Transmission dépendant du spin dans des jonctions Fe / GaAs. Résultats, interprétations et modélisation.

Dans ce troisième chapitre, nous décrivons et discutons les résultats des expériences de transmission que nous avons menées sur différentes jonctions Schottky Fe / GaAs.¹ Dans une première partie, nous nous intéressons exclusivement à la structure Pd / Fe / GaAs dont l'analyse à très basse énergie est rapportée dans le Chapitre I, et nous présentons une étude détaillée de la transmission et de sa dépendance en spin pour des énergies d'injection comprises entre le niveau du vide de la couche de palladium et 1 keV. Les variations de ces deux quantités avec E_P sont alors interprétées phénoménologiquement. Puis, dans la deuxième partie de ce chapitre, nous proposons une approche semi-quantitative du transport. Le modèle que nous avons développé traduit de manière simple la propagation et la thermalisation de la distribution électronique injectée dans la jonction. Il prend notamment en compte les différents mécanismes de relaxation de l'énergie et intègre la variation du libre parcours moyen inélastique des électrons avec leur énergie dans la couche métallique. Enfin, nous présentons dans une troisième partie des mesures complémentaires effectuées sur d'autres jonctions du même type. Ces mesures confirment les résultats obtenus sur la première structure et mettent en évidence l'intérêt à poursuivre ces expériences de transmission en faisant varier les caractéristiques des jonctions (épaisseurs des couches, nature des matériaux, ...).

¹ Ces jonctions ont été réalisées à Thalès Research and Technology dans le cadre des travaux de thèse de A. Filipe, (Ecole Polytechnique, 1997) et de T. Wirth (Ecole Polytechnique, 2000).

III. 1 L'échantillon

III. 1. 1 Structure

L'échantillon étudié est composé d'une couche métallique de quelques nanomètres d'épaisseur déposée sur un semi-conducteur. Le substrat est en arséniure de gallium et est fortement dopé n $(10^{19} \text{ cm}^{-3})$ de manière à réaliser en face arrière de l'échantillon un contact ohmique pour la mesure du courant transmis. Une couche d'un micron de GaAs de type n, moins dopé $(10^{16} \text{ cm}^{-3})$, est alors épitaxiée sur ce substrat. Ce dopage modéré est nécessaire à l'obtention d'un bon contact redresseur après dépôt du métal. Préalablement au dépôt de fer, l'arséniure de gallium est oxydé par ozonation sous rayonnement ultra-violet. Le rôle de l'oxyde formé est de limiter l'interdiffusion entre le Fe et le GaAs. On évite ainsi la formation d'une couche magnétiquement morte à l'interface avec le GaAs, et on améliore la caractéristique électrique de la jonction. Cette couche d'oxyde est suffisamment mince (2 nm) pour que le transport des électrons se fasse par effet tunnel. L'influence de cette couche d'oxyde sera négligée par la suite. La couche de fer de 3,5 nm d'épaisseur est déposée sur la surface d'oxyde puis est recouverte de 5 nm de palladium pour prémunir le fer d'une oxydation durant le transport entre l'enceinte d'évaporation et la chambre d'étude. La structure de l'échantillon est donc la suivante : Pd (5,0 nm) / Fe (3,5 nm) / GaAs-n (10¹⁶ cm⁻³).

III. 1. 2 Caractéristiques électriques

Cette jonction peut être décrite par un circuit équivalent constitué d'une diode Schottky idéale caractérisée par un courant de saturation I₀ (voir Eq. II. 3) connectée en parallèle à une capacité C et une résistance R_P, l'ensemble étant en série avec une résistance R_S (Figure III. 1).² La capacité permet d'inclure, dans la description de l'échantillon, l'influence de la zone de charge d'espace sur la réponse du système à une excitation électrique alternative. La résistance parallèle R_P rend compte du comportement non idéal de la jonction sous polarisation inverse (existence de courants de fuite), et R_S inclut la résistance de contact et la résistance d'accès de la couche métallique.³ L'impédance différentielle Z de la jonction à tension de polarisation nulle est donc :

² A. Filipe, H.-J. Drouhin, G. Lampel, Y. Lassailly, J. Peretti, V. I. Safarov and A. Schuhl, *A new spin filter: the magnetic Schottky diode*, Proceedings of the MRS Spring Meeting (San Francisco, 1997).

³ E. H. Rhoderick and R. H. Williams, *Metal-Semiconductor contacts*, Clarendon Press, Oxford 1988 (2nd Ed.).

$$Z(\omega) = R_{\rm S} + \left(jC\omega + \frac{1}{R_{\rm P}} + \frac{eI_0}{k_{\rm B}\tau}\right)^{-1} \qquad \text{Eq. III. 1.}$$

où ω est la pulsation, k_B la constante de Boltzmann et τ la température de l'échantillon.



 $\label{eq:Figure III. 1} \end{tabular} : Circuit électrique équivalent à la jonction Schottky Pd / Fe / GaAs. Ce circuit est constitué d'une diode idéale, en parallèle avec une capacité C et une résistance R_P, l'ensemble étant en série avec une résistance R_S.$

La Figure III. 2 a) présente la caractéristique courant / tension de l'échantillon mesurée en continu ($\omega = 0$). Remarquons que cette courbe s'écarte rapidement du comportement idéal où I = I₀(exp(eV/k_B τ)-1). Pour V > 0,1 Volt, l'impédance différentielle est dominée par la résistance série R_S et la caractéristique devient linéaire. Pour V < 0,1 Volt, le régime d'avalanche apparaît. La jonction garde donc un comportement quasi-idéal (seuls R_P et la diode interviennent) dans une gamme de tension très étroite. En pratique, pour mieux décrire le courant autour de V = 0 (-0,1 < V < 0,1 Volt), on introduit un coefficient d'idéalité (noté n) de sorte que la relation qui relie le courant dans la jonction à la tension de polarisation s'écrit :

$$I = I_0 \exp\left(\frac{eV}{nk_B\tau}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{eV}{k_B\tau}\right)\right]$$
Eq. III. 2.

Le courant de saturation I₀ se met toujours sous la forme

$$I_0 = A^{**}S\tau^2 \exp\left(-\frac{e\phi_B}{k_B\tau}\right) \qquad \text{Eq. III. 3.}$$

où A^{**} est la constante de Richardson et S la surface de la jonction (dans notre cas, S est égale à 1,5×1,5 mm² = 0,0225 cm²). A partir de la caractéristique courant / tension et de l'équation III. 2, on détermine I₀ et le coefficient d'idéalité n, en traçant la fonction F(V) où

$$F(V) = Ln\left(\frac{I}{1 - exp\left(-\frac{eV}{k_{B}\tau}\right)}\right) = Ln(I_{0}) + \frac{eV}{nk_{B}\tau}$$
Eq. III. 4.

Cette courbe est représentée sur la Figure III. 1. b), dans un domaine restreint de tension où cette description reste valable.⁴



<u>Figure III. 2</u> : a) Caractéristique courant / tension de la jonction Schottky. b) Fonction F(V) permettant d'estimer le courant de saturation I_0 et le coefficient d'idéalité n de la jonction.

La pente de F(V) donne le coefficient d'idéalité n, et l'ordonnée à l'origine permet d'estimer I₀. On obtient donc n =1,25 et I₀ = 25 nA. A partir de l'expression de I₀ (Eq. III. 3), on peut estimer la hauteur de la barrière Φ_B à 0,7 eV en prenant A^{**} = 8,6 A.cm⁻².K^{-2.3} D'autre part, la pente de la tangente à la courbe I / V pour V = 0 donne Z(ω = 0) \approx 800 k Ω , et on en déduit que R_P \approx 4 M Ω .

III. 1. 3 Caractéristiques magnétiques

La caractérisation magnéto-optique de l'échantillon en géométrie de réflexion (Figure III. 3) montre que le cycle d'hystérésis présente une rémanence très proche de 100% et un champ coercitif H_C de 20 Oe environ. Le cycle ne dépend pas de l'orientation du champ magnétique appliqué dans le plan de la couche.

⁴ En effet, la description thermoionique de la jonction ne prend pas en compte le régime de claquage (dans notre cas lorsque V < -0,2 Volt) ni les effets de résistance série (V > -0,1 Volt pour notre jonction).



III. 2 Transmission et effet de filtre à spin

III. 2. 1 Courant injecté, courant base et courant collecteur

La Figure III. 4 représente, pour un faisceau d'électrons non polarisés, la variation avec l'énergie d'injection du courant I_E incident, du courant I_B absorbé par la couche métallique et du courant I_C collecté dans le semi-conducteur. Les conditions de fonctionnement de l'optique électronique décrite dans le chapitre précédent imposent un potentiel V_6 de la dernière électrode égal à 40 Volts. De ce fait, pour des valeurs de E_P comprises entre 5 et 80 eV, les conditions d'injection varient et I_E augmente typiquement d'un facteur deux. A partir d'une centaine d'eV, le potentiel de l'échantillon est plus attractif que les potentiels environnants et I_E devient constant. Dès lors, d'une part, tous les électrons injectés sont collectés dans l'échantillon, soit dans le contact métallique, soit dans le semi-conducteur (la quantité d'électrons primaires réémis ou réfléchis par la surface est faible et indépendante de E_P) et, d'autre part, aucun électron secondaire n'est émis par la surface. La conservation du courant impose alors que $I_E = I_B + I_C$.



<u>Figure III. 4</u> : Variations du courant I_E injecté dans la jonction, du courant I_B absorbé par la couche métallique, et du courant I_C collecté dans le semi-conducteur en fonction de l'énergie E_P . Pour $E_P = E^*$, $I_C = I_E$ et $I_B = 0$.

Dans l'expérience présentée ici, I_E vaut 180 nA. Jusqu'à 500 eV environ, I_C est très faible et I_B est constant et pratiquement égal à I_E . Au-delà de 500 eV, I_C croît fortement et atteint 1 μ A à $E_P = 1$ keV, signifiant que 5 à 6 électrons sont détectés dans le semi-conducteur

pour chaque électron injecté depuis le vide. Dans le même temps, la variation de I_B suit un comportement symétrique : I_B décroît, s'annule et change de signe pour atteindre une valeur inférieure à -800 nA à 1 keV. On peut d'ores et déjà remarquer qu'à haute énergie, la variation de I_C , qui est directement liée à la production d'électrons secondaires dans la couche de palladium, est plus rapide qu'une variation linéaire, contrairement aux résultats obtenus précédemment dans la gamme des faibles énergies d'injection (voir le Chapitre I).

III. 2. 2 Transmission et dépendance en spin

Nous rappelons ici que lorsqu'un faisceau d'électrons non polarisés est injecté dans la jonction, on définit la transmission T comme le rapport $T = I_C / I_E = I_C / (I_B + I_C)$. Lorsque le faisceau est polarisé, le courant transmis dépend de l'orientation relative du spin des électrons incidents et de l'aimantation de la couche magnétique. On note ces courants I_C^+ et I_C^- pour une direction de spin parallèle et antiparallèle à l'aimantation. On définit alors ΔT comme la différence de transmission lorsque la polarisation du faisceau incident est renversée : $\Delta T = \Delta I_C / I_E = \Delta I_C / (I_B + I_C)$ où $\Delta I_C = I_C^+ - I_C^-$. La Figure III. 5 présente les variations de T et ΔT pour des énergies d'injection comprises entre le niveau du vide de la couche de palladium et 1000 eV.



<u>Figures III. 5</u> : Transmission T (a) et sa dépendance en spin Δ T (b) en fonction de l'énergie d'injection E_P. Ces deux quantités ne suivent plus à haute énergie d'injection les comportements décrits dans le Chapitre I.

Insistons sur le fait que dans toutes les expériences de transmission d'électrons polarisés au travers de couches minces ferromagnétiques effectuées jusqu'alors dans le domaine des faibles énergies d'injection, T augmentait quasi linéairement avec E_P et ΔT restait constant. Dans les expériences présentées ici, il est clair que les variations de T et ΔT sont radicalement différentes à haute énergie d'injection, puisque à la fois T et ΔT augmentent de façon spectaculaire avec E_P . Ce fait expérimental indique que, dans le domaine d'énergie étudié, intervient une modification des mécanismes régissant le transport dans la jonction Schottky. Ces comportements de la transmission et de sa dépendance en spin, ainsi que les changements correspondants des régimes du transport sont plus clairement visualisés lorsque les variations de T et ΔT sont présentées en échelle logarithmique (Figure III. 6). Il apparaît ainsi que ces deux quantités augmentent sur 5 et 4 ordres de grandeur respectivement entre 5 et 1000 eV.



<u>Figure III. 6</u> : Transmission T et sa dépendance en spin Δ T en fonction de l'énergie d'injection E_P en échelle logarithmique. Ces quantités augmentent respectivement sur 5 et 4 ordres de grandeur entre 5 et 1000 eV.

D'autre part, ces variations mettent en évidence trois régimes de transport dans les domaines d'énergie [5, 60], [60, 350], et [350, 1000]. Entre 5 et 60 eV, T croît linéairement avec E_P et ΔT est constant : c'est le régime usuel à basse énergie, observé dans l'ensemble des expériences précédentes de transmission. Dans les deux autres domaines d'énergie, les variations de T et ΔT suivent aussi des lois de puissance, mais avec des exposants sensiblement égaux à 2 puis 8 pour T, et inférieur à 1 puis supérieur à 8 pour ΔT . Le point crucial ici est que ces trois domaines d'énergie correspondent à des modifications simultanées des variations de T et de ΔT . On peut donc raisonnablement penser que l'augmentation de ΔT

n'est pas due à un changement dans les interactions dépendant du spin, mais est corrélée à une modification générale des régimes du transport.

La distribution électronique qui se forme dans la couche métallique à mesure du transport est caractérisée par deux quantités : son amplitude, c'est-à-dire le nombre d'électrons secondaires qui la composent, et sa largeur qui peut être assimilée à son énergie moyenne E_{moy} . Lorsque E_P est inférieure à 60 eV, les faits expérimentaux sont compatibles avec un régime de transport où la largeur de la distribution transmise est indépendante de E_P et où seule son amplitude change avec l'énergie d'injection. En revanche, à haute énergie d'injection, T augmente plus rapidement que linéairement, ce qui ne peut se produire que si la largeur de la distribution incidente est par conséquent un pré-requis à l'analyse des résultats, et il est indispensable d'évaluer dans quelle mesure ces mécanismes peuvent entraîner un élargissement de la distribution quand l'énergie d'injection augmente.

III. 3 Modélisation et analyse des résultats

III. 3. 1 Principe du modèle

III. 3. 1. 1 Hypothèses

L'interaction d'un faisceau d'électrons avec une surface métallique est un sujet qui a été largement étudié au cours du vingtième siècle, notamment pour interpréter les mesures de spectroscopies électroniques.⁵ De nombreux travaux ont été menés dans des gammes d'énergie très différentes et sur une grande variété de matériaux, mais par nature, les concepts et les modèles développés ne s'appliquent qu'aux électrons ayant subi peu de collisions. Ils sont par conséquent difficilement transposables à notre configuration de mesure. De plus, très peu d'expérience en géométrie de transmission ont été réalisées à ce jour, et l'étude du transport dans la gamme d'énergie qui nous intéresse est un domaine pratiquement vierge.

La description quantitative du transport d'une distribution électronique injectée dans un métal avec une énergie cinétique beaucoup plus grande que l'énergie de Fermi est un problème complexe. Elle doit en effet prendre en compte les différents mécanismes de relaxation de l'énergie et du vecteur d'onde au cours des collisions ainsi que leur efficacité et probabilité respectives en fonction de l'énergie. Il faut également introduire dans notre cas la polarisation de spin de la distribution électronique et inclure dans la description du transport d'éventuels effets de dépolarisation. De plus, il ne suffit pas de déterminer la propagation et la relaxation de cette distribution, mais il faut également tenir compte de la génération d'électrons secondaires dont le nombre augmente au cours de la traversée de la couche métallique et dont les caractéristiques diffèrent de celles des électrons incidents. Il ne s'agit donc pas ici de développer un modèle décrivant quantitativement les mesures obtenues car un tel objectif nécessite de mettre en œuvre une méthode de simulation numérique élaborée qui sort du cadre expérimental de ce travail. Néanmoins, nous allons présenter un modèle très simplifié qui permet d'évaluer la pertinence des mécanismes principaux régissant la thermalisation de la distribution injectée dans la jonction pour interpréter les variations de T et de ΔT avec l'énergie d'injection.

⁵ D. P. Woodruff and T. A. Delchar, *Modern techniques of surface science*, Cambridge University Press, edited by R. W. Cahn, E. A. Davis and I. M. Ward, 1986.

Pour simplifier le problème autant que possible, le transport d'un électron d'énergie initiale E_P au travers de la jonction est modélisé sous les hypothèses suivantes :

- Les variations avec E_P de T et de ΔT étant corrélées sur tout le domaine d'énergie sondé, il suffit en première approximation de décrire le comportement de T pour en déduire celui de ΔT . La polarisation de spin des électrons est donc totalement ignorée, et l'effet de filtre à spin dans la couche de fer sera introduit phénoménologiquement.

- La variation avec l'énergie du libre parcours moyen λ des électrons suit une loi "universelle" où, à basse énergie, λ diminue quand l'énergie augmente et où, à haute énergie, λ croît avec l'énergie. Dans ce régime à haute énergie, il est bien connu qu'à la fois les collisions électron / électron et l'excitation de plasmons contribuent au libre parcours moyen. Nous considérerons ces deux mécanismes.

- Dans le cas d'une interaction entre deux électrons, l'électron incident perd en moyenne, à chaque collision, la moitié de son énergie initiale. Cette énergie est cédée au solide et permet de promouvoir un électron de la bande de conduction du métal dans un état excité inoccupé (émission d'un électron secondaire). D'autre part, l'électron incident répartit son vecteur d'onde k de manière isotrope sur l'électron secondaire qu'il génère dont le vecteur d'onde est en moyenne nul dans la bande de conduction : c'est l'approximation des k aléatoires. Le transport dans la couche métallique est ainsi diffusif.

- Dans le cas de l'excitation d'un plasmon, l'électron incident perd une quantité d'énergie négligeable devant son énergie initiale (régime à haute énergie) et ne transfert qu'une faible fraction de son vecteur d'onde au plasmon qu'il génère. Puisque l'électron incident diffuse alors "vers l'avant" sans que son état initial ne soit sensiblement modifié par l'interaction, on considérera que l'excitation d'un plasmon réduit simplement l'épaisseur effective de métal traversée dans le régime diffusif décrit précédemment.

- La relaxation de l'énergie est un processus très efficace de sorte que la distribution électronique à l'interface métal / semi-conducteur peut être considérée comme "thermalisée", et définie par son énergie moyenne E_{moy} .

III. 3. 1. 2 Modélisation de T et de ΔT

Pour décrire les variations de la transmission avec E_P , il nous faut déterminer le nombre d'électrons N(E) à l'énergie E, contenu dans la distribution injectée dans le semiconducteur. Pour cela, nous devons choisir une forme de la probabilité f(E) de trouver un électron à l'énergie E dans cette distribution. Dans ce modèle, on suppose par commodité que f(E) suit une loi de Boltzmann :

$$f(E) = \frac{1}{E_{moy}} \exp\left(-\frac{E}{E_{moy}}\right)$$
Eq. III. 5.

Comme nous allons le voir, seule E_{moy} est la quantité pertinente pour décrire T et ΔT ; la forme de f(E) n'a donc pas d'importance particulière. Le nombre d'électrons N(E) vaut alors

$$N(E) = N_0 M(E_P) f(E)$$
Eq. III. 6.

où N₀ est le nombre d'électrons injectés depuis le vide et $M(E_P)$ le facteur multiplicatif moyen de l'ensemble de la distribution injectée dans le semi-conducteur dû à la génération d'électrons secondaires dans la couche métallique. En d'autres termes, pour se "thermaliser", un électron primaire d'énergie initiale E_P répartit en moyenne son énergie sur E_P / E_{moy} électrons secondaires, et

$$M(E_{p}) = \frac{E_{p}}{E_{moy}}$$
Eq. III. 7.

D'où :

$$N(E) = N_0 \frac{E_P}{E_{moy}} \frac{1}{E_{moy}} exp\left(-\frac{E}{E_{moy}}\right)$$
Eq. III. 8.

Puisque le courant collecté dans le semi-conducteur ne comprend que les électrons dont l'énergie est supérieure à Φ_B à l'interface fer / arséniure de gallium, la transmission s'écrit :

$$T = \frac{1}{N_0} \int_{\Phi_B}^{E_P} N(E) dE \qquad Eq. III. 9.$$

et on obtient

$$T = \frac{E_{P}}{E_{moy}} \exp\left(-\frac{\phi_{B}}{E_{moy}}\right)$$
 Eq. III. 10.

Dans ce modèle, ΔT est déterminée au travers de l'asymétrie A du courant transmis lorsque l'on renverse l'aimantation de la couche de fer. On rappelle que l'asymétrie A s'écrit $A = (I_C^+ - I_C^-)/(I_C^+ + I_C^-)$ où I_C^\pm est le courant collecté dans le semi-conducteur lorsque les spins incidents sont parallèles (+) ou antiparallèles (-) aux spins majoritaires de la couche de fer. Par définition, A est donc égale à $\Delta T / 2T$. D'autre part, comme nous l'avons vu dans le Chapitre I (Eq. I. 9), l'asymétrie est égale au produit de la polarisation P que "voit" le filtre à spin par la sélectivité en spin S de la couche de fer : $A = S \times P$. Par conséquent, A = 0 s'il n'y a pas d'effet de filtre à spin, c'est-à-dire si P = 0 et / ou si S = 0 (couche non magnétique). La quantité S est comprise entre 0 et 1 et a été estimée à 0,8 dans notre jonction.⁶ Comme pour la transmission, seuls comptent dans la détermination de ΔT les électrons qui ont conservé une énergie supérieure ou égale à la hauteur Φ_B de la barrière Schottky à l'interface métal / semiconducteur. Dans cette fraction de la distribution, le rapport $D(E_P)$ entre le nombre d'électrons secondaires et le nombre d'électrons "primaires" qui ont gardé une mémoire de leur polarisation initiale P_0 est tel que :

L'excitation d'électrons secondaires dans la couche métallique se traduit donc par une dilution de la polarisation P_0 d'un facteur $D(E_P)$, et la polarisation P effectivement filtrée par la couche ferromagnétique est :

$$P = \frac{P_0}{D(E_P)} = P_0 \frac{\phi_B + E_{moy}}{E_P}$$
 Eq. III. 12.

On peut donc écrire que

$$A = \frac{\Delta T}{2T} = P S = \frac{P_0}{D(E_P)}S = P_0 S \frac{\phi_B + E_{moy}}{E_P}$$
Eq. III. 13.

et on en déduit que

$$\Delta T = 2P_0 S \frac{\phi_B + E_{moy}}{E_P} T \qquad \qquad \text{Eq. III. 14.}$$

D'après les équations III. 10 et III. 14, la détermination de E_{moy} en fonction de E_P suffit à déterminer les variations de T et de ΔT avec E_P .

III. 3. 1. 3 Détermination de E_{moy}

Soit n le nombre de collisions qu'un électron d'énergie initiale E_P subit avant de traverser l'ensemble de la couche métallique. Puisque nous avons supposé qu'un électron perd en moyenne la moitié de son énergie initiale à chaque collision, son énergie E_{moy} à l'interface métal / semi-conducteur est donnée par la relation

$$E_{moy} = E_P / 2^n \qquad \qquad Eq. III. 15.$$

⁶ A. Filipe, Jonction métal ferromagnétique / semi-conducteur : structure et magnétisme d'interface, transport électronique et dépendance en spin, thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (1997).

Le nombre n détermine donc entièrement E_{moy} . D'autre part, si l'on suppose que le transport dans la jonction est diffusif, nous pouvons relier le nombre de collision n à l'épaisseur d de la couche métallique :

$$3d^2 = \sum_{i=0}^{n-1} \lambda^2(E_i)$$
 Eq. III. 16.

où $\lambda(E_i)$ est le libre parcours moyen de l'électron considéré à l'énergie E_i après i collisions. La connaissance de la distance parcourue entre deux collisions en fonction de l'énergie permet ainsi de déterminer n par la relation III. 16 et d'en déduire E_{moy} via l'équation III. 15. En pratique, nous nous placerons dans la limite d'un grand nombre de collisions de manière à relier directement E_{moy} à $\lambda^2(E)$:

$$3d^{2} = \int_{E_{moy}}^{E_{p}} \lambda^{2}(E) \frac{dE}{\ln(2)E}$$
 Eq. III. 17.

Pour déduire E_{moy} de l'équation III. 17, il est indispensable de connaître la loi de variation du libre parcours moyen λ avec l'énergie.

III. 3. 2 Variation du libre parcours moyen inélastique avec l'énergie

Un électron injecté dans un solide avec une énergie comprise entre 1 et 1000 eV peut relaxer son énergie par différents processus. Si l'on néglige l'interaction électron / phonon qui conduit à des variations d'énergie trop faibles pour transférer efficacement au solide l'énergie initiale, les mécanismes principaux de pertes d'énergie sont les excitations collectives (excitations de plasmons) et les excitations individuelles (collisions électron / électron) avec les états de conduction et les niveaux de cœur. Cependant, les interactions avec les niveaux de cœur, bien connues dans les expériences de spectroscopie électronique, sont associées à des libres parcours moyens généralement deux ordres de grandeur supérieurs à ceux mis en jeu dans les deux autres processus.⁵ Dans la gamme d'énergie explorée, nous les négligerons, et seules interviendront les interactions avec les électrons de conduction et les excitations avec les électrons de conduction et les niveaux.

Expérimentalement, on constate que le libre parcours moyen inélastique λ d'un électron est une fonction non monotone de l'énergie. A très faibles énergies (E - E_F \approx 1eV), il peut être de plusieurs dizaines de nm dans un métal, puis décroît rapidement pour atteindre une valeur minimale de l'ordre de l'angström à quelques dizaines d'eV. A basse énergie, la

variation de λ est alors dominée par le taux de collisions électron / électron qui est proportionnel au produit de la densité d'états vides par la densité d'états occupés. On vérifie alors simplement que $\lambda \propto (E-E_F)^{-2}$. La divergence du libre parcours moven quand E tend vers E_F est compensée par l'interaction électron / phonon qui devient dominante pour des énergies inférieures à 1 eV. Au-delà de la centaine d'eV, le libre parcours moyen des électrons augmente avec leur énergie cinétique. Le problème est alors moins évident car si le taux de collisions augmente avec l'énergie (effet de densité d'états), la section efficace de diffusion diminue fortement lorsque l'énergie croît. Les calculs théoriques sont ainsi longtemps restés appliqués aux matériaux "idéaux" à électrons libres.⁷ Plus récemment, de nouvelles études,⁸ étendues à l'or et à l'argent, ont permis de justifier théoriquement une augmentation de λ en E^{1/2} au-dessus de 100 eV. La Figure III. 8 présente les variations avec l'énergie des libres parcours moyens associés aux collisions électron / électron (λ_e) et aux collisions électron / plasmon (λ_p) dans l'aluminium.⁷ Notons que λ_e et λ_p ont des variations et des amplitudes très similaires en fonction de l'énergie. Ainsi, à haute énergie, le libre parcours moyen total (λ_{tot}) d'un électron résulte des collisions entre électrons et des excitations de plasmons. Pour une analyse plus exhaustive, on pourra se référer au travail de Penn.⁹



<u>Figure III. 8</u> : D'après la référence 7. Variation avec l'énergie du libre parcours moyen associé aux collisions électron / électron (λ_e), aux collisions électron / plasmon (λ_p), et aux deux types de collisions (λ_{tot}). Ces calculs ont été réalisés pour l'aluminium.

⁷ J. J. Quinn, Range of excited electrons in metals, Phys. Rev. **126**, 1453 (1962).

⁸ D. R. Penn, *Electron mean-free-path calculations using a model dielectric function*, Phys. Rev. B **35**, 482 (1987).

⁹ D. R. Penn, *Electron mean free paths for free-electron-like materials*, Phys. Rev. B **13**, 5248 (1976).

De manière très générale, et indépendamment de la nature du matériau considéré, Seah et Dench ont montré que la variation du libre parcours moyen λ d'un électron suit une loi "universelle", où λ varie en E^{1/2} à haute énergie et en E⁻² à très basse énergie. En particulier, pour les métaux, λ suit la loi phénoménologique : $\lambda = A.E^{-2} + B.E^{1/2}$ où A et B sont des réels positifs (A = 140 et B = 0,054).¹⁰ Pour une énergie de l'ordre de 40 eV (notée E_{min}), tous les métaux présentent alors un libre parcours moyen qui est minimum (noté λ_{min}) et de l'ordre de 4 angströms. Néanmoins, d'autres mesures ont mis en défaut ce comportement "universel" à basse énergie, et les valeurs de λ sont souvent bien plus faibles pour les énergies inférieures à 10 eV que les valeurs prédites par Seah et Dench. Par exemple, les longueurs d'atténuation dans le cobalt, obtenues en microscopie d'électrons balistiques (BEEM) pour des énergies comprises entre 1 et 2 eV au-dessus du niveau de Fermi, sont davantage de l'ordre de 2 à 3 nm plutôt que de 100 nm. Tanuma et al. ont ainsi incorporé les propriétés de chaque métal (densité, nombre atomique, nombre d'électrons de valence) dans l'estimation de λ ,¹¹ et une variation de λ en E^{-1/2} à basse énergie est mieux appropriée qu'une loi en E⁻².

La loi la plus naturelle à introduire dans notre modèle pour décrire λ est la loi de Seah et Dench corrigée à basse énergie. Expérimentalement, le premier changement de régime de transport que nous observons intervient à $E_P = 60$ eV. Pour limiter le nombre de paramètres ajustables et prendre en compte cette valeur expérimentale, nous imposons $E_{min} = 60$ eV plutôt que 40 eV. On a alors,

pour $E < E_{min}$

$$\lambda = \lambda_{\min} \sqrt{\frac{E_{\min}}{E_{P}}}$$
 Eq. III. 18.

pour $E_{min} < E$

$$\lambda = \lambda_{\min} \sqrt{\frac{E_P}{E_{\min}}}$$
 Eq. III. 19.

La Figure III. 9 représente la loi "universelle" et la loi définie par les équations III. 18 et III. 19 que nous avons prise pour ce modèle avec λ_{min} égal à 4 angströms.

¹⁰ M. P. Seah and W. A. Dench, *Quantitative electron spectroscopy of surfaces: a standard data base for electron inelastic mean free paths in solids,* Ann. Physik **1**, 2 (1979).

¹¹ S. Tanuma, C. J. Powell and D. R. Penn, *Material dependence of electron inelastic mean free path at low energies*, J. Vac. Sci. Technol. A **8**, 2213 (1990).



<u>Figures III. 9</u> : Libre parcours moyen inélastique d'un électron dans un métal en fonction de son énergie : loi "universelle" et loi choisie pour le modèle.

Remarquons que notre loi présente par définition un point singulier pour une énergie de 60 eV. Comme nous allons le voir dans le paragraphe III. 3. 3, le choix d'une fonction continue par morceaux plutôt qu'une loi de la forme

$$\lambda = \frac{\lambda_{\min}}{2} \left(\sqrt{\frac{E_{P}}{E_{\min}}} + \sqrt{\frac{E_{\min}}{E_{p}}} \right)$$
 Eq. III. 20.

permet d'extraire une expression analytique de Emoy.

Lorsque les électrons sont injectés dans la jonction à une énergie supérieure à plusieurs dizaines d'eV, ils ont une probabilité similaire d'exciter un plasmon ou d'interagir avec un électron de conduction. Contrairement aux collisions électron / électron, l'excitation d'un plasmon se traduit par une faible perte d'énergie, indépendante de l'énergie initiale et de 7 eV environ dans le palladium.¹² De plus, elle s'accompagne d'un faible transfert de vecteur d'onde, de l'ordre de 1 angström,¹³ et l'électron diffuse "vers l'avant". Par conséquent, après l'excitation d'un plasmon, on considérera que l'état de l'électron incident n'est pas modifié. Bien que tout se passe alors comme s'il n'y avait pas d'interaction, insistons sur le fait que l'excitation d'un plasmon permet à l'électron incident de parcourir une épaisseur du métal en le maintenant dans son état initial. L'excitation d'un plasmon agit donc comme un retard à la

¹² M. Rocca, *Low-energy EELS investigation of surface electronic excitations on metals*, Surf. Sci. Reports **22** (1995).

¹³ H. Raether, *Excitation of plasmons and interband transitions by electrons*, Springer-Verlag, Berlin, 1980.

thermalisation en réduisant le nombre de collisions nécessaires pour qu'un électron parvienne à l'interface métal / semi-conducteur dans un transport purement diffusif.

Dans ce modèle, l'image du transport lorsque E_P est supérieure à E_{min} est la suivante : un électron qui pénètre dans la couche métallique subit une première diffusion "vers l'avant" en excitant un plasmon. Son énergie et son vecteur d'onde sont supposés inchangés et il traverse une épaisseur de métal égale à la quantité $\lambda(E_P) - \lambda(E_{min})$ correspondant à la contribution au libre parcours moyen de la collision avec le plasmon. L'électron subit ensuite une deuxième collision avec un électron de conduction. L'électron incident perd la moitié de son énergie et redistribue son vecteur d'onde de manière aléatoire. Toute collision supplémentaire, avec un plasmon ou un électron, n'aura alors plus tendance à faire diffuser l'électron vers l'avant, et le transport est supposé purement diffusif. Lorsque E_P est supérieure à E_{min} , nous remplaçons donc dans l'expression III. 17 l'épaisseur d de la couche métallique par une épaisseur effective d_{eff} telle que :

$$d_{eff} = d - (\lambda(E_P) - \lambda(E_{min}))$$
 Eq. III. 21.

III. 3. 3 Modélisation de T et de ΔT : première analyse

III. 3. 3. 1 Résultats

 $Les \ équations \ III. \ 17, \ 18, \ 19 \ et \ 21 \ permettent \ de \ déterminer \ E_{moy} \ en \ fonction \ de \ E_P:$ - pour $E_P < E_{min}$

$$E_{moy} = \frac{E_{p}}{1 + \frac{3\ln(2)d^{2}}{\lambda_{min}^{2}} \frac{E_{p}}{E_{min}}}$$
Eq. III. 22.

- pour $E_{min} < E_P$, la sommation des carrés des libres parcours moyens se fait en deux temps : une première sommation de E_P à E_{min} et une deuxième de E_{min} à E_{moy} :

$$E_{moy} = \frac{E_{min}}{1 + \frac{3\ln(2)d_{eff}^2}{\lambda_{min}^2} - \left(\frac{E_P}{E_{min}} - 1\right)}$$
Eq. III. 23.

La fonction $E_{moy}(E_P)$ peut ainsi être déterminée et les valeurs de T et de ΔT calculées pour $5 < E_P < 1000$ eV. Les différents paramètres intervenant dans les équations III. 10, 14, 22 et 23 sont, soit imposés par l'expérience (Φ_B , d, E_{min}), soit issu de travaux antérieurs (S).⁶ Le

seul paramètre ajustable est λ_{min} dont nous choisissons la valeur autour de 4 angströms afin de retrouver les valeurs mesurées de la transmission à basse énergie d'injection. Les calculs ont été effectués avec les valeurs suivantes des paramètres du problème :

$$\Phi_{\rm B} = 0.7 \text{ eV}$$
; d = 8.5 nm; E_{min} = 60 eV

$$S = 0.8$$
;

 $\lambda_{\min} = 0,3365 \text{ nm}.$

La figure III. 10 présente les résultats expérimentaux (symboles) et numériques (traits pleins) obtenus pour la transmission T et sa dépendance en spin ΔT en échelle logarithmique.



<u>Figure III. 10</u> : Variation de la transmission T (a) et de sa dépendance en spin Δ T (b) en fonction de l'énergie d'injection E_P. Les symboles (pleins) reliés par un trait continu représentent les valeurs calculées et les symboles seuls représentent les valeurs mesurées. Le modèle permet de bien décrire les deux premiers régimes de transport observés expérimentalement.

Les variations avec E_P de la transmission et de sa dépendance en spin sont en très bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus pour les deux premiers régimes de transport. Le changement de régime observé pour une énergie d'injection de l'ordre de 60 eV est notamment bien décrit, à la fois pour T et pour ΔT . Néanmoins, ce modèle ne permet pas de rendre compte du comportement de T et de ΔT lorsque E_P est supérieure à quelques centaines d'eV.

III. 3. 3. 2 Interprétations

Par construction, le deuxième régime de transport calculé dans ce modèle lorsque E_P est supérieure à E_{min} peut avoir deux origines distinctes : d'une part, l'augmentation du libre parcours moyen lorsque l'énergie croît, d'autre part, la diminution de l'épaisseur effective de métal traversée lors de l'excitation de plasmons. Dans le premier cas, à mesure que E_P augmente, les électrons incidents pénètrent de plus en plus profondément dans la couche métallique avant de subir une collision et ce, indépendamment de l'existence de plasmons. La loi de variation du libre parcours moyen avec l'énergie agit donc comme un retard à la thermalisation, et l'énergie moyenne E_{moy} croît avec E_P . En élargissant la distribution injectée dans le semi-conducteur, cette seule loi devrait conduire à une augmentation de la transmission plus rapide qu'une variation linéaire avec E_P . Elle devrait également permettre de comprendre une augmentation de la dépendance en spin de la transmission en diminuant le facteur de dilution $D(E_P)$. Cependant, si l'on ne considère que la remontée du libre parcours moyen avec l'énergie en négligeant l'influence des plasmons, le modèle montre que E_{moy} est constante sur toute la gamme d'énergie. Ceci traduit le fait que le terme

$$\frac{3\ln(2)d^2}{\lambda_{\min}^2} \frac{E_P}{E_{\min}}$$
 Eq. III. 24.

dans l'équation III. 22 est toujours très grand devant 1 de sorte que

$$E_{moy} \approx \frac{1}{3\ln(2)} \left(\frac{\lambda_{min}}{d}\right)^2 E_{min}$$
 Eq. III. 25.

En conséquence, T augmente linéairement avec E_P (Eq. III. 10) et ΔT est indépendant de E_P (Eq. III. 14). En revanche, la diminution de l'épaisseur effective de métal traversée introduite pour décrire les collisions électron / plasmon permet d'élargir suffisamment la distribution injectée dans le semi-conducteur pour que E_{moy} augmente de manière significative avec E_P (Figure III. 11).



<u>Figure III. 11</u> : Energie E_{moy} de la distribution à l'interface métal / semi-conducteur en fonction de E_P dans le cas où la loi de variation du libre parcours moyen avec l'énergie et la diminution de l'épaisseur effective de métal traversée sont prises en compte. En pointillés est représentée la variation de E_{moy} obtenue en ne considérant dans le modèle que la variation du libre parcours moyen avec l'énergie.

III. 3. 4 Retour sur l'approximation des k aléatoires

Plus généralement, tout mécanisme permettant de réduire l'épaisseur effective de métal traversée par la distribution électronique se traduira par une augmentation plus forte de T, et donc de Δ T, avec l'énergie d'injection. Or, l'approximation des k aléatoires, qui constitue l'une des hypothèses fondamentales de ce modèle, néglige l'anisotropie du processus de diffusion. En effet, lorsque deux particules chargées sont en interaction coulombienne, la section efficace de diffusion dépend fortement de l'angle de diffusion θ entre les deux charges (diffusion de Rutheford). En particulier, la variation de la section efficace avec θ favorise la diffusion "vers l'avant". Cette anisotropie étant d'autant plus prononcée que l'énergie de l'électron incident est grande, la nature même de l'interaction coulombienne a pour conséquence de diminuer d_{eff} aux hautes énergies d'injection.

La prise en compte rigoureuse de l'interaction coulombienne pour décrire l'évolution de la distribution électronique au cours du transport est un problème difficile qui nécessite de réaliser une simulation numérique. Pour tester l'influence de l'anisotropie de la section efficace de diffusion sur la variation de T et de ΔT , nous allons nous placer dans le cadre

d'une approximation cinématique et nous allons calculer l'angle de diffusion moyen après chaque collision en fonction de l'énergie de l'électron incident. On suppose donc que les électrons se comportent comme des particules libres d'énergie cinétique E_P référencée par rapport au niveau de Fermi :

$$E_{\rm P} = \frac{\hbar^2 (k^2 - k_{\rm F}^2)}{2m}$$
 Eq. III. 26.

où k est le vecteur d'onde, $k_F = \sqrt{2mE_F / \hbar^2}$ et m est la masse de l'électron.

Considérons alors un électron primaire, d'énergie E_P et de vecteur d'onde k_1 , pénétrant dans la couche métallique et interagissant avec un électron de conduction d'énergie E_F et de vecteur d'onde k_2 . Supposons qu'au cours de la collision une énergie ε soit échangée : après la collision, un des électrons se retrouve à l'énergie E_P - ε avec un vecteur d'onde k'_1 tandis que l'autre se retrouve à l'énergie ε avec un vecteur d'onde k'_2 . La conservation de l'énergie et du vecteur d'onde permet d'écrire les deux relations suivantes :

$$k_1^2 + k_2^2 = k_1^{/2} + k_2^{/2}$$
 Eq. III. 27.

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_1^{\,\prime} + \vec{k}_2^{\,\prime}$$
 Eq. III. 28.

soit, en décomposant le vecteur d'onde k en une composante transverse k_t et une composante longitudinale k_l :

$$k_{1t} + k_{2t} = k'_{1t} + k'_{2t}$$
 Eq. III. 29.

$$k_{11} + k_{21} = k_{11}^{\prime} + k_{21}^{\prime}$$
 Eq. III. 30.

Avec les conditions initiales

$$k_{21} = k_{2t} = k_{1t} = 0$$
 Eq. III. 31.

$$k_{11} = k_1$$
 Eq. III. 32.

et les relations obtenues à partir de l'équation III. 26, nous pouvons écrire que

$$k_{1}^{/2} = k_{1}^{2} \frac{1 + \frac{E_{P} - \varepsilon}{E_{F}}}{1 + \frac{E_{P}}{E_{F}}}$$
Eq. III. 33.

$$k_{2}^{/2} = k_{F}^{2} \frac{1 + \frac{\varepsilon}{E_{F}}}{2}$$
Eq. III. 34.

On déduit l'expression du cosinus de l'angle de diffusion θ_1 après la première collision :¹⁴

¹⁴ Le détail du calcul est proposé dans l'Annexe 2.

$$\cos(\theta_1) = \frac{1}{2} \frac{1 + \frac{2(E_P - \varepsilon)}{E_F}}{\sqrt{\left(1 + \frac{E_P - \varepsilon}{E_F}\right)\left(1 + \frac{E_P}{E_F}\right)}}$$
Eq. III. 35.

La distance parcourue "vers l'avant" après cette collision est donc :

De manière plus générale, après n collisions :

$$\cos(\theta_{n}) = \frac{1}{2} \frac{1 + \frac{2(E_{p} - n\varepsilon)}{E_{F}}}{\sqrt{\left(1 + \frac{E_{p} - n\varepsilon}{E_{F}}\right)\left(1 + \frac{E_{p} - (n-1)\varepsilon}{E_{F}}\right)}}$$
Eq. III. 37.

Par rapport au deuxième régime, la distance supplémentaire parcourue "vers l'avant" après n collisions vaut :

$$\sum_{i=0}^{n-1} \lambda(E_{P} - i\epsilon) \prod_{j=1}^{i} \cos(\theta_{j})$$
 Eq. III. 38.

ce qui donne comme nouvelle expression de d_{eff} pour le troisième régime :

$$d_{eff} = d - \left[\sum_{i=0}^{n-1} \lambda(E_{P} - i\epsilon) \prod_{j=1}^{i} \cos(\theta_{j})\right] - \left[(\lambda(E_{C}) - \lambda(E_{\min}))\right] \qquad \text{Eq. III. 39.}$$

Remarquons qu'une diffusion "vers l'avant" est associée à un faible échange de vecteur d'onde durant la collision, c'est-à-dire à un faible transfert d'énergie vers l'électron secondaire. La remise en cause de l'approximation des k aléatoires remet également en cause l'hypothèse selon laquelle l'énergie échangée à chaque collision est la moitié de l'énergie de l'électron incident. Pour décrire le troisième régime de transport, nous introduisons arbitrairement l'énergie $E_C = 350$ eV à partir de laquelle, d'une part, nous prenons dans l'expression de E_{moy} la nouvelle forme de d_{eff} (Eq. III. 39) et, d'autre part, nous considérons que ε est indépendant de E_P et égale à $E_C / 2$.

La transmission T est la somme de deux transmissions, l'une venant de la thermalisation de la distribution injectée depuis le vide, l'autre venant de la thermalisation de la distribution d'électrons secondaires générés à $E_C / 2$.

$$T = \frac{E_{C}}{E_{moy}(E_{P})} exp\left(-\frac{\phi_{B}}{E_{moy}(E_{P})}\right) + \left(\frac{E_{P} - E_{C}}{\epsilon}\right) \frac{\epsilon}{E_{moy}(\epsilon)} exp\left(-\frac{\phi_{B}}{E_{moy}(\epsilon)}\right) Eq. III. 40.$$

De fait, le facteur de dilution n'est plus exactement égal à $E_p / (\phi_B + E_{moy})$. Une expression plus précise s'obtient en divisant le nombre d'électrons "primaires" au-dessus de Φ_B à l'interface métal / semi-conducteur, par le nombre total d'électrons :

$$D(E_{P}) = \frac{E_{C}}{\phi_{B} + E_{moy}} (1 + B)$$
 Eq. III. 41.

Où

$$B = \frac{E_{P} - E_{C}}{E_{C}} \frac{E_{moy}(E_{P})}{E_{moy}(\varepsilon)} exp\left(-\phi_{B}\left(\frac{1}{E_{moy}(\varepsilon)} - \frac{1}{E_{moy}(E_{P})}\right)\right)$$
Eq. III. 42.

Par conséquent,

$$\Delta T = 2P_0 S \frac{\phi_B + E_{moy}}{E_C} \frac{1}{1+B} T$$
 Eq. III. 43.

La Figure III. 12 représente les variations de T et de ΔT en fonction de E_P obtenues expérimentalement et numériquement après avoir pris en compte la relaxation du vecteur d'onde. Dans ce calcul, l'énergie de Fermi E_F est égale à 10 eV.



<u>Figure III. 12</u> : Variation de la transmission T (a) et de sa dépendance en spin Δ T (b) en fonction de l'énergie d'injection E_P. Les symboles (pleins) reliés par des pointillés représentent les valeurs calculées et les symboles seuls représentent les valeurs mesurées.

Les variations avec E_P de la transmission et de sa dépendance en spin sont en bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus pour l'ensemble de la gamme d'énergie sondée.

L'introduction arbitraire de l'énergie E_C à partir de laquelle le transport s'écarte d'un régime diffusif permet de décrire qualitativement l'augmentation brutale de la transmission et de sa dépendance en spin avec E_P pour les hautes énergies d'injection.

III. 3. 5 Analyse et limites du modèle

Pour déterminer les mécanismes principaux régissant la thermalisation et la propagation de la distribution électronique injectée dans la jonction, nous avons développé un modèle de transport dans lequel nous prenons en compte de manière élémentaire la relaxation de l'énergie et du vecteur d'onde.

Pour $E_P < E_{min}$, la propagation dans la couche métallique est diffusive et le processus de thermalisation est régi par les collisions électron / électron, donnant lieu à une cascade d'électrons secondaires. En réalité, seul le transport au niveau de Fermi peut être considéré comme diffusif. Néanmoins, ce mécanisme de relaxation de l'énergie est très efficace, et peu de collisions sont nécessaires pour que l'énergie moyenne de la distribution soit comparable à E_F . L'hypothèse d'un transport diffusif est donc raisonnable tant que l'énergie des électrons dans la couche métallique est au plus de quelques dizaines d'eV.

Pour $E_{min} < E_P < E_C$, le mode de transport est identique au régime précédent mais la première collision, qui permet l'excitation d'un plasmon, ne modifie ni l'énergie, ni le vecteur d'onde de l'électron incident. Tout se passe alors comme si l'épaisseur de la couche métallique à traverser avait diminué. Cette description de la première collision permet de décrire phénoménologiquement une diffusion "vers l'avant" et de traduire de manière schématique l'élargissement de la distribution électronique injectée dans le semi-conducteur.

Pour $E_C < E_P$, les hypothèses premières de ce modèle ne sont plus valables. On introduit arbitrairement une énergie E_C à partir de laquelle la relaxation du vecteur d'onde n'obéit plus, pour cette jonction Schottky, à l'approximation des k aléatoires. Le calcul de l'angle de diffusion permet d'estimer la distance parcourue "vers l'avant" après chaque collision dans le troisième régime. Mais, contrairement à l'énergie E_{min} , E_C n'a pas de réelle signification physique. Dans la description du transport que nous proposons, la valeur de E_C , et par conséquent l'observation du troisième régime de transport, peut dépendre de l'épaisseur d de la couche métallique.

Remarquons d'autre part qu'aux faibles énergies d'injection, on suppose que l'énergie échangée au cours des collisions électron / électron est en moyenne la moitié de l'énergie de l'électron incident. On sous-entend donc implicitement que l'on ne distingue pas dans ce processus de thermalisation, la distribution incidente de la distribution d'électrons secondaires. Ceci vient du fait que les deux électrons considérés, qui sont discernables par leur énergie avant la collision, deviennent indiscernables après leur interaction. Lorsque l'on prend en compte la relaxation du vecteur d'onde, l'énergie échangée est supposée indépendante de E_P. La distribution injectée et la distribution générée par la cascade d'électrons secondaires évoluent séparément, et on ne peut plus réellement considérer qu'une seule énergie E_{moy} suffit à décrire les variations de T et de Δ T. Notons que la séparation en énergie entre les électrons polarisés et les électrons secondaires, conduit à une distribution de polarisation non homogène avant l'entrée dans le filtre à spin qui favorise l'augmentation de Δ T avec E_P .

Pour étudier cette augmentation de ΔT à haute énergie d'injection, il est instructif de tracer l'asymétrie du courant transmis en fonction de E_P . Cette quantité est en effet très sensible aux différents régimes du transport car elle est définie comme le rapport de deux quantités variant rapidement avec E_P . D'après les équations III. 14 et 43, l'asymétrie s'écrit Pour $E_P < E_C$,

$$A = P_0 S \frac{\phi_B + E_{moy}}{E_P}$$
 Eq. III. 44.

Pour $E_C < E_P$,

$$A = P_0 S \frac{\phi_B + E_{moy}}{E_C} \frac{1}{1+B}$$
 Eq. III. 45.

La Figure III. 13 représente les variations avec E_P de l'asymétrie expérimentale (symboles) et de l'asymétrie calculée (trait plein). De manière spectaculaire, l'asymétrie expérimentale augmente pour des énergies d'injection supérieures à 350 eV. Dans ce domaine d'énergie, ΔT varie plus vite que T. L'asymétrie étant égale au produit de la polarisation effective P que "voit" le filtre à spin par sa sélectivité en spin S (A = S×P), A est une mesure de P. Ainsi, dans le troisième régime, P augmente, c'est-à-dire que la dilution de la polarisation incidente diminue. Ceci semble confirmer l'existence de deux contributions à la distribution transmise : les électrons polarisés de spin qui contribuent à ΔT sont maintenus dans la partie "haute" énergie de la distribution qui atteint la barrière, la partie "basse" énergie de la distribution est essentiellement constituée d'électrons secondaires non polarisés, excités dans le palladium.



<u>Figure III. 13</u> : Asymétrie de transmission $A = \Delta T / 2T$ en fonction de l'énergie d'injection. Les symboles représentent l'asymétrie expérimentale. L'asymétrie calculée est en trait plein. La figure met clairement en évidence que le modèle est trop rudimentaire pour décrire le transport à haute énergie d'injection.

Le modèle de transport que nous proposons s'avère ici trop rudimentaire pour décrire la propagation d'une distribution complexe résultant de collisions où l'énergie échangée est inférieure à la moitié de l'énergie initiale. S'il permet d'interpréter la transmission, l'analyse de sa dépendance en spin reste seulement approchée. Il ne permet pas notamment de rendre compte tout à fait de l'augmentation brutale de ΔT autour de 350 eV dont l'origine reste pour le moment un problème ouvert.

III. 4 Influence de l'épaisseur des couches

Afin de déterminer en quoi les résultats obtenus dépendent des caractéristiques de l'échantillon, nous avons réalisé des mesures de transmission sur trois jonctions Schottky Pd / Fe / GaAs. Ces jonctions se différencient les unes des autres par l'épaisseur de leurs couches métalliques, paramètre qui joue bien sûr un rôle prépondérant dans des expériences de transmission.

III. 4. 1 Les échantillons

III. 4. 1. 1 Propriétés structurales

Tous les échantillons que nous avons étudiés ont été élaborés suivant la procédure décrite dans la section 1. 1 de ce chapitre. Pour des raisons de commodité, nous les nommerons dans la suite par une nomenclature qui rappelle l'épaisseur des couches métalliques.

- $Pd_{50}Fe_{35}$: Pd (5,0 nm) / Fe (3,5 nm) / GaAs-n (10¹⁶ cm⁻³) (jonction initiale)
- $Pd_{30}Fe_{40}$: Pd (3,0 nm) / Fe (4,0 nm) / GaAs-n (10¹⁶ cm⁻³)
- $Pd_{20}Fe_{25}$: Pd (2,0 nm) / Fe (2,5 nm) / GaAs-n (10¹⁶ cm⁻³)

L'échantillon $Pd_{30}Fe_{40}$ dispose de plus d'un contact ohmique sur le substrat d'arséniure de gallium pour limiter les polarisations parasites de la jonction (voir Chapitre II). Pour pallier l'absence de contact ohmique, l'échantillon $Pd_{20}Fe_{25}$ a été contacté en face arrière, avant son introduction sous vide, avec un alliage métallique d'indium-gallium. Ces trois échantillons présentent des caractéristiques électriques et magnétiques très semblables. On peut ainsi espérer que seules les épaisseurs des couches métalliques auront un impact sur les variations de la transmission et de sa dépendance en spin avec l'énergie d'injection.

III. 4. 1. 2 Transmission et dépendance en spin

La transmission T et sa dépendance en spin Δ T sont représentées sur la Figure III. 14 pour chacun des trois échantillons. Les courbes sont tracées en échelle logarithmique en fonction de l'énergie d'injection E_P.



<u>Figure III. 14</u> : Variations de la transmission T (cercles) et de sa dépendance en spin ΔT (carrés) en fonction de l'énergie d'injection pour les trois jonctions Schottky Pd₅₀Fe₃₅, Pd₃₀Fe₄₀ et Pd₂₀Fe₂₅.

Les résultats obtenus sur ces trois échantillons sont très similaires. Les transmissions augmentent sur 4 à 5 ordres de grandeur dans la gamme d'énergie étudiée, et deviennent supérieures à l'unité pour une énergie de plusieurs centaines d'eV. Comme dans le cas de l'échantillon $Pd_{50}Fe_{35}$, les variations avec E_P des différentes transmissions peuvent être divisées en trois domaines d'énergie, associés à trois lois de puissance. D'autre part, les dépendances en spin des transmissions correspondantes augmentent également de manière brutale à partir de 300 eV environ pour atteindre des valeurs comprises entre quelques 10^{-3} et

quelques 10^{-2} à 1 keV. Notons cependant qu'il n'a pas toujours été possible de mesurer ΔT pour des énergies inférieures à quelques centaines d'eV, le rapport signal sur bruit devenant parfois trop faible pour permettre une détection fiable dans un temps de mesure raisonnable.

III. 4. 2 Analyse des résultats

III. 4. 2. 1 Reproductibilité des régimes de transmission

La caractéristique essentielle de cette étude est la mise en évidence de manière reproductible de trois régimes de transmission, et en particulier, d'un régime à "haute" énergie d'injection où la transmission et sa dépendance en spin augmentent simultanément sur plusieurs ordres de grandeur. Si ces différents régimes n'ont pas été entièrement reproduits pour les variations de ΔT , ils ont été obtenus pour la transmission, et les lois de puissance associées à ces régimes sont sensiblement les mêmes d'un échantillon à l'autre (Figure III. 15).



<u>Figure III. 15</u> : Courbes de transmission pour les trois jonctions Schottky $Pd_{50}Fe_{35}$ (cercles pleins), $Pd_{30}Fe_{40}$ (cercles vides) et $Pd_{20}Fe_{25}$ (carrés). Les lois de puissance associées aux trois régimes de transport sont similaires, indépendamment des épaisseurs des couches métalliques.

Bien que l'on attende à priori, aux faibles énergies d'injection, des variations importantes de l'amplitude de transmission avec l'épaisseur de la couche métallique, il ne semble pas y avoir de tendance générale pour ces échantillons. Par exemple, l'échantillon Pd₅₀Fe₃₅ dont la couche métallique est la plus épaisse n'est pas celui dont la transmission est la

plus faible à basse énergie d'injection. Il est donc délicat d'extraire une information quantitative des amplitudes de transmission en fonction de l'épaisseur de métal. En fait, non seulement l'épaisseur de métal, mais aussi la qualité des couches, des interfaces et des caractéristiques de la barrière sont des paramètres déterminants. Comme le montrent les calculs de la section III. 3. 2. 2, une variation de 10% de Φ_B modifie la transmission d'un facteur cinq. Par ailleurs, l'épaisseur de la barrière d'oxyde (dont nous avons négligé l'influence) peut être différente d'un échantillon à l'autre, et la valeur (ainsi que la variation) de la transmission est sans doute très sensible à ces différences.

III. 4. 2. 2 Saturation de T

Sur tous les échantillons, nous avons observé des transmissions supérieures à l'unité pour des énergies d'injection de quelques centaines d'eV. Mais, dans le cas limite des très grandes énergies d'injection, tous les électrons primaires doivent être transmis de manière balistique au travers de la couche métallique. Quelle que soit l'épaisseur de métal à traverser, il existe donc une énergie E_P telle que le libre parcours moyen inélastique soit suffisamment grand pour que l'échantillon devienne "transparent" pour les électrons incidents. La transmission doit alors diminuer pour tendre vers 1. Par conséquent, d'autres régimes de transmission peuvent idéalement être observés sur nos échantillons pour des énergies supérieures à 1 keV. La Figure III. 16 représente un agrandissement de la figure précédente pour des énergies d'injection comprises entre 300 et 1000 eV. Pour les trois échantillons, d'épaisseur totale comprise entre 4,5 et 8,5 nm, l'augmentation de la transmission s'infléchit lorsque E_P se rapproche de 1 keV. A haute énergie moyenne des électrons transmis au-dessus de la barrière Schottky et la diminution de l'efficacité de la cascade d'électrons secondaires.



<u>Figure III. 16</u> : Courbes de transmission des trois échantillons étudiés pour des énergies d'injection comprises entre 300 et 1000 eV. Lorsque la transmission devient de l'ordre de l'unité, son augmentation s'infléchit lorsque E_P croît.

III. 4. 2. 3 Saturation de ΔT

Ce phénomène de saturation de la transmission doit s'observer en premier lieu sur sa dépendance en spin ΔT , car si l'énergie moyenne des électrons transmis augmente de manière significative, la sélectivité en spin de la couche ferromagnétique va nécessairement diminuer. En effet, la sélectivité S du filtre à spin, définie par la relation $S = A / P_0 = \tanh (d_{Fe} / \delta)$, peut diminuer pour deux raisons : soit parce que δ augmente, c'est-à-dire que l'énergie moyenne des électrons dans la couche ferromagnétique devient supérieure à la largeur des bandes d, soit parce que l'épaisseur effective du filtre à spin diminue, ce qui peut se produire lorsqu'une partie du processus de thermalisation s'effectue dans la couche de fer. L'énergie moyenne E_{moy} de la distribution électronique à l'interface métal / semi-conducteur n'excédant pas quelques dizaines de meV dans notre modèle, l'hypothèse d'une diminution de l'épaisseur effective du filtre à spin est la plus justifiée. Sur la Figure III. 17, sont représentées les variations de ΔT mesurées sur les trois échantillons pour des énergies d'injection supérieures à 300 eV. Il apparaît clairement pour l'échantillon Pd₂₀Fe₂₅ que la dépendance en spin de la transmission reste quasiment constante pour $E_P > 800$ eV. Dans ce cas, l'épaisseur de palladium étant assez faible, une partie de la thermalisation de la distribution électronique s'effectue probablement dans la couche de fer, ce qui tend à réduire sa sélectivité en spin.



<u>Figure III. 17</u> : Courbes de ΔT des trois échantillons étudiés pour des énergies d'injection comprises entre 300 et 1000 eV. Pour l'échantillon Pd₂₀Fe₂₅, la dépendance en spin de la transmission sature lorsque E_P devient supérieure à 800 eV.

Comme nous l'avons mentionné, il est délicat d'extraire une information quantitative des variations de la transmission, et à fortiori de sa dépendance en spin, avec l'épaisseur de la couche métallique. Si des effets de saturation peuvent être évoqués sur les trois échantillons étudiés, une analyse rigoureuse de l'influence des paramètres structuraux des jonctions Schottky magnétiques sur le transport d'électrons injectés à haute énergie reste à réaliser.

III. 5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats d'une étude de transmission d'électrons polarisés de spin, injectés à haute énergie dans des jonctions Schottky palladium / fer / arséniure de gallium. Pour des énergies d'injection E_P comprises entre quelques eV et 1 keV, la transmission et sa dépendance en spin augmentent sur plusieurs ordres de grandeur. La caractéristique fondamentale de ces mesures est l'existence de domaines d'énergie où les lois de variation de T et ΔT sont corrélées. L'interprétation du comportement de la transmission avec E_P suffit donc, en première approximation, à expliquer la majeure partie des résultats obtenus. Nous avons développé un modèle décrivant de manière rudimentaire la propagation et la thermalisation de la distribution électronique dans la couche métallique. Ce modèle reproduit semi-quantitativement les résultats expérimentaux et montre que l'augmentation de T et ΔT avec E_P s'interprète par une augmentation de l'énergie moyenne Emoy de la distribution électronique à l'interface métal / semi-conducteur. En particulier, l'augmentation spectaculaire de ΔT est pour l'essentiel due au nombre croissant avec E_P d'électrons polarisés, injecté depuis le vide, qui atteignent l'interface palladium / fer avec une énergie supérieure à $\Phi_{\rm B}$. Si le modèle est raisonnable dans le domaine des faibles énergies d'injection, il ne permet pas de décrire de manière réaliste le transport à "haute" énergie. Néanmoins, et c'est le but d'un modèle analytique simple, il permet d'indiquer quels aspects des mécanismes qui gouvernent le transport doivent être considérés pour l'interprétation des mesures. Il met en évidence d'une part, que la relaxation du vecteur d'onde dans le cadre de l'interaction coulombienne doit être prise en compte et, d'autre part, que la détermination de la forme de la distribution en énergie et en polarisation au cours du transport est cruciale (on ne peut pas se contenter de décrire l'énergie moyenne E_{moy} et de calculer la polarisation de spin à E_{mov}). Traiter l'ensemble de ce problème exige de recourir à une simulation numérique. De plus, une simulation numérique où l'interaction coulombienne serait décrite de manière rigoureuse permettrait d'introduire des effets sur la polarisation des électrons liés à l'échange, c'est-à-dire à une asymétrie de la section efficace de collision selon que les deux électrons en interaction ont ou non le même spin, et ce tant dans le métal non magnétique (Pd) que dans le métal ferromagnétique (Fe). Un effet de ce type pourrait contribuer à l'augmentation de l'asymétrie observée à "haute" énergie.¹⁵

¹⁵ N. F. Mott and H. S. W. Massey, *The theory of atomic collisions*, Oxford University Press, edited by N. F. Mott, E. C. Bullard and D. H. Wilkinson, third edition (1965).