. Les états propres sont alors polarisés circulairement ce qui conduit à une polarisation circulaire de la lumière émise et à un temps de relaxation du spin plus long¹⁶¹. Par conséquent, les spin-LED à boîtes quantiques dopées p peuvent émettre une lumière polarisée circulairement sans aucun champ magnétique externe appliqué. Après dépôt, la surface de la multicouche *p-i-n* a été passivée à l'arsenic dans la chambre d'épitaxie avant d'être transférée à l'air vers un système interconnecté MBE-pulvérisation dans lequel la couche superficielle d'As a été désorbée en chauffant à 300 ° C.

Une analyse basée sur la microscopie électronique à transmission à balayage (STEM) combinée avec la spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS) nous permet de caractériser la formation des boîtes quantiques. La figure IV.2 (a) montre l'image STEM-HAADF de la multicouche. On observe bien une zone de contraste inhomogène pouvant correspondre à une couche unique de boites quantiques. La figure IV.2 (b-d) montre les cartographies EELS pour les éléments, In, Ga et As, respectivement. La cartographie élémentaire de l'Indium (In) met en évidence une discontinuité latérale nous permettant d'identifier la formation de boites

quantiques. À partir du profil latéral de la concentration d'In (Fig IV.2e), on peut estimer la taille latérale des boîtes quantiques qui est comprise entre 7 nm et 12 nm. À partir du profil vertical de la concentration d'In (Fig IV.2f), on peut estimer la hauteur des boîtes quantiques à 2 nm.

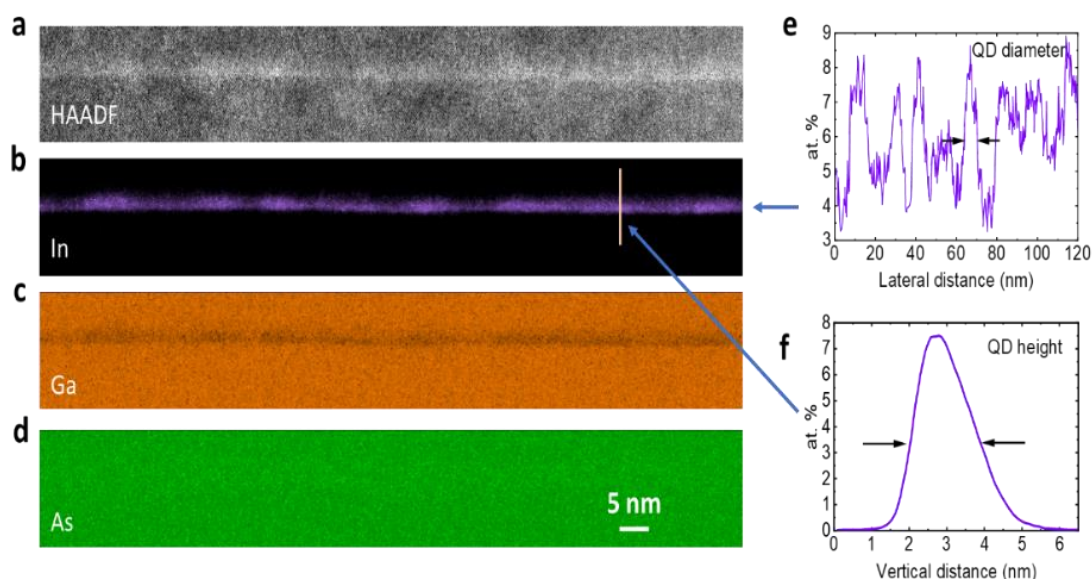


Figure IV.2 : a) Image STEM HAADF montrant la couche de boîtes quantiques ; (b-d) Cartographie EELS relatives à l'In (b), (c) au Ga et à l'As (d). (e) Profil latéral de concentration d'In. (f) Profil vertical d'In.

IV.2 Optimisation de l'injecteur de spin

Dans une spin-LED, le retournement de l'aimantation de l'injecteur permet de contrôler la polarisation circulaire de la lumière émise. Différents injecteurs de spin ont été étudiés possédant soit une aimantation dans le plan des couches ou perpendiculairement au plan des couches. Afin de satisfaire les règles de sélection optiques et pour permettre une détection de lumière polarisée sans champ magnétique perpendiculairement au plan des couches (géométrie de Faraday), l'aimantation doit elle aussi être orientée perpendiculairement au plan des couches. Dans cette partie, nous présentons l'optimisation de l'injecteur (conditions de croissance, recuits) dans le but d'obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire. Tous les échantillons ont été élaborés premièrement sur des substrats de GaAs (001) non dopés.

IV.2.1 Effet de l'épaisseur de la couche de CoFeB

Les matériaux ferromagnétiques sont caractérisés par des directions dites de faciles ou difficiles aimantation. L'énergie nécessaire pour aimanter un matériau dépend directement de la direction de l'aimantation par rapport aux axes cristallins. Cette différence d'énergie correspond l'anisotropie magnétique du matériau. Elle s'écrit d'une manière générale :

$$E = K \cos^2 \theta \quad (\text{IV.1})$$

Où K est la constante d'anisotropie par unité de volume incluant différentes contributions (anisotropie de forme, anisotropie magnétocristalline, etc...) et θ est l'angle entre l'aimantation \vec{M} et l'axe de facile aimantation. Dans les couches minces, l'abaissement de symétrie donne lieu à une anisotropie d'interface. En modifiant les épaisseurs des couches ferromagnétiques et en choisissant des matériaux appropriés, il est possible d'ajuster l'anisotropie magnétique. C'est le cas dans des multicouches magnétiques, où une contribution d'interface peut permettre de modifier l'axe facile d'aimantation. Si l'axe facile est orienté perpendiculairement au plan des couches, on parle d'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA). Celle-ci résulte d'une anisotropie magnétique à l'interface qui diffère considérablement de l'anisotropie magnétique dans le volume. La constante d'anisotropie peut alors se réécrire sous la forme :

$$K = K_V + \frac{2K_S}{t} \quad (\text{IV.2})$$

Où K_V est la constante d'anisotropie de volume, K_S la constante d'anisotropie de surface ou d'interface et t l'épaisseur de la couche ferromagnétique. Une autre écriture de K est donnée par :

$$K = \int (M_{\perp} - M_{\parallel}) dH \quad (\text{IV.3})$$

On voit donc que si $K > 0$, l'aimantation sera orientée perpendiculairement au plan des couches alors que si $K < 0$, l'aimantation sera orientée dans le plan des couches. Comme $K_V < 0$, on

ne peut avoir $K > 0$ que pour des épaisseurs de couches ferromagnétiques très faibles. En d'autres termes, en dessous d'une épaisseur limite $t_{lim} = \frac{-2K_S}{K_V}$ la contribution interfaciale l'emporte sur la contribution volumique et ceci a pour conséquence l'orientation préférentielle de l'aimantation hors du plan des couches. Nous avons donc considéré dans cette partie des épaisseurs de couches de CoFeB comprises entre 0.8 et 1.3 nm. Cette étude a été effectuée en mesurant l'aimantation en fonction du champ magnétique, celui-ci étant orienté dans le plan (IP) et hors plan (OOP) à 300K et à 10K.

Les figures IV.3 (a) et (b) présentent les cycles d'hystérésis de la couche mince de CoFeB mesurés avec le champ magnétique appliqué dans le plan et hors du plan, respectivement pour des épaisseurs comprises entre 0.8nm et 1.3nm à 300K. Les figures IV.3 (c) et (d) présentent les mêmes mesures à 10K. Pour une épaisseur de 0.8nm, on peut constater que l'aimantation n'est ni dans le plan ni hors du plan car l'aimantation à la rémanence est nulle, Un champ élevé est nécessaire pour saturer l'aimantation (i.e. 1 T dans le plan et 0.5 T hors plan). Lorsqu'une couche mince métallique est déposée sur un oxyde, en raison des énergies de surface, une croissance 3D est attendue. Il y a donc formation d'îlots de CoFeB à la surface du MgO qui donnent lieu à un comportement super-paramagnétique. L'aimantation de chaque îlot est orientée aléatoirement conduisant à une aimantation résultante nulle à champ nul. L'application d'un champ magnétique externe va aligner toutes les aimantations des îlots dans le même sens jusqu'à saturation, d'où l'augmentation de l'aimantation mesurée lorsque l'on applique un champ élevé. Quand l'épaisseur de la couche mince de CoFeB est de 1nm, à 300K l'aimantation n'est ni dans le plan ni hors du plan mais le champ nécessaire pour saturer l'aimantation diminue par rapport à celui utilisé pour saturer la couche d'épaisseur 0.8nm. A basse température, nous observons une aimantation rémanente à champ nul montrant que l'axe facile d'aimantation est cette fois hors du plan. Ce comportement peut être facilement compris par la compétition entre l'anisotropie volumique de forme K_V et l'anisotropie d'interface K_S . Pour de faibles épaisseurs,

K_S domine et l'aimantation est orientée perpendiculairement au plan des couches. Si on augmente l'épaisseur de la couche de CoFeB (i.e. 1.1 et 1.3 nm), l'anisotropie de volume K_V l'emporte et l'axe facile d'aimantation se trouve dans le plan des couches. L'aimantation à la rémanence hors du plan est nulle, un champ fort est nécessaire pour saturer l'aimantation. Cette étude nous permet de conclure que l'épaisseur optimale de la couche mince de CoFeB pour avoir une aimantation hors du plan doit être de 1 nm.

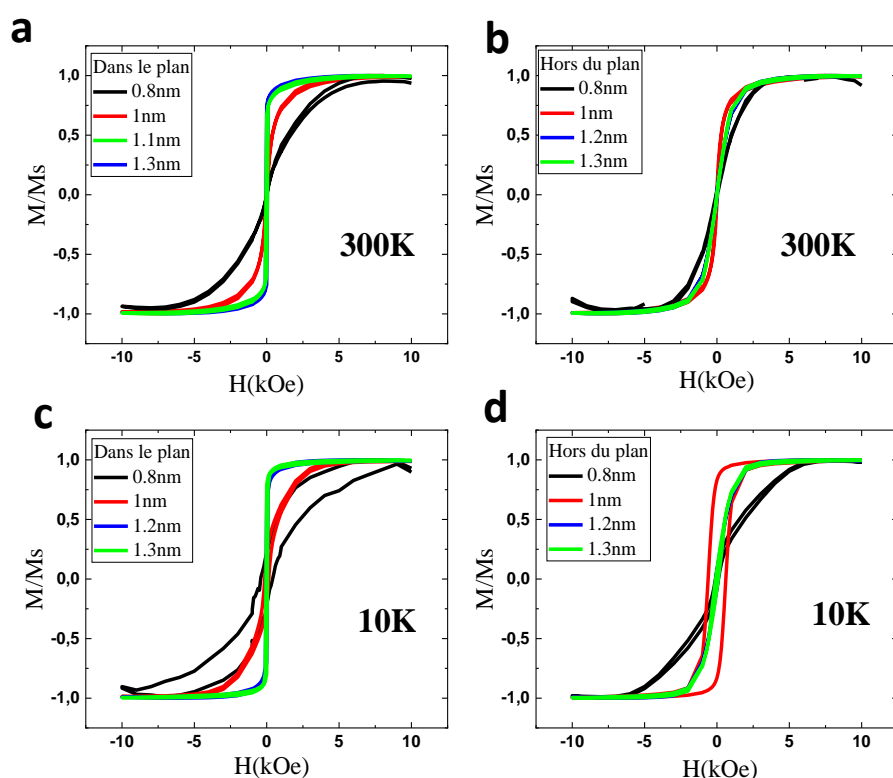


Figure IV.3 : Cycles d'hystérésis obtenus pour différentes épaisseurs de CoFeB (0.8, 1.0, 1.2, 1.3 nm) déposés sur GaAs ; a) dans le plan à 300K ; b) hors du plan à 300K ; c) dans le plan à 10K ; et d) hors du plan à 10K.

IV.2.2 Effet des recuits (RTA)

Dans cette étude on fixe l'épaisseur de la couche de CoFeB à 1 nm et on fait varier la température de recuit afin de cristalliser la couche de CoFeB qui est amorphe juste après la croissance. L'échantillon a été recuit à 250, 300, et 350°C sous azote pendant 3min en utilisant

le four RTA (Rapid Thermal Annealing). La figure IV.4 présente les cycles d'hystérésis mesurés avec le champ magnétique orienté hors du plan pour l'injecteur de spin (GaAs // MgO(2.5nm) / CoFeB(1nm) / Ta(5nm)) après recuit à différentes températures (250, 300, 350°C) à 300 K (Fig IV.4a) et à 10 K (Fig IV.4b). Avant le recuit à 300K, l'aimantation à rémanence hors du plan est nulle pour une épaisseur de 1nm (Fig IV.3b). Après recuit à 250°C, on peut constater une augmentation de l'aimantation à la rémanence montrant que l'aimantation n'est pas encore complètement hors plan. Comme déjà étudié théoriquement par Yang et al.¹⁶², l'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) est très sensible à l'interface Fe (Co)/MgO. L'amélioration de la PMA à une température de 250°C peut être attribuée à une optimisation de la structure chimique à l'interface CoFeB/MgO.

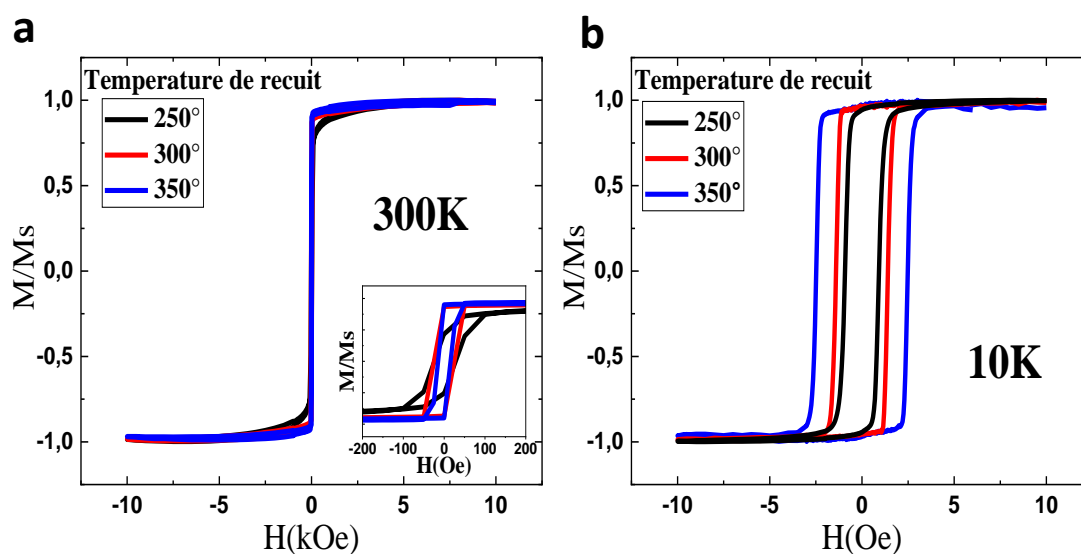


Figure IV.4 : Cycles d'hystérésis mesurés à 300 K (a) et à 10 K (b) sur des couches minces de CoFeB d'épaisseur 1 nm et recuites à 250°C, 300°C et 350°C pendant 3 minutes.

Après recuit à 300°C et à 350°C, le cycle d'hystérésis obtenu est carré à 300K (Fig IV.4a, zoom en insert). L'aimantation à la rémanence est égale à l'aimantation à saturation. Cette observation montre que l'aimantation de la couche de CoFeB est complètement hors du plan avec une faible coercivité d'environ 50Oe. Cependant, pour les mesures à basse température, nous remarquons que la coercivité augmente avec la température de recuit. On obtient une coercivité d'environ

2.5kOe après recuit à 350°C et 1.4kOe après recuit à 300°C. Après recuit à 300°C, le bore va migrer dans la couche supérieure de Ta permettant ainsi la cristallisation du CoFe. Cela a pour effet d'améliorer la structure de l'interface MgO/CoFeB et conduit à l'anisotropie magnétique perpendiculaire. Un recuit à plus haute température (350°C à 400°C) provoque une diffusion du Ta dans la couche de CoFeB⁸⁴. Lorsque le Ta commence à diffuser dans le CoFeB, il devient plus difficile de maintenir l'aimantation hors du plan d'où la forte augmentation de la coercivité. A plus haute température de recuit, une forte diffusion du Ta dans la couche mince de CoFeB jusqu'à l'interface MgO/CoFeB a pour conséquence de ramener l'aimantation dans le plan⁸⁴, ceci a été montré précédemment. Cette étude montre qu'il est possible d'obtenir une PMA à température ambiante et à basse température, le champ coercitif étant le plus petit possible, après recuit d'une couche de CoFeB d'épaisseur 1 nm à 300°C pendant 3 min. L'origine de la PMA à l'interface Fe (Co)/MgO a été expliquée précédemment en s'appuyant sur des calculs ab-initio⁸². Dans les films minces de Fe de structure bcc, la distribution de charge des électrons 3d est presque isotrope, ainsi que le moment orbital moyen résultant. Le moment orbital acquis dans le plan de la couche compense exactement celui acquis hors du plan par remplissage égal des orbitales correspondantes. Contrairement à un film de Fe, l'interface Fe/MgO présente un fort caractère uniaxial. L'orbitale $3d_z^2$ du Fe hors du plan se lie fortement à l'orbitale $2p_z$ de l'O, ce qui introduit un transfert de charge significatif des orbitales 3d du Fe vers les orbitales 2p de l'O à cause de la forte électronégativité de l'O (Fig. IV.5 (a)). Cela a pour conséquence un déficit d'électrons dans les orbitales $3d_z^2$, $3d_{xz}$ et $3d_{yz}$ du Fe hors du plan par rapport aux orbitales du Fe dans le plan ($3d_{x^2-y^2}$ et $3d_{xy}$). Un moment orbital hors du plan est obtenu à partir des orbitales dans le plan non compensé et conduit à une PMA considérable lorsque le couplage spin-orbite (SOC) est pris en compte. La PMA a donc pour origine un moment orbital hors plan non compensé à l'interface Fe(Co)/MgO. Le recuit de l'échantillon améliore la structure chimique de l'interface MgO/CoFeB mais cristallise aussi la couche mince de CoFeB.

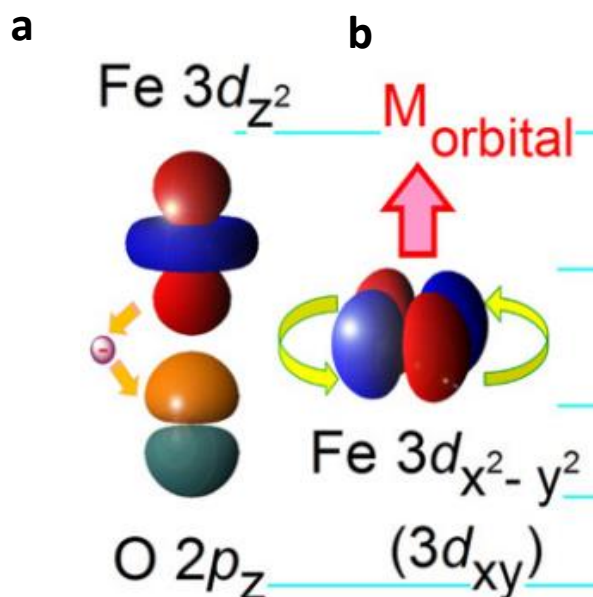


Figure IV.5 : (a) Orbitale Fe $3d_z^2$ hors du plan qui se lie fortement à l'orbitale O $2p_z$ et introduit un transfert de charge significatif des orbitales du Fe à celle de l'O. (b) Un moment orbital hors plan net est obtenu à partir des orbitales non compensées dans le plan⁸².

Après recuit à 300°C, le B diffuse dans le Ta favorisant ainsi la cristallisation du CoFe déposé sur MgO. Il ne reste donc plus que le Co et le Fe au-dessus de l'atome d'oxygène. La forte hybridation entre les orbitales $3d_z^2$ du Fe (Co) et $2p_z$ de l'O a pour conséquence la PMA. Un recuit à une température plus élevée (>350°C) induit une diffusion du Ta vers l'interface MgO-CoFeB. L'hybridation des orbitales entre Fe (Co) et O est alors perturbée par la présence des atomes de Ta. (Ref⁸²)

IV.3 Propriétés microstructurales

Après avoir optimisé les conditions nécessaires pour obtenir l'anisotropie magnétique perpendiculaire sur un substrat non dopé de GaAs, l'injecteur de spin optimisé a été déposé sur une LED comportant une couche unique de boîtes quantiques InAs/GaAs. On y ajoute en plus 3nm de Cr au-dessus de la couche de Ta (les raisons seront développées plus tard) qui n'affecte pas la PMA. La structure finale est donc la suivante : GaAs LED/MgO(2.5nm) /CoFeB(1.2nm)

/Ta(3nm) /Cr(3nm). La figure IV.6(a) montre une image de microscopie électronique en transmission à balayage en champ sombre annulaire (STEM-HAADF) de la LED et de l'injecteur de spin. La couche unique de boîtes quantiques apparaît sous la forme d'une ligne en gris clair située au milieu de l'image. Pour la préparation des lames TEM, l'injecteur de spin a été recouvert d'une couche épaisse de Pt qui apparaît granuleuse sur le dessus de l'image. La couche de MgO apparaît en contraste sombre (faible diffusion électronique due à un petit Z moyen) tandis que les couches métalliques apparaissent en blanc (diffusion électronique élevée due à un Z moyen élevé). Le contraste noir sur le dessus des couches métalliques, situé juste sous la couche de Pt, est dû à une l'oxydation partielle du Cr. L'injecteur de spin présente une très bonne homogénéité. La figure IV.6(b) montre l'image STEM en champ clair de la structure de l'injecteur en haute résolution. Les contrastes sont ici inversés par rapport à l'image en champ sombre. Le MgO apparaît en gris clair tandis que le Ta apparaît en gris foncé. Les différentes couches sont bien identifiées, la couche de MgO présente une texture claire (001) avec une interface abrupte entre les couches de GaAs et de CoFeB. Bien que l'interface Ta/CoFeB semble plutôt diffuse, la couche mince de CoFeB d'épaisseur 1 nm est néanmoins continue. Après recuit à 300°C, la couche de CoFeB est cristallisée et le couche de Ta semble toujours amorphe. L'analyse par transformée de Fourier rapide (FFT) des différentes couches montre la bonne cristallinité et une croissance épitaxiale qui suit la relation GaAs [110] (001) //MgO [110] (001) //CoFe [100] (001). La figure IV.6(c) montre les cartographies chimiques quantitatives établies en traitant les spectres EELS. Les structures en couches des éléments Ga, As, O, Fe, Co montrent qu'aucune interdiffusion évidente ne se produit entre la couche ferromagnétique et la couche de MgO et le substrat de GaAs. Le MgO agit donc comme une barrière de diffusion très efficace. De plus, les atomes de B diffusent largement dans la couche de Ta après recuit à 300°C, ce qui est essentiel pour établir l'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) à l'interface MgO/CoFeB.

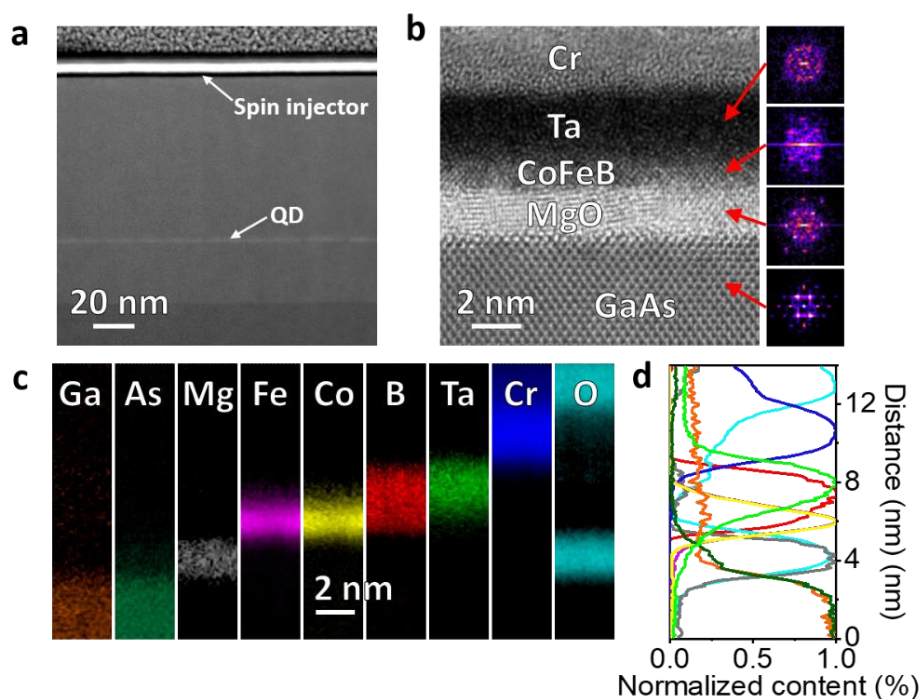


Figure IV.6 : (a) Image STEM-HAADF de la LED et de l'injecteur de spin, (b) Image STEM agrandie en champ clair (BF) à haute résolution montrant la structure multicouche de l'injecteur. (c) Cartographie élémentaire individuelle tirée d'images spectrales EELS traitées. (d) Profils d'éléments extraits des cartographies montrées en (c). La couleur des profils correspond à la couleur des cartographies.

Pour identifier une possible diffusion aux interfaces, des profils semi-quantitatifs normalisés pour chaque élément chimique sont tracés sur la figure IV.6(d). Chaque point du profil est extrait en intégrant les signaux élémentaires des cartographies EELS sur une zone de 0,2 nm de hauteur (environ 1 colonne atomique) et de 10 nm de largeur parallèlement aux interfaces. Ces profils montrent que le B diffuse dans le Ta permettant ainsi la cristallisation du CoFeB qui est initiée à partir de l'interface avec le MgO. Un chevauchement parfait est obtenu pour les profils de concentration du Co et du Fe. On peut également trouver une légère oxydation du CoFe à l'interface avec le MgO sur environ 1 à 2 plans d'épaisseur (faible décalage entre les signaux Mg et O). Une diffusion de Ta dans la couche de CoFe ainsi qu'une interdiffusion du Ta et du Cr à l'interface Ta/Cr peuvent également être détectées. On note également qu'une partie de la couche superficielle de Cr est oxydée. La faible teneur en oxygène détectée par ailleurs dans le Cr et le Ta provient de l'oxydation superficielle de la lame TEM lors de l'exposition à l'air

(transfert entre FIB, stockage sous vide et TEM). Le bruit de fond élevé pour le Ga provient de l'implantation de Ga dans la lame TEM lors de la gravure FIB.

IV.4 Mesures d'EL résolue en polarisation de la spin-LED standard

On rappelle ici que pour fabriquer les spin-LEDs standard, des mesas circulaires de 500 μm de diamètre sont réalisés en utilisant la lithographie optique UV et la gravure ionique suivie d'un dépôt métallique pour établir les contacts électriques. Enfin, les échantillons sont découpés afin d'effectuer un recuit rapide à 300 °C pendant 3 minutes pour d'établir l'anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) de l'injecteur de spin. (Description détaillée dans le chapitre II, paragraphe II.3.1, page 69).

IV.4.1 Effet du champ magnétique

La figure IV.7 montre les mesures de polarisation circulaire en fonction du champ magnétique effectués à 150K avec une tension appliquée de 3.5V. L'insert de la figure IV.7 montre les spectres d'électroluminescence résolus en polarisation mesurés à la rémanence. Dans ces spectres, nous pouvons observer un seul pic centré à environ 995 nm correspondant à la transition du trion X^+ (un électron et deux trous) pour l'ensemble des boîtes quantiques. $H_z = \pm 0$ T indique que l'aimantation de l'échantillon est d'abord saturée par un champ hors plan de $\pm 100\text{mT}$ avant d'être annulé. Le changement de signe de la polarisation circulaire est dû au retournement de l'aimantation de la couche ferromagnétique lorsque l'on change le sens du champ magnétique. On obtient une polarisation d'environ -13% et 14.5%. La figure IV.7 montre l'évolution de la polarisation circulaire en fonction du champ magnétique appliqué hors plan. Elle suit un cycle d'hystérésis clair (lignes pointillées noires avec symboles), qui est en bon accord avec le cycle d'hystérésis décrit par l'aimantation mesurée sur l'échantillon non

lithographié (ligne continue bleue). Le changement de signe de la polarisation circulaire lorsque le sens du champ magnétique est inversé associé au fait que la polarisation circulaire suit un cycle d'hystérésis comparable à celui de l'injecteur démontrent clairement que la polarisation circulaire de la lumière émise est bien liée à l'injecteur de spin.

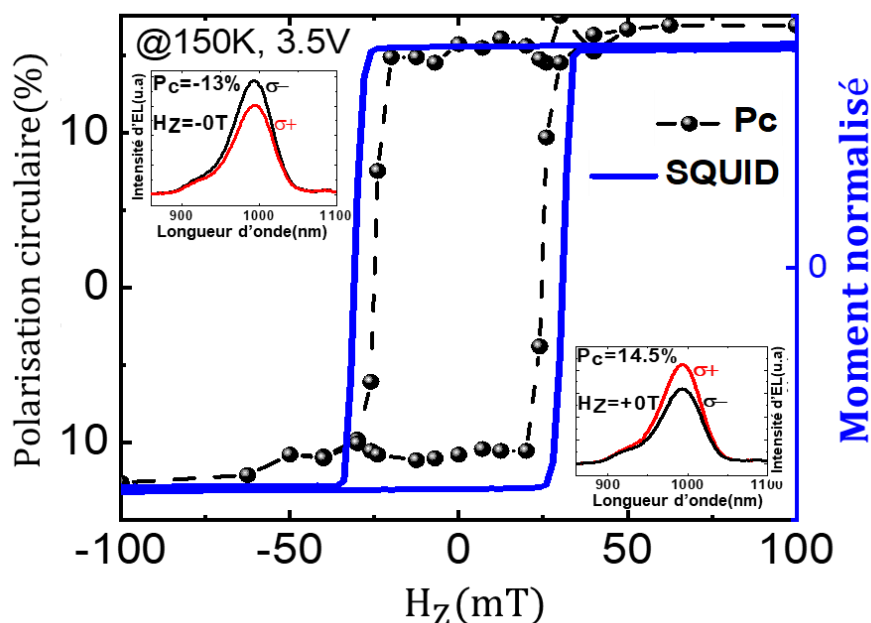


Figure IV.7 : Polarisation circulaire de la spin-LED standard mesurée sous une tension appliquée de +3,5 V en fonction du champ magnétique hors plan (lignes pointillées avec symboles) comparé au cycle d'hystérésis mesuré sur l'injecteur par SQUID (ligne continue bleue) à 150 K. Les spectres d'électroluminescence résolus en polarisation mesurés à la rémanence ($H_z = \pm 0$ T signifie que l'aimantation de l'échantillon est d'abord saturée par un champ hors plan de ± 50 mT avant d'être annulé) sont montrés en insert.

IV.4.1 Effet de la tension appliquée

La figure IV.8 montre la dépendance de la polarisation circulaire en fonction de la tension appliquée mesurée à température ambiante pour la spin-LED standard. La polarisation circulaire, qui atteint environ 36%, reste globalement constante pour des tensions appliquées comprises entre 3 et 4.5 V (Fig. IV.8 (c)). Le principal pic d'EL lié à la transition du trion X^+ qui était centré à 993nm à 150K est cette fois décalé à 1007 nm en raison de la diminution du gap lorsque la température augmente. On note l'émergence d'un second pic centré à 940 nm.

Celui-ci est dû à la recombinaison radiative de porteurs de charge confinés dans la couche de mouillage d'InAs/GaAs. En effet, lorsque la température augmente, les trous initialement confinés dans les boîtes quantiques vont pouvoir s'échapper et être piégés dans la couche de mouillage⁵⁸.

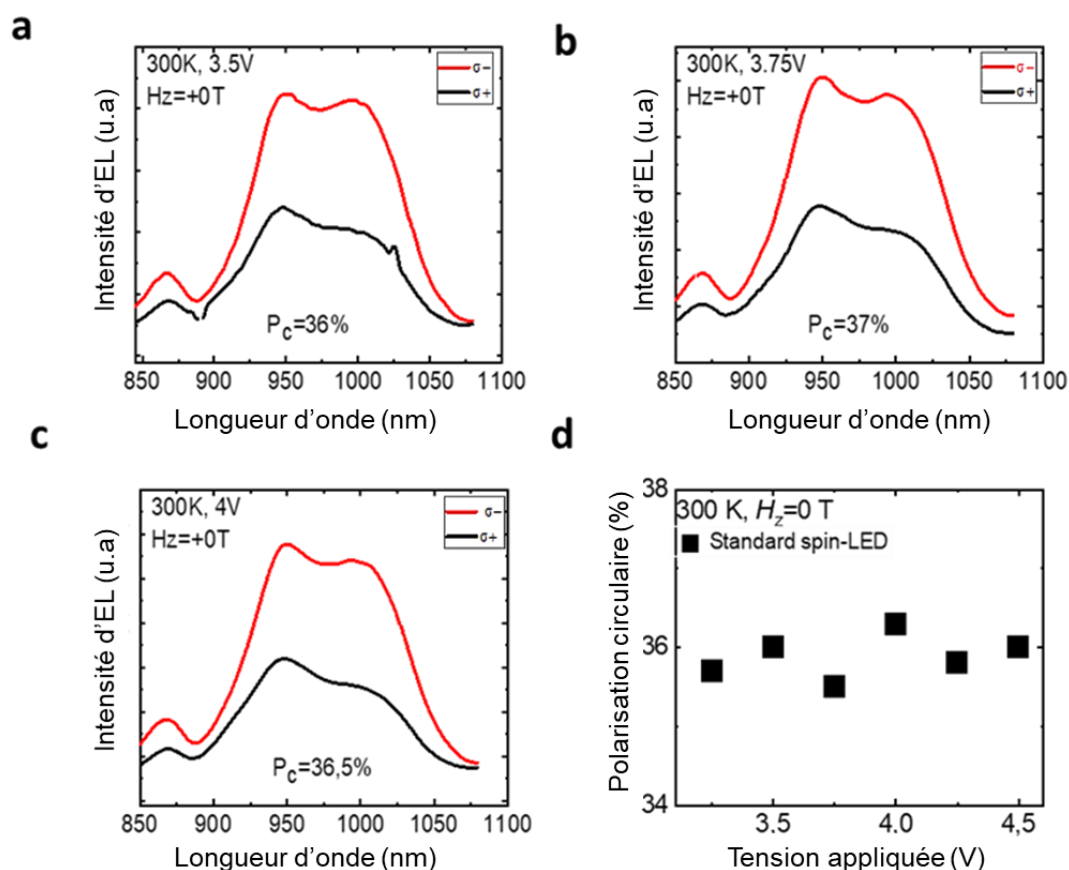


Figure IV.8 : (a-c) Spectres EL résolus en polarisation mesurés sur la spin-LED standard à 300 K sous champ nul avec différentes tensions appliquées. (a) 3.5 V, (b) 3.75 V, (c) 4V. (d) Polarisation circulaire en fonction de la tension appliquée à 300 K sous champ nul.

Dans le cas d'une barrière tunnel comme MgO ou Al₂O₃, la tension appliquée chute d'abord sur la partie p-i-n du semi-conducteur et les trous s'accumulent à l'interface entre la barrière tunnel et le semi-conducteur¹⁶³. Une fois qu'un nombre suffisant de trous se sont accumulés à l'interface oxyde-semi-conducteur, la tension chute également sur la barrière. Il en résulte une courbure de bande de la barrière tunnel et un alignement de la bande de conduction du semi-conducteur sur le niveau de Fermi du métal ferromagnétique. Les électrons vont ainsi pouvoir

être injectés de manière efficace de la couche ferromagnétique vers le semi-conducteur. Leur recombinaison avec des trous confinés dans les boîtes quantiques conduit à l'observation d'un signal d'électroluminescence. Cette observation générale a été confirmée en utilisant le modèle auto-cohérent de Poisson-Schrödinger¹⁶⁴.

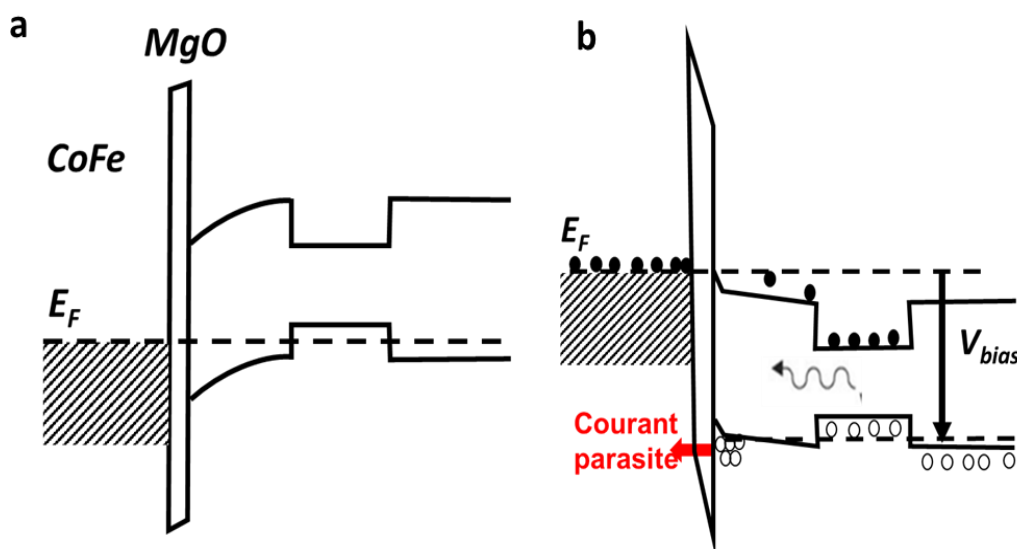


Figure IV.9 : Diagramme de bande schématisé d'une spin-LED avec une barrière tunnel d'oxyde : (a) sous tension nulle et (b) sous une tension appliquée. Les électrons sont injectés depuis le contact ferromagnétique dans la région active où ils se recombinaison avec les trous et émettent de la lumière. [Adapté de¹⁶³]

Pour des tensions appliquées croissantes, l'énergie cinétique des électrons injectés croît également. Un phénomène de relaxation du spin dû au mécanisme de Dyakonov-Perel peut avoir lieu, ce qui conduirait à une diminution de la polarisation circulaire de l'électroluminescence en fonction de la tension appliquée⁷⁰. Ceci n'est pas observé expérimentalement dans le cas de notre spin-LEDs standard. Une explication a été proposée dans la référence⁷⁰. Pour des spin-LEDs comportant une barrières tunnel à base d'oxyde, le courant total traversant le dispositif contient une composante appelée courant parasite (Fig IV.9(b)). Ce courant provient des électrons qui franchissent la barrière tunnel du métal vers la bande de valence du semi-conducteur. Ce phénomène peut être interprété comme un courant de

trous se déplaçant de la bande de valence du semi-conducteur vers le métal ferromagnétique à travers l'oxyde. Ce courant parasite peut être vu comme une résistance de fuite parallèle à la barrière tunnel. Il a été montré que, dépendant des conditions de croissance du MgO (épitaxie par jet moléculaire ou pulvérisation cathodique) ainsi de la qualité du MgO, on peut avoir une résistance de fuite faible ou plus forte. Si celle-ci est faible, la chute de tension sur la barrière tunnel est importante et donc l'énergie cinétique initiale est très élevée pour une tension appliquée. Cela conduit à une polarisation de spin P_e fortement décroissante lorsque la tension appliquée augmente. Si la résistance est plus forte, la chute de tension sur la barrière tunnel sera plus petite quel que soit la tension appliquée. L'efficacité du mécanisme DP est donc plus faible, et conduit à une dépolarisation de spin très faible lorsque la tension appliquée augmente (Fig. IV. 8-d). Ceci permet d'expliquer pourquoi la polarisation circulaire reste constante en fonction de la tension appliquée.

IV.4.1 Effet de la température

Les figures IV.10 (a)-(f) montrent l'évolution des spectres d'électroluminescence résolus en polarisation en fonction de la température, de 10K à 300 K. Les mesures sont effectuées à la rémanence pour une tension appliquée de 3.5V. Plusieurs observations peuvent être faites. Tout d'abord, le pic d'EL, qui provient de la recombinaison d'électrons polarisés en spin avec des trous non polarisés confinés dans les boîtes quantiques qui est centré à 966nm à 10K, se déplace vers 1007nm à 300 K. Ce décalage de l'émission est causé par la diminution de la largeur de bande interdite des boîtes quantiques avec l'augmentation de la température. De plus, pour des températures supérieures à 150K, on note l'apparition d'un nouveau pic aux plus faibles longueurs d'ondes. Cette contribution croît à mesure que la température augmente pour finalement dominer à 300K. Elle peut être attribuée à la recombinaison radiative entre électrons polarisés en spin et trous non polarisés confinés dans la couche de mouillage. A mesure que la

température augmente, des trous sont thermalisés et peuvent s'échapper du potentiel créé par les boîtes quantiques pour rejoindre la couche de mouillage. Enfin, il est intéressant de constater que la polarisation circulaire augmente lorsque la température augmente avant de saturer pour des températures supérieures à 250 K.

Rappelons que dans les boîtes quantiques, le taux de polarisation circulaire s'écrit sous la forme (éq I.7) :

$$P_C = \frac{P_e \tau}{1 + \frac{\tau}{\tau_s}} = F P_e$$

où τ et τ_s représentent respectivement le temps de vie de l'électron et le temps de relaxation du spin de l'électron dans la boîte. P_e est la polarisation de spin des électrons après passage au travers de la couche ferromagnétique. Sachant que le CoFeB a une température de Curie proche de 750K¹⁶⁵, la polarisation de spin des électrons injectés P_e reste globalement constante dans la plage de température comprise entre 10K et 300K.

Par conséquent, la variation de température de la polarisation circulaire devrait refléter le changement du facteur F inhérent à la partie semi-conductrice. Pour comprendre la variation de P_C en fonction de T, des mesures d'électroluminescence résolues en temps ont été effectuées au laboratoire de Photonique et de Technologie TéraHertz de l'Université de Bochum en Allemagne par Markus LINDEMANN et Nils GERHARDT pour déterminer le temps de vie du porteur τ et le temps de vie de spin τ_s dans les boîtes quantiques. La figure IV.11(a) montre l'intensité de PL en fonction du temps et de la longueur d'onde des photons. Deux pics de photoluminescence peuvent être observés, l'un est lié au GaAs (substrat + barrières) et l'autre aux recombinaisons radiatives dans les boîtes quantiques. Pour extraire le temps de vie des porteurs et le temps de vie du spin, nous nous concentrons sur la contribution des boîtes quantiques.

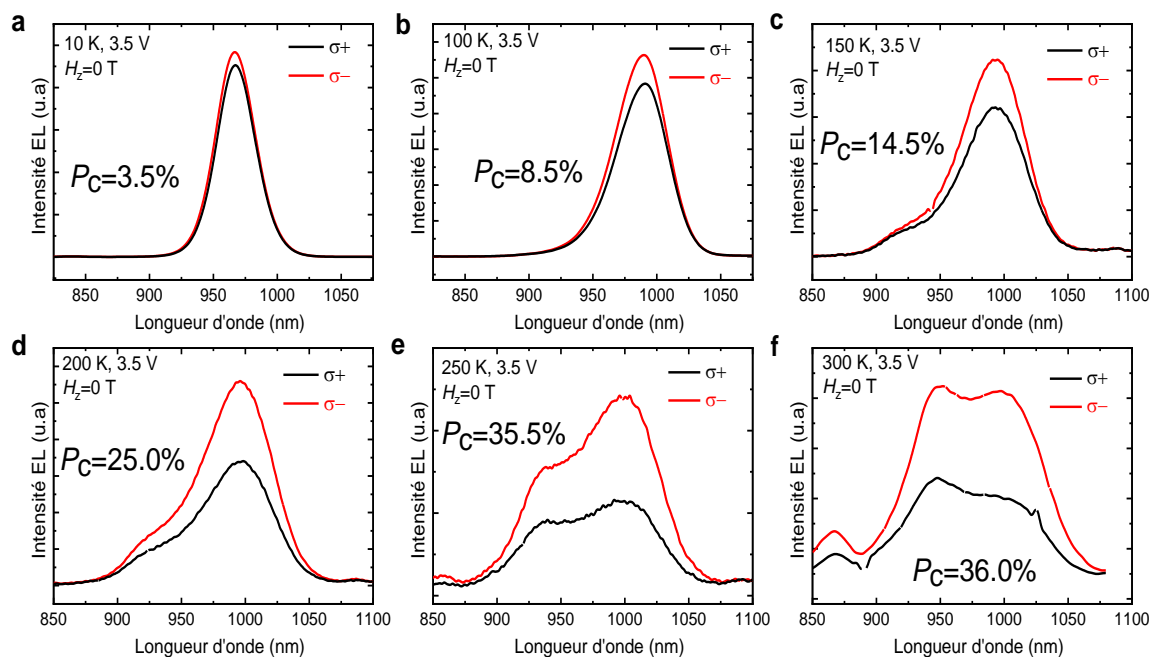


Figure IV.10 : Spectres EL résolus en polarisation de la spin-LED standard mesurés à la rémanence avec une tension appliquée de 3,5 V à différentes températures. (a) 10K, (b) 100K, (c) 150K, (d) 200K, (e) 250K, (f) 300K.

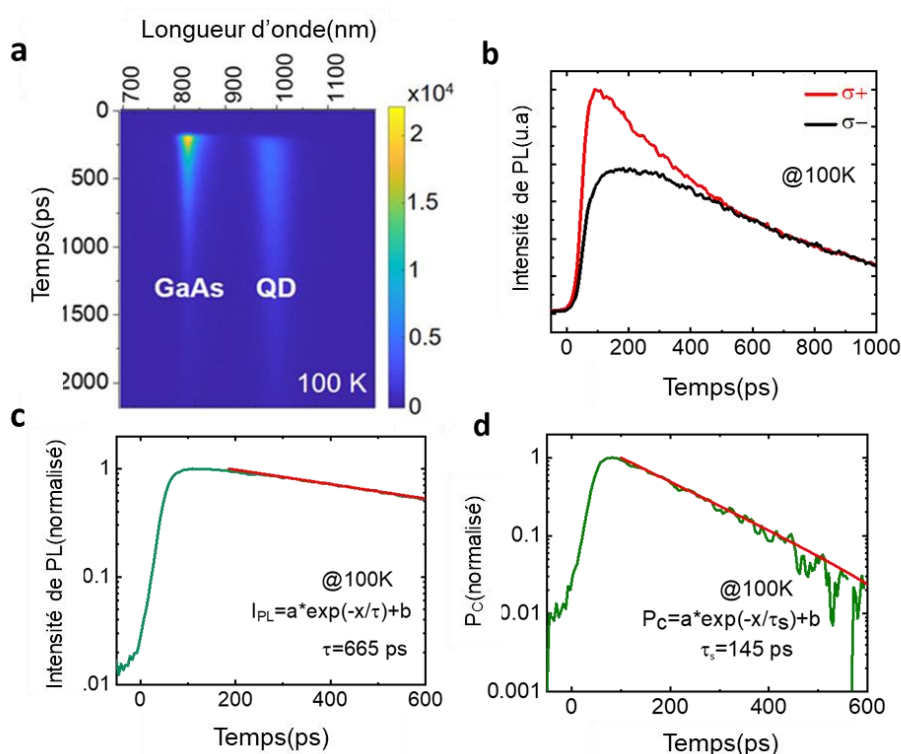


Figure IV.11 : (a) Cartographie d'intensité de photoluminescence typique pour la LED en fonction du temps et de la longueur d'onde des photons ; (b) Evolution de l'intensité de PL des boîtes quantiques en fonction du temps pour les composantes σ^+ et σ^- mesurées à 100K. (c) Détermination de la durée de vie des porteurs τ . (d) Détermination de la durée de vie du spin τ_s .

La figure IV.11(b) montre l'évolution de l'intensité de photoluminescence des boîtes quantiques en fonction du temps pour les composantes circulaires droites (σ^+) et circulaires gauche (σ^-) de la luminescence mesurée à 100K. Le temps de vie des porteurs τ peut être déterminé à partir de l'ajustement exponentiel de la courbe donnant ($I(\sigma^+) + I(\sigma^-)$) en fonction du temps (Fig. IV.11 (c)). Nous obtenons environ 665 ps. Pour extraire le temps de vie de spin τ_s , nous avons étudié la dynamique du taux de polarisation. La figure IV.11(d) montre l'évolution de P_c en fonction du temps. Le temps de décroissance de P_c correspond au temps de relaxation de spin τ_s . L'ajustement exponentiel nous donne 145 ps à 100 K. Comme le montre la figure IV.12(a), à la fois τ et τ_s diminuent avec l'augmentation de la température. Cependant, le temps de vie des porteurs diminue beaucoup plus fortement que le temps de relaxation de spin τ_s , ce qui entraîne une augmentation du facteur F qui croît de 0,2 à 100K jusque 0,53 à 300K. Il est intéressant de constater que la variation de F est parfaitement cohérente avec la variation de la polarisation circulaire (Fig. IV.12(b)). L'évolution conjointe du temps de vie des porteurs et du temps de vie du spin permet donc d'expliquer l'augmentation de P_c en fonction de la température. Tenant compte du facteur F de 0,53 et d'une polarisation P_c de 35 % à température ambiante, nous pouvons en déduire que la polarisation de spin injectée P_e atteint environ 66 %, ce qui est cohérent avec la polarisation de spin du CoFeB ($P_o = 65$ %) mesurée par réflexion d'Andreev à contact ponctuel¹⁶⁶. Par conséquent, l'efficacité de l'injection de spin (P_e/P_o) dans notre spin-LED approche les 100 %. En fait, la barrière tunnel MgO pourrait agir comme un filtre de spin pertinent pour améliorer l'efficacité de l'injection de spin^{Erreur ! Signet non défini.,15} afin de compenser la relaxation de spin pendant le transport de l'injecteur au QD et avant la recombinaison avec les trous. La valeur de P_c élevée mesurée à champ magnétique nul dans la spin-LED à température ambiante est presque quatre fois supérieure à des valeurs de P_c précédemment obtenues dans la littérature (8 %) avec le même type d'injecteur de spin possédant une PMA⁸². Cette valeur dépasse également la valeur de P_c la plus élevée (32 %) obtenue à température

ambiante avec des injecteurs de spin d'axe facile d'aimantation orienté dans le plan³³. Dans le cas d'une détection de surface, un champ magnétique important pouvant atteindre 5T est nécessaire pour orienter l'aimantation perpendiculairement au plan des couches.

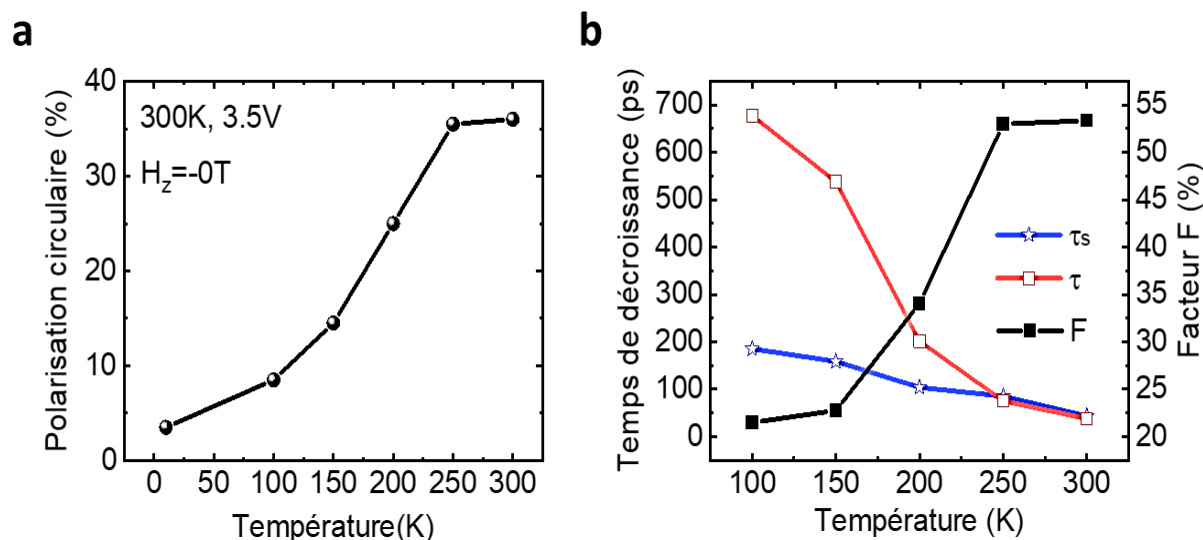


Figure IV.12 : (a) Evolution de τ et τ_s en fonction de la température mesurée à partir de la caractérisation TRPL. La dépendance en température du facteur F est déduite de $1/(1+\tau/\tau_s)$. (b) Pc en fonction de la température sous champ nul et une tension appliquée de 3,5 V pour la spin-LED standard.

Nous venons de montrer qu'il est possible d'obtenir une polarisation supérieure à 36% à température ambiante. Nous avons levé un verrou technologique important qui est susceptible d'ouvrir la voie à des applications potentielles. Cependant, l'aimantation est toujours retournée en utilisant un champ magnétique extérieur ce qui représente un frein pour de nombreuses applications. Dans la suite de cette étude, nous nous proposons d'étudier l'effet SOT pour essayer de retourner électriquement l'aimantation ce qui représenterait une avancée majeure.

IV.5 La SOT spin-LED

La figure IV.13 représente une SOT spin-LEDs après lithographie, gravure et métallisation. (Voir chapitre 2). Une impulsion de courant est injectée dans le canal transversal de l'injecteur

(entre les électrodes 1 et 2) pour retourner l'aimantation, tandis qu'une tension verticale est appliquée pour l'émission de lumière (entre les électrodes 4 et 5).

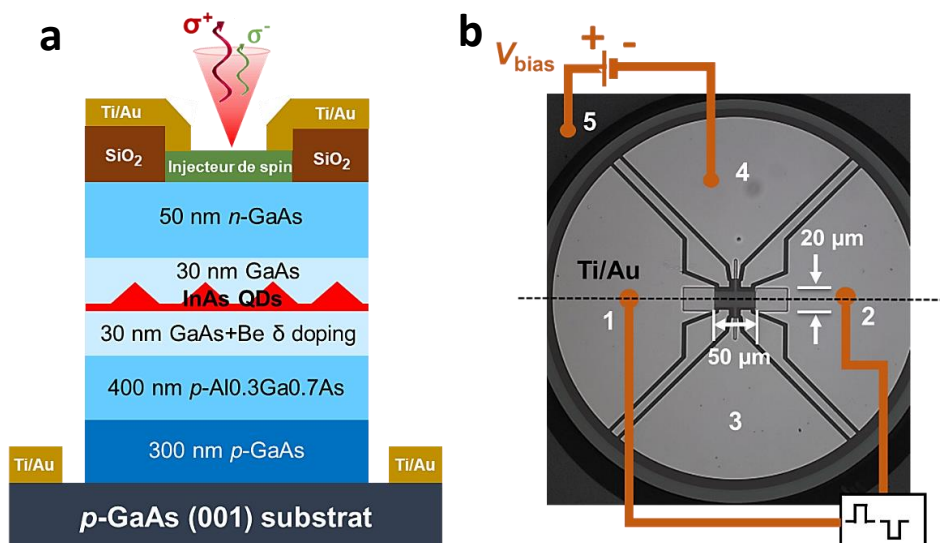


Figure IV.13 : (a) Vue de profil schématique de la SOT spin-LED comportant une couche active de boîtes quantiques InAs/GaAs ; (b) Vue de dessus du dispositif final au microscope optique

IV.5.1 Mesures d'EL résolues en polarisation

IV.5.1.1 Effet du champ magnétique

La figure IV.14 montre l'évolution de la polarisation circulaire en fonction du champ magnétique pour une SOT spin-LED à température ambiante. La tension est ici fixée à 3.5 V. Nous obtenons des valeurs nettes de polarisation circulaire de +15.5% et -18.5% à la rémanence. Le changement de signe de la polarisation est dû au retournement de l'aimantation de l'injecteur de spin. La polarisation circulaire décrit un cycle d'hystérésis en fonction du champ magnétique appliqué, en très bon accord avec les mesures SQUID effectués sur l'injecteur. Cette observation montre que la polarisation circulaire observée à champ nul est bien due à l'injection de porteurs de charge polarisés en spin provenant de la couche ultra-mince de CoFeB qui possède une anisotropie magnétique perpendiculaire. Cette mesure montre que la SOT spin LED et la spin LED standard se comportent de la même façon par rapport à un champ magnétique.

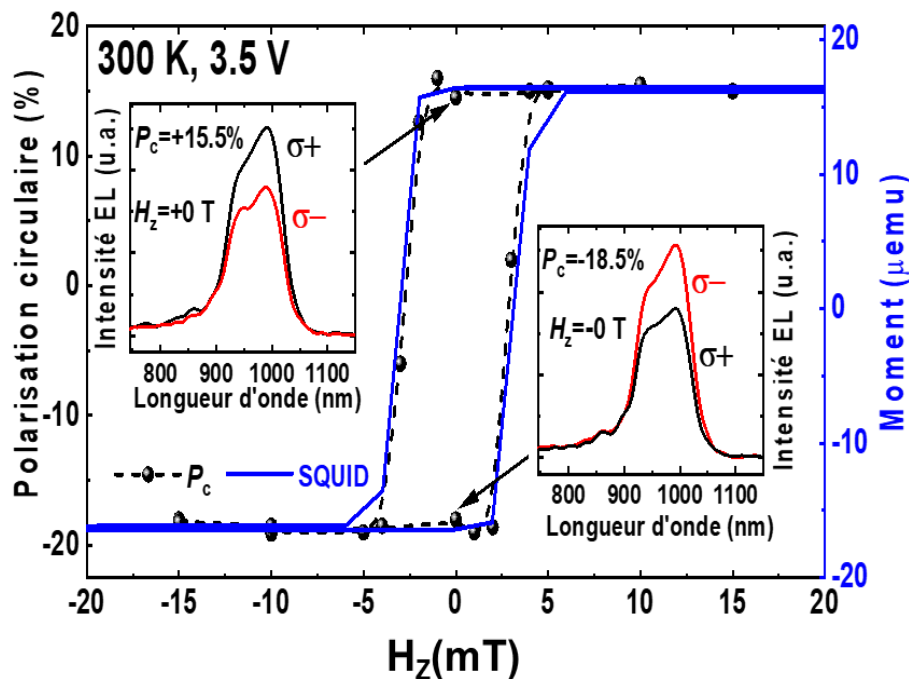


Figure IV.14 : Polarisation circulaire de la SOT spin-LED mesurée sous une tension appliquée de +3,5 V en fonction du champ magnétique hors plan (lignes pointillées avec symboles) comparé au cycle d'hystérésis mesuré sur l'injecteur par SQUID (ligne continue bleue) à 300 K. Les figures en insert montrent les spectres d'électroluminescence résolus en polarisation mesurés à la rémanence ($H_z = \pm 0$ T signifie que l'aimantation de l'échantillon est d'abord saturée par un champ hors plan de ± 15 mT avant d'être annulé).

IV.5.1.2 Effet de la tension appliquée

La figure IV.15 montre l'effet de la tension appliquée sur la polarisation circulaire mesurée à température ambiante sur la SOT spin-LED. Nous pouvons constater que la polarisation circulaire diminue fortement d'environ 30 % à 1,7 V jusque 18 % à 3,1V (Fig. IV.15 (f)). Cette évolution est très différente de celle obtenue dans le cas de la spin LED standard où la polarisation circulaire était globalement constante pour des tensions allant jusque 4,5 V. (Fig III.15 f). Dans le cas de la SOT spin-LED, la surface de l'injecteur est environ 60 fois plus petite. Étant donné que le produit de la résistance de la jonction (R) et de la surface de l'injecteur A , $R \cdot A \propto e^d$, (où d est l'épaisseur de la barrière tunnel de MgO) est constant, une surface plus petite va conduire à une résistance tunnel plus grande.

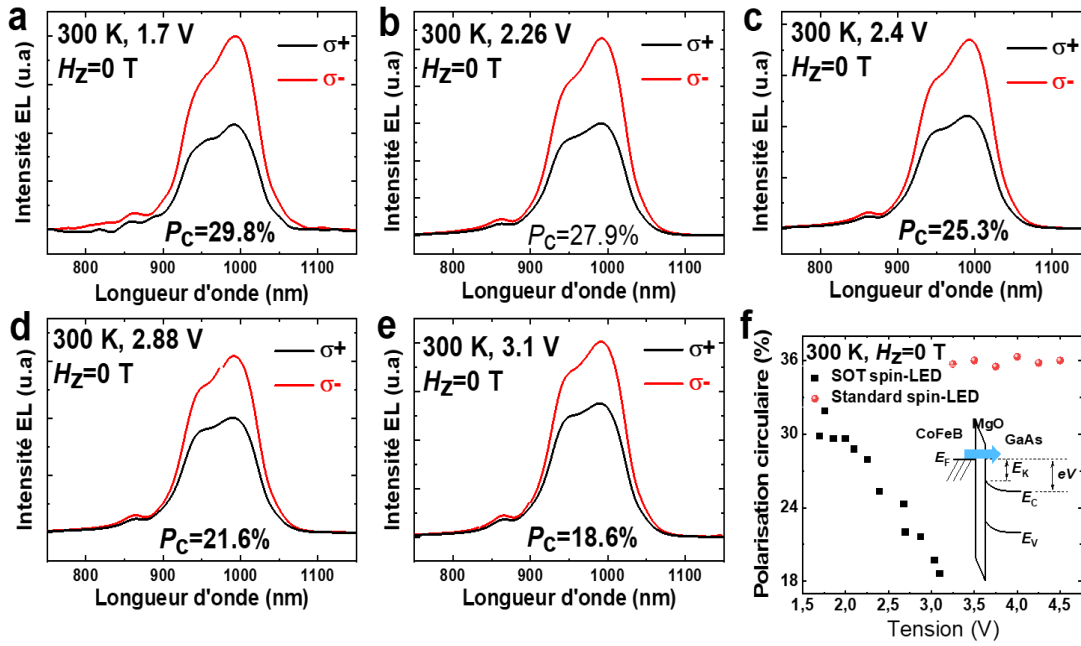


Figure IV.15 : (a-e) Spectres EL résolus en polarisation mesurés sur la SOT spin-LED à 300 K sous champ nul avec différentes tensions appliquées. (a) 1,7 V, (b) 2,26 V, (c) 2,4 V, (d) 2,88 V, (e) 3,1 V. (f) P_C en fonction de la tension appliquée à 300 K sous champ nul pour la SOT spin-LED.

Par conséquent, la chute de tension sur la barrière MgO devient plus importante dans le cas de la SOT spin-LED. L'énergie cinétique des électrons injectés va donc être plus grande que dans le cas des électrons injectés dans la spin-LED standard. Étant donné que le taux de retournement du spin τ_s^{-1} est proportionnel à E_k^3 dans le mécanisme de Dyakonov-Perel¹⁶⁷, la polarisation circulaire diminue rapidement dans la SOT spin-LED lorsque la tension appliquée augmente [85,70](#).

IV.5.2 Les obstacles au retournement électrique de l'aimantation

Le plus grand obstacle pour le retournement électrique de l'aimantation via le couplage spin orbite avec l'injecteur basé sur le CoFeB est le problème de fuite de courant dû à la partie semi-conductrice de la diode. La figure IV.16 montre la structure de la SOT spin-LED et son modèle de circuit équivalent.

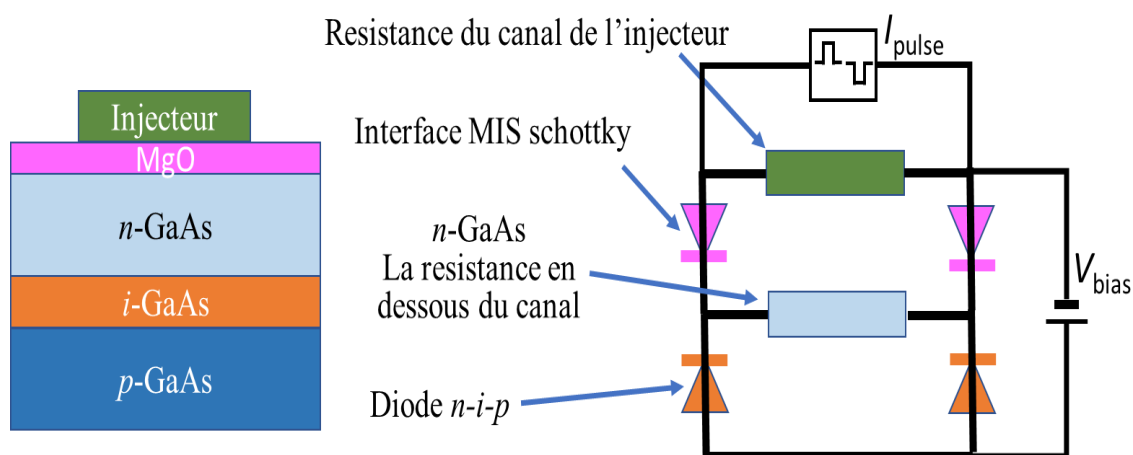


Figure IV.16 : Schéma de la structure de la spin-LED et son circuit équivalent.

Lorsque l'injecteur est intégré sur une structure LED n-i-p, le circuit équivalent comporte un canal de conduction parallèle dans le semi-conducteur. Si le courant pour le retournement est suffisamment faible, la barrière Schottky métal-isolant-semiconducteur (MIS) va bloquer le courant de fuite dans la partie semi-conductrice. Toutefois, si le courant transversal pour le retournement est élevé, la chute de tension aux deux extrémités de l'injecteur définie par $V=R_{\text{can}} \times I_{\text{pulse}}$ (où R_{can} est la résistance du canal et I_{pulse} le courant de retournement) sera suffisamment importante pour briser la barrière Schottky. Dans ce cas, le courant de fuite à travers le semi-conducteur (SC) va réduire considérablement la densité de courant dans l'injecteur et empêchera ainsi le retournement de l'aimantation. Il pourra par ailleurs endommager la diode. Plusieurs injecteurs de spin ont déjà été testés avant ce travail de thèse. A cause de ce courant de fuite, l'aimantation de la couche ferromagnétique n'a pas pu être retournée. Nous avons donc commencé par étudier la croissance d'injecteurs composés de MgO(2,5nm) /CoFeB(1,1nm) /Ta(2nm) /MgO(3,2nm) /MgAlO_x(2,5nm). Ce type d'injecteur a montré une grande efficacité d'injection de spin tout en possédant une bonne anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA)⁸⁵. L'aimantation de cet injecteur peut être retournée sur un substrat de GaAs non dopé avec un courant critique de 35mA à 50K et de 13mA à 250K sous

un faible champ magnétique de 5 mT appliqué dans le plan (Fig. IV.17). Cependant, lorsqu'on transfère ce même type d'injecteur de spin sur une LED, il n'est pas possible de retourner électriquement l'aimantation en raison du problème de fuite de courant dans le semi-conducteur.

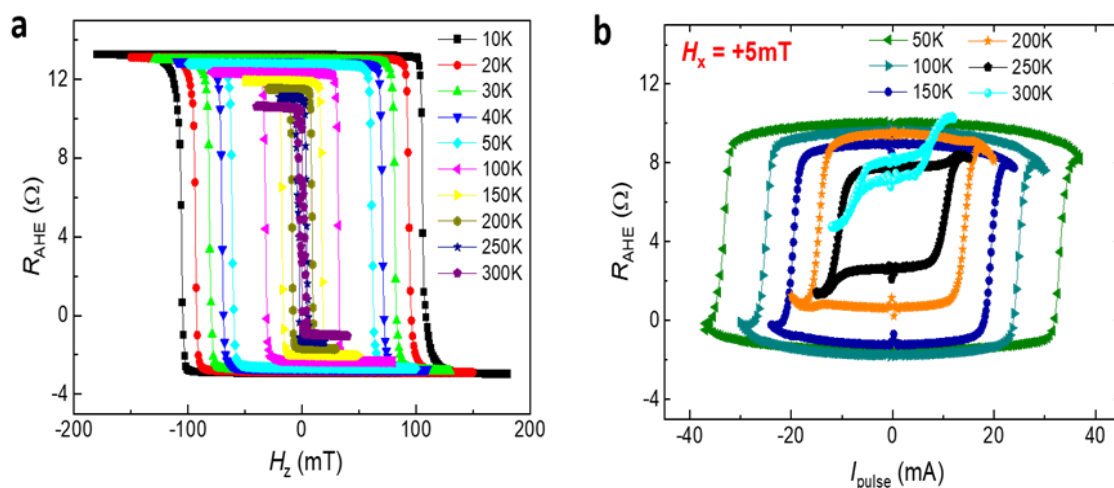


Figure IV.17 : (a) R_{AHE} de l'injecteur de spin en fonction du champ magnétique hors plan mesuré à différentes températures sur un substrat de GaAs non dopé. (b) R_{AHE} de l'injecteur de spin en fonction de l'amplitude de l'impulsion de courant à différentes températures, un champ de +5 mT étant appliqué dans le plan des couches.

La figure IV.18(a) montre la résistance du canal de l'injecteur de spin en fonction du courant de retournement I dans le canal mesuré à 50K. Lorsque le courant de retournement est supérieur à $\pm 5mA$, la résistance du canal chute drastiquement. Le retournement électrique de l'aimantation sur une LED devient alors impossible. Avec un courant de commutation de 5 mA, la chute de tension aux deux extrémités du canal de l'injecteur peut atteindre 14V avec $R_{can} = 2.8 k\Omega$. Afin de retourner l'aimantation, un courant minimum de 30mA est nécessaire (Fig IV.17 (b)), ce qui augmente la tension à 90V. Cette tension est suffisamment importante pour briser la barrière Schottky MgO/GaAs et générer un courant de dérivation dans la partie semi-conductrice. La figure IV.18(b) montre les caractéristiques I-V de la diode électroluminescente pour différentes amplitudes de l'impulsion de courant utilisées pour le retournement. On peut voir que la caractéristique I-V change radicalement lorsque le courant de retournement est supérieur à 5 mA, ce qui signifie que la barrière Schottky est partiellement endommagée. Cet

endommagement de l'interface est irréversible car la caractéristique I-V ne peut plus être restaurée en utilisant un courant de retournement plus faible. Pour surmonter le problème de fuite de courant, il faut donc soit réduire le courant nécessaire pour le retournement de l'aimantation soit diminuer la résistance du canal.

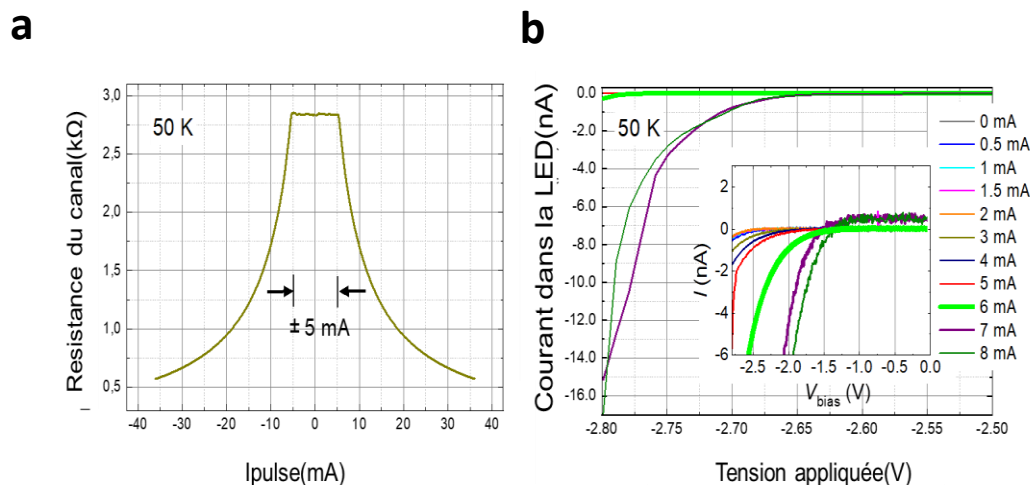


Figure IV.18 : (a) Résistance du canal de l'injecteur de spin en fonction de l'amplitude du courant injecté dans le canal mesuré à 50K. (b) Courbes I-V de la LED pour différentes amplitudes de l'impulsion de courant de retournement. Un zoom mettant en évidence la modification des caractéristiques I-V pour un courant de retournement supérieur à 6mA est montré en insert

On peut voir que la caractéristique I-V change radicalement lorsque le courant de retournement est supérieur à 5 mA, ce qui signifie que la barrière Schottky est partiellement endommagée par ce courant. Cet endommagement de l'interface est irréversible car la courbe I-V ne peut plus être restaurée en utilisant un courant de retournement plus faible. Pour surmonter le problème de fuite de courant, il faut donc soit réduire le courant nécessaire pour le retournement de l'aimantation soit diminuer la résistance du canal.

IV.5.3 Retournement électrique de l'aimantation sur une LED

IV.5.3.1 Mise en évidence expérimentale

Dans cette partie, nous allons considérer l'injecteur de spin suivant : GaAs LED/MgO(2.5nm) / CoFeB(1.2nm) / Ta(3nm) / Cr(3nm).

L'ajout d'une couche terminale de Cr sur la structure a plusieurs avantages :

1. Le Cr réduit considérablement la résistance du canal qui passe de $2.8\text{k}\Omega$ à $300\ \Omega$.
Cela permet de diminuer la tension nécessaire pour briser la barrière Schottky et donc de surmonter le problème de fuite de courant dans la partie semi-conductrice ;
2. Le Cr est caractérisé par un angle de Hall de spin θ_{SH} , élevé correspondant à la moitié de celui du Ta¹²³. Comme le signe de θ_{SH} pour le Cr et le Ta est le même, cela contribue à améliorer le retournement de l'aimantation M ¹²⁹.
3. Le Cr peut produire un courant orbital important en utilisant l'effet Hall orbital avec un signe opposé à celui de son angle de Hall. Cependant, grâce à un processus de conversion de courant orbital-courant de spin négatif par la couche de 3nm de (facteur de corrélation spin-orbite de Ta $\eta_{\text{L-S}} < 0$), le Cr pourrait également améliorer le retournement de l'aimantation¹⁶⁸.
4. Il est susceptible de réduire le courant critique nécessaire pour le retournement de l'aimantation ;

Cela n'est pas le cas pour d'autres métaux tels que Cu, Au ou Pt que nous avons testé et pour lesquels aucun effet de retournement de l'aimantation n'a été observé. Les échantillons sont ensuite structurés en forme de croix de Hall avec des dimensions de $20\ \mu\text{m}$ de largeur et de $50\ \mu\text{m}$ de longueur en utilisant les techniques de micro-fabrication décrites dans le chapitre II. Des électrodes Ta(10nm) /Pt (150 nm) sont utilisées pour la connexion électrique des dispositifs. Pour les mesures de magnéto-transport, nous utilisons le 'Keithley K2450' à la fois comme source de courant et pour mesurer la tension de Hall. La durée de l'impulsion de courant est de 100ms et l'amplitude du courant dépend de la température. Un courant constant I de 1 mA circule dans le canal pour mesurer la résistance de Hall. Les électrodes 1 et 2 (Fig. IV.13 (b)) sont utilisées pour l'injection de courant dans la direction x , tandis que les deux électrodes restantes (3 et 4) sont utilisées pour mesurer la tension de Hall dans la direction y . La résistance

de Hall qui s'écrit comme V_H/I avec V_H la tension de Hall nous permet de déterminer l'orientation de l'aimantation de la couche ferromagnétique. La figure IV.20(a) nous montre la résistance de Hall en fonction du champ magnétique appliqué hors du plan H_z pour des températures comprises entre 120K et 300K. Les cycles d'hystérésis carrés mettent en évidence une anisotropie magnétique perpendiculaire robuste dans le CoFeB pris en sandwich entre les couches de MgO et de Ta. Sachant que la résistance de Hall est donnée empiriquement par la relation¹⁶⁹ :

$$R_{xy} = R_0 H_z + R_S M_z \quad (\text{IV.4})$$

L'état de haute résistance correspond à une aimantation \uparrow (up) et celui de basse résistance correspond à une aimantation \downarrow (down), R_0 dépend principalement de la densité des porteurs et R_S dépend de différents paramètres spécifiques au matériau et, en particulier, de la résistivité du canal. Les variations entre les deux résistances (correspondants à up et down) donnent lieu à des champs (appelés champs coercitifs H_C) qui permettent d'initier le retournement de l'aimantation. Sur la figure IV.20 (a), on peut voir que H_C est d'environ 5mT à 300 K, et qu'il augmente jusqu'à environ 50mT à 120 K. La dépendance du champ coercitif en fonction de la température suggère un mouvement des parois de domaines (DW) activé thermiquement. Il prend la forme semi classique suivante¹⁷⁰:

$$H_C = H_0(1 - AT^{1/2}) \quad (\text{IV.5})$$

où H_0 est la coercivité à 0K et la constante A dépend de l'énergie d'activation du mouvement des parois de domaines. Pour étudier le retournement électrique de l'aimantation, nous exploitons l'effet Hall de spin généré par la couche de Ta/Cr afin de retourner la composante M_z de l'aimantation de la couche de CoFeB. Comme illustré dans la figure IV.13(b), notre procédure consiste à envoyer une impulsion de courant dans la direction x , I_{pulse} , tout en appliquant un champ magnétique externe, H_x , fixé à +10mT ou -10mT pour briser la symétrie de la couche ferromagnétique.

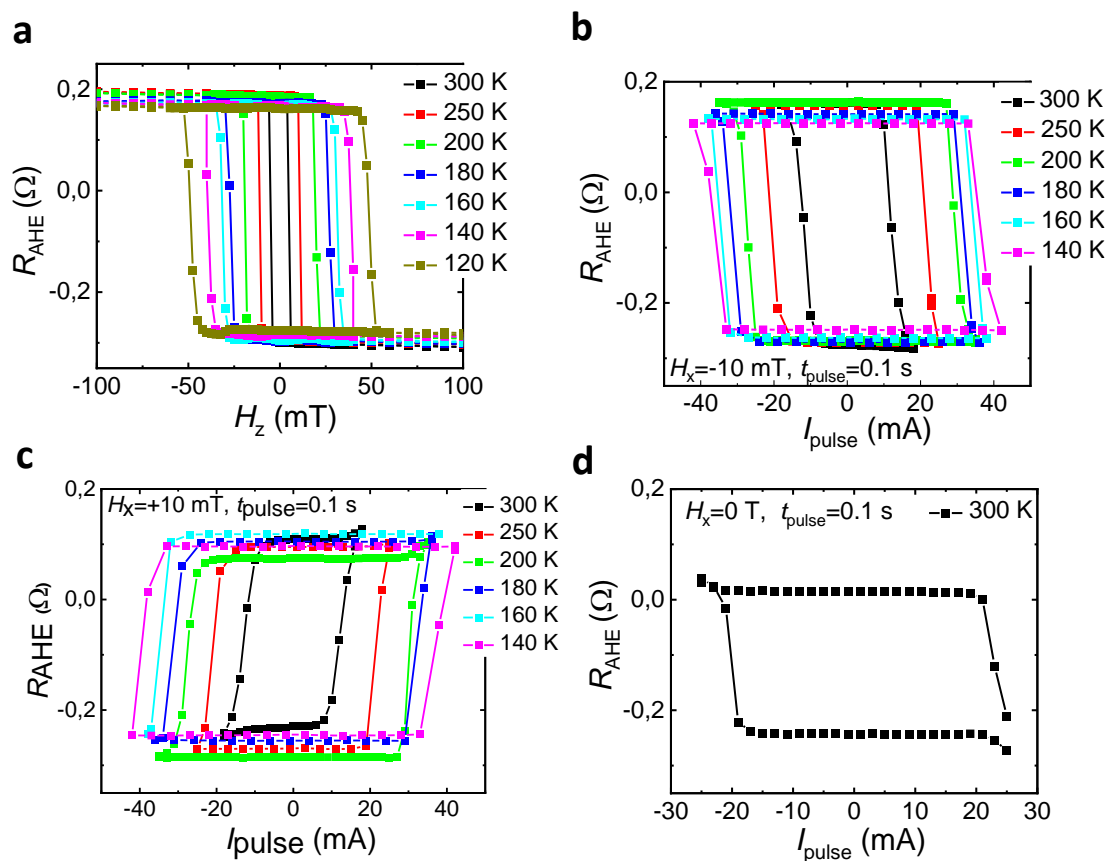


Figure IV. 20 : Mise en évidence du retournement de l'aimantation par l'effet du couplage spin orbite. a) R_{AHE} en fonction du champ magnétique hors plan mesuré pour différentes températures ; b et c) R_{AHE} en fonction de l'impulsion de courant mesuré à différentes températures avec un champ magnétique appliqué dans le plan de ± 10 mT d) R_{AHE} de l'injecteur de spin en fonction de l'impulsion de courant sous champ nul à 300K.

Dans cette configuration, l'aimantation de la couche de CoFeB s'aligne dans la direction x et le couple est uniquement produit via l'effet Hall de spin. La figure IV.20(b) montre qu'à 300K, lorsque $I_{\text{pulse}} > 15$ mA (la densité de courant de commutation critique est d'environ $9,6 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$, comparable aux valeurs rapportées pour le système MgO/CoFeB/Ta^{121,171}) avec $H_x = -10 \text{ mT}$, la composante M_z est négative. Lorsque le champ dans la direction H_x est inversé, la polarité du cycle de retournement induite par le courant s'inverse également (Fig IV.20(c)). Cette observation indique que le signe de H_x détermine la polarité du retournement de l'aimantation induit par le couplage spin orbite. On peut donc retourner électriquement l'aimantation sur une LED jusqu'à 140K. On peut constater que les densités de courant pour le

retournement de l'aimantation augmentent avec la température, ce qui est cohérent avec l'activation thermique des parois de domaines. La figure IV.20(d) montre la résistance anormale de Hall R_{AHE} (Ω) en fonction de l'impulsion de courant sans aucun champ magnétique appliqué. À partir du changement de R_{AHE} par rapport à celui mesuré figure IV.20(b) avec un champ externe, nous pouvons estimer que 52% des domaines magnétiques ont été retournés à $H_x=0\text{mT}$. Le retournement complet de la composante M_z ne peut pas être réalisé sans champ dans le plan ($H_x = 0 \text{ T}$). Cela est important pour briser la symétrie SOT et pour assurer le retournement déterministe de l'aimantation perpendiculaire.

IV.5.3.2 Caractérisation du retournement par MOKE

L'effet Kerr permet d'obtenir des informations sur la direction de l'aimantation d'un matériau en analysant la polarisation de la lumière réfléchiée par ce matériau. Il est également possible d'imager les domaines magnétiques du matériau. On rappelle qu'un domaine magnétique correspond à une région du matériau pour laquelle les moments magnétiques sont tous alignés dans la même direction, par conséquent l'aimantation y est uniforme. Un microscope à effet Kerr permet non seulement d'imager la surface mais aussi de détecter une éventuelle rotation de la polarisation de la lumière après réflexion. Il permet de caractériser les propriétés magnétiques en suivant leur évolution au cours du temps. Pour mieux comprendre la propagation des domaines magnétiques de l'injecteur de spin, un microscope Kerr haute résolution est utilisé afin d'observer le retournement de l'aimantation induit par le couplage spin orbite à température ambiante. Dans cette expérience, un champ magnétique constant de 15 mT est appliqué dans le plan. Après avoir saturé l'échantillon dans une direction donnée avec un champ magnétique perpendiculaire représentant l'état initial de contraste sombre (Fig IV.20a) une seule impulsion de courant d'amplitude 20 mA et d'une durée de 0,1 s est suffisante pour modifier le contraste qui devient gris clair. Cela signifie que l'aimantation de l'injecteur de spin a été complètement retournée (Fig IV.20b). Cependant, lorsque la durée de l'impulsion de

courant est réduite à 1 ms, l'amplitude du courant doit être augmentée jusque 55 mA afin de retourner l'aimantation avec une seule impulsion de courant. (Fig IV.20c)

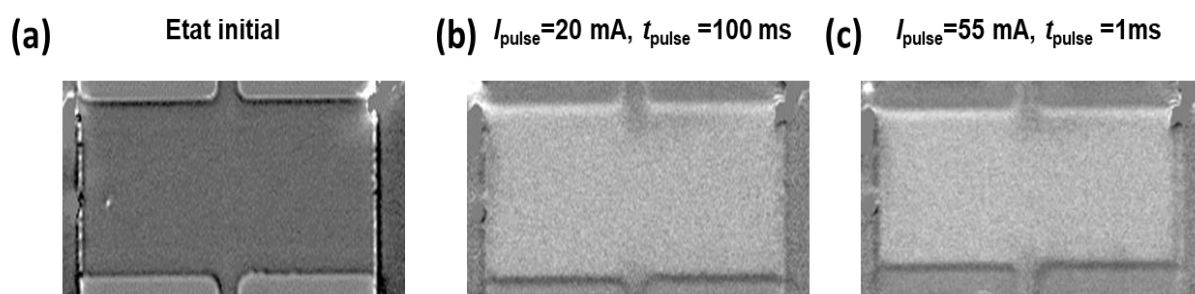


Figure IV.20 : Images MOKE de la barre de Hall de l'injecteur : a) état initial après saturation avec un champ magnétique hors du plan ; b) après application d'une impulsion de courant de 20 mA et d'une durée de 100 ms avec un champ permanent appliqué dans le plan de -15 mT ; c) après application d'une impulsion de courant de 55 mA et d'une durée de 1 ms avec un champ dans le plan de -15mT. L'échantillon est d'abord saturé par un champ hors du plan (à l'état initial (a))

Pour étudier en détail le mode de propagation des domaines magnétiques, l'amplitude de l'impulsion de courant est réduite à 45 mA, la durée étant maintenue constante à 1ms. La figure IV.21 montre l'évolution du contraste (et donc du renversement de l'aimantation) en fonction du nombre d'impulsions. On peut constater que le retournement de l'aimantation commence par une nucléation des parois de domaines à partir des deux bords du canal et se propage vers le centre. Le retournement complet de la composante M_z de l'aimantation est obtenu après 10 impulsions. La nucléation de parois de domaines aux bords du canal peut être causée par l'absence d'échange de Heisenberg et par la diminution de l'anisotropie causée par des dommages lors de la fabrication¹⁷². Cela pourrait être dû à la présence de sites particuliers qui empêchent la propagation des parois de domaines. Ces derniers pourraient être liés à la diffusion du Ta à l'intérieur du CoFeB, ou à un fort couplage DMI¹⁷³. Cela pourrait être dû à la présence de sites piégeages qui empêchent la propagation des parois de domaines. Ces derniers pourraient être liés à la diffusion du Ta à l'intérieur du CoFeB, ou à un fort couplage DMI¹⁷² ou encore à des défauts de structure dans les couches minces de CoFeB/MgO déposées sur GaAs.

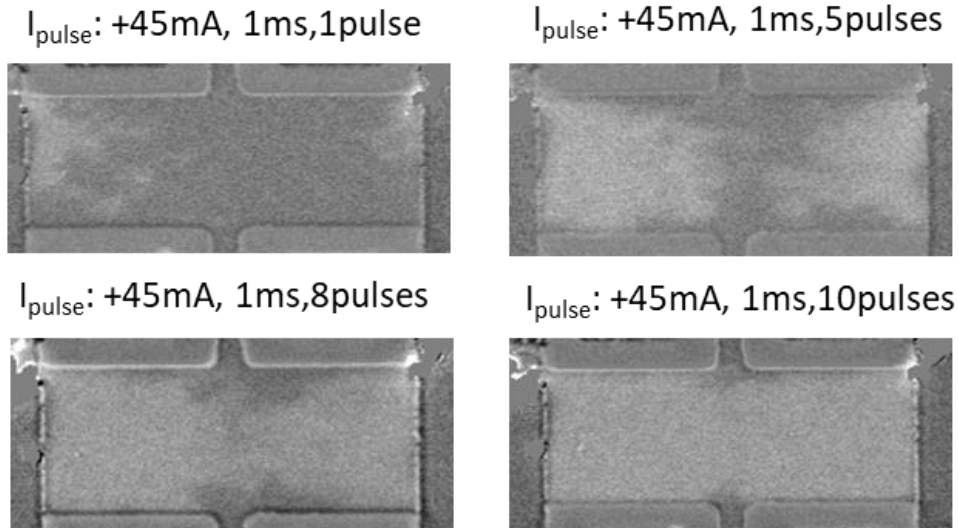


Figure IV.21 : Images MOKE de la barre de Hall après différentes impulsions de courant d'amplitude 45 mA et d'une durée de 1 ms, l'échantillon étant soumis à un champ magnétique de +15 mT appliqué dans le plan.

IV.5.4 Démonstration du contrôle électrique de la polarisation circulaire de la lumière

IV.5.4.1 Contrôle électrique de la polarisation

Nous avons montré que l'injecteur de spin MgO/CoFeB/Ta/Cr permettait de retourner électriquement l'aimantation sur une LED. Dans cette partie nous allons faire des mesures d'EL résolues en polarisation. Nous examinons plus particulièrement ici la relation entre le retournement de l'aimantation et le contrôle électrique de la polarisation P_c . Dans un premier cas, nous travaillons avec une tension appliquée très faible (1.9V à 300K) et avec un champ magnétique externe constant appliqué dans le plan de l'ordre de 10mT. Nous utilisons d'abord une seule impulsion de courant d'amplitude $I = +30$ mA et d'une durée de 0,1s. La polarisation circulaire P_c est alors mesurée pour une tension appliquée de 1,9V. Ensuite, nous injectons une impulsion de courant d'amplitude $I = -30$ mA et de même durée afin de retourner l'aimantation puis la polarisation circulaire est à nouveau mesurée. Lors de la mesure de P_c , $H_x=0$ T et $H_z=0$ T. Les mesures d'EL résolues en polarisation présentés figure IV.22(a) montrent clairement que

les intensités de luminescence $I(\sigma^+)$ et $I(\sigma^-)$ peuvent être modulées en fonction du sens de l'impulsion de courant. En changeant le sens du courant, i.e. en passant de +30 mA à -30 mA, la polarisation circulaire passe de +31% à -31%.

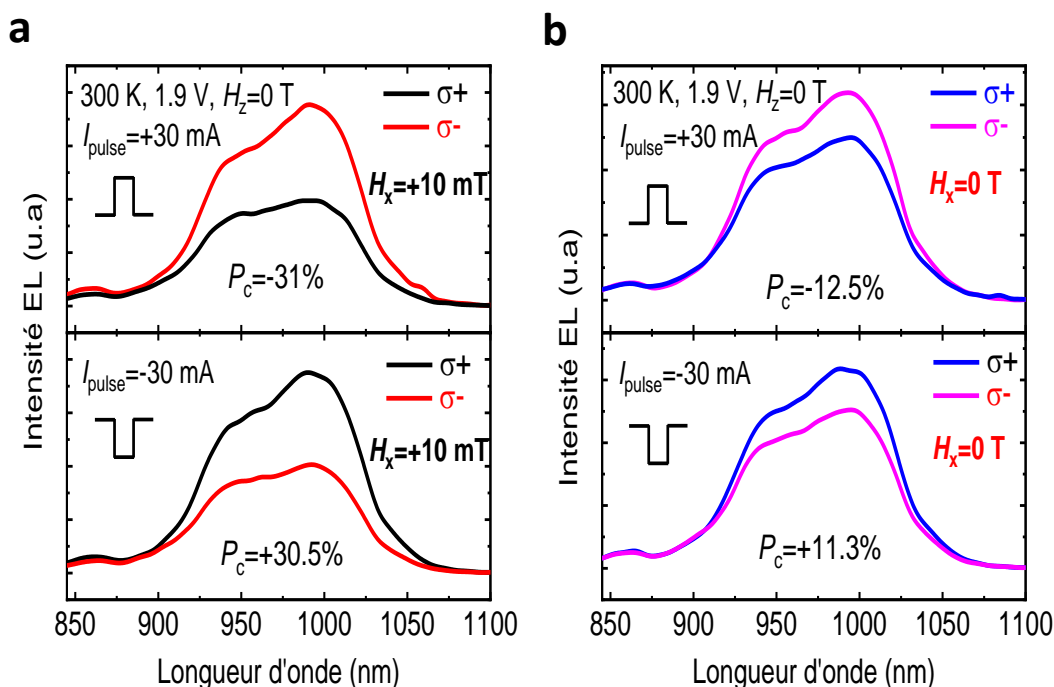


Figure IV.22 : (a, b) Spectres d'EL résolus en polarisation de la SOT spin LED mesurés à 300 K avec une tension appliquée de 1,9 V après passage d'une seule impulsion de courant pour retourner l'aimantation. (a) Retournement avec $H_x=+10\text{mT}$ et $\pm 30\text{mA}$; (b) Retournement avec champ nul et $\pm 30\text{mA}$

L'objectif étant de s'affranchir de tout champ magnétique extérieur, on refait les mêmes mesures dans les mêmes conditions mais cette fois sans champ magnétique appliqué dans le plan. Remarquablement, le contrôle de la polarisation circulaire reste possible même à champ nul (fig. IV 22(b)). La polarisation varie cette fois entre + 12% et -12%, ce qui est dû à un retournement partiel (i.e. 52%) de l'aimantation de l'injecteur (Fig. IV.20(d)). En présence ou même en l'absence de champ magnétique extérieur, une commutation stable entre deux états est donc toujours possible. Ces résultats sont très encourageants pour de futures applications pratiques. De plus, pour les lasers à injection de spin, une faible polarisation de spin de l'ordre de 4 % des porteurs injectés pourrait être suffisante pour obtenir une polarisation $P_c \sim 100\%$ ¹⁷⁴.

Nous comparons ensuite la polarisation circulaire mesurée pour différentes amplitudes de l'impulsion de courant avec le retournement de l'aimantation M mesurée par la résistance anormale de Hall R_{AHE} (Figure IV.23). Pour différentes amplitudes de courant, nous constatons que la polarisation circulaire décrit un cycle d'hystérésis qui est en très bon accord avec les mesures de R_{AHE} en fonction du courant effectué sur le même échantillon. Cela démontre en outre le lien entre la modulation de la polarisation P_c et le retournement de l'aimantation M . Pour des amplitudes d'impulsion de courant comprises 10 et 20 mA, nous obtenons un retournement partiel de l'aimantation conduisant à des valeurs intermédiaires de la polarisation. On peut donc générer de la lumière avec une polarisation intermédiaire en utilisant différentes impulsions de courant pour obtenir des états magnétiques intermédiaires dans la couche ferromagnétique.

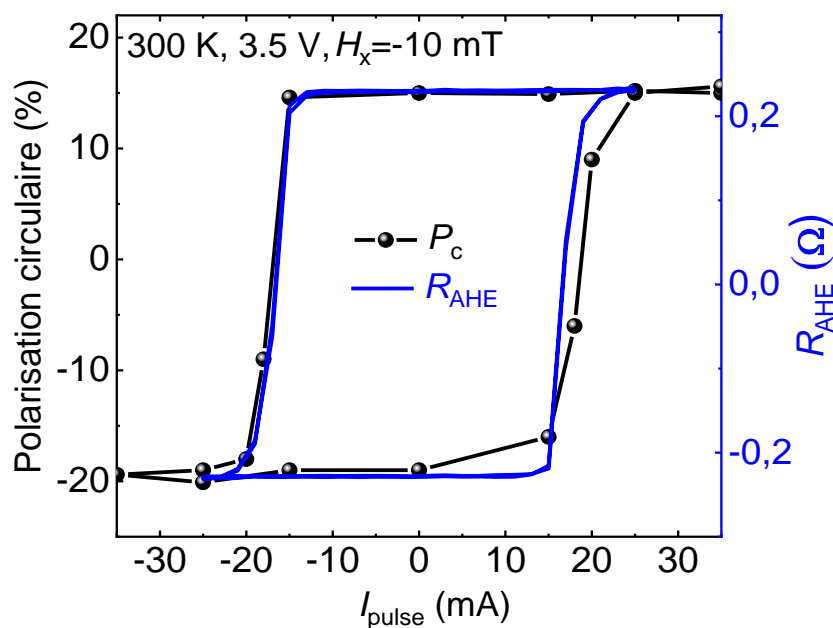


Figure IV.23 : P_c (lignes avec symboles noir) en fonction de l'amplitude de l'impulsion du courant comparé au cycle d'hystérésis de R_{AHE} en fonction du courant (ligne continue bleue) mesurée à 300K.

Grâce à un contrôle précis de la commutation de l'aimantation, on peut alors avoir une polarisation circulaire à plusieurs états. Ceci suggère qu'une modulation de la polarisation circulaire multi-niveaux sera possible pour des communications optiques basées sur la polarisation. Ce résultat est comparable aux approches basées sur l'intensité.

IV.5.4.2 Robustesse du retournement électrique de l'aimantation

Afin de s'assurer de la répétabilité de nos mesures de polarisation circulaire et pour s'assurer que le dispositif n'est pas endommagé par les impulsions de courant, nous effectuons des mesures de polarisation circulaire en fonction du nombre de retournement de l'aimantation de façon cyclique. Pour chaque cycle, $I_{\text{pulse}}=+25$ mA et $I_{\text{pulse}}=-25$ mA ont été alternativement appliqués avec toujours un champ constant appliqué dans le plan $H_x=+10$ mT (Fig IV.24).

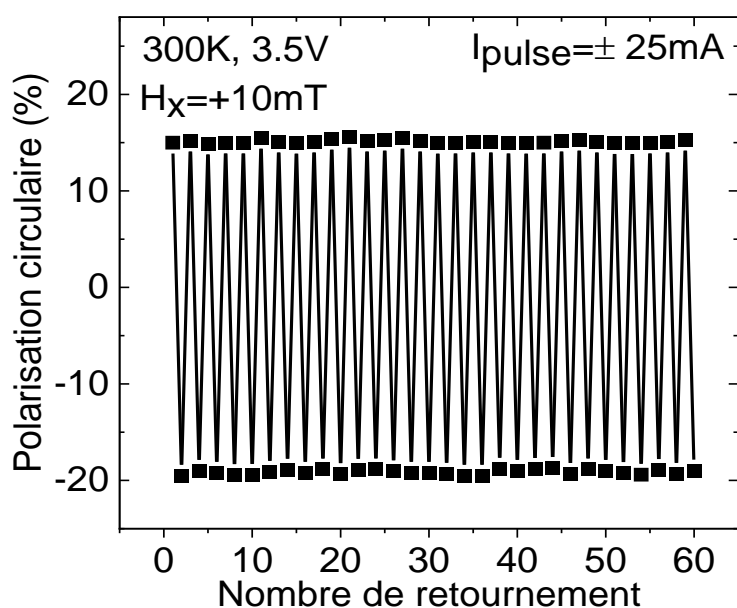


Figure IV.24 : Mesures répétitives de la polarisation circulaire à 300K avec $H_z=0$ T et $H_x=+10$ mT. Au total, 30 cycles de retournement de l'aimantation sont effectués.

Après chaque retournement de l'aimantation, les spectres résolus en polarisation ainsi que la polarisation ont été mesurés. Pour avoir une intensité lumineuse plus élevée avec un temps d'acquisition plus court, nous avons utilisé une tension plus élevée de 3,5V, ce qui conduit à une polarisation plus faible, passant de 30% à 19% (cf Fig IV.15). Nous faisons plus d'une soixantaine de retournements en mesurant la polarisation après chaque impulsion de courant. On peut remarquer que la polarisation reste constante avec le nombre de retournements, montrant ainsi que la polarisation circulaire peut être commutée électriquement de manière robuste entre deux états correspondants à $P_c= +15\%$ et $P_c=-19\%$. En comparant avec la Figure

IV.22(a), nous constatons que pour une tension appliquée V plus élevée, l'amplitude de la polarisation circulaire est réduite, ce qui est en accord avec les mesures de la polarisation en fonction de la tension (Figure IV.15). Le passage d'un courant de commutation latéral dans l'injecteur pourrait endommager l'interface ferromagnétique/semi-conducteur. Pour vérifier ce point, nous avons mesuré les caractéristiques I-V de la LED avant et après les mesures répétitives. La figure IV.25 montre que les deux caractéristiques sont quasiment superposables, ce qui indique que la barrière Schottky est robuste et très peu affectée par le courant utilisé pour le retournement de l'aimantation. Il s'agit d'une différence frappante par rapport aux injecteurs de spin sans Cr testés précédemment. En effet, pour ces derniers, l'interface ferromagnétique/semi-conducteur était fortement dégradée par les impulsions de courant utilisées pour le retournement de l'aimantation.

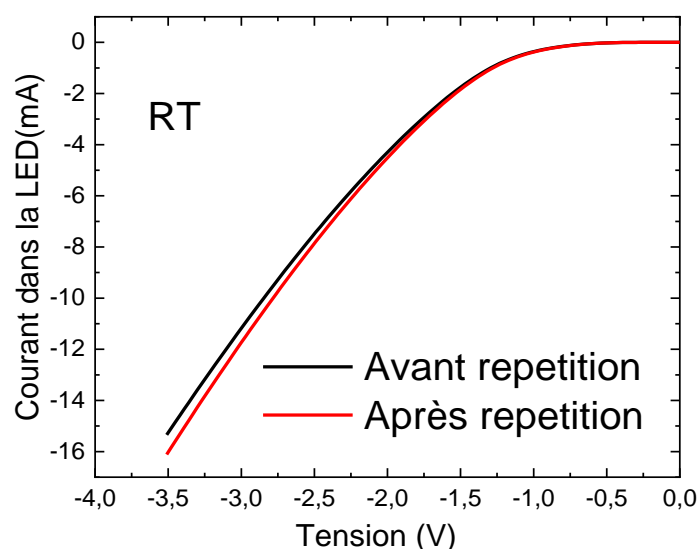


Figure IV.25 : Caractéristiques I-V de la SOT spin-LED mesurée à température ambiante avant et après les cycles de répétition de l'aimantation.

IV.5.5 Retournement de l'aimantation en présence d'un courant vertical

Les mesures déjà effectuées ont été faites en statique (i.e. le retournement de l'aimantation et la mesure d'EL ne se font pas simultanément). Pour une transmission de données à haut débit

sur de longues distances, les communications optiques ultrarapides imposent de maintenir une intensité lumineuse constante tout en modulant P_c . Pour cela, il faut pouvoir retourner l'aimantation tout en appliquant un courant vertical pour l'émission de lumière. Nous avons effectué des tests préliminaires en injectant un courant entre les électrodes 1 et 2 pour le retournement tout en injectant simultanément un courant vertical entre les électrodes 4 et 5 (Figure IV.26a). La figure IV.26(b, c, e, f) montre la résistance anormale de Hall R_{AHE} mesurée en fonction de l'amplitude de l'impulsion de courant de commutation pour différents courants verticaux. Le courant vertical induit clairement un décalage de R_{AHE} , qui est proportionnel au courant injecté verticalement (Figure IV.26(d)). Cela signifie qu'une tension supplémentaire entre les électrodes 3 et 4 est créée par le courant vertical. La différence entre les deux états R_{AHE} reste toujours constante (environ $0,4 \Omega$) (Figure IV.26(f)), ce qui montre un retournement complet de l'aimantation. Lorsque l'amplitude du courant vertical augmente, le bruit devient plus important. Cependant, il est toujours possible de retourner l'aimantation même avec un courant vertical de $100 \mu A$ sans modifier le courant critique pour le retournement. Ce courant vertical est suffisamment important pour permettre une émission de lumière constante dans nos spin LEDs⁸⁵.

Nous venons de voir que le dépôt de Cr sur l'injecteur de spin MgO/CoFeB/Ta nous permet de contrôler électriquement l'aimantation de l'injecteur de spin et donc la polarisation circulaire de la lumière émise par la spin-LED. Cependant, avec ce type d'injecteur de spin, la fréquence de retournement est limitée à 1ms pour un courant de 55mA, ce qui constitue un frein pour une modulation ultra-rapide de la polarisation circulaire de la lumière.

Il est donc nécessaire d'optimiser encore l'injecteur de spin pour augmenter la fréquence du retournement de l'aimantation.

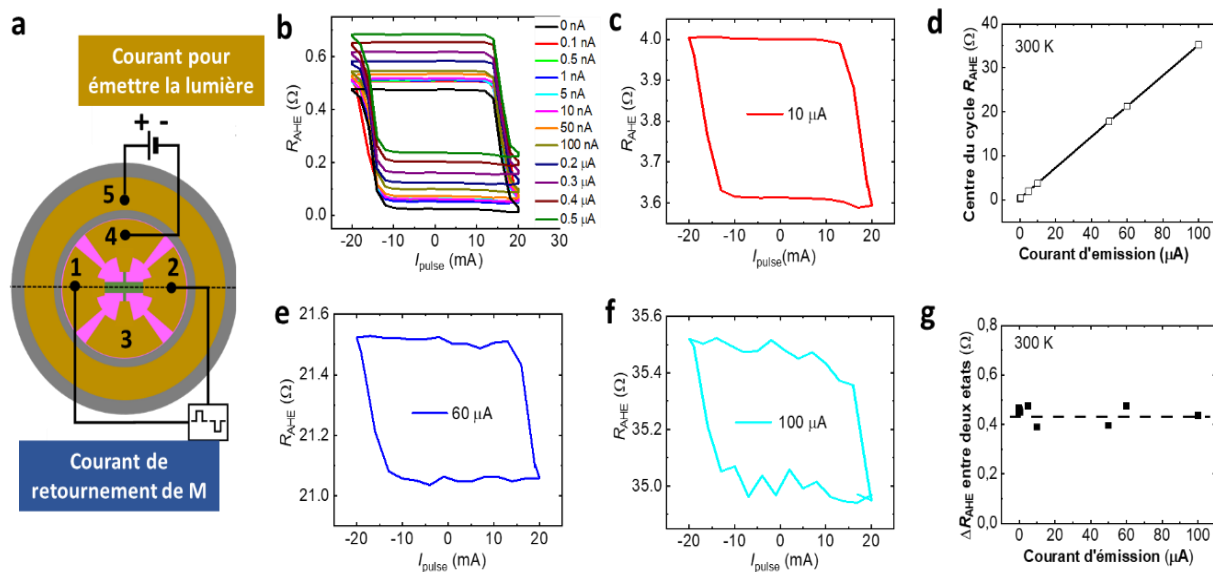


Figure IV.26 : (a) Vue schématique de dessus du dispositif SOT spin-LED. Une impulsion de courant est injectée dans le canal transversal de l'injecteur pour commuter l'aimantation (entre les électrodes 1 et 2), tandis qu'un courant vertical constant est appliqué (entre les électrodes 4 et 5) pour l'émission de lumière. (b, c, e, f) Cycles de R_{AHE} en fonction de l'impulsion du courant transversal pour différentes amplitudes de courant d'émission vertical. (b) 0-0,5 μA , (c) 10 μA , (e) 60 μA , (f) 100 μA . (d) Valeur au centre de R_{AHE} en fonction du courant vertical. (g) Différence entre les deux états de R_{AHE} en fonction du courant vertical.

IV.5.6 Vers un retournement plus rapide de l'aimantation : développement d'un injecteur à base de MgO/CoFeB/W/Cr

Pour améliorer la vitesse de retournement de l'aimantation de l'injecteur de spin, nous avons développé un autre type d'injecteur de spin composé de MgO (2,5 nm) / CoFeB (1,2 nm) / W (3 nm) / Cr (3 nm). Le Ta utilisé précédemment est ici remplacé par le W car le β -W est caractérisé par un angle de Hall de spin ($\theta_{SH} \sim 0,33$)¹⁷⁵ au moins deux fois supérieur à celui du β -Ta ($\theta_{SH} \sim 0,15$)¹²¹. Cela devrait avoir pour conséquence une conversion plus efficace entre courant de charge et courant de spin. De plus, si le W est cristallin lors du dépôt, on devrait s'attendre à une plus faible diffusion du W dans le CoFeB par rapport au Ta qui est amorphe. La figure IV.27(a) montre la résistance anormale de Hall (R_{AHE}) mesurée en fonction du champ magnétique appliqué hors du plan. Nous obtenons un cycle d'hystérésis carré montrant ainsi que l'injecteur de spin basé sur le W possède également une bonne anisotropie magnétique

perpendiculaire. Les figures IV.27(b) et IV.27(d) montrent la variation de R_{AHE} pour différentes durées d'impulsion de courant comprises entre 100 ms à 10 μs , l'échantillon étant soumis à un champ magnétique de -10 mT et +10 mT, appliqué dans le plan. Le retournement total de l'aimantation peut être réalisé même pour une durée d'impulsion de 10 μs , ce qui est au moins 100 fois plus rapide que pour un injecteur de spin à base de Ta.

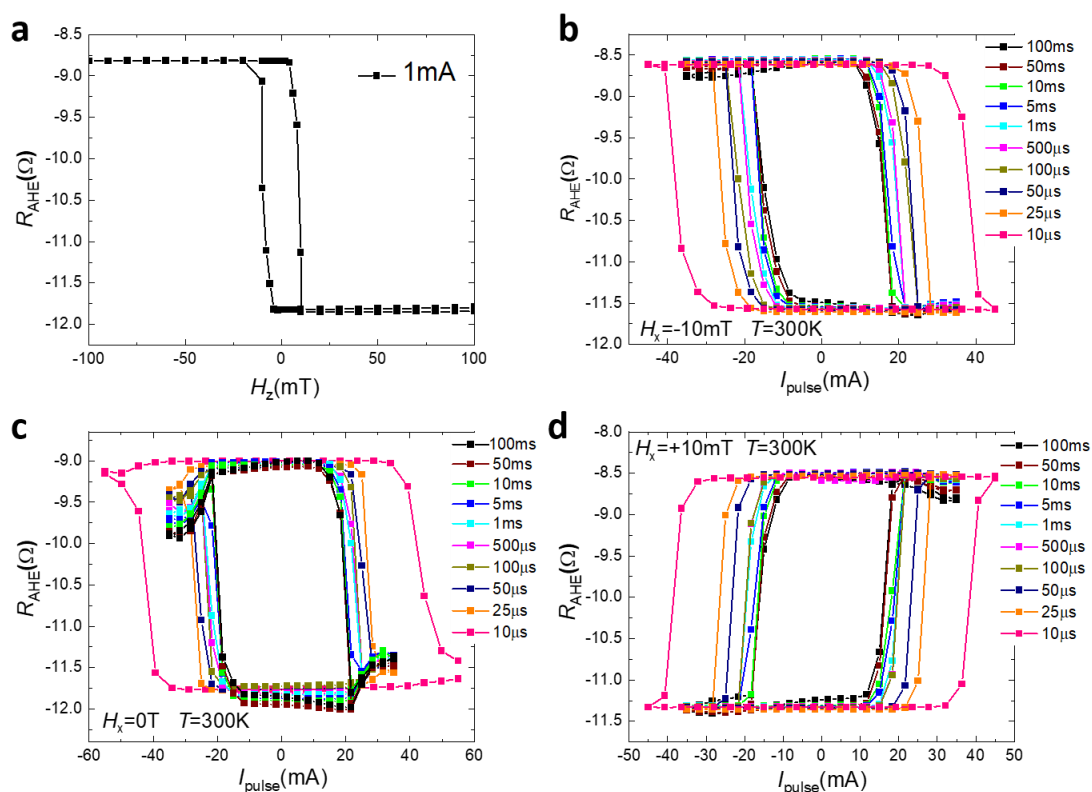


Figure IV.27 : (a) Evolution de R_{AHE} en fonction du champ magnétique appliqué hors plan à température ambiante pour un courant de canal de 1 mA. (b-d) Evolution de R_{AHE} en fonction de la durée de l'impulsion de courant pour différents champs appliqués dans le plan (b) -10 mT, (c) 0T, (d) +10 mT.

Il est à noter que 10 μs est la limite basse actuelle de notre instrumentation. Il est à noter qu'un retournement électrique très rapide de l'aimantation a déjà été observé pour des jonctions tunnel magnétiques à trois bornes basées sur W/CoFeB/MgO. Dans ce cas, une impulsion de courant d'une durée de 50 ns a été utilisée¹⁷⁶. Lorsque la direction du champ appliqué dans le plan est inversée (Fig. IV.27(d)), la polarité de cycle de retournement induite par le courant s'inverse également. Cela prouve que le mécanisme de retournement de l'aimantation est effectivement

induit par l'effet Hall de spin. Étonnamment, un retournement complet de l'aimantation peut même être obtenu avec un champ magnétique dans le plan nul (Fig. IV.27(c)). Ceci est observé bien que le courant critique pour retourner l'aimantation dans ce cas soit légèrement supérieur au courant critique lorsqu'un champ faible est appliquée dans le plan. Un retournement de l'aimantation en utilisant l'effet SOT sans champ dans une tricouche CoFeB/W/CoFeB à aimantation perpendiculaire a déjà été observée. Elle est activée par un champ effectif dans le plan ressenti par la couche de commutation via le couplage d'échange avec un antiferromagnétique synthétique supplémentaire dans le plan¹⁷⁶. Dans notre cas, le champ effectif dans le plan pourrait être induit par une croissance colonnaire oblique dans la structure, en particulier pour les couches de W/Cr.

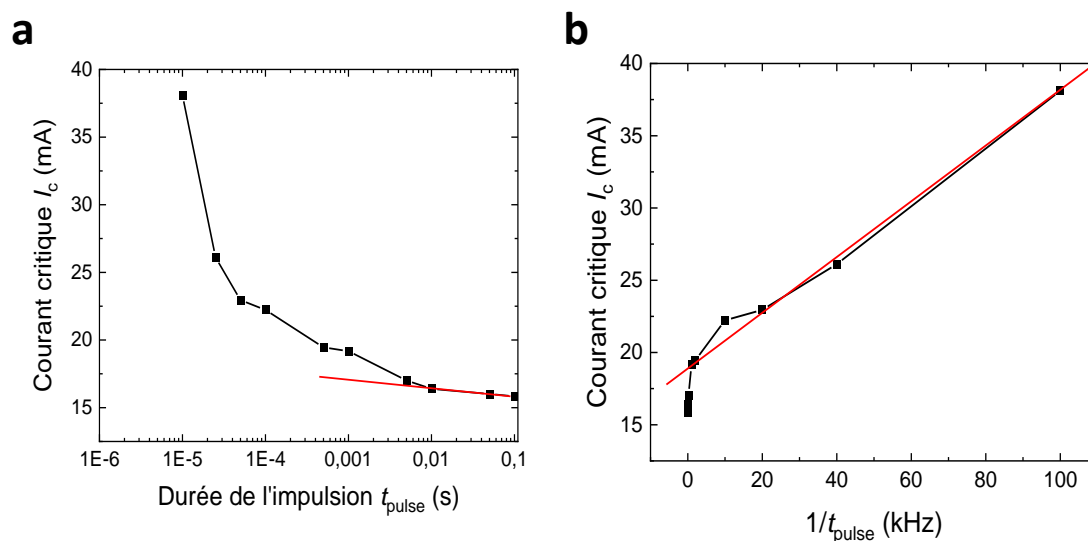


Figure IV.28 : a) I_c en fonction de t_{pulse} (en échelle log) pour $H_x = -10$ mT. La ligne rouge indique une relation linéaire pour $t_{pulse} > 1$ ms. b) Tracé de I_c en fonction de $1/t_{pulse}$ pour le même ensemble de données. La ligne rouge indique une relation linéaire pour $t_{pulse} < 1$ ms.

On constate sur la figure IV.28 que le courant critique (I_c) pour le retournement de l'aimantation augmente lorsque la durée de l'impulsion (t_{pulse}) est réduite. Pour $t_{pulse} > 1$ ms, I_c change peu avec t_{pulse} et évolue approximativement de façon linéaire avec $\log(t_{pulse})$. Cela suggère l'existence d'un régime thermiquement activé où les fluctuations thermiques

stochastiques aident l'aimantation à surmonter la barrière d'énergie d'inversion^{177,178}. Pour $t_{\text{pulse}} < 1$ ms, I_c augmente rapidement avec t_{pulse} (Fig IV. 34(a)) et évolue linéairement avec $1/t_{\text{pulse}}$ (Fig IV. 34(b)). Ce comportement suggère que la commutation de l'aimantation se produit par nucléation de domaines suivie d'une propagation de parois de domaines¹⁷⁹. Dans ce cas, le temps de commutation est le temps nécessaire pour qu'une paroi de domaine traverse le canal.

IV.11 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord optimisé les conditions de croissance et les paramètres nécessaires afin d'obtenir une anisotropie magnétique perpendiculaire pour l'injecteur MgO/CoFeB/Ta. Une épaisseur minimale de 1nm de CoFeB ainsi qu'un recuit à 300°C pendant 3 min permet d'établir une PMA robuste. Nous avons ensuite transféré l'injecteur de spin optimisé sur une LED à base de GaAs. Deux différents types de dispositifs ont été fabriqués et caractérisés, la spin-LED dite standard sous forme de mesa circulaire de diamètre 500 microns et la SOT spin LED sous forme de croix de Hall. Pour la spin-LED standard, nous avons étudié les effets du champ magnétique, de la tension appliquée et de la température sur la polarisation circulaire de la lumière émise. Pour différents champs magnétiques appliqués, nous constatons que la polarisation circulaire suit le cycle d'hystérésis de l'échantillon non lithographié mesuré au SQUID, ce qui démontre que nous avons bien une injection efficace de spin. De plus, la polarisation varie de 3.5% à 10K jusqu'à 36% à température ambiante sans champ magnétique appliqué. Ce comportement est dû à l'augmentation du temps de vie de spin avec la température. Pour différentes tensions appliquées sur la spin-LED, la polarisation circulaire reste constante. Ce comportement plutôt inhabituel est attribué à la croissance par pulvérisation du MgO qui augmente fortement la résistance dite de « dérivation » et maintient la polarisation constante quel que soit la tension appliquée. Pour la SOT spin-LED, nous montrons qu'elle suit le même comportement que la spin LED standard en fonction du champ magnétique. En faisant varier la tension appliquée, on

remarque que la polarisation circulaire diminue fortement avec l'augmentation de la tension. Cela est dû à la réduction de la surface de l'injecteur (60 fois plus petit que la spin-LEDs standard). Nous montrons par la suite qu'en ajoutant du Cr au-dessus de l'injecteur de spin conventionnel Ta/CoFeB/MgO, il devient possible de retourner électriquement l'aimantation de l'injecteur. Ceci est dû au fait que le Cr possède plusieurs propriétés qui permettent de surmonter le problème de fuite de courant dans le semiconducteur. Cet injecteur nous a permis de démontrer le contrôle électrique de la polarisation de la lumière émise par retournement électrique de l'aimantation. Ce contrôle électrique de la polarisation de la lumière à température ambiante et sans nécessité d'un champ magnétique extérieur représente une avancée majeure pour des applications potentielles des spin-LEDs.

Dans tous les travaux présents dans ce chapitre, j'ai une contribution majeure répertoriée ci-dessous :

- Croissance et optimisation de l'injecteur par MBE et PVD ;
- Caractérisation des échantillons par SQUID-VSM ;
- Préparation des lames FIB pour les analyses STEM effectuées par Xavier DEVAUX ;
- Micro-fabrication des échantillons (standard et SOT spin-LEDs) par lithographie UV ;
- Les mesures de magnéto-transports ;
- Les mesures d'électroluminescence sur la spin-LED standard ;
- Les mesures d'électroluminescence sur la SOT spin-LED avec Pierre RENUCCI, Delphine LAGARDE et Laurent LOMBEZ du LPCNO ;
- Les mesures de MOKE ont été effectuées avec **Nicholas FIGUEIREDO** du Laboratoire Albert Fert et moi-même

Conclusions générales et perspectives

Au cours de cette thèse, nous nous sommes intéressés à l'injection de spin dans des diodes électroluminescentes à base de GaAs. L'objectif était d'étudier le contrôle électrique de l'injection de spin dans une spin-LED en utilisant de nouveaux types d'injecteurs présentant des effets SOT. Pour cela, nous nous sommes lancés premièrement dans l'élaboration d'un nouvel injecteur à base de nitrure de fer (Fe_4N). Ce composé est un semi-métal qui est particulièrement intéressant pour des applications en spintronique. Cependant, son utilisation comme injecteur pour des spin-LEDs est un nouveau domaine de recherche. La croissance de couches minces de Fe_4N a été étudiée en utilisant l'épitaxie par jets moléculaires assistée par plasma. Nous avons entrepris une étude systématique en faisant varier différents paramètres tels que le courant de magnétron, c'est à dire la densité du plasma, la température du substrat lors des dépôts, l'épaisseur de la couche ferromagnétique dans le but d'obtenir une PMA. Ces études ont permis de déterminer les conditions permettant d'obtenir une croissance épitaxiale d'une tricouche $\text{Au}/\text{Fe}_4\text{N}/\text{MgO}$ sur un substrat de GaAs (001). Au stade initial de la croissance, la formation d'îlots 3D de Fe_4N est observée. Ces derniers évoluent ensuite en grains ayant tous la même orientation cristallographique. L'étude des propriétés magnétiques a montré l'existence d'une faible composante hors plan de l'aimantation. De plus, nous avons montré pour la première fois qu'il est possible de retourner électriquement l'aimantation d'une couche mince de Fe_4N déposée sur une diode électroluminescente en utilisant une faible densité de courant. Bien qu'il soit possible de manipuler électriquement l'aimantation sur une LED, aucune polarisation circulaire n'a cependant été mesurée. Un injecteur à base de Fe_4N ne paraît donc pas approprié pour des applications en spin-optoélectronique. Un travail d'optimisation s'avère donc encore nécessaire pour l'injection efficace de spin dans un semiconducteur.

Conclusions générales et perspectives

Dans la deuxième partie de ce travail, nous nous sommes concentrés sur l'injecteur de spin à base de Ta/CoFeB/MgO. Cet injecteur présente de très bonnes propriétés d'injection de spin mais le retournement électrique de l'aimantation est difficile en raison de la forte résistance électrique du canal. Nous avons optimisé les paramètres de dépôt et de recuit dans le but d'obtenir une PMA. Dans le cas d'une spin-LED standard, nous avons montré que la polarisation circulaire croît lorsque la température augmente pour atteindre une valeur record de près de 40% à température ambiante. Cette évolution est interprétée par l'évolution conjointe des temps de vie des porteurs et du spin en fonction de la température. En ajoutant une couche mince de chrome sur la couche supérieure de Ta, nous avons montré qu'il est possible de réduire de manière drastique la résistance électrique du canal. Cela a permis d'augmenter considérablement le courant transversal pouvant être injecté dans le canal. Ces conditions ont permis de démontrer le retournement électrique de l'aimantation d'une couche mince de CoFeB. Ce phénomène nous a permis, pour la première fois, de contrôler électriquement de manière statique et à température ambiante la polarisation circulaire de la lumière émise par une spin-LED. Nous avons également montré que la polarisation circulaire peut être modulée plus d'une soixantaine de fois sans endommager les caractéristiques I-V de la LED. En variant l'amplitude de l'impulsion de courant, nous avons pu établir qu'il était possible de générer de la lumière possédant une polarisation intermédiaire entre circulaire gauche et circulaire droite. Ce résultat montre qu'une modulation à plusieurs niveaux est possible pour les communications optiques basées sur la polarisation. Sachant qu'il est possible simultanément d'injecter du courant dans la région active de la LED et de retourner électriquement l'aimantation de l'injecteur la modulation de P_c peut être découplée de la modulation d'intensité lumineuse. Ceci est crucial pour la transmission de données sécurisée à grande vitesse. Dans le cas de l'injecteur à base de MgO/CoFeB/Ta/Cr, la durée du retournement est de 1 ms pour une impulsion de courant d'amplitude 55 mA. Cela constitue une limitation forte pour une modulation ultra rapide de la

Conclusions générales et perspectives

polarisation circulaire de la lumière émise. Nous avons montré qu'une solution à ce problème pourrait être de remplacer la bicouche Ta/Cr par une bicouche W/Cr. Dans ce cas, la durée du retournement peut être réduite à 10 μ s qui constitue la limite basse de notre instrumentation. Nos résultats de tout premier plan constituent une avancée majeure pour de futures applications des spin-LEDs.

Finalement, nous voulons proposer quelques perspectives pour poursuivre ce travail. Plusieurs directions peuvent être proposées pour améliorer encore le fonctionnement des SOT-spin-LEDs.

1. Dans le cas du Fe_4N , il pourrait être envisageable de changer la barrière tunnel de MgO en MgAlO_x (plus robuste d'après la ref¹³⁷) pour empêcher la diffusion de l'azote aux interfaces. On pourrait aussi déposer une fine couche de fer (1 à 2 plans atomiques avec la croissance de Fe_4N pour améliorer les propriétés d'interfaces et enfin jouer avec les vitesses de dépôts du Fe pour augmenter l'anisotropie magnétique perpendiculaire.
2. Il pourrait être possible d'augmenter encore la polarisation de spin de l'injecteur en changeant la composition de l'injecteur à base de CoFeB . La composition de l'injecteur actuellement utilisée est $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$. Le choix du CoFeB (au lieu de l'alliage CoFe) permet de bénéficier de la diffusion du B dans le Ta et de la cristallisation du CoFe à partir de l'interface avec le MgO lors du recuit. Ceci a pour conséquence l'obtention d'une anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA). Cependant, une étude précédente a montré qu'une polarisation de spin plus élevée pouvait être obtenue pour un alliage de stœchiométrie $\text{Co}_{0.25}\text{Fe}_{0.75}$ ¹⁸⁰. Il pourrait donc être intéressant d'étudier systématiquement la relation entre la concentration de l'alliage et l'efficacité de l'injection de spin, ce qui devrait permettre d'augmenter encore le degré de polarisation circulaire. Un candidat prometteur pour une injection de spin optimisée pourrait être $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$. Un autre paramètre que nous pourrions faire varier est la température de

recuit. Notre injecteur actuel est MgO/CoFeB/Ta, et la température de recuit est limitée à environ 300°C. Une température plus élevée induirait une diffusion de Ta au niveau de l'interface MgO/CoFeB, ce qui endommagerait la PMA et réduirait l'efficacité de l'injection de spin. En remplaçant le Ta par le W, on peut s'attendre à ce que l'injecteur ait une meilleure stabilité thermique tout en conservant de bonnes propriétés de retournement par effet de spin-orbite (SOT). Il pourrait alors être possible d'effectuer des recuits à des températures plus élevées jusqu'à 400°C, ce qui augmenterait effectivement la polarisation de spin injectée grâce à l'effet de filtrage du MgO. Comme déjà démontré dans les jonctions tunnel magnétiques, la température de recuit peut augmenter efficacement la magnétorésistance tunnel (TMR) de 180% après un recuit à 300°C à plus de 500% après un recuit à 500°C¹⁸¹. Par ailleurs, nous pourrions aussi améliorer aussi la partie semi-conductrice en optimisant la relaxation du spin. Il faudrait pour cela augmenter la durée de vie du spin et réduire la durée de vie des porteurs dans les boîtes quantiques. En ajustant finement la taille, le dopage et la composition des boîtes quantiques, il pourrait être possible d'améliorer la capture des porteurs, de réduire la durée de vie des porteurs et d'augmenter la durée de vie du spin pour augmenter efficacement la polarisation circulaire.

3. Dans cette thèse, la modulation de P_c est quasi-statique. Nous avons montré qu'il était aussi possible de détecter la polarisation de la lumière et de retourner l'aimantation en même temps. A l'avenir nous prévoyons de faire de la commutation dynamique avec émission de lumière constante, et synchronisation de la mesure de P_c avec la commutation de l'aimantation.
4. Actuellement, un champ magnétique externe dans le plan est toujours nécessaire pour assurer le retournement complet de l'aimantation. Dans la suite de ce travail, nous

prévoyons de nous affranchir de cette condition en fabriquant des injecteurs avec de propriétés de retournement sans nécessité d'un champ externe.

5. La réduction du courant critique ainsi que le retournement ultra-rapide de l'aimantation sont aussi des éléments très importants pour la transmission ultra-rapide de l'information. Afin d'atteindre cet objectif, nous prévoyons de modifier la structure de l'injecteur de spin en remplaçant le Ta par le W et de réduire la taille des croix de Hall. Il pourrait également être intéressant d'utiliser comme injecteur une bicouche de Co/Pt dont l'aimantation peut être retournée très rapidement¹⁸².
6. L'intégration de notre concept d'injecteur de spin basé sur le SOT dans les spin-lasers est le principal objectif des recherches futures dans ce domaine. Bien qu'une spin-LED constitue une plateforme parfaite pour développer et optimiser les concepts d'injection de spin, les spin-lasers sont au cœur des futures applications telles que les communications optiques ultra-rapides¹⁸³, le calcul neuromorphique¹⁸⁴, la génération de bits aléatoires basée sur le chaos¹⁸⁵ ou la génération de micro-ondes¹⁸⁶ et de THz¹⁸⁷. De plus, les spin lasers présentent des avantages considérables en termes d'efficacité des effets dépendants du spin. En exploitant la non-linéarité du laser au seuil et une durée de vie des porteurs réduite en raison de l'émission stimulée, les effets relatifs au spin sont amplifiés de manière significative. Une polarisation de spin de seulement 4% dans la région active est en effet suffisante pour atteindre un degré de polarisation circulaire de près de 100% à température ambiante¹⁷⁴. Nos injecteurs ont déjà une efficacité suffisante pour être fonctionnalisés dans des spin-lasers.

Résumé

Les diodes électroluminescentes à injection de spin (spin-LEDs), capables d'émettre une lumière polarisée circulairement grâce à la combinaison d'une structure LED avec un injecteur ferromagnétique, sont au cœur des futures télécommunications optiques basées sur la polarisation circulaire de la lumière. Le défi actuel est de relier les disciplines de la photonique, de l'électronique et de la spintronique en modulant électriquement la polarisation circulaire de la lumière émise. Jusqu'à présent, la polarisation circulaire est contrôlée par la commutation de l'aimantation à l'aide d'un champ magnétique externe. Pour les applications futures, il est essentiel de s'affranchir de ce champ magnétique externe. Une solution possible serait de commuter électriquement l'aimantation en utilisant l'effet de couple spin-orbite (SOT). Cependant, le contrôle de la polarisation circulaire par la modulation électrique de la direction d'injection du spin reste un défi complexe.

L'objectif de cette thèse est d'étudier le contrôle électrique de l'injection de spin dans une spin-LED en utilisant de nouveaux types d'injecteurs de spin présentant des effets SOT. Pour cela, nous avons étudié deux types d'injecteurs de spin. Le premier injecteur, Au/Fe₄N/MgO et caractérisé par une croissance épitaxiale et par une anisotropie magnétique perpendiculaire sur une LED à base de GaAs. Nous avons démontré, pour la première fois, le retournement électrique de l'aimantation sur une LED avec ce type d'injecteur. Cependant, nous n'avons pas détecté de polarisation circulaire, probablement en raison de la complexité de la structure magnétique du Fe₄N et de la possible diffusion de l'azote aux interfaces. Le second injecteur utilisé au cours de cette thèse est le Ta/CoFeB/MgO. Cet injecteur, qui a déjà été étudié, a permis d'obtenir des polarisations circulaires significatives. Nos mesures sur la spin-LED standard ont permis d'obtenir une valeur record de polarisation circulaire pouvant atteindre 40 % à température ambiante sans champ magnétique appliqué. Cependant, nous n'avons pas réussi à retourner électriquement l'aimantation de cet injecteur sur la SOT spin-LED en raison de la résistance élevée du canal d'injection. L'ajout de chrome sur la couche de Ta permet de réduire la résistance électrique du canal et donc d'améliorer le retournement de l'aimantation. Nous avons ainsi pu démontrer le retournement électrique de l'aimantation de l'injecteur sur une LED avec un courant de retournement critique de l'ordre de $9 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$. Il devient alors possible de moduler la polarisation circulaire de la lumière émise entre $\pm 30 \%$ à 300 K, cette modulation pouvant même être répétée plus de 60 fois sans aucune dégradation de l'interface injecteur/semi-conducteur. Nos résultats représentent une avancée majeure qui contribuera de manière significative au développement des télécommunications optiques basées sur la modulation de la polarisation circulaire.

Abstract

Spin- light-emitting diodes (spin-LEDs), capable of emitting circularly polarized light by combining a semiconducting LED structure with a ferromagnetic injector, are at the forefront of future optical telecommunications based on circular polarization. The current challenge is to bridge the fields of photonics, electronics, and spintronics by electrically modulating the circular polarization of the emitted light through electrical control of the magnetization. So far, circular polarization has been controlled by switching the magnetization using an external magnetic field. For future applications, it is essential to eliminate the need for an external magnetic field. One possible solution is to electrically switch the magnetization using the spin-orbit torque (SOT) effect. However, controlling circular polarization by electrical modulation of the spin injection remains a challenging issue.

The aim of this thesis is to study the electrical control of spin injection in a spin-LED using new types of spin injectors exhibiting SOT effects. To this end, we studied two types of spin injectors. For the first injector, Au/Fe₄N/MgO, we successfully achieved high-quality epitaxial growth with perpendicular magnetic anisotropy on a GaAs LED. We also managed, for the first time, to electrically switch the magnetization on a LED. However, we did not detect any circular polarization, most probably due to the complexity of the Fe₄N magnetic structure and possible nitrogen diffusion at the interfaces. The second injector used in this thesis is Ta/CoFeB/MgO. This injector has already shown strong circular polarization. Our measurements on the standard spin-LED showed world record values of circular polarization reaching up to 40% at room temperature without any applied magnetic field. However, we were unable to electrically switch the magnetization of this injector on the SOT spin-LED due to the high resistance of the injection channel. The addition of a thin chromium layer on top of the injector reduces the electrical resistance of the channel and ultimately improves the magnetization switching properties. We thus succeeded in electrically switching this injector on a LED with a critical switching current of about 9×10^6 A/cm². This allows us to modulate the circular polarization of the emitted light between $\pm 30\%$ at 300 K. We further showed that this this modulation can even be repeated more than 60 times without any degradation of the injector/semiconductor interface. Our results represent a major advancement that will significantly contribute to the development of optical telecommunications based on circular polarization modulation.

Liste des publications

- **“Epitaxial Au/Fe₄N/MgO thin films on GaAs (001): A promising layer system for spin-optoelectronic applications”**

Pambiang Abel Dainone, Mathieu Stoffel, Tongxin Chen, Alexandre Bouché, Xavier Devaux Michel Vergnat, Pascal Boulet, Ludovic Pasquier and Yuan Lu.

J. Appl. Phys. 136, 155101 (2024)

- **“Controlling the helicity of light by electrical magnetization switching”**

Pambiang Abel Dainone, Nicholas Figueiredo Prestes, Pierre Renucci, Alexandre Bouché, Martina Morassi, Xavier Devaux, Markus Lindemann, Jean-Marie George, Henri Jaffrès, Aristide Lemaitre, Bo Xu, Mathieu Stoffel, Tongxin Chen, Laurent Lombez, Delphine Lagarde, Guangwei Cong, Tianyi Ma, Philippe Pigeat, Michel Vergnat, Hervé Rinnert, Xavier Marie, Xiufeng Han, Stephane Mangin, Juan-Carlos Rojas-Sánchez, Jian-Ping Wang, Matthew C. Beard, Nils C. Gerhardt, Igor Žutić & Yuan Lu.

Nature 627, 783–788 (2024)

- **“Large sign-reversal of tunneling magnetoresistance in epitaxial Fe/MgAlOx/Fe₄N magnetic tunnel junction”**

T. Ma, Y. Zhu, **P. A. Dainone**, T. Chen, X. Devaux, C. Wan, S. Migot, G. Lengaigne, M. Vergnat, Y. Yan, X. Han, Y. Lu.

ACS Appl. Electron. Mater. 5954–5961 (2023).

- **“Room Temperature Spin-to-Charge Conversion in Amorphous Topological Insulating Gd-Alloyed BixSe_{1-x}/CoFeB Bilayers”**

P. Sahu, Y. Yang, Y. Fan, H. Jaffrès, J-Y. Chen, X. Devaux, Y. Fagot-Revurat, S. Migot, E. Rongione, T. Chen, **P. A. Dainone**, JM. George, S. Dhillon, M. Micica, Y. Lu, and J-P. Wang.

ACS Applied Materials & Interfaces 15 (32),38592-38602 (2023)

-
- ¹ Mott, N. F. The resistance and thermoelectric properties of the transition metals. *Proc. R. Soc. Lond. Ser. Math. Phys. Sci.* 156, 368 (1936).
- ² Fert, A. and Campbell, I. A. Two-current conduction in nickel, *Phys. Rev. Lett.* 21(16), 1190, (1968).
- ³ Baibich, M. N., Broto, J. M. et al. Giant Magnetoresistance of (001) Fe/ (001) Cr Magnetic Superlattices. *Phys. Rev. Lett.* 61(21), 2472 (1998).
- ⁴ Binasch, G., Grünberg, P., et al. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Phys. Rev. B*, 39, 4828 (1989).
- ⁵ Frougier, J. Towards Spin-LED and Spin-VECSEL operation at magnetic remanence. *PhD thesis* (2014).
- ⁶ Ma, T. Spin-orbit torque and spin dependent transport in magnetic nano-heterostructures. *PhD thesis* (2023).
- ⁷ Julliere, M. Tunneling Between Ferromagnetic-Films. *Phys. Lett. A* 54, 225 (1975).
- ⁸ Moodera, J., Kinder, L., et al. Large Magnetoresistance at Room-Temperature in Ferromagnetic Thin-Film Tunnel-Junctions. *Phys. Rev. Lett.* 74, 3273 (1995).
- ⁹ Mathon, J., and Umerski, A. Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe (001) junction. *Phys. Rev. B*. 63, 220403 (2001).
- ¹⁰ Parkin, S. S. P., Kaiser, C., et al., Giant Tunneling Magnetoresistance at Room Temperature with MgO (100) Tunnel Barriers. *Nat. Mater.* 3, 862 (2004).
- ¹¹ Yuasa, S., Nagahama, T., et al. Giant Room Temperature Magnetoresistance in Single-Crystal Fe/MgO/Fe Magnetic Tunnel Junctions. *Nat. Mater.* 3, 868 (2004).
- ¹² Lee, Y. M., Hayakawa, J., et al. Effect of electrode composition on the tunnel magnetoresistance of pseudo-spin-valve magnetic tunnel junction with a MgO tunnel barrier,” *Appl. Phys. Lett.* 90, 212507 (2007).
- ¹³ Moore, G. Cramming more components onto integrated circuits. *Electronics* 38 (1965).
- ¹⁴ Wolf, S. A., Awschalom, D. D., et al. Spintronics: A spin-based electronics vision for the future. *Science* 294, 1448 (2001).
- ¹⁵ Tsymbal, E. Y., and Žutić, I. Spintronics Handbook: Spin Transport and Magnetism, Second Edition. *CRC Press* (2019).
- ¹⁶ Taniyama, T., Wada, E., et al. Electrical and optical spin injection in ferromagnet/semiconductor heterostructures. *NPG Asia Mat.* 3, 65 (2011).
- ¹⁷ Azaiza, S. Alliages à base de GaAs pour applications optoélectroniques et spintroniques. *PhD thesis* (2018).

-
- ¹⁸ Fiederling, R., Keim, M., et al. Injection and detection of a spin-polarized current in a light emitting diode. *Nature* 402, 787 (1999).
- ¹⁹ Ohno, Y., Young, D. K., et al. Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure. *Nature*, 402, 790 (1999).
- ²⁰ Uspenskii, Y., Kulatov, E., et al. Ab initio study of the magnetism in GaAs, GaN, ZnO, and ZnTe-based diluted magnetic semiconductors. *Journ. of Magn. and Magn. Mat.* 258, 248 (2003).
- ²¹ Bouzerar, G., Ziman, T., et al. Calculating the Curie temperature reliably in diluted III-V ferromagnetic semiconductors. *Euro. Lett.* 69, 812 (2005).
- ²² Rashba, E., Theory of electrical spin injection: Tunnel contacts as a solution of the conductivity mismatch problem. *Phys. Rev. B* 62, R16 267 (2000).
- ²³ Fert, A., and Jaffres, H. Conditions for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor. *Phys. Rev. B*, 64, (2001).
- ²⁴ Smith, D. L., and Silver, R. N. Electrical spin injection into semiconductors. *Phys. Rev. B* 64 (2001).
- ²⁵ Schmidt, G., Ferrand, D. et al. Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor. *Phys. Rev. B*, 62, R4790 (2000)
- ²⁶ Fert, A., George, J.-M., et al. Semiconductors Between Spin-Polarized Sources and Drains *IEEE Trans. on Elec. Dev.* 54,92. (2007).
- ²⁷ Zhu, H., Ramsteiner, M., et al. Room-Temperature Spin Injection from Fe into GaAs. *Phys. Rev. Lett.* 87, 16601 (2001).
- ²⁸ Hanbicki, A. T., Jonker, B. T., et al. Efficient Electrical Spin Injection from a Magnetic Metal / Tunnel Barrier Contact into a Semiconductor. *Appl. Phys. Lett.* 80, 1240 (2002).
- ²⁹ Liu, B., Senès, M., et al. Optical and electrical spin injection in spin-LED. *Phys. E: Low-Dim. Syst. and Nanostruc.* 17, 358 (2003).
- ³⁰ Van Roy, W., Van Dorpe, P., et al. Spin injection and detection in semiconductors. *IEEE Trans. on Elec. Dev.* 54, 933 (2007).
- ³¹ Lombez, L., Renucci, P., et al. Electrical spin injection into p-doped quantum dots through a tunnel barrier. *Appl. Phys. Lett.* 90, 081111 (2007).
- ³² Motsnyi, V. F., Dorpe P. V., et al. Optical investigation of electrical spin injection into semiconductors. *Phys. Rev. B*, 68, 245319. (2003).

-
- ³³ Jiang, X., Wang, R., et al. Highly Spin-Polarized Room-Temperature Tunnel Injector for Semiconductor Spintronics using MgO (100). *Phys. Rev. Lett.* 94, 056601 (2005).
- ³⁴ Hanbicki, A. T., Jonker, B. T., et al. Efficient electrical spin injection from a magnetic metal/tunnel barrier contact into a semiconductor. *Appl. Phys. Lett.* 80, 1240 (2002).
- ³⁵ Chakrabarti, S., Holub, M. A., et al. Spin-polarized light-emitting diodes with Mn-doped InAs quantum dot nanomagnets as a spin aligner. *Nano Lett.* 5, 209 (2005).
- ³⁶ Hövel, S., Gerhardt, N. C., et al. Room temperature electrical spin injection in remanence. *Appl. Phys. Lett.* 93, 021117 (2008).
- ³⁷ Tao, B. S., Barate, P., et al. Electrical spin injection into GaAs based light emitting diodes using perpendicular magnetic tunnel junction-type spin injector. *Appl. Phys. Lett.*, 108, 152404 (2016)
- ³⁸ Dainone P. A., Prestes N. F., et al. Controlling the helicity of light by electrical magnetization switching. *Nature* 627, 783 28 (2024)
- ³⁹ Jonker, B. T., Park, Y. D., et al. Robust electrical spin injection into a semiconductor heterostructure. *Phys. Rev. B* 62, 8180 (2000).
- ⁴⁰ Löffler, W., Tröndle, D., et al. Electrical spin injection from ZnMnSe into InGaAs quantum wells and quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* 88, 062105 (2006).
- ⁴¹ Ghali, M., Arians, R., et al. Spin injection into a single self-assembled quantum dot in a p-i-n II-VI/III-V structure. *Appl. Phys. Lett.* 90, 093110 (2007).
- ⁴² Asshoff, P., Merz, A., et al. Spintronic source of circularly polarized single photons. *Appl. Phys. Lett.* 98, 112106 (2011).
- ⁴³ Kioseoglou, G., Hanbicki, A. T., et al. Electrical spin injection from an n-type ferromagnetic semiconductor into a III-V device heterostructure. *Nat. Mat.* 3, 799 (2004)
- ⁴⁴ Young, D. K., Johnston-Halperin, E., et al. Anisotropic electrical spin injection in ferromagnetic semiconductor heterostructures. *Appl. Phys. Lett.* 80, 1598- 1600 (2002)
- ⁴⁵ Ramsteiner, M., Hao, H. Y., et al. Electrical spin injection from ferromagnetic MnAs metal layers into GaAs. *Phys. Rev. B* 66, 081304 (2002)
- ⁴⁶ Bhattacharya, P., Das, A., et al. An electrically injected quantum dot spin polarized single photon source. *Appl. Phys. Lett.* 96, 101105 (2010).
- ⁴⁷ Dong, X.Y., Adelman, C., et al. Spin injection from the Heusler alloy Co₂MnGe into Al_{0.1}Ga_{0.9}As/GaAs heterostructures. *Appl. Phys. Lett.* 86, 102107 (2005)
- ⁴⁸ Hickey, M.C., Danvad, D. C., et al. Spin injection between epitaxial Co_{2.4}Mn_{1.6}Ga and an InGaAs quantum well. *Appl. Phys. Lett.* 86, 252106 (2005).

-
- ⁴⁹ Ramsteiner, M., Brandt, O., et al. Co₂FeSi/GaAs/(Al,Ga)As spin light-emitting diodes: Competition between spin injection and ultrafast spin alignment. *Phys. Rev. B* 78, 121303 (2008).
- ⁵⁰ Zhu, H. J., Ramsteiner, M., et al. Room-temperature spin injection from Fe into GaAs. *Phys. Rev. Lett.* 87, 016601 (2001).
- ⁵¹ Adelman, C., Lou, X., et al. Spin injection and relaxation in ferromagnet-semiconductor heterostructures. *Phys. Rev. B* 71, 121301 (2005).
- ⁵² Manago, T., Sinsarp, A. et al. Growth condition dependence of spin-polarized electroluminescence. *J. Appl. Phys.* 102, 083914 (2007).
- ⁵³ Li, C. H., Kioseoglou, G., et al. Electrical spin injection into the InAs/GaAs wetting layer, *Appl. Phys. Lett.* 91, 262504 (2007).
- ⁵⁴ Yokota, N., Aoshima, Y., et al. Room temperature spin injection into (110) GaAs quantum wells using Fe/xAlO_x contacts in the regime of current density comparable to laser oscillation. *J. Appl. Phys.* 118, 163905 (2015).
- ⁵⁵ van 't Erve, O. M. J. et al. Comparison of Fe/Schottky and Fe/Al₂O₃ tunnel barrier contacts for electrical spin injection into GaAs. *Appl. Phys. Lett.* 84, 4334 (2004).
- ⁵⁶ Li, C. H., Kioseoglou, G., et al. Electrical spin pumping of quantum dots at room temperature. *Appl. Phys. Lett.* 86, 132503 (2005).
- ⁵⁷ Itskos, G., Harbord, E., et al. Oblique Hanle measurements of InAs/GaAs quantum dot spin-light emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.* 88, 022113 (2006)
- ⁵⁸ Etou, K., Hiura, S., et al. Room-temperature spin-transport properties in an In_{0.5}Ga_{0.5}As quantum dot spinpolarized light-emitting diode. *Phys. Rev. Appl.* 16, 014034 (2021).
- ⁵⁹ Etou, K., Hiura, S., et al. Efficient room-temperature operation of a quantum dot spin-polarized lightemitting diode under high-bias conditions. *Phys. Rev. Appl.* 19, 024055 (2023).
- ⁶⁰ Liu, B. L., Sénès, M., et al. Optical and electrical spin injection in spin LED, *Phys. E* 17, 358-360 (2003).
- ⁶¹ Lombez, L., Renucci, P., et al. Electrical spin injection into p-doped quantum dots through a tunnel barrier. *Appl. Phys. Lett.* 90, 081111 (2007).
- ⁶² Manago, T. & Akinaga, H. Spin-polarized light-emitting diode using metal/insulator/semiconductor structures. *Appl. Phys. Lett.* 81, 694-696 (2002).
- ⁶³ Motsnyi, V. F., De Boeck, J., et al. Electrical spin injection in a ferromagnet/tunnel barrier/semiconductor heterostructure. *Appl. Phys. Lett.* 81, 265-267 (2002).
- ⁶⁴ Motsnyi, V. F., Van Dorpe, P., et al. Optical investigation of electrical spin injection into semiconductors. *Phys. Rev. B* 68, 245319 (2003).

-
- ⁶⁵ Dorpe, P. V., Motsnyi, V. F., et al. Highly efficient room temperature spin injection in a metal-insulatorsemiconductor light-emitting diode. *Jpn. J. Appl. Phys.* 42, L502-L504 (2003).
- ⁶⁶ Jiang, X., Wang, R., et al. Optical detection of hot-electron spin injection into GaAs from a magnetic tunnel transistor. *Phys. Rev. Lett.* 90, 256603 (2003).
- ⁶⁷ Salis, G., Wang, R., et al. Temperature independence of the spin-injection efficiency of a MgO-based tunnel spin injector. *Appl. Phys. Lett.* 87, 262503 (2005).
- ⁶⁸ Lu, Y., Truong VG et al. MgO thickness dependence of spin injection efficiency in spin-light emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.* 93, 152102 (2008).
- ⁶⁹ Barate, P., Liang S., et al. Electrical spin injection into InGaAs/GaAs quantum wells: A comparison between MgO tunnel barriers grown by sputtering and molecular beam epitaxy methods. *Appl. Phys. Lett.* 105, 012404 (2014)
- ⁷⁰ Barate, P., Liang, S. H., et al. Bias dependence of the electrical spin injection into GaAs from Co-Fe-B/MgO injectors with different MgO growth processes. *Phys. Rev. Appl.* 8, 054027 (2017).
- ⁷¹ Jonker, B. T., Kioseoglou, G., et al. Electrical spin injection into silicon from a ferromagnetic metal/tunnel barrier contact. *Nat. Phys.* 3, 542-546 (2007).
- ⁷² Banerjee, D., Adari, R., et al. Electrical spin injection using GaCrN in a GaN based spin light emitting diode. *Appl. Phys. Lett.* 103, 242408 (2013).
- ⁷³ Chen, J. Y., Ho, C. Y., et al. Efficient spin-light emitting diodes based on InGaN/GaN quantum disks at room temperature: A new self-polarized paradigm. *Nano Lett.* 14, 3130-3137 (2014).
- ⁷⁴ Wu, Y., Chen, J., et al. Regulating the circular polarization in nitride-based light-emitting diodes through the spin injection. *Appl. Phys. Express* 12, 123005 (2019)
- ⁷⁵ Sanchez, O. L., Ovchinnikov, D., et al. Valley Polarization by spin injection in a light-emitting van der Waals heterojunction. *Nano Lett.* 16, 5792-5797 (2016).
- ⁷⁶ Wang, J., Zhang, C., et al. Spin-optoelectronic devices based on hybrid organic-inorganic trihalide perovskites. *Nat. Commun.* 10, 129 (2019).
- ⁷⁷ Sinsarp, A., Manago, T., et al. Electrical spin injection from out-of-plane magnetized FePt/MgO tunneling junction into GaAs at room temperature. *Jpn. J. Appl. Phys.* 46, L4- L6 (2007).
- ⁷⁸ Adelman, C., Hilton, J.L., et al. Spin injection from perpendicular magnetized ferromagnetic δ -MnGa into (Al, Ga)As heterostructures. *Appl. Phys. Lett.* 89, 112511 (2006).
- ⁷⁹ Gerhardt, N. C., Hövel, S., et al. Spin injection light-emitting diode with vertically magnetized ferromagnetic metal contacts. *J. Appl. Phys.* 99, 073907 (2006).

-
- ⁸⁰ Höpfner, H., Fritsche, C., et al. Magnetic field dependence of the spin relaxation length in spin light-emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.* 101, 112402 (2012).
- ⁸¹ Zarpellon, J., Jaffrès, H., et al. Spin injection at remanence into III-V spin light-emitting diodes using (Co/Pt) ferromagnetic injectors. *Phys. Rev. B* 86, 205314 (2012).
- ⁸² Liang, S. H., Zhang, T. T., Barate, P., Frougier, J., et al. Large and robust electrical spin injection into GaAs at zero magnetic field using an ultrathin CoFeB/MgO injector. *Phys. Rev. B* 90, 085310 (2014).
- ⁸³ Cadiz, F., Djeffal, A., et al. Electrical initialization of electron and nuclear spins in a single quantum dot at zero magnetic field. *Nano Lett.* 18, 2381 (2018).
- ⁸⁴ Tao, B., Barate, P., et al. Atomic-scale understanding of high thermal stability of Mo/CoFeB/MgO spin injector for spin-injection in remanence. *Nanoscale* 10, 10213-10220 (2018).
- ⁸⁵ Giba, A. E., Gao, X., et al. Spin injection and relaxation in p-doped (In, Ga) As/GaAs quantum-dot spin light-emitting diode at zero magnetic field. *Phys. Rev. Appl.* 14, 034017 (2020).
- ⁸⁶ Zube, C., Malindretos, J., et al. Spin injection in epitaxial MnGa (111)/GaN (0001) heterostructures. *J. Appl. Phys.* 123, 033906 (2018).
- ⁸⁷ Ye, Y., Xiao, J., et al. Electrical generation and control of the valley carriers in a monolayer transition metal dichalcogenide. *Nat. Nanotechnol.* 11, 598-602 (2016)
- ⁸⁸ Li, J.-X., Li, W.-Q., et al. Electric control of valley polarization in monolayer WSe₂ using a van der Waals magnet. *Nat. Nanotechnol.* 17, 721-728 (2022).
- ⁸⁹ Kim, Y.-H., Zhai, Y., et al. Chiral-induced spin selectivity enables a room-temperature spin light-emitting diode. *Science* 371, 1129 (2021).
- ⁹⁰ Johnston-Halperin, E., Lofgreen, D., et al. Spin-polarized Zener tunneling in (Ga, Mn) As. *Phys. Rev. B* 65, 041306 (2002).
- ⁹¹ Chye, Y., White, M. E., et al. Spin injection from (Ga, Mn) As into InAs quantum dots. *Phys. Rev. B* 66, 201301 (2002).
- ⁹² Nishizawa, N. & Munekata, H. Efficient spin injection through a crystalline AlO_x tunnel barrier prepared by the oxidation of an ultra-thin Al epitaxial layer on GaAs. *J. Appl. Phys.* 114, 033507 (2013).
- ⁹³ Nishizawa, N., Nishibayashi, K., et al. A spin light emitting diode incorporating ability of electrical helicity switching. *Appl. Phys. Lett.* 104, 111102 (2014).

-
- ⁹⁴ Nishizawa, N., Aoyama, M., et al. Arbitrary helicity control of circularly polarized light from lateral-type spin-polarized light-emitting diodes at room temperature. *Appl. Phys. Express* 11, 053003 (2018).
- ⁹⁵ Farshchi, R., Ramsteiner, M., et al. Optical communication of spin information between light emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.* 98, 162508 (2011)
- ⁹⁶ Nishizawa N., and Munekata, H. Lateral-Type Spin-Photonics Devices: Development and Applications. *Micromachines*, 12, 644 (2021)
- ⁹⁷ Jachimowicz, K.E., and Gold, R.S. Stereoscopic (3-D) projection display using polarized color multiplexing. *Opt. Eng.* 29, 838–842 (1990).
- ⁹⁸ Bennett, C.H. Quantum cryptography using any two nonorthogonal states. *Phys. Rev. Lett.* 68, 3121–3124 (1992).
- ⁹⁹ Kak, S., Verma, P., et al. Cryptography and system state estimation using polarization states. *Proc. SPIE* 8121, 81210M (2011),
- ¹⁰⁰ Landau L. and Lifschitz E. On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies. *Phys. Zeitsch. der Sow.* 8, 53, (1935)
- ¹⁰¹ Gilbert, T. L. A Phenomenological Theory of Damping in Ferromagnetic Materials. *IEEE Trans. Magn.* 40, 3443 (2004)
- ¹⁰² Lopez, A. Étude de la dynamique de paroi de domaine magnétique dans des matériaux à fort couplage spin orbite. *PhD thesis* (2016)
- ¹⁰³ Brataas, A., Kent, A. D., et al. Current-induced torques in magnetic materials. *Nat. Mat.* 11(5), 372 (2012).
- ¹⁰⁴ Hamelin, C. Couples de spin-orbite en vue d'applications aux mémoires cache. *PhD thesis* (2017).
- ¹⁰⁵ Berger, L. Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current. *Phys. Rev. B* 54, 9353 (1996).
- ¹⁰⁶ Slonczewski, J. C. Current-driven excitation of magnetic multilayers. *J. Magn. Magn. Mater.* 159, L1–L7 (1996).
- ¹⁰⁷ Chernyshov, A., Overby, M., et al. Evidence for reversible control of magnetization in a ferromagnetic material by means of spin-orbit magnetic field,” *Nat. Phys.* 5, 656 (2009)
- ¹⁰⁸ Miron, I. M., Gaudin, G., et al. Current-driven spin torque induced by the Rashba effect in a ferromagnetic metal layer,” *Nat. Mat.* 9, 230 (2010).
- ¹⁰⁹ Miron, I. M., Garello, K., et al. Perpendicular switching of a single ferromagnetic layer induced by in-plane current injection. *Nature* 476, 189 (2011).

-
- ¹¹⁰ Bychkov, Y. A., and Rashba, E. I. Properties of a 2D electron gas with lifted spectral degeneracy. *JETP Lett.* 39 (1984).
- ¹¹¹ Messiah, A. Quantum Mechanics, vol. II. *North Holl. Publishing Comp.* (1962).
- ¹¹² Dyakonov, M., and Perel, V. Possibility of orienting electrons spins with current. *JETP Lett.* 13, 467 (1971).
- ¹¹³ Dyakonov, M., and Perel, V., Current-induced spin orientation of electrons in semiconductors. *Phys. Lett. A* 35, 459 (1971).
- ¹¹⁴ Kato, Y. K., Myers, R. C., et al. Observation of the Spin Hall Effect in Semiconductors. *Science* 306, 1910 (2004).
- ¹¹⁵ Zhu, L., Ralph, D. C., et al. Highly Efficient Spin-Current Generation by the Spin Hall Effect in Au_{1-x}Pt_x. *Phys. Rev. Appl.* 10(3) (2018).
- ¹¹⁶ Liu, L., Lee, O. J., et al. Current Induced Switching of Perpendicularly Magnetized Magnetic Layers Using Spin Torque from the Spin Hall Effect. *Phys. Rev. Lett.* 109, 096602 (2012).
- ¹¹⁷ Isasa, M., Villamor, E., et al. Temperature dependence of spin diffusion length and spin Hall angle in Au and Pt. *Phys. Rev. B* 91(2) (2015).
- ¹¹⁸ Pai, C.-F., Liu, L., et al. Spin Transfer Torque Devices Utilizing the Giant Spin Hall Effect of Tungsten. *Appl. Phys. Lett.* 101, 122404 (2012).
- ¹¹⁹ Sethu, K. K. V., Ghosh, S., et al. Optimization of Tungsten Beta-Phase Window for Spin-Orbit Torque Magnetic Random-Access Memory. *Phys. Rev. Appl.* 16, 064009 (2021).
- ¹²⁰ Mondal, S., Choudhury, S., et al. All-optical detection of the spin Hall angle in W/CoFeB/SiO₂ heterostructures with varying thickness of the tungsten layer. *Phys. Rev. B*, 96, 5 (2017).
- ¹²¹ Liu, L., Pai, C.-F., et al. Spin Torque Switching with the Giant Spin Hall Effect of Tantalum. *Science* 336, 555 (2012).
- ¹²² Kumar, A., Gupta, R., et al. Spin pumping and spin torques in interfacially tailored Co₂FeAl/β-Ta layers. *Phys. Rev. B* 100, 21 (2019).
- ¹²³ Du, C., Wang, H., et al. Systematic variation of spin-orbit coupling with d-orbital filling: Large inverse spin Hall effect in 3d transition metals. *Phys. Rev. B* 90, 14 (2014).
- ¹²⁴ Fan, Y., Upadhyaya, P., et al., Magnetization Switching through Giant Spin-Orbit Torque in a Magnetically Doped Topological Insulator Heterostructure. *Nat. Mater.* 13, 699 (2014).
- ¹²⁵ Gerlach, W., and Stern, O. Der experimentelle Nachweis des magnetischen Moments des Silberatoms. *Zeitschrift für Physik* 8, 110 (1922).
- ¹²⁶ Karplus, R., and Luttinger, J. M. Hall Effect in ferromagnetics. *Phys. Rev.* 95, 1154 (1954).

-
- ¹²⁷ Kontani, H., Tanaka, T., et al. Giant intrinsic spin and orbital hall effects in Sr₂MO₄ (M=Ru, Rh, Mo). *Phys. Rev. Lett.* 100, 096601 (2008).
- ¹²⁸ Akyol, M., Yu, G., et al. Current-driven magnetization switching under zero field in Pt/Ta(wedge)/CoFeB/MgO multilayers. *Appl. Phys. Lett.* 121, 112407 (2022).
- ¹²⁹ Cui, B., Chen, S., et al. Current-induced magnetization switching in Pt/Co/Ta with interfacial decoration by insertion of Cr to enhance perpendicular magnetic anisotropy and spin-orbit torques. *Appl. Phys. Express* 11, 013001 (2017).
- ¹³⁰ Lee, P.A. Possibility of adsorbate position determination using final-state interference effects. *Phys. Rev. B* 13 5261 (1976)
- ¹³¹ Mortada, H. Croissance et caractérisation de nanostructures de Ge et Si déposées sur des substrats d'oxyde cristallin à forte permittivité LaAlO₃. PhD thesis (2009).
- ¹³² Valdenaire, A. Étude de l'insertion de dopants dans des nano-objets semi-conducteurs du groupe IV : de l'hyperdopage aux alliages lamellaires. PhD thesis (2022).
- ¹³³ Cao, A. Interfacial effects of Pt/Co/X systems for advanced spintronic devices. PhD thesis (2021).
- ¹³⁴ Quantum Design MPMS SQUID VSM User's Manual, Rev. C0, 1500-100 (2009).
- ¹³⁵ Kokado, S., Fujima, N., et al. Theoretical analysis of highly spin-polarized transport in the iron nitride Fe₄N. *Phys. Rev. B* 73, 172410 (2006).
- ¹³⁶ Li, H., Li, X., et al. High spin polarization in epitaxial Fe₄N thin films using Cr and Ag as buffer layers. *Appl. Phys. Lett.* 112, 162407 (2018).
- ¹³⁷ Ma, T., Zhu, Y., et al. Large sign-reversal of tunneling magnetoresistance in epitaxial Fe/MgAlO_x/Fe₄N magnetic tunnel junction. *ACS Appl. Electron. Mater.* 5, 5954(2023).
- ¹³⁸ Mosca, D. H., Teixeira, S. R., et al. The evolution of sputtered iron nitride thin films under thermal treatment. *J. Appl. Phys.* 69, 261 (1990).
- ¹³⁹ Vergnat, M., Bauer, Ph., et al. Mössbauer spectroscopy of Fe-N thin films prepared by reactive evaporation. *Thin Solid Films* 275, 251 (1996).
- ¹⁴⁰ Takahashi, T., Takahashi, N., et al. Growth of Fe₄N epitaxial layers displaying anomalous light reflectivity by an external magnetic field. *J. Mat. Chem.* 11, 3154 (2001).
- ¹⁴¹ Grachev, S. Y., Borsa, D. M., et al. On the growth of magnetic Fe₄N films, *Surf. Sci.* 515, 359 (2002).
- ¹⁴² Li, J., Jiang, Y., et al. Structure and magnetic properties of γ' -Fe₄N films grown on MgO buffered Si (001). *Physica B* 407, 4783(2012).
- ¹⁴³ Mattson, J. E., Potter, C. D., et al. Critical fields of Fe₄N/NbN ferromagnetic/superconducting multilayers. *Phys. Rev. B* 55, 70 (1997).

-
- ¹⁴⁴ Loloee, R., Nikolaev, K. R., et al. Growth and characterization of sputtered epitaxial γ' -Fe₄N and NbN films and bilayers using electron backscatter diffraction patterns and magnetometry. *Appl. Phys. Lett.* 82, 3281 (2003).
- ¹⁴⁵ Ecija, D., Jimenez, E., et al. Magnetization reversal of epitaxial films of γ' -Fe₄N on Cu (100), *J. Magn. Magn. Mater.* 316, 321 (2007).
- ¹⁴⁶ Wang, L. L., Wang, X., et al. Influence of various substrate materials on the structure and magnetic properties of Fe-N thin films deposited by DC magnetron sputtering. *Surf. Coat. Technol.* 201, 786 (2006).
- ¹⁴⁷ Kimura, M., and Hasegawa, S. Growth evolution of γ' -Fe₄N films on GaN (0001) and their interfacial structure. *Japn. J. of Appl. Phys.* 55, 05FD02 (2016).
- ¹⁴⁸ Nikolaev K. R., Krivorotov, I. N., et al. Structural and magnetic properties of triode sputtered epitaxial γ' -Fe₄N films deposited on SrTiO₃ (001) substrates. *Appl. Phys. Lett.* 82, 4534 (2003).
- ¹⁴⁹ Atiq, S., Ko, H. S., et al. Effect of epitaxy and lattice mismatch on saturation magnetization of γ' -Fe₄N thin films. *Appl. Phys. Lett.* 92, 222507 (2007).
- ¹⁵⁰ Xiang, H., Shi, F. Y., et al. Epitaxial growth and thermal stability of Fe₄N film on TiN buffered Si (001) substrate. *J. Appl. Phys.* 109, 07E126 (2011).
- ¹⁵¹ Na, Y., Wang, C., et al. Investigation of γ' -Fe₄N thin films deposited on Si (100) and GaAs (100) substrates by facing target magnetron sputtering. *J. Cryst. Growth* 426, 117 (2015).
- ¹⁵² Li, X., Osofsky, M. S., et al. Deposition and spin polarization study of Fe₄N thin films with (111) orientation. *AIP Advances* 7, 095001 (2006)
- ¹⁵³ Yin, L., Mi, W., et al. Perpendicular magnetic anisotropy and high spin polarization in tetragonal Fe₄N/BiFeO₃ heterostructures. *Phys. Rev. Appl.* 6, 064022 (2016).
- ¹⁵⁴ Li, Z. R., Mi, W. B., et al. The contribution of distinct response characteristics of Fe atoms to switching of magnetic anisotropy in Fe₄N/MgO heterostructures. *Appl. Phys. Lett.* 113, 132401 (2018).
- ¹⁵⁵ Li, H., Wang, G., et al. Field free deterministic magnetization switching with ultralow current density in epitaxial Au/Fe₄N bilayer films. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 11, 16965 (2018).
- ¹⁵⁶ Shi, X., Jiang, J., et al. Emergence of room temperature magnetotransport anomaly in epitaxial Pt/ γ' -Fe₄N/MgO heterostructures toward noncollinear spintronics. *ACS Appl. Mat. & Inter*, 13, 26639 (2021).
- ¹⁵⁷ Chen, S., Li, D., et al. Temperature dependence of spin-orbit torques in Pt/Co/Pt multilayers, *J. Appl. Phys.* 51, 095001 (2018).

-
- ¹⁵⁸ Cheng, Y. H., Zheng, R. K., et al. Large Extraordinary Hall Effect and Anomalous Scaling Relations Between the Hall and Longitudinal Conductivities in ϵ -Fe₃N nanocrystalline Films. *Phys. Rev. B* 80, 174412 (2009)
- ¹⁵⁹ Dirba, L., Yazdi, M. B., et al. Growth, structure and magnetic properties of γ -Fe₄N thin films, *J. Magn. Magn. Mater.* 379, 151(2015).
- ¹⁶⁰ Braun, P.-F., Marie, X., et al., Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* 94, 116601 (2005).
- ¹⁶¹ Belhadj, T., Simon, C.-M., et al. Controlling the polarization eigenstate of a quantum dot exciton with light. *Phys. Rev. Lett.* 103, 086601 (2009).
- ¹⁶² Yang, H. X., Chshiev, M., et al. First-principles investigation of the very large perpendicular magnetic anisotropy at Fe/MgO and Co/MgO interfaces. *Phys. Rev. B* 84, 054401 (2011).
- ¹⁶³ Van Roy, W., Van Dorpe, P., et al. Spin injection in LEDs and in unipolar devices. *J. Mater. Sci. Eng. B* 126, 155 (2006).
- ¹⁶⁴ Tan, I. H., Snider, G. L., et al. A self-consistent solution of Schrödinger-Poisson equations using a nonuniform mesh. *J. Appl. Phys.* 68, 4071 (1990).
- ¹⁶⁵ Lee, K.-M., Choi, J. W., et al. Temperature dependence of the interfacial magnetic anisotropy in W/CoFeB/MgO. *AIP Adv.* 7, 065107 (2017).
- ¹⁶⁶ Huang, S. X., Chen, T. Y. et al. Spin polarization of amorphous CoFeB determined by point-contact Andreev reflection. *Appl. Phys. Lett.* 92, 242509 (2008).
- ¹⁶⁷ Žutić, I., Fabian, J. et al. S. Spintronics: fundamentals and applications. *Rev. Mod. Phys.* 76, 323(2004).
- ¹⁶⁸ Kumar, S. & Kumar, S. Ultrafast THz probing of nonlocal orbital current in transverse multilayer metallic heterostructures. *Nat. Commun.* 14, 8185 (2023)
- ¹⁶⁹ Nagaosa, N., Sinova, J., et al. Anomalous Hall effect. *Rev. Mod. Phys.* 82, 1539 (2010).
- ¹⁷⁰ Nunes, W. C., Folly, W. S. D., et al. Temperature dependence of the coercive field in single-domain particle systems. *Phys. Rev. B* 70(1). (2004).
- ¹⁷¹ Zhang, C., Yamanouchi, M., et al. Magnetotransport measurements of current induced effective fields in Ta/CoFeB/MgO. *Appl. Phys. Lett.* 103, 262407 (2013).
- ¹⁷² Zhao, X., Zhang, X., et al. Ultra-efficient spin-orbit torque induced magnetic switching in W/CoFeB/MgO structures. *Nanotechnology.* (2019).
- ¹⁷³ Rahaman, S. Z., Wang, I.-J., et al. Pulse-width and temperature effect on the switching behavior of an etch-stop-on-MgO-barrier spin-orbit torque MRAM cell. *IEEE Elect. Dev. Lett.* 39, 1306 (2018).

-
- ¹⁷⁴ Iba, S., Koh, S., et al. H. Room temperature circularly polarized lasing in an optically spin injected vertical-cavity surface-emitting laser with (110) GaAs quantum wells. *Appl. Phys. Lett.* 98, 081113 (2011)
- ¹⁷⁵ Skowroński, W., Karwacki, Ł., et al. Determination of spin hall angle in heavy metal/Co–Fe–B-based heterostructures with interfacial spin-orbit fields. *Phys. Rev. Appl.* 11, 024039 (2019).
- ¹⁷⁶ Wei, J., Wang, X., et al. Field-free spin–orbit torque switching in perpendicularly magnetized synthetic antiferromagnets. *Adv. Funct. Mater.* 32, 2109455 (2022).
- ¹⁷⁷ Lee, K.-S., Lee, S.-W., et al. Thermally activated switching of perpendicular magnet by spin-orbit torque. *Appl. Phys. Lett.* 104, 072413 (2014).
- ¹⁷⁸ Cubukcu, M., Boule, O., et al. Ultra-fast perpendicular spin–orbit torque MRAM. *IEEE Trans. Magn.* 54, 1-4 (2018).
- ¹⁷⁹ Baumgartner, M., Garello, K., et al. Spatially and time-resolved magnetization dynamics driven by spin–orbit torques. *Nat. Nanotechnol.* 12, 980 (2017).
- ¹⁸⁰ Bonell, F., Hauet, T., et al. Spin-polarized electron tunneling in bcc FeCo/MgO/FeCo (001) magnetic tunnel junctions. *Phys. Rev. Lett.* 108, 176602 (2012).
- ¹⁸¹ Ikeda, S. et al. Tunnel magnetoresistance of 604% at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature. *Appl. Phys. Lett.* 93, 082508 (2008).
- ¹⁸² Garello, K., Avci C. O., Ultrafast magnetization switching by spin-orbit torques. *Appl. Phys. Lett.* 105, 212402 (2014).
- ¹⁸³ Lindemann, M., Xu, G., et al. Ultrafast spin-lasers. *Nature* 568, 212-215 (2019).
- ¹⁸⁴ Zhong, D., Zhao, K., et al. Deep optical reservoir computing and chaotic synchronization predictions based on the cascade coupled optically pumped spin-VCSELs. *Opt. Express* 30, 36209-36233 (2022).
- ¹⁸⁵ Zeng, Y., Zhou, P., et al. Wideband and high-dimensional chaos generation using optically pumped spin-VCSELs. *Opt. Express* 31, 948-963 (2023)
- ¹⁸⁶ Huang, Y., Zhou, P. et al. Broad tunable photonic microwave generation in an optically pumped spin-VCSEL with optical feedback stabilization. *Opt. Lett.* 46, 3147-3150 (2021).
- ¹⁸⁷ Drong, M., Fördös, T., et al. Spin-VCSELs with local optical anisotropies: Toward terahertz polarization modulation. *Phys. Rev. Appl.* 15, 014041 (2021).