



HAL
open science

**Jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire : -
Croissance, caractérisations structurales - Phénomènes
de couplage, magnéto-transport - Extension aux
hétérostructures pour l'injection de spins dans les
semiconducteurs III-V**

Pierre de Person

► **To cite this version:**

Pierre de Person. Jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire : - Croissance, caractérisations structurales - Phénomènes de couplage, magnéto-transport - Extension aux hétérostructures pour l'injection de spins dans les semiconducteurs III-V. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2007. Français. NNT: . tel-00151284v2

HAL Id: tel-00151284

<https://theses.hal.science/tel-00151284v2>

Submitted on 14 Aug 2007

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

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

THÈSE

présentée par

Pierre DE PERSON

pour obtenir le grade de
DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ
JOSEPH FOURIER
(Arrêté ministériel du 30 Mars 1992)

Spécialité : Physique

Jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire:
-Croissance, caractérisations structurales
-Phénomènes de couplage, magnéto-transport
-Extension aux hétérostructures pour l'injection de
spins dans les semiconducteurs III-V

Date de soutenance : 5 Mars 2007

Composition du jury

| | | |
|----------|---------------|--------------------|
| Monsieur | A. BSIESY | Président |
| Monsieur | V. ETGENS | Rapporteur |
| Monsieur | A. THIAVILLE | Rapporteur |
| Monsieur | D. RAVELOSONA | Examineur |
| Monsieur | C. TIUSAN | Examineur |
| Monsieur | Y. SAMSON | Directeur de Thèse |

Thèse préparée au sein du
CEA – Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée – GRENOBLE

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au *Service de Physique des Matériaux et Microstructures*, au *Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée* du Commissariat à l'Energie Atomique de Grenoble. Je remercie les chefs successifs de ce service, messieurs Noël Magnea et Jean-Michel Gérard, pour m'avoir accueilli au sein de ce groupe et pour m'avoir donné les moyens de réaliser ce travail de thèse.

Je tiens à remercier les membres de mon jury de thèse : M. Ahmad Bsiesy pour l'avoir présidé, M. Victor Etgens et M. André Thiaville pour avoir accepté le rôle de rapporteur et pour les questions pertinentes qui ont contribué à améliorer la qualité de ce manuscrit. Je remercie M. Dafiné Ravelosona et M. Coriolan Tiusan pour avoir pris part à ce jury, et pour les discussions à propos de la physique des jonctions tunnel magnétiques lors de la correction de ce mémoire.

Je remercie tout particulièrement Yves Samson pour avoir dirigé cette thèse. Je tiens à saluer sa disponibilité et la pertinence des remarques apportées pendant ces trois années, ainsi que l'autonomie qu'il m'a accordé, me permettant de mener des études non prévues dans le programme initial. Ces études ont pu améliorer grandement la qualité du travail présenté. Yves, je garderai un très bon souvenir de toi !

Patrick Warin a été mon « encadrant CEA » pendant ces trois années. Patrick, tu m'as beaucoup appris tant sur le plan scientifique que sur le plan humain. Je tiens à te remercier entre autres pour le travail de correction que tu as fourni lors de la rédaction de ce mémoire. Je te souhaite bonne chance pour la suite, car tu dois gérer à présent l'encadrement de deux thésards en folie.

Matthieu Jamet n'avait aucun rôle officiel dans cette thèse, et pourtant, par sa disponibilité à toute épreuve - y compris parfois tard le soir -, par ses compétences en à peu près tout, de l'élaboration de couches minces au montage de manip, en passant par la caractérisation, il a été un élément indispensable de ce travail. Sans lui, beaucoup d'études n'auraient pas pu être menées à bout. Matthieu, j'ai beaucoup d'estime pour toi, merci pour tout ce que tu as fait !

Je tiens également à remercier sincèrement toutes les personnes avec qui j'ai pu collaborer. Par avance, je demande pardon à ceux que j'aurais pu oublier.

Au laboratoire *Nanostructures et Magnétisme* pour commencer, un grand merci à Alain Marty pour sa participation - entre autres - aux manip synchrotron et pour les discussions scientifiques que nous avons pu avoir sur les champs de fuite. Merci à Lucien Notin pour ses masques solides. Je remercie Jean-Christophe Pillet et Cyrille Beigné pour leur disponibilité et pour le soin apporté aux manip (MBE, AFM, transport), et ce malgré les dégats causés par les thésards...

J'ai passé un temps non négligeable dans la salle blanche PROMES : je tiens à remercier en particulier Frédéric Gustavo et Jean-Luc Thomassin pour l'aide régulière qu'ils m'ont apporté dans la lithographie et la gravure d'échantillons.

Merci infiniment à toute l'équipe du SGX, et en particulier à Isabelle Schuster et à Edith Bellet-Amalric. Vous m'avez tout appris concernant la diffraction de rayons X.

Au *Laboratoire Louis Néel*, je voudrais remercier Jean Voiron pour son aide sur le VSM, Yves Souche pour sa manip d'effet Kerr et surtout Laurent Ranno et Baptiste Carvello pour le temps passé à essayer d'obtenir des mesures de magnétorésistance.

Au laboratoire *Spintec*, je remercie Bernard Rodmacq pour son aide avec l'effet Hall, Ricardo Sousa, ainsi que les thésards et post-docs du labo avec qui j'ai pu discuter en conférence, en école ou à Grenoble - et en particulier Jérôme, Vincent, Sandra et Christophe.

Niveau « semiconducteurs », je voudrais remercier David Ferrand pour tout le mal qu'il s'est donné à essayer de faire luminescer mes échantillons, à Yann Genuist pour son travail concernant le bâti III-V ; Merci aussi à Yoanna et Laurent pour leur aide et la bonne humeur qu'ils ont pu apporter dans leur salle de manip.

Un grand merci à tous les thésards (et stagiaires, et post-docs) du laboratoire pour les bons moments passés. Honneur aux anciens, je commence par les récents docteurs : Guillaume, Jérôme (tu es vraiment quelqu'un d'unique, et je t'apprécie pour ce que tu es), Richard, Florent, Anthony, Jean-Philippe (que j'ai connu thésard et qui maintenant est un des permanents du labo ; merci notamment pour cette journée d'escalade sur la voie des gosses mythiques) et Céline (avec qui j'ai longtemps partagé mon bureau). Puis les futurs impétrants : Damien, Andrei, Ing Song, Michael, Thu Nhi et Louis. Je voudrais apporter des remerciements particuliers à ces trois derniers : Michael, je garde d'excellents souvenirs de randonnées, de ski, de vélo...ma porte te sera toujours ouverte si tu passes vers Paris. Thu Nhi, I would like to thank you for everything you did, it was very pleasant to work with you! Et enfin Louis, qui a été jusqu'à

m'héberger et à me prêter son frigo et sa voiture pour ma soutenance.

Enfin, je tiens à remercier tous les autres membres du laboratoire NM pour la bonne ambiance qui a régné pendant ces trois années.

Pour finir, je veux avoir ici une pensée particulière à ceux que je n'ai pas côtoyé en qualité de thésard, mais qui ont été présents au cours de ces trois années. En premier lieu, Marc, mon colocataire qui a dû me supporter : bonne chance pour ta soutenance imminente, tu vas y arriver ! Delphine (merci pour être venue à ma soutenance), Nicolas, Marion, Nicolas, Viviane (à très bientôt en « krokétie »), Walter, Julian et Florian pour leur *flood* de mails de ces dernières années (et ça continue...). Désolé de ne pas répondre aussi souvent !

Pour leur soutien au cours de ces trois années et tellement plus, je remercie mes parents et Mélanie, à qui je dédie cette thèse.

Table des matières

| | | |
|-----------|--|-----------|
| I | Généralités sur les alliages FePt | 5 |
| 1 | Structure et propriétés magnétiques de couches minces d'alliage L1₀ FePt | 7 |
| 1.1 | Structures à aimantation perpendiculaire | 7 |
| 1.2 | Généralités sur les alliages FePt | 9 |
| 1.3 | Croissance de couches minces FePt par épitaxie par jets moléculaires | 10 |
| 1.3.1 | Dispositif d'épitaxie par jets moléculaires (<i>Molecular Beam Epitaxy</i> MBE) | 10 |
| 1.3.2 | Caractérisation <i>in-situ</i> : diffraction d'électrons rasants RHEED | 12 |
| 1.3.3 | Différents modes d'élaboration | 13 |
| 1.4 | Outils de caractérisation magnétique | 18 |
| 1.4.1 | Caractérisation par effet Kerr | 18 |
| 1.4.2 | Caractérisation par Microscopie à Force Magnétique | 18 |
| 1.5 | Etude des propriétés magnétiques de films FePt ultra-minces déposés sur couche tampon de Pt | 20 |
| 1.5.1 | Cycles d'aimantation | 20 |
| 1.5.2 | Configurations des domaines magnétiques dans un état désaimanté | 21 |
| 1.5.3 | Configurations magnétiques quasi-statiques observées lors du renversement d'aimantation | 22 |
| 1.5.4 | Propagation des domaines magnétiques dans une couche FePt ultra-mince déposée sur Pt | 23 |
| 1.5.5 | Evolution des propriétés magnétiques de couches FePt ultra-minces après recuit | 26 |
| 1.6 | Etude des propriétés magnétiques de l'alliage FePt déposé sur substrat MgO(100) | 26 |
| 1.7 | Conclusion | 28 |
| II | Jonctions Tunnel Magnétiques à aimantation perpendiculaire | 29 |
| 2 | Physique des Jonctions Tunnel Magnétiques | 31 |
| 2.1 | Le transport par effet tunnel | 31 |
| 2.2 | Transport par effet tunnel dans les jonctions tunnel magnétiques | 35 |
| 2.2.1 | Notions sur la polarisation en spin d'un métal ferromagnétique | 35 |
| 2.2.2 | Modèle de Jullière | 37 |
| 2.2.3 | Modèle de Slonczewski | 39 |
| 2.2.4 | Effets des interfaces électrodes/barrière sur le transport tunnel polarisé en spin | 41 |
| 2.2.5 | Effet de la structure cristalline sur le transport tunnel polarisé en spin | 42 |
| 2.3 | Magnétorésistance tunnel dans des JTM épitaxiées | 42 |
| 2.3.1 | Modélisation du transport tunnel polarisé en spin dans les structures Fe/ZnSe/Fe et Fe/MgO/Fe(100) | 43 |
| 2.3.2 | Premiers résultats expérimentaux - effet de la qualité des interfaces | 47 |
| 2.3.3 | Derniers résultats expérimentaux | 48 |
| 2.4 | Densités d'état dans des films ferromagnétiques FePt | 49 |
| 2.5 | Conclusion | 50 |
| 3 | Elaboration et caractérisation structurale des Jonctions Tunnel Magnétiques | 51 |
| 3.1 | Croissance de la structure FePt/MgO/FePt | 51 |
| 3.2 | Diffraction de rayons X : diffraction aux grands angles (XRD) | 55 |
| 3.2.1 | Principe | 55 |
| 3.2.2 | Conditions de diffraction | 55 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 3.2.3 | Description des mesures | 57 |
| 3.2.4 | Mesure de l'ordre chimique à longue distance | 58 |
| 3.2.5 | Résultats expérimentaux sur les structures JTM FePt/MgO/FePt | 60 |
| 3.3 | Diffraction de rayons X : diffraction en incidence rasante (SXRD) | 66 |
| 3.3.1 | Principe | 66 |
| 3.3.2 | Description des échantillons mesurés | 67 |
| 3.3.3 | Etude par SXRD de la structure MgO/FePt/Pt | 68 |
| 3.4 | Microscopie électronique en transmission (TEM) | 70 |
| 3.4.1 | Principe | 70 |
| 3.4.2 | Observation de la structure JTM | 70 |
| 3.5 | Conclusion globale sur les propriétés structurales | 72 |
| 4 | Couplage magnétique entre électrodes | 73 |
| 4.1 | Propriétés magnétiques générales de la JTM FePt/MgO/FePt | 74 |
| 4.1.1 | Cycle d'aimantation majeur (entre deux états d'aimantation saturés) | 74 |
| 4.1.2 | Aimantation et désaimantation de la structure | 76 |
| 4.2 | Imagerie magnétique des différents états magnétiques observés lors d'un cycle majeur | 79 |
| 4.2.1 | Etats saturés | 79 |
| 4.2.2 | Renversement de l'électrode douce SL | 81 |
| 4.2.3 | Renversement de l'électrode dure HL | 83 |
| 4.3 | Couplage entre électrodes par action de la couche douce SL | 85 |
| 4.3.1 | Cycle mineur du renversement de la couche douce | 85 |
| 4.3.2 | Désaimantation de SL seule | 87 |
| 4.3.3 | Désaimantation de la structure par cyclage de SL | 88 |
| 4.3.4 | Effet d'une augmentation de l'épaisseur de SL | 95 |
| 4.4 | Imagerie d'états magnétiques couplés | 96 |
| 4.4.1 | Description macroscopique | 96 |
| 4.4.2 | Description microscopique - H_{\min} proche de $H_{d,HL}$ | 99 |
| 4.4.3 | Description microscopique - H_{\min} proche de $H_{c,HL}$ | 99 |
| 4.4.4 | Description microscopique - Retour à un cas intermédiaire : H_{\min} entre $H_{d,HL}$ et $H_{c,HL}$ | 101 |
| 4.4.5 | Description microscopique - H_{\min} proche de $H_{\text{sat},HL}$ | 101 |
| 4.4.6 | Conclusion | 103 |
| 4.5 | Dynamique de la propagation de domaines magnétiques dans les JTM FePt/MgO/FePt | 103 |
| 4.5.1 | Imagerie lors de la description du cycle d'hystérésis | 103 |
| 4.5.2 | Propagation des domaines dans la couche douce | 104 |
| 4.5.3 | Etude de la propagation dans un état magnétique non saturé | 106 |
| 4.6 | Conclusion globale sur l'étude du couplage entre électrodes | 107 |
| 5 | Structuration des échantillons par photolithographie - Mesures de transport | 109 |
| 5.1 | Présentation générale du procédé de structuration | 109 |
| 5.2 | Techniques de structuration | 109 |
| 5.2.1 | Lithographie optique | 109 |
| 5.2.2 | Gravure ionique | 111 |
| 5.3 | Description pas à pas du processus employé | 113 |
| 5.3.1 | Définition des plots | 113 |
| 5.3.2 | Gravure jusqu'au substrat | 114 |
| 5.3.3 | Dépôt de la couche isolante | 115 |
| 5.3.4 | Ouverture de l'isolant | 116 |
| 5.3.5 | Dépôt des pistes métalliques | 117 |
| 5.4 | Contrôle des propriétés magnétiques d'un échantillon gravé | 118 |
| 5.4.1 | Caractérisation des jonctions structurées par effet Kerr polaire | 118 |
| 5.4.2 | Caractérisation des jonctions structurées par imagerie magnétique MFM | 120 |
| 5.5 | Contactage des échantillons et mesures de transport | 121 |
| 5.5.1 | Contactage des jonctions par microsoudure | 121 |
| 5.5.2 | Mesures Courant-Tension | 121 |
| 5.5.3 | Mesures de magnéto-transport | 124 |
| 5.6 | Conclusion globale sur les mesures de transport | 125 |

| | |
|---|------------|
| III Hétérostructure pour l'injection d'un courant polarisé perpendiculairement dans les semiconducteurs III-V | 127 |
| 6 Le transport polarisé en spin dans les Semiconducteurs | 129 |
| 6.1 L'électronique de spin à base de semiconducteurs | 129 |
| 6.2 Injection de porteurs polarisés en spin dans un semiconducteur | 130 |
| 6.2.1 Généralités | 130 |
| 6.2.2 Injection directe à partir d'une électrode métallique ferromagnétique | 130 |
| 6.2.3 Injection au travers d'une résistance d'interface | 133 |
| 6.3 Détection de la polarisation en spin d'un courant injecté | 136 |
| 6.3.1 Détection optique : emploi de Spin-LEDs | 136 |
| 6.3.2 Détection électrique de spins | 141 |
| 6.4 Mécanismes de relaxation de spin dans les semiconducteurs | 142 |
| 6.4.1 Mécanisme d'Elliot-Yafet (EY) | 142 |
| 6.4.2 Mécanisme de D'yakonov-Perel (DP) | 143 |
| 6.4.3 Mécanisme de Bir-Aronov-Pikus (BAP) | 143 |
| 6.4.4 Prépondérance des différents mécanismes | 144 |
| 6.5 Conclusion | 145 |
| 7 Elaboration et caractérisation de la structure hybride Injecteur/Spin-LED | 147 |
| 7.1 Description de la structure spinLED utilisée | 147 |
| 7.2 Repréparation des échantillons | 148 |
| 7.2.1 MBE - dépôt par cellules d'évaporation | 148 |
| 7.2.2 Reprise épitaxiale d'une couche GaAs dopé n | 149 |
| 7.3 Croissance de l'injecteur | 154 |
| 7.3.1 Etude de la surface de GaAs après désorption de l'arsenic amorphe | 155 |
| 7.3.2 Croissance de la barrière tunnel | 157 |
| 7.3.3 Croissance de l'électrode ferromagnétique | 161 |
| 7.4 Caractérisations structurales de l'injecteur FePt/MgO par diffraction de rayons X aux grands angles (XRD) | 161 |
| 7.4.1 Observation de la barrière tunnel MgO | 161 |
| 7.4.2 Etude de l'électrode ferromagnétique FePt | 162 |
| 7.5 Caractérisations magnétiques de l'électrode FePt | 164 |
| 7.6 Etude optique de la spin-LED après dépôt de l'injecteur | 166 |
| 7.7 Mesures de transport sur le système FePt/MgO/ GaAs(Spin-LED) | 166 |
| 7.7.1 Structuration des échantillons | 166 |
| 7.7.2 Mesures courant-tension | 167 |
| 7.8 Conclusion | 168 |

Introduction

En 1988, l'équipe d'A.Fert publie des travaux expérimentaux sur la dépendance en champ magnétique de la résistivité électrique de multicouches épitaxiées Fe/Cr [BAI88]. Presque simultanément, l'équipe de P.Grunberg obtient des résultats similaires publiés en 1990 [BIN89]. La découverte du phénomène maintenant bien connu sous le nom de magnétorésistance géante (GMR) va marquer, pour la communauté scientifique du magnétisme, le début d'une série de ruptures scientifiques et techniques.

Citons en premier lieu l'introduction dès 1999 de têtes de lecture utilisant le phénomène dans les disques durs commercialisés par IBM. Ces têtes de lecture reposent sur la mise en oeuvre des vannes de spin, *ie* de structures comprenant deux couches ferromagnétiques séparées par une couche métallique non magnétique. Dans de telles structures, la configuration d'aimantations parallèles correspond généralement à un état de faible résistivité électrique, tandis que la configuration antiparallèle correspond à un état de forte résistivité électrique. Dans une vanne de spin, il est possible de contrôler les orientations relatives des aimantations des deux couches ferromagnétiques. L'une de ces couches, dite de référence, est insensible à de faibles champs appliqués, tandis que l'aimantation de la seconde (la couche « libre ») se renverse au contraire sous l'action des faibles champs magnétiques émis par les transitions entre domaines le long de la piste magnétique du disque dur.

Citons ensuite la mise au point des jonctions tunnel magnétiques (JTM), structures similaires aux vannes de spin, mais dans lesquelles la couche métallique est remplacée par une barrière tunnel, généralement une couche d'oxyde tel que l'alumine [MOO95]. Historiquement, cet effet a été décrit pour la première fois par Jullière en 1975 [JUL75]. Ces jonctions tunnel offrent l'avantage d'une magnétorésistance plus élevée que les vannes de spin ; elles devraient très prochainement être utilisées dans des applications tant comme capteurs magnétiques (dans les têtes de lecture des disques durs magnétiques) que comme éléments de mémoires solides pour la micro-électronique : les MRAM (*Magnetic Random Access Memories*) [WOL01].

A cet ensemble dynamique de la science moderne, regroupé sous le nom de magnéto-électronique, est venu s'ajouter ensuite une nouvelle branche à l'interface entre les domaines du magnétisme et des semi-conducteurs : l'électronique de spin, ou spintronique. En 1990, Datta et Das [DAT90] proposent de réaliser l'analogie d'un modulateur électro-optique : deux électrodes ferromagnétiques (en fer) permettent d'injecter et de collecter un courant polarisé en spin dans un semi-conducteur (InGaAs). Entre les deux, une grille permet d'obtenir, par effet Rashba, la précession en spin des porteurs injectés. L'ensemble constitue un transistor d'un nouveau type, potentiellement reprogrammable et aux fonctionnalités élargies par l'addition d'un nouveau degré de liberté en plus de la charge des porteurs, à savoir leur spin.

Bien que purement conceptuelle, la communication de Datta et Das a un impact considérable et de nombreuses équipes s'attaquent à la réalisation expérimentale de la structure. Rapidement, il apparaît que la différence de conductivité électrique entre le métal utilisé comme injecteur et le semi-conducteur constitue un obstacle majeur à l'injection d'un courant significativement polarisé en spin [FER01]. Deux voies de recherche émergent alors. La première repose sur la mise en oeuvre de semi-conducteurs ferromagnétiques, cette voie est cependant aujourd'hui encore très loin d'une application pratique du fait de l'absence de « bon » semi-conducteur ferromagnétique à température ambiante. La seconde repose sur l'injection du courant dans le semi-conducteur « depuis une électrode métallique » par un processus mettant en jeu une barrière de potentiel fortement résistive, telle qu'une barrière tunnel [RAS00] [FER01].

Ce travail de thèse se situe à la confluence de ces deux grands domaines de la recherche moderne en magnétisme que nous avons nommés, la magnéto-électronique et la spintronique. Il est axé sur la mise en oeuvre de barrières tunnel épitaxiées, à base de MgO, en combinaison avec une électrode ferromagnétique à aimantation perpendiculaire.

Rappelons ici que l'essentiel des recherches effectuées sur les jonctions tunnel magnétiques ont porté, jusqu'au début des années 2000, sur l'optimisation des propriétés de transport des barrières amorphes à base d'alumine. Avec une telle barrière, la magnétorésistance de la jonction tunnel est limitée par les polarisations en spin des deux électrodes ferromagnétiques [JUL75]. Ce constat a ainsi motivé de nombreuses recherches sur la mise au point de matériaux à forte polarisation en spin. L'introduction de barrières épitaxiées a changé la donne, en ouvrant la voie à des effets de filtrage, *ie* à des conductivités électriques différentes en fonction de la symétrie des états électroniques mis en jeu. Nous reviendrons sur ce point en détail dans le second chapitre de cette thèse. Retenons simplement ici qu'il a été dès lors possible d'obtenir des magnétorésistances tunnel bien plus importantes, et que les « records » publiés n'ont cessé de se

multiplier en parallèle à la conduite de cette thèse. Ainsi, Yuasa *et al.* ont obtenu une magnétorésistance tunnel de 410 % dans une structure Co/MgO/Co en 2006 [YUA06]. Dès 2003, *ie* au départ de cette thèse, les jonctions tunnel épitaxiées à base de MgO semblaient constituer un champ de recherche séduisant. Le laboratoire a de plus une expérience ancienne dans le domaine particulier de la croissance épitaxiale de films de MgO [VAS96].

Il importe maintenant de souligner que la quasi-totalité des travaux expérimentaux ont été réalisés sur des structures à aimantation planaire. Une direction planaire de l'aimantation est évidemment plus simple à obtenir, car elle n'impose pas de vaincre l'effet de forme (de champ démagnétisant) qui confine l'aimantation d'une couche mince dans son plan en l'absence d'autres anisotropies.

Cependant, au delà de l'intérêt fondamental de l'étude, il existe deux forts arguments en faveur de la mise en oeuvre de matériaux à aimantation perpendiculaire. D'une part l'existence d'une forte anisotropie magnétique est une nécessité dans des dispositifs de petites dimensions, pour éviter l'apparition du superparamagnétisme (c'est à dire que les fluctuations thermiques ne soient suffisantes pour modifier aléatoirement la direction d'aimantation du matériau). D'autre part, la configuration d'aimantation perpendiculaire présente un avantage intrinsèque aux très hautes densités, ce qui a conduit à l'introduction en 2005 des premiers disques durs à aimantation perpendiculaire (et non plus planaire). En effet, des bits voisins d'aimantations opposées se stabilisent mutuellement par leur champ de fuite, à l'opposé de ce qui est observé en aimantation planaire.

En pratique, il est possible de réaliser la croissance épitaxiale de matériaux tels que les alliages ordonnés FePd et FePt sur MgO(001). Dans la phase chimiquement ordonnée $L1_0$, ces deux alliages présentent des anisotropies magnétocristallines considérables [GEH97], et perpendiculaire au plan de la couche mince lorsque la mise en ordre chimique est uniaxiale.

Cette introduction permet maintenant de situer les deux grandes directions de ce travail de thèse :

- réaliser des jonctions tunnel magnétiques à aimantation perpendiculaire, épitaxiées (FePt/MgO/FePt), en comprendre les propriétés de structure, magnétique et de transport,
- réaliser des structures similaires pour l'injection de spin dans les semiconducteurs III/V : FePt/MgO/GaAs, en étudier la structure, les propriétés magnétiques et l'étape d'injection de spin.

Notons que ce système FePt/MgO/GaAs présente un grand nombre d'avantages pour une étude fondamentale de l'injection de spin dans un semiconducteur. En effet, une électrode ferromagnétique à aimantation perpendiculaire rémanente permet une étude en champ nul, et l'injection de porteurs perpendiculairement polarisés. Cette polarisation perpendiculaire des porteurs est, du fait des règles de sélection quantique (décrites dans le chapitre 6 de cette thèse), une condition préalable à la détermination optique de la polarisation de ces porteurs injectés. Nous reviendrons sur ce point en détail.

Il est sans doute utile de préciser ici, que malgré l'expérience antérieure du laboratoire dans l'élaboration de couches minces épitaxiées de FePt et de MgO, les incertitudes et les défis existant au niveau de l'élaboration des échantillons ne sont pas minces. En effet, il n'existe aucun exemple publié de la croissance d'une électrode de l'alliage chimiquement ordonné FePt sur une barrière tunnel MgO. Or, il est prévisible que la qualité de la barrière tunnel, en tant que substrat, sera bien moindre que celle d'un monocristal du même matériau (couramment utilisé comme substrat pour l'épitaxie de nombreux métaux). Dans le cas de la croissance sur GaAs, la sensibilité de la surface aux recuits (désorption rapide de l'arsenic de surface et perte de la stoechiométrie) est un obstacle important alors que la croissance de la phase chimiquement ordonnée de l'alliage FePt exige des températures de l'ordre de 500°C.

Du point de vue des propriétés magnétiques, l'incertitude essentielle tient - la croissance étant supposée réussie - à l'obtention de directions d'aimantations indépendantes pour les deux électrodes (\uparrow/\downarrow et \downarrow/\uparrow) pour les jonctions tunnel FePt/MgO/FePt. En effet, si une couche uniformément aimantée ne rayonne pas de champ dipolaire, les mécanismes de renversement d'aimantation à l'oeuvre dans les couches minces à aimantation perpendiculaire (nucléation de domaines puis propagation de parois) sont bien moins favorables que la rotation cohérente - souvent observées en aimantation planaire - pour maintenir un découplage des aimantations des deux électrodes. De fait, nous verrons dans ce manuscrit que les phénomènes de couplage entre électrodes nous ont ouvert un champ d'investigation très riche.

Venons en maintenant à la structure de ce mémoire.

Dans une première partie, nous étudierons les propriétés magnétiques de couches minces FePt en fonction du substrat sur lequel elles sont déposées et à l'épaisseur du film. Cette partie introductive rassemble les bases indispensables à l'élaboration des structures pour l'électronique de spin présentées

dans cette thèse.

Dans une deuxième partie, nous rappellerons les mécanismes de transport mis en jeu au sein des jonctions tunnel magnétique avant de présenter le système FePt/MgO/FePt. Bien entendu, des jonctions tunnel magnétiques doivent impérativement comporter deux électrodes magnétiquement indépendantes l'une l'autre. Nous avons choisi d'étudier de manière approfondie les phénomènes de couplage intervenant dans des JTM à aimantation perpendiculaire, en régime quasi statique et en régime dynamique (cyclage de l'aimantation de la couche « libre »). Nous présenterons enfin quelques éléments sur les propriétés de magnétotransport.

Finalement dans une troisième partie, nous en viendrons au second axe de ce travail de thèse : nous décrirons d'abord brièvement les difficultés liées à l'injection de porteurs polarisés en spin d'un métal vers un semiconducteur. Puis, en reprenant les avancées réalisées dans cette thèse sur la croissance d'une électrode FePt à aimantation perpendiculaire sur barrière tunnel MgO, nous nous pencherons sur l'élaboration d'une structure épitaxiée FePt/MgO/GaAs.

Première partie

Généralités sur les alliages FePt

Chapitre 1

Structure et propriétés magnétiques de couches minces d'alliage L1₀ FePt

Dans cette partie introductive, nous décrivons essentiellement les propriétés magnétiques de couches ferromagnétiques FePt à aimantation perpendiculaire déposées sur substrat monocristallin MgO(001) ou sur couche tampon de platine Pt(001). Ces modes de dépôt sont maîtrisés depuis longtemps au laboratoire; l'idée de ce travail est d'étudier la possibilité d'avoir deux couches FePt minces de propriétés magnétiques très différentes.

1.1 Structures à aimantation perpendiculaire

Dans les matériaux ferromagnétiques, il existe des directions d'aimantation privilégiées, appelées *axes de facile aimantation*. Ce sont des directions énergétiquement favorables vis à vis de l'aimantation et selon lesquelles les moments magnétiques des atomes peuvent s'aligner : le champ de saturation à appliquer selon ces directions pour obtenir l'aimantation de saturation M_S du matériau est le plus faible. A l'inverse, il existe aussi des *axes de difficile aimantation* correspondant aux directions énergétiquement défavorables vis à vis de l'aimantation.

La mise au point d'un dispositif magnétique implique donc la maîtrise de l'anisotropie magnétique des structures utilisées. Ainsi, dans un matériau massif comme le fer, de structure cristallographique cubique centrée, la maille est équivalente suivant les trois directions [001], [010] et [100]. Ces trois directions sont des axes de facile aimantation. En revanche, dans le même matériau déposé en couche mince, il faut tenir compte de l'énergie dipolaire. Les moments magnétiques vont se coucher dans le plan du film pour minimiser l'énergie magnetostatique du système, les directions [010] et [100] sont alors les deux seuls axes faciles d'aimantation. L'anisotropie magnétique d'une structure dépend donc à la fois du matériau et de la morphologie de l'échantillon étudié (couche mince ou matériau massif).

L'énergie magnétique peut s'écrire comme la somme de termes d'énergie ayant différentes origines :

$$e_{magnetique} = e_{dipolaire} + e_{Zeeman} + e_{magnetocristalline} + e_{magnetoelastique} + e_{interfaces}.$$

- l'énergie dipolaire, appelée aussi énergie de champ démagnétisant, est l'énergie magnétostatique d'interaction entre des moments magnétiques entre eux. Dans une couche mince uniformément aimantée, ce terme d'énergie favorise l'alignement de l'aimantation suivant la plus grande direction de l'échantillon, *ie* il tend à coucher l'aimantation dans le plan de la couche mince,
- l'énergie Zeeman correspond à l'interaction des moments magnétiques et d'un champ magnétique extérieur \vec{H}_{ext} . Ce terme d'énergie tend à orienter l'aimantation \vec{M}_S dans la direction de ce champ,
- l'énergie magnétocristalline correspond à une interaction des moments magnétiques et du réseau cristallin via le couplage spin-orbite; elle donne aux moments magnétiques une orientation préférentielle qui dépend de la structure du matériau,
- l'énergie magnétoélastique provient de l'interaction entre l'aimantation et les déformations mécaniques du réseau. Ainsi dans les systèmes multicouches épitaxiés Cu/Ni/Cu(001), la direction de facile aimantation dépend de l'épaisseur du nickel par le biais de la contrainte épitaxiale [BOC95]. Ce terme d'énergie est cependant négligé la plupart du temps.

– à cela, il faut ajouter des effets d’interface dans un matériau constitué de multicouches.

Dans le cas d’une structure en multicouches comme Co/Pt, les effets d’interface vont être prépondérants devant les autres termes et vont entraîner l’obtention d’une direction de facile aimantation perpendiculaire au plan des couches. Au sein du laboratoire, les systèmes multicouches Co/Pt réalisés par pulvérisation cathodique par dépôt alterné de films ultra-minces de cobalt et de platine ont été largement étudiés [LAN01].

Dans les alliages binaires ordonnés dans la phase $L1_0$ (voir paragraphe 1.2), comme FePd, FePt ou CoPt, c’est le terme d’énergie magnétocristalline qui va permettre l’obtention d’une anisotropie magnétique perpendiculaire. Dans un matériau ferromagnétique uniformément aimanté d’aimantation globale \vec{M}_S déposé en couche mince, si θ est l’angle entre \vec{M}_S et l’axe perpendiculaire au plan des couches et α l’angle entre l’aimantation et un champ magnétique extérieur \vec{H}_{ext} , l’énergie magnétique volumique du système peut s’exprimer sous la forme :

$$\begin{aligned} e_{magnétique} &= e_{dipolaire} + e_{Zeeman} + e_{magnétocristalline} \\ &= -\frac{1}{2}\mu_0 M_S^2 \sin^2(\theta) - \mu_0 M_S \cdot H_{ext} \cos(\alpha) \\ &\quad + K_1 \sin^2(\theta) \end{aligned}$$

$$\text{soit } e_{magnétique} = -\frac{1}{2}\mu_0 M_S^2 \sin^2(\theta) \cdot [1 - Q] - \mu_0 M_S \cdot H_{ext} \cos(\alpha).$$

où K_1 est la constante d’anisotropie uniaxiale du matériau considéré¹ et $Q = 2K_1/\mu_0 M_S^2$ est le facteur de qualité du matériau.

La réponse des moments magnétiques des atomes soumis à un champ magnétique extérieur va dépendre du signe et de l’amplitude de l’anisotropie uniaxiale K_1 . Ce terme d’énergie magnétocristalline est à comparer avec le terme d’énergie dipolaire. En l’absence de champ magnétique extérieur, la direction de l’aimantation est déterminée en comparant les termes d’énergie dipolaire et magnétocristalline, ce qui peut s’exprimer par l’intermédiaire du facteur de qualité Q :

- si $Q > 1$, l’énergie magnétocristalline prédomine et le matériau présente une aimantation perpendiculaire au plan du film,
- si $Q < 1$, l’énergie dipolaire prédomine et l’aimantation reste couchée dans le plan du film.

Notons que cette description n’est valable qu’en l’absence de domaines magnétiques. La formation de ceux-ci diminue en effet le coût en énergie d’une aimantation perpendiculaire, et peut l’établir pour $Q < 1$, en fonction de l’épaisseur de la couche mince considérée [GEH99].

Le facteur de qualité de quelques matériaux à forte anisotropie perpendiculaire est donné dans le tableau ci-dessous.

| | K_1 ($10^6 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$) | M_S ($10^3 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$) | Q | T_c (K) |
|-----------------|--|--|----------|-----------|
| CoPt ($L1_0$) | 4,9 | 800 | 12,1 | 840 |
| FePd ($L1_0$) | 1,8 | 1100 | 2,4 | 760 |
| FePt ($L1_0$) | 6,6 à 10 | 1140 | 8,1 à 12 | 750 |

FIG. 1.2: Propriétés magnétiques de quelques alliages à aimantation perpendiculaire (tiré de [WEL99]).

Ces dernières années, le laboratoire a développé une forte activité dans l’étude de matériaux ferromagnétiques à aimantation perpendiculaire. Ainsi, les travaux de thèse de de V.Gehanno [GEH97], D.Halley

¹Les termes d’ordre supérieur, faisant intervenir d’autres constantes d’anisotropie K_i ($K_2 \sin^4(\theta), \dots$) sont négligés dans l’expression de l’énergie magnétocristalline.

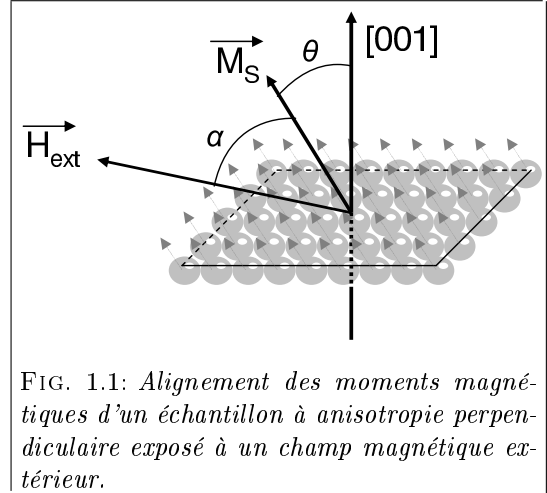


FIG. 1.1: Alignement des moments magnétiques d’un échantillon à anisotropie perpendiculaire exposé à un champ magnétique extérieur.

[HAL01a] et J.P.Attane [ATT03] ont porté sur l'élaboration par épitaxie par jets moléculaires et la caractérisation structurale et magnétique de films minces FePd ou FePt ordonnés. L'étude décrite dans ce manuscrit repose sur l'utilisation de l'alliage équiatomique FePt et bénéficie donc largement de cet acquis.

1.2 Généralités sur les alliages FePt

Suivant la composition atomique de l'alliage $\text{Fe}_x\text{Pt}_{1-x}$, celui-ci possède différentes propriétés magnétiques. A très haute température, une solution solide (Fe,Pt) désordonnée de structure cristallographique cubique faces centrées est obtenue. A température ambiante, le diagramme de phase donne principalement trois structures d'équilibre (voir figure 1.3) : Fe_3Pt (ordonné dans la phase $L1_2$), FePt ($L1_0$) et FePt_3 ($L1_2$). Suivant les conditions d'élaboration, l'alliage obtenu par épitaxie par jets moléculaires est plus ou moins ordonné à l'issue du dépôt : chacune de ces trois structures peut être obtenue dans la phase désordonnée cubique faces centrées. Parmi ces matériaux, seul le FePt ordonné dans la phase $L1_0$ (voir figure 1.4) possède les propriétés magnétiques qui justifient un fort intérêt pour des applications comme média d'enregistrement magnétique à haute densité, à savoir une forte anisotropie uniaxiale et une forte aimantation à saturation.

Cette structure présente une large zone de stabilité en composition : d'après le diagramme de phase de FePt, la structure $L1_0$ est stable pour une composition atomique de platine comprise entre 35% et 70%. Dans la suite de cette étude, « FePt » désignera toujours l'alliage équiatomique $\text{Fe}_{0,5}\text{Pt}_{0,5}$.

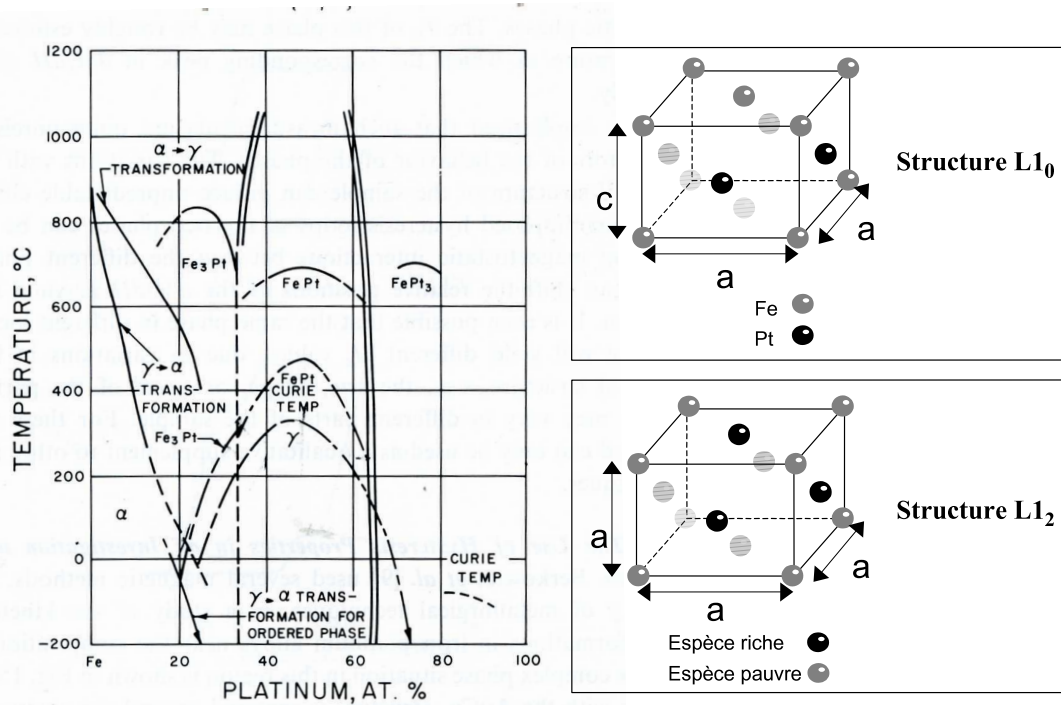


FIG. 1.3: Diagramme de phase de l'alliage FePt (tiré de [BER69]) et schéma des structures $L1_0$ et $L1_2$ (dans cette phase, Fe est l'élément riche dans Fe_3Pt et l'élément pauvre dans FePt_3).

En couches minces, suivant les conditions d'élaboration, l'alliage équiatomique FePt peut être obtenu par épitaxie par jets moléculaires dans les phases désordonnées (cfc) ou $L1_0$ (voir figure 1.4). La structure $L1_0$ consiste en une alternance de plans atomiques occupés exclusivement par des atomes de fer ou de platine. L'empilement de ces monocouches atomiquement pures suivant l'axe $[001]$ (axe c) produit une déformation tétragonale du réseau cristallin suivant cette même direction, quantifiée par le rapport c/a . Ce rapport vaut 0,96 pour une phase FePt $L1_0$ parfaitement ordonnée ; il vaut 1 dans le cas d'un alliage désordonné.

La mise en ordre dans la phase $L1_0$ est quantifiée par le paramètre d'ordre à longue distance S . Si n_{Fe} est le taux d'occupation par des atomes de Fe des sites des plans atomiques riches en Fe, et n_{Pt} le taux d'occupation par des atomes de Pt des sites de ces mêmes plans atomiques riches en Fe ($n_{\text{Fe}} + n_{\text{Pt}} = 1$),

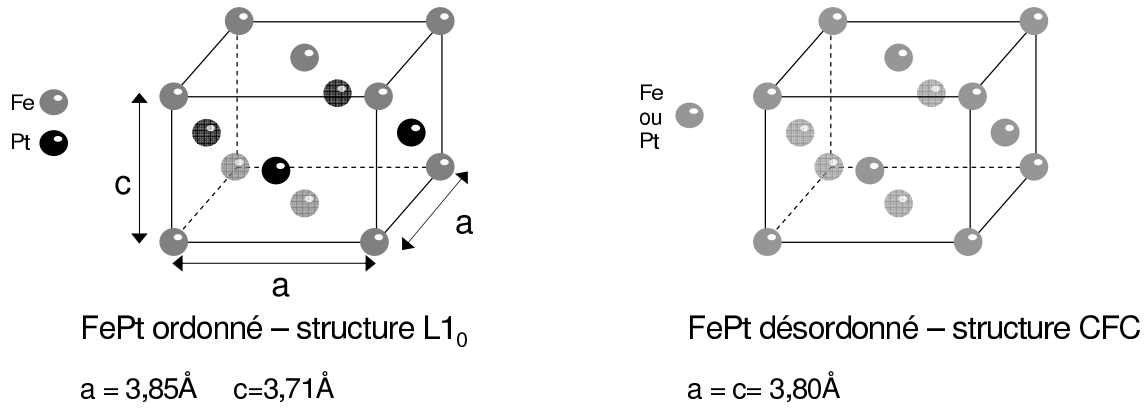


FIG. 1.4: Structures cristallographiques de l'alliage FePt équiatomique.

S est donné par la relation : $S = |n_{\text{Fe}} - n_{\text{Pt}}|$.

Pour une phase complètement désordonnée, $n_{\text{Fe}} = n_{\text{Pt}} = 1/2$ et S est nul. À l'inverse, pour une phase parfaitement ordonnée, $n_{\text{Fe}} = 1$ et $n_{\text{Pt}} = 0$, d'où un paramètre d'ordre égal à l'unité.

La mise en ordre dans la phase $L1_0$ va déterminer les propriétés magnétiques de l'alliage. Ainsi, Okamoto *et al.* [OKA02] ont établi une relation entre le degré d'ordre S et l'amplitude de l'anisotropie uniaxiale K_1 . La forte amplitude de K_1 provient d'une hybridation des états électroniques Fe *d* (portant l'aimantation) et Pt *d*, conduisant à une anisotropie élevée du fait de l'asymétrie de la maille associée au fort couplage spin-orbite caractéristique du platine [DAA91].

Soulignons l'anisotropie structurale de la phase $L1_0$, c'est à dire l'empilement alterné de monocouches de fer et de platine suivant un axe *c*. Remarquons que dans la structure $L1_0$, chaque atome d'une espèce est entouré par quatre atomes de la même espèce et huit atomes de l'autre espèce. Notons que l'anisotropie de cette structure est semblable à celle que l'on peut retrouver dans des multicouches Co/Pt ou Fe/Pt [OKA02] : l'alternance de plans atomiques de fer et de platine suivant l'axe *c* est à l'origine de l'anisotropie magnétocristalline du matériau, l'axe *c* de la maille tétragonale correspondant à l'axe de facile aimantation. Sur la figure 1.4, la structure $L1_0$ présente un axe *c* aligné suivant la direction [001]. Il existe deux autres variants où l'axe *c* peut être aligné suivant la direction [010] ou [100] : l'obtention d'un matériau ayant un axe facile d'aimantation perpendiculaire bien défini implique que les conditions d'élaboration de l'alliage permettent d'obtenir le seul variant où l'axe *c* correspond à la direction cristallographique [001].

FePt est un alliage possédant une forte aimantation à saturation ($M_S = 1140 \text{ kA/m}$ [WEL99]; nous avons mesuré $M_S = 1040 \text{ kA/m}$ sur nos échantillons). Dans la structure FePt $L1_0$, le moment magnétique est porté essentiellement par les atomes de fer ($2,93 \mu_B$), mais il y a aussi un moment magnétique non négligeable porté par les atomes de platine ($0,29 \mu_B$) [STA04].

Du fait de la forte anisotropie magnétique du matériau, il est possible d'obtenir des couches minces FePt présentant une rémanence magnétique totale suivant l'axe perpendiculaire : c'est là une des propriétés les plus intéressantes de FePt ordonné dans la phase $L1_0$, le matériau possède une aimantation rémanente égale à l'aimantation à saturation.

1.3 Croissance de couches minces FePt par épitaxie par jets moléculaires

1.3.1 Dispositif d'épitaxie par jets moléculaires (*Molecular Beam Epitaxy* MBE)

Dépôt par canons à électrons

L'épitaxie par jets moléculaires est une technique de dépôt sous ultra-vide. Elle correspond à la croissance orientée d'un matériau cristallin sur un cristal, identique ou plus généralement de nature différente. Ce phénomène n'est possible que si les matériaux considérés présentent des analogies de structure *ie* des symétries cristallographiques comparables ou des paramètres de maille voisins.

Des jets de matière sous forme atomique ou moléculaire sont issus d'une ou de plusieurs sources (dans le cas d'un codépôt) et convergent vers le substrat cristallin monté sur un four. Les éléments envoyés s'y déposent en adoptant un ordre cristallographique initié par le substrat ou par une couche précédemment déposée.

Pour la croissance des alliages ferromagnétiques FePt, on utilise un bâti d'épitaxie de type RIBER dédié à la croissance de métaux et d'oxydes. Les éléments déposés tels que le fer (Fe) et le platine (Pt) sont placés dans des creusets de cuivre. Un faisceau d'électrons de forte énergie (10keV) et intense (quelques 100mA) émis par un filament situé à proximité du creuset permet d'évaporer localement le matériau à déposer.

Préparation des substrats

Le nettoyage des substrats utilisés consiste en trois bains successifs d'une durée de 10 à 15 minutes. Tout d'abord un bain de dichlorométhane bouillant², puis un bain d'acétone et enfin un bain d'éthanol. Après séchage à l'azote, les substrats sont collés avec une goutte d'indium sur un support généralement en molybdène, appelé « molybloc ». Ce support est introduit dans le bâti.

Un deuxième traitement a lieu *in-situ* : les substrats sont recuits pendant 6h à différents paliers de température (la plus élevée étant de 550°C) afin d'éliminer les impuretés comme l'eau ou les composés carbonés adsorbés en surface. Il est nécessaire que la température du dégazage soit supérieure à la température maximale utilisée au cours du dépôt (500°C dans notre cas) afin d'éviter une pollution de l'enceinte de dépôt par évaporation d'impuretés présentes sur le molybloc.

Description du bâti utilisé

Le bâti d'épitaxie utilisé pour la réalisation de nos dépôts comprend plusieurs chambres sous ultra-vide interconnectées. La pression moyenne est de l'ordre de 10^{-10} à 10^{-9} mbar, le vide étant maintenu par des pompes ioniques et des sublimateurs de titane.

Les échantillons sont introduits dans le bâti par un sas d'introduction rapide. Un vide correct ($<10^{-6}$ mbar) est assuré par des étapes de pompage primaire, turbomoléculaire et ionique, puis les molyblocs sont transférés dans une chambre d'introduction. Cette dernière est équipée en particulier d'un four permettant d'effectuer le dégazage des substrats avant dépôt. La croissance des échantillons se fait dans une chambre d'évaporation, schématisée sur la figure 1.5.

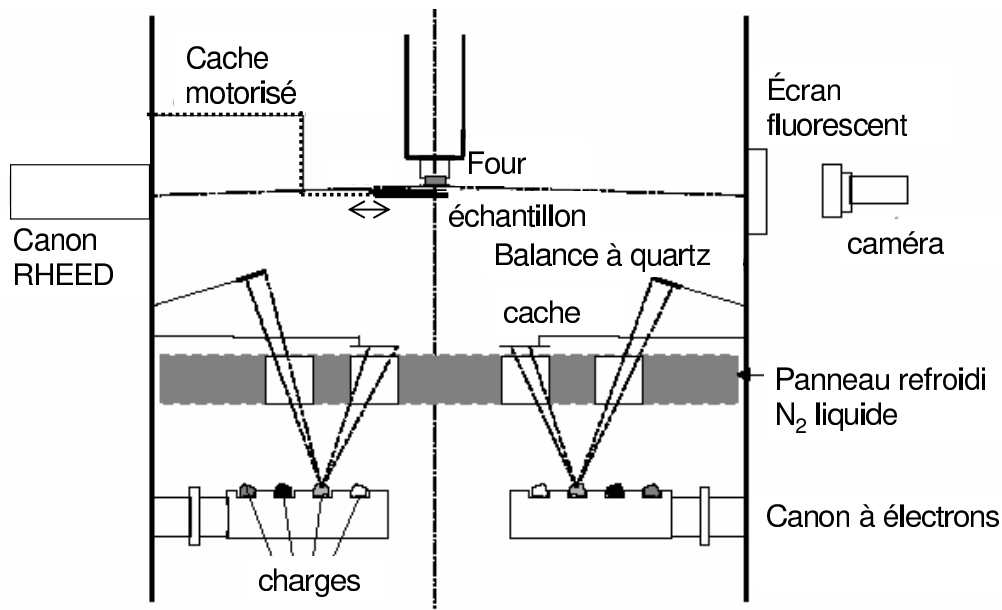


FIG. 1.5: Schéma du bâti de dépôt par épitaxie utilisé pour la croissance de la barrière tunnel MgO et des électrodes ferromagnétiques FePt (tiré de la thèse de J.P. Attané [ATT03]).

²Ce dégraissant que nous avons mis en oeuvre dans le courant de la thèse remplace le trichloroéthylène utilisé jusque là.

La chambre de dépôt comporte deux canons à électrons pouvant fonctionner simultanément. Chacun permet l'utilisation de quatre creusets, dédiés à l'évaporation de quatre matériaux différents. Deux caches mobiles motorisés permettent de bloquer les flux rapidement, et ainsi d'avoir un contrôle précis de l'épaisseur déposée.

Les balances à quartz servent à mesurer et à réguler les flux de matière envoyés par les canons. Elles sont placées de façon à ce que le flux de matière mesuré soit le même que celui qui est reçu par l'échantillon. La régulation de la vitesse de dépôt se fait par un système de rétroaction sur les balances à quartz : une augmentation du flux de matière reçu (converti en épaisseur de matériau déposé sur l'échantillon) fera diminuer la puissance de fonctionnement du canon à électrons.

Le cache motorisé peut être avancé au cours du dépôt afin de masquer une partie de l'échantillon (voir figure 1.5). Ceci nous donne la possibilité de réaliser des marches d'épaisseur, voire des coins d'épaisseur en faisant avancer le cache de façon continue.

Pour le dépôt, l'échantillon est placé sur un bras manipulateur situé au centre de la chambre. Le manipulateur est équipé d'un four qui permet de porter les échantillons à des températures allant jusqu'à 1200°C. Il permet notamment de monter en moins de 2 minutes à 500°C, ce qui nous permet de faire des recuits « flashes ». Comme l'indique le schéma 1.5, les échantillons sont placés « face vers le bas » au cours du processus de croissance, ce qui signifie que pour un dépôt réalisé à chaud, les échantillons ne sont maintenus sur le molybloc que par capillarité de l'indium.

Au cours du dépôt, les parois sont refroidies par un flux d'azote liquide. Les particules polluantes présentes dans l'enceinte vont alors se condenser sur les panneaux froids, améliorant ainsi la qualité du vide.

1.3.2 Caractérisation *in-situ* : diffraction d'électrons rasants RHEED

Principe

La diffraction d'électrons sous incidence rasante (*Reflection High Energy Electron Diffraction* RHEED) permet de suivre en temps réel l'état de la surface de films minces pendant leur croissance. Un faisceau d'électrons de haute énergie (40keV dans notre cas) est focalisé sur l'échantillon sous une incidence quasiment rasante (typiquement un ou deux degrés), les électrons sont diffractés par les atomes proches de la surface (à ces angles, la longueur de pénétration des électrons n'est que de quelques plans atomiques).

La longueur d'onde associée au faisceau d'électrons de haute énergie est donnée par :

$$\lambda = \frac{h}{mv} = \frac{h}{\sqrt{2meV}} = 0,06\text{\AA}.$$

où h est la constante de Planck, v la vitesse des électrons envoyés, m leur masse et e la charge élémentaire.

La figure de diffraction obtenue par cette technique peut être représentée par l'intersection du réseau réciproque du cristal avec la sphère d'Ewald, de rayon $2\pi/\lambda$. Dans le cas d'un échantillon de structure cubique et de paramètre de maille a dans le plan, le réseau réciproque devient un jeu de droites perpendiculaires à la surface et distantes de $2\pi/a$.

L'image de diffraction d'une surface plane doit correspondre aux points situés à l'intersection d'un ensemble de droites et d'une sphère. En réalité, il y a une certaine dispersion des électrons en longueur d'onde et le faisceau n'est pas parfaitement focalisé : la sphère d'Ewald est en fait une couronne sphérique. Il en résulte que l'image de diffraction obtenue dans le cas d'une surface monocristalline parfaitement plane correspond à des tiges verticales, lisses et nettes, séparées horizontalement d'une distance $2\pi/a$. Connaissant le paramètre de maille du substrat, l'évolution de l'espacement entre les tiges au cours du dépôt nous renseigne sur l'évolution du paramètre de maille des différentes couches déposées.

Modes de croissance

L'appréciation du cliché de diffraction permet de déterminer la structure de la surface (monocristal, polycristal...), ses reconstructions éventuelles, le mode de croissance (bidimensionnel ou tridimensionnel), ou encore de suivre l'évolution de son paramètre de maille :

- lorsque la croissance est bidimensionnelle, le cliché de diffraction est composé de tiges plus ou moins fines suivant la qualité de la surface, séparées de la distance $2\pi/a$ correspondant au paramètre de maille a du matériau déposé. Le suivi du diagramme RHEED au cours de la croissance permet ainsi d'étudier les phénomènes de relaxation de contraintes des différentes couches déposées,

- lorsque le front de croissance de l'échantillon n'est pas continu, *ie* suite à l'apparition d'une rugosité ou lors d'une croissance tridimensionnelle, les tiges font place à des points alignés verticalement et séparés horizontalement de la distance $2\pi/a$,
- lorsque la croissance n'est pas monocristalline mais se fait simultanément suivant deux orientations différentes, les deux diagrammes correspondant aux deux orientations cristallographiques sont superposés. Dans le cas d'une couche polycristalline, le diagramme de diffraction ne présente plus que des arcs de cercle concentriques (anneaux de diffraction),
- en cas de croissance d'un matériau amorphe, le cliché observé n'est plus qu'un halo diffus.

Oscillations d'intensité

Dans le cas d'une croissance parfaitement bidimensionnelle ou plan par plan, la technique de diffraction RHEED permet de déterminer la vitesse de dépôt d'un matériau (en monocouches/unité de temps). Il y a en effet variation périodique de la rugosité du cristal au cours de la croissance; celle-ci est maximale quand la dernière monocouche de surface n'est qu'à moitié formée, et elle est minimale quand la surface correspond à une monocouche complètement déposée.

Ainsi, au cours du dépôt, lorsque le front de croissance avance, l'intensité du diagramme de diffraction oscillera successivement entre des valeurs fortes (monocouche complète) et plus faibles (monocouche à moitié formée), la période des oscillations correspondant exactement au temps nécessaire pour faire croître une monocouche.

Avec cette technique, il devient alors possible d'étalonner très précisément la vitesse de dépôt des différentes espèces que l'on fait croître sur l'échantillon.

1.3.3 Différents modes d'élaboration

Position du problème

Depuis 1995, le laboratoire a étudié l'influence des conditions de dépôt sur la mise en ordre $L1_0$ de l'alliage FePt (ou FePd). L'obtention d'un degré d'ordre maximal, associé à une forte anisotropie perpendiculaire, peut se faire suivant deux voies différentes :

- la croissance de l'alliage peut être réalisée par codépôt des deux éléments à forte température (500°C) sur une couche tampon de platine, de paramètre de maille légèrement supérieur au paramètre de maille a de l'alliage. Notons que la contrainte épitaxiale favorise donc la croissance de la phase ordonnée $L1_0$ dans le variant d'axe c suivant $[001]$,
- la croissance peut être réalisée par codépôt à 500°C directement sur un substrat MgO(100). Dans ce cas, les toutes premières couches atomiques sont très perturbées par un grand nombre de dislocations (une tous les dix plans atomiques) qui permettent de relaxer très rapidement l'écart considérable des paramètres de maille ($\sim 10\%$).

Dans les deux cas, il semble que la différence des tensions de surface entre Fe et Pt favorise la formation du variant d'axe c perpendiculaire [HAL01]. Signalons que d'autres modes de dépôt sont possibles : un codépôt à température plus faible, ou la croissance plan par plan de l'alliage (dépôt alterné de monocouches atomiquement pures). Toutefois, un degré d'ordre plus faible est alors obtenu.

Les travaux de thèse de Halley [HAL01a], portant sur des couches ferromagnétiques épaisses de quelques dizaines de nanomètres, ont montré des comportements magnétiques différents suivant que l'alliage est déposé sur couche tampon de Pt ou sur substrat MgO. Aussi, dans ce chapitre, nous étudions les propriétés magnétiques d'alliages FePt déposés sur ces deux supports. En effet, parmi les dispositifs pour l'électronique de spin que nous avons cherché à réaliser figure le système JTM (Jonction Tunnel Magnétique) comportant deux électrodes FePt à aimantation perpendiculaire enserrant une barrière tunnel MgO.

L'intérêt pratique des JTMs repose sur l'accès à des configurations où les aimantations des deux couches ferromagnétiques sont alignées dans le même sens (configuration parallèle, notée P) ou sont de sens opposé (configuration antiparallèle, notée AP). Ceci implique nécessairement que les deux couches ferromagnétiques présentent des renversements d'aimantation disjoints, *ie* possèdent des champs de retournement très différents, de façon à pouvoir retourner les aimantations individuellement. Dans le cas de JTMs symétriques, *ie* possédant deux électrodes de même nature, cet effet peut être obtenu par deux voies :

- la technique la plus utilisée consiste à accoler à l'une des deux électrodes une couche antiferromagnétique. Par échange, cette dernière va stabiliser l'aimantation de la couche ferromagnétique

(décalage du cycle, accroissement du champ coercitif) [DIE91],

- une alternative consiste à singulariser les propriétés magnétiques de chaque électrode, en jouant sur les épaisseurs déposées ou sur leur désordre structural, de façon à contrôler les champs de renversement mis en jeu.

C'est cette deuxième voie que nous avons choisi d'explorer pour élaborer nos JTM : a priori, les deux empilements JTM qu'il nous était possible de réaliser étaient $FePt/MgO/FePt/Pt/MgO(100)$ et $FePt/MgO/FePt/MgO(100)$, les conditions expérimentales de dépôt étant adaptées de façon à obtenir l'ordre chimique maximal.

Toutefois, afin de favoriser une différenciation plus nette des propriétés magnétiques des deux électrodes, nous nous sommes orientés vers la croissance de la structure JTM $FePt/MgO/FePt/Pt/MgO(100)$.

La suite de ce chapitre va se consacrer à la croissance et à l'étude des propriétés magnétique de couches minces FePt déposées sur couche tampon de platine ou substrat MgO.

Croissance de l'alliage FePt déposé sur couche tampon de Pt

Ce système correspond à l'électrode inférieure d'une JTM FePt/MgO/FePt. Les substrats sur lesquels nous avons réalisé nos dépôts sont des substrats monocristallins de MgO (structure cubique de type NaCl, paramètre de maille $a=4,213\text{\AA}$) polis (100). Cette orientation permet d'amorcer la croissance de la structure suivant une direction [001] [FAR96] et d'obtenir en particulier des couches ferromagnétiques FePt à anisotropie perpendiculaire. Après le dégazage dans la chambre d'introduction, le substrat MgO présente un cliché de diffraction RHEED comportant de nombreuses lignes de Kikuchi (voir figure 1.6), caractéristiques d'un cristal de bonne qualité.

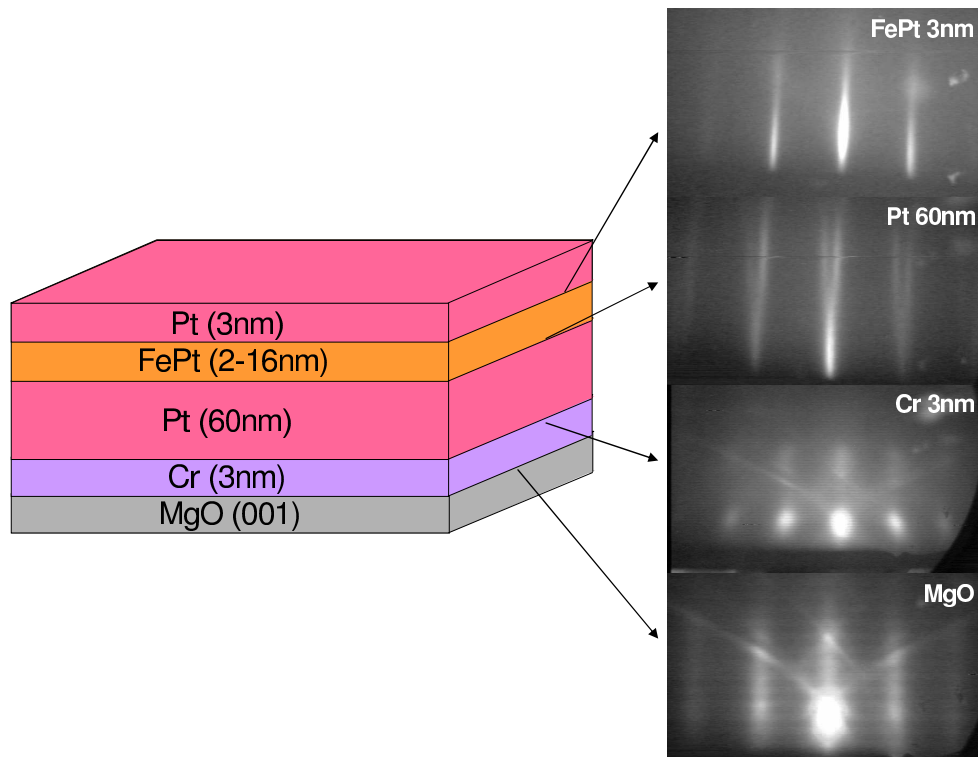


FIG. 1.6: Schéma de structure d'un échantillon Pt/FePt/Pt/Cr/MgO(100). La dernière couche de platine sert à protéger l'alliage d'une éventuelle oxydation. La direction de croissance correspond à la direction cristallographique [001] du substrat. Les clichés RHEED sont pris suivant l'azimut [100] du substrat.

La croissance de la structure est suivie en continu par diffraction RHEED. La différence de paramètre de maille importante entre le MgO ($a_{MgO}=4,21\text{\AA}$) et l'alliage FePt (paramètre de maille dans le plan $a_{FePt}=3,85\text{\AA}$) nous conduit à utiliser une couche tampon de platine ($a_{Pt}=3,92\text{\AA}$) suffisamment épaisse. Il est possible de déposer directement l'alliage FePt sur le substrat MgO (voir plus loin), mais dans ce cas la qualité structurale des premières couches FePt déposées n'est pas optimale.

La première couche déposée est une couche de 3nm de chrome, dite « couche d'accrochage ». Elle permet d'assurer une bonne texturation de la couche tampon de platine, suivant la relation d'épitaxie avec le MgO $Pt(001)[110]//MgO(001)[110]$. En l'absence de cette couche de chrome, le platine a tendance à croître suivant l'orientation cristallographique [111] [MOR00]. Notons qu'il est possible d'utiliser une couche d'accrochage de fer à la place du chrome, les deux éléments présentant des paramètres structuraux comparables. Le chrome, matériau antiferromagnétique, présente cependant l'avantage de ne pas ajouter un signal à celui des électrodes ferromagnétiques lors de mesures d'aimantation globales (VSM ou SQUID).

La couche de chrome et la couche de platine, d'épaisseur 60nm, sont déposées successivement à température ambiante et recuites vers 500°C pendant une dizaine de minutes. Ce recuit permet de lisser la surface du platine.

Une fois la bonne qualité de la couche tampon de platine établie par le RHEED, l'alliage FePt est déposé par codéposition des deux éléments Fe et Pt sur l'échantillon maintenu vers 500°C. La vitesse de dépôt est de l'ordre de 0,6Å/s. Cette croissance FePt/Pt est maîtrisée de longue date [FAR96] [HAL04].

Relaxation des contraintes épitaxiales dans une couche mince FePt/Pt

La différence de paramètre de maille dans le plan entre le platine (couche tampon) et l'alliage FePt massif est de l'ordre de 1,8%. Sur des couches ultra minces FePt d'épaisseur 4nm, les mesures de diffraction X (voir chapitre 3.2) nous donnent des valeurs de paramètre de maille dans le plan $a=3,92\text{Å}$ ($\pm 0,01\text{Å}$), égal au paramètre de maille de la couche tampon de platine, et hors du plan $c=3,64\text{Å}$ ($\pm 0,01\text{Å}$), ce qui signifie que l'alliage croît de façon complètement contrainte sur la couche tampon de platine.

Au cours de sa thèse, David Halley [HAL01a] a étudié la relaxation des contraintes épitaxiales en fonction de l'épaisseur de matériau ferromagnétique déposé dans le cas d'un système FePd - ordonné dans la phase $L1_0$ - déposé sur couche tampon de Pd. Les paramètres de mailles des deux couches ferromagnétiques ordonnées dans la phase $L1_0$ FePt et FePd sont voisins, de même que leurs propriétés élastiques : les comportements des deux systèmes FePt/Pt et FePd/Pd sont semblables du point de vue de la relaxation des contraintes épitaxiales. La figure ci-contre représente le suivi *in-situ* par diffraction RHEED de la relaxation ϵ_{rel} ($\epsilon_{rel} = (a_{Pd} - a_{FePd,\parallel})/a_{Pd}$) en fonction de l'épaisseur.

Au delà d'une épaisseur critique de matériau FePd déposé $h_c=10\text{nm}$, il y a relaxation progressive des contraintes épitaxiales avec l'épaisseur de matériau déposé.

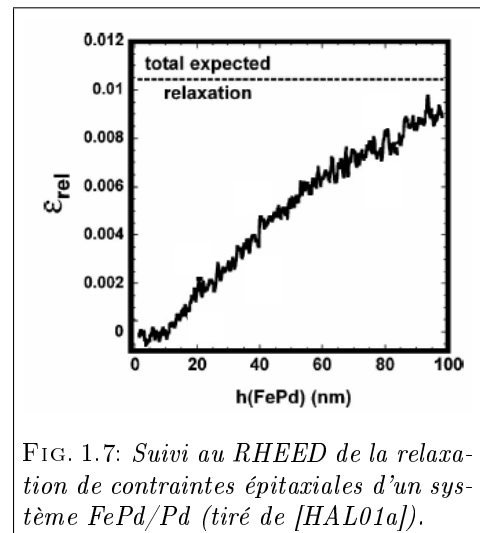


FIG. 1.7: Suivi au RHEED de la relaxation de contraintes épitaxiales d'un système FePd/Pd (tiré de [HAL01a]).

Lorsque la couche ferromagnétique est chimiquement ordonnée, Halley a observé que le mécanisme de relaxation des contraintes épitaxiales mettait en jeu la propagation de dislocations partielles de vecteur de Burger $a/6\langle 112 \rangle$ sur des plans atomiques (111). En s'accumulant sur des plans adjacents, ce qui permet de minimiser les énergies de faute (en ne laissant que deux interfaces pour un grand nombre de dislocations ainsi regroupées), ce mécanisme conduit à la formation de défauts étendus, les micromacles. Le processus de relaxation se poursuit avec l'épaisseur déposée; la densité de micromacles formées évolue peu, les nouvelles dislocations s'empilant au niveau des défauts existants. Jusqu'à des épaisseurs déposées d'au moins 80nm, le nombre de dislocations dans une micromacle continue à s'accroître presque linéairement avec l'épaisseur [HAL02].

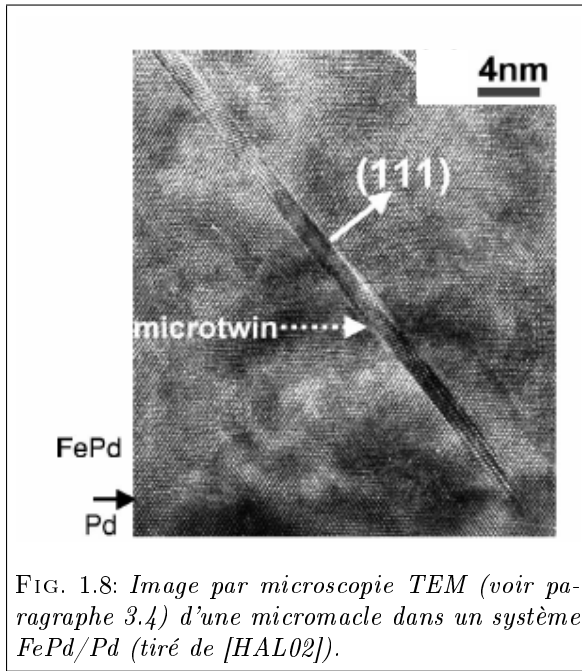


FIG. 1.8: Image par microscopie TEM (voir paragraphe 3.4) d'une micromacule dans un système FePd/Pd (tiré de [HAL02]).

L'accumulation de dislocations entraîne une déformation de la topographie de la surface de la couche ferromagnétique, par la création d'une marche d'épaisseur. Il est donc possible de visualiser les positions des micromacules par microscopie AFM, et d'estimer ainsi leur distribution. En AFM, les marches d'épaisseur créées au niveau de la surface apparaissent comme des lignes orientées suivant les directions $[110]$ (et $[-1-10]$). La hauteur de la marche est proportionnelle au nombre de dislocations ayant formé la micromacule, chacune de celles là apportant une contribution de $c/3 = 1,2\text{\AA}$ à la hauteur totale. Typiquement, une couche FePd d'épaisseur 20nm déposée sur Pd comporte des micromacules constituées de 4 dislocations en moyenne, ce qui correspond à une hauteur des marches de surface de 0,5nm.

D'un point de vue topographique, les micromacules apportent donc une rugosité supplémentaire à la surface, mais ne perturberont pas vraiment la croissance épitaxiale de couches minces sur un système FePt/Pt. En revanche, elles ont un effet non négligeable sur les propriétés magnétiques de la couche ferromagnétique. Attané [ATT03] a ainsi constaté que les micromacules agissaient comme des sites de piégeage des parois de domaines magnétiques, alignant les parois de domaine suivant les directions $[110]$ du substrat (voir figure 1.9) et augmentant le champ coercitif et le champ de saturation de l'échantillon.

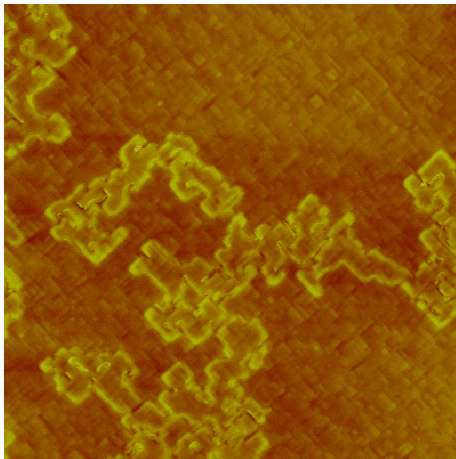


FIG. 1.9: Image MFM (voir paragraphe 1.4.2) de taille $8\mu\text{m} \times 8\mu\text{m}$ d'un état de renversement d'aimantation partiel d'une couche FePt d'épaisseur 45nm déposée sur une couche tampon de Pt. Le signal topographique et le signal magnétique sont superposés sur l'image, ce qui permet de visualiser l'ancrage des parois de domaines sur les micromacules (tiré de [ATT03]).

Dans le système FePt/Pt, Attané a constaté l'apparition de micromacules à partir d'une épaisseur de couche ferromagnétique déposée égale à 5nm. Au delà de cette épaisseur critique, la relaxation des contraintes épitaxiales se fait progressivement.

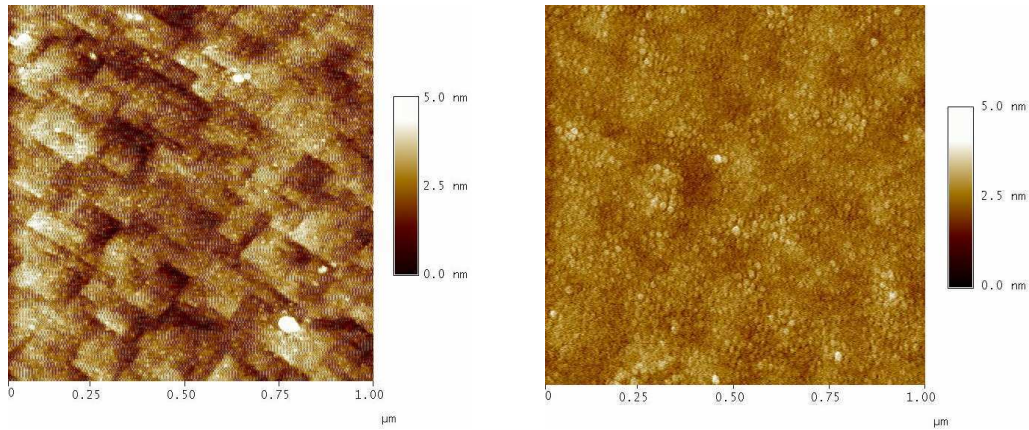


FIG. 1.10: Images AFM ($1\mu\text{m}\times 1\mu\text{m}$) des couches FePt déposées sur couche tampon de Pt, d'épaisseur 16nm (figure de gauche, rugosité RMS 0,82nm) et 4nm (figure de droite, rugosité RMS 0,51nm). les micromacles sont clairement visibles sur l'échantillon de plus forte épaisseur et sont responsables d'une plus grande rugosité de cet échantillon. Le bord inférieur des images correspond à la direction [100].

Croissance de l'alliage FePt déposé sur substrat MgO(100)

La procédure de dépôt est quasi semblable à ce qui est décrit dans le paragraphe précédent : le substrat MgO est dégraissé puis subit une procédure de dégazage avant dépôt. La couche ferromagnétique est alors déposée directement par codéposition des deux éléments Fe et Pt sur le substrat porté à 500°C . La vitesse du dépôt est de l'ordre de $0,6\text{\AA}/\text{s}$. La croissance de la structure est suivie en continu par diffraction RHEED (voir figure 1.11).

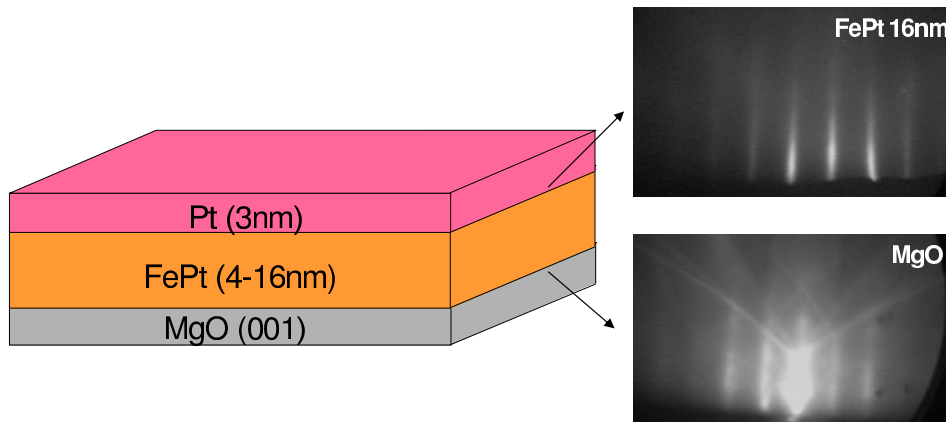


FIG. 1.11: Schéma de structure d'un échantillon FePt/MgO(100). La dernière couche de platine sert à protéger l'alliage d'une éventuelle oxydation. La direction de croissance correspond à la direction cristallographique [001] du substrat. Les clichés RHEED sont pris suivant l'azimut [100] du substrat.

Là encore, le processus de croissance FePt/MgO est maîtrisé de longue date [HAL01a] et la mise en ordre chimique dans la phase $L1_0$ suivant le seul variant [001] est obtenue spontanément. Toutefois, les premières couches déposées sont mal ordonnées, du fait de la forte différence de paramètre de maille dans le plan de l'alliage FePt avec le substrat ($\frac{\Delta a}{a} \sim 8,6\%$) : il y a ainsi l'apparition instantanée d'un réseau de dislocations parfaites à l'interface FePt/MgO. Les premières couches déposées servent de couche tampon pour les suivantes.

Une mesure de diffraction X nous renseigne sur les valeurs des paramètres de maille dans le plan et hors du plan : $a=3,85\text{\AA}$ et $c=3,71\text{\AA}$, et ce même pour les couches de plus faibles épaisseurs. Ces valeurs correspondent au matériau FePt massif [JCP99] : en raison de la différence de paramètre de maille dans le plan des couches $a_{\text{MgO}}=4,21\text{\AA}$ et $a_{\text{FePt}}=3,85\text{\AA}$ ($\pm 0,01\text{\AA}$), le matériau ferromagnétique croît de façon complètement relaxée sur le substrat.

1.4 Outils de caractérisation magnétique

Les diverses mesures magnétiques réalisées au cours de cette thèse ont été effectuées par effet Kerr, MFM (*Magnetic Force Microscopy*, VSM (*Vibrating Sample Magnetometer*), SQUID (*Superconducting QUantum Interference Device*) et effet Hall extraordinaire. Les deux premières techniques ont été largement utilisées, aussi nous en faisons une description sommaire dans ce qui suit. Une description des autres techniques expérimentales pourra être trouvée dans des ouvrages sur le magnétisme expérimental, par exemple dans la référence [TRE99].

1.4.1 Caractérisation par effet Kerr

L'effet Kerr résulte de l'interaction entre la lumière et un milieu aimanté. Lorsqu'une onde polarisée linéairement se réfléchit sur un milieu aimanté, elle se polarise elliptiquement (voir figure 1.12). Deux angles ϵ_k (ellipticité Kerr) et θ_k (angle de rotation Kerr) caractérisent la polarisation elliptique de la lumière réfléchie. Dans le cas de films minces magnétiques, ces angles sont proportionnels à la fois à l'aimantation et à l'épaisseur du film sondé. Ainsi, en mesurant l'angle ou l'ellipticité du signal collecté en fonction d'un champ magnétique appliqué, nous avons accès au cycle d'aimantation de l'échantillon.

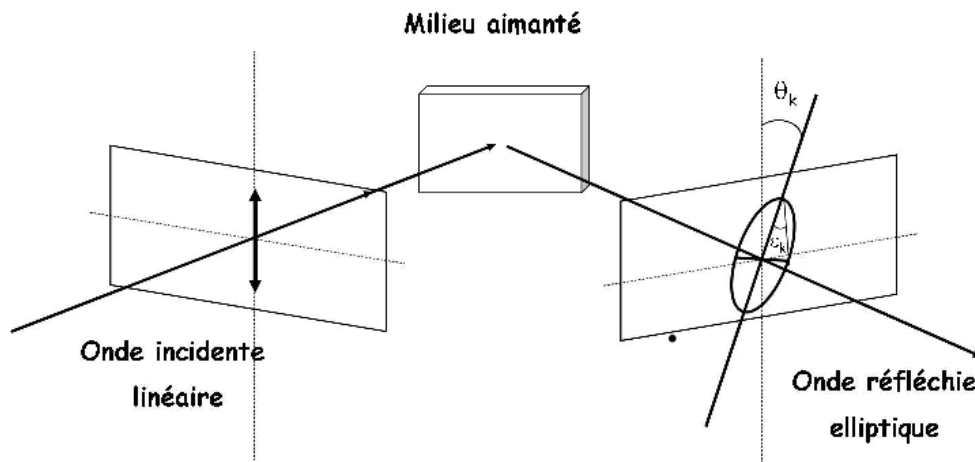


FIG. 1.12: Principe de l'effet Kerr : l'aimantation du matériau sondé affecte la polarisation de la lumière.

Deux géométries sont principalement utilisées :

- l'effet Kerr longitudinal, où la lumière envoyée est sous incidence oblique et l'aimantation du matériau est dans le plan d'incidence de la lumière. Cette géométrie est utilisée pour mesurer des systèmes à aimantation planaire,
- l'effet Kerr polaire, où la lumière envoyée est sous incidence normale et l'aimantation du matériau est orientée suivant la direction de propagation de la lumière (voir figure 1.13). Cette géométrie est utilisée pour mesurer des systèmes à aimantation perpendiculaire; c'est donc celle qui a servi à réaliser les mesures décrites dans ce manuscrit.

1.4.2 Caractérisation par Microscopie à Force Magnétique

La Microscopie à Force Magnétique (MFM) est dérivée de la Microscopie à Force Atomique (*Atomic Force Microscopy* - AFM). Cette dernière est une technique de caractérisation qui permet une détermination précise du relief de la surface d'un échantillon. Le principe de fonctionnement d'un AFM consiste à amener une sonde nanométrique - un cône de silicium, d'un rayon de courbure à l'extrémité de l'ordre de 10nm, monté sur un bras de levier appelé cantilever - à proximité de l'échantillon et à lui faire balayer la surface. Pour déterminer la topographie de la surface de l'échantillon, la pointe est déplacée en maintenant constante les forces s'exerçant entre le cantilever (la pointe) et l'échantillon : forces répulsives de contact, attractives de Van der Waals. Pour ce faire, un système optique mesure à tout instant la déflexion du cantilever, provoquée par une rugosité de la surface : en réponse, une boucle de rétroaction et un système de cristaux piezo-électriques permet d'assurer le déplacement de la pointe : verticalement pour maintenir la déflexion ou l'amplitude de l'oscillation du cantilever constantes, latéralement pour déplacer la pointe au dessus de l'échantillon. L'image de la surface est ainsi formée par une série de

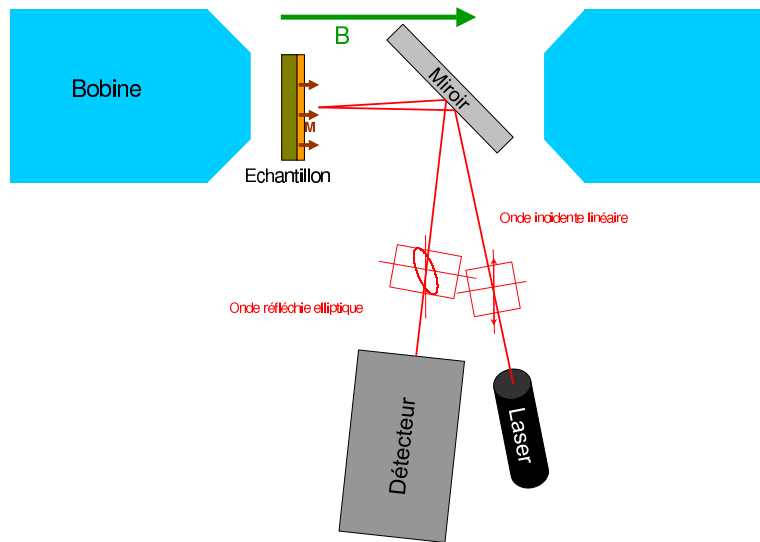


FIG. 1.13: *Banc de mesure par effet Kerr polaire : l'échantillon est placé dans l'entrefer d'un électroaimant, la surface perpendiculaire au champ créé. Un système de miroirs permet d'envoyer la lumière polarisée d'un laser sur l'échantillon et de récupérer la lumière réfléchie.*

lignes de niveau (d'interaction cantilever-échantillon constante), laquelle série correspond idéalement à la topographie recherchée.

En microscopie à force magnétique, la pointe est recouverte d'un film magnétique (CoCr, CoPt, ...) ce qui la rend sensible au champ de fuite d'un échantillon magnétique. Deux types de forces s'exercent alors principalement sur la pointe : les forces de Van der Waals (en $1/r^7$) et l'interaction entre le champ de fuite et le moment magnétique de la pointe (en $1/r^4$). Ainsi, au voisinage de la surface, les forces de Van der Waals prédominent. Inversement, la pointe est principalement sensible aux forces magnétiques lorsqu'elle s'éloigne de la surface : Pour séparer ces deux types d'interaction, la surface est balayée deux fois successivement (voir figure 1.14). Le premier balayage, à proximité de la surface permet de déterminer la topographie de la surface de l'échantillon. Pour son second passage, la pointe suit la topographie de la surface précédemment relevée, à une hauteur de vol de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres, où les forces magnétiques sont prépondérantes. Les principales difficultés rencontrées correspondent à des échantillons peu magnétiques, pour lesquels le signal - c'est à dire la force échantillon-pointe d'origine magnétique, voir plus loin - est éventuellement trop faible, ou à des échantillons doux, sur lesquels le champ de fuite de la pointe MFM a un effet notable (déplacement de parois, renversement local de l'aimantation).

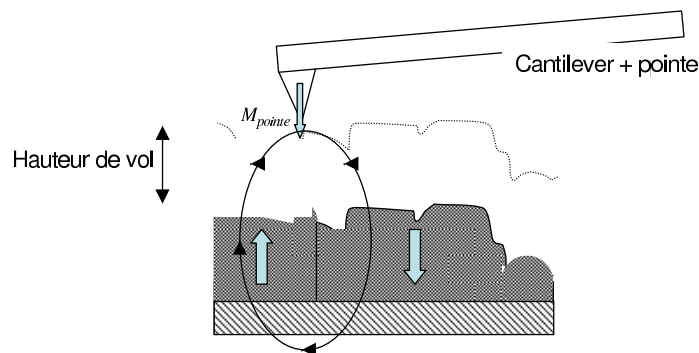


FIG. 1.14: *Microscopie à force magnétique : second balayage à hauteur de survol constante. La pointe est sensible au champ de fuite rayonné par l'échantillon.*

Plusieurs modes d'observation sont possibles. Nous avons utilisé le mode *tapping* : dans ce mode de fonctionnement, le cantilever vibre à sa fréquence de résonance mécanique (60-70kHz). Lors du second balayage, à distance de la surface, les forces magnétiques provoquent un décalage de phase $\Delta\phi$ dans les

oscillations du cantilever, proportionnel au gradient de force vertical dans lequel évolue la pointe :

$$\Delta\phi \propto \vec{\nabla} F_z.$$

où \vec{F} est la force agissant sur la pointe plongée dans le champ de fuite de l'échantillon. \vec{F} est reliée à l'énergie d'interaction entre la pointe et l'échantillon $E_{interaction}$: $E_{interaction}$ peut être exprimée comme la convolution de l'aimantation de la pointe \vec{M}_{pointe} avec le champ de fuite rayonné par l'échantillon $\mu_0\vec{H}_{echantillon}$.

$$E_{interaction} = -\mu_0 \int_{pointe} \vec{M}_{pointe} \vec{H}_{echantillon}.$$

Ainsi, l'image MFM correspond à l'image du gradient de force ressenti par la pointe. Au final, et en fonction de modèles adoptés pour la pointe (monopôle, dipôle...), l'image obtenue correspond à une cartographie du champ de fuite rayonné par l'échantillon.

1.5 Etude des propriétés magnétiques de films FePt ultra-minces déposés sur couche tampon de Pt

1.5.1 Cycles d'aimantation

Les propriétés magnétiques de couches ferromagnétiques FePt/Pt de très faible épaisseur ont été mesurées par magnétométrie à échantillon vibrant (VSM) et effet Kerr polaire (voir figure 1.15). Les échantillons ont été réalisés sur un même substrat, un cache mécanique avancé en cours de croissance permettant d'obtenir les différentes épaisseurs de matériau magnétique. Ce procédé permet de garantir des conditions expérimentales de croissance aussi identiques que possible.

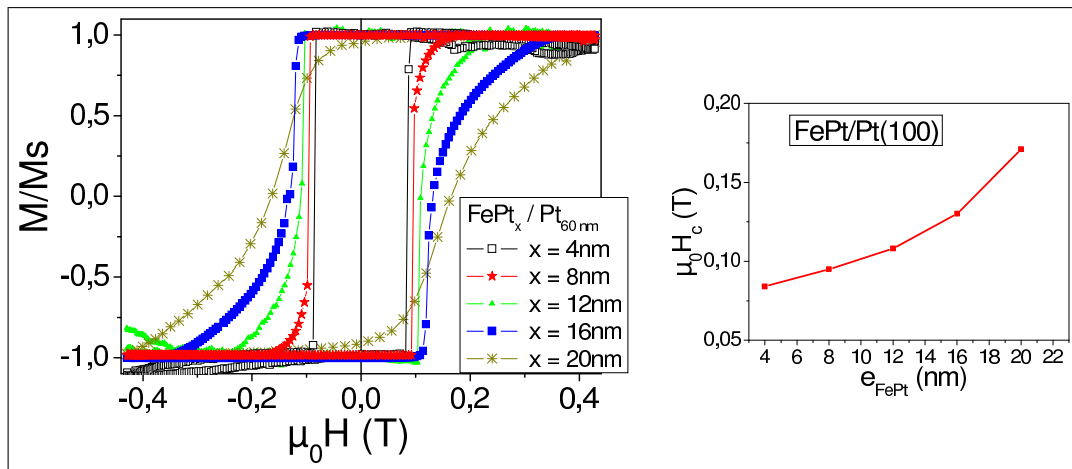


FIG. 1.15: Cycles d'aimantation (effet Kerr Polaire) de couches ferromagnétiques FePt/Pt d'épaisseurs allant de 4 à 20nm (H selon la direction de facile aimantation $[001]$).

Quelle que soit l'épaisseur d'alliage déposée, tous les échantillons étudiés ont leur direction de facile aimantation suivant la direction perpendiculaire, avec une rémanence de 100% et un champ de renversement d'aimantation μ_0H_d compris entre 0,1 et 0,15T. On observe toutefois une augmentation du champ coercitif et surtout une allure moins « carrée » des cycles quand l'épaisseur d'alliage déposée augmente. Ce dernier effet est lié au rôle croissant avec l'épaisseur du champ démagnétisant, qui s'oppose au renversement en fin de cycle.

Le champ de décrochage H_d correspond au champ magnétique pour lequel le début du renversement d'aimantation est détecté macroscopiquement. Il peut s'agir du champ de nucléation H_n de la couche ferromagnétique, mais ce n'est pas obligatoirement le cas : la nucléation de domaines magnétiques au sein d'une électrode ferromagnétique FePt peut se faire en un nombre plus ou moins grand de sites, suivant la qualité structurale de celle-ci. Si la densité de domaines nucléés pour $H_{applique}=H_n$ est trop faible, ceux-ci ne seront pas détectés par des mesures globales (effet Kerr ou VSM) et même généralement par des mesures locales (imagerie MFM) de l'aimantation.

Attane *et al.* [ATT03] ont ainsi montré - pour des couches ferromagnétiques FePt d'épaisseur de l'ordre de quelques dizaines de nm déposées sur couche tampon de platine - que le renversement de l'aimantation pouvait être vu comme correspondant à la percolation des chemins de propagation des parois magnétiques. En effet, les parois se déplacent de cellule en cellule, chacune de ces dernières étant délimitée par des micromacles : suivant le champ appliqué, chaque cellule est connectée à ses voisines par des liens passants ou non passants au regard de l'aimantation. A partir d'un certain champ, les liens passants entre différentes cellules percolent et des domaines magnétiques, jusque là de tailles finies, peuvent se propager à l'infini dans l'échantillon.

Sur les cycles d'aimantation présentés sur la figure 1.15, les champs de début de renversement H_d et les champs coercitifs H_c sont très proches l'un de l'autre dans tous les cas étudiés, ce qui est un indice d'un mécanisme de renversement d'aimantation gouverné par la propagation de parois de domaines, où le renversement d'aimantation est rapide une fois initié. Ce mécanisme est confirmé par imagerie MFM (voir paragraphe 1.5.4).

Cette évolution des propriétés magnétiques avec l'épaisseur d'une couche FePt/Pt est à prendre en compte pour optimiser les propriétés d'une jonction tunnel comportant deux couches ferromagnétiques : les champs de renversement H_d indiqués sur la figure 1.15 sont plutôt faibles en regard de ce qui est donné dans la littérature pour des couches FePt, aussi la couche FePt/Pt sera-t-elle celle qui se renversera en premier. Utiliser une première électrode avec un cycle d'aimantation non carré impliquerait de repousser en conséquence le champ de nucléation de la seconde électrode afin de satisfaire la relation $H_{d2} > H_{sat1}$, nécessaire à l'obtention de configurations parallèles et antiparallèles. Il ressort donc de cette première série de mesures qu'il faut considérer une couche ferromagnétique FePt/Pt très mince, *ie* d'épaisseur quelques nanomètres, pour obtenir un échantillon peu coercitif ayant un renversement d'aimantation abrupt.

1.5.2 Configurations des domaines magnétiques dans un état désaimanté

Après avoir désaimanté ces échantillons par l'application d'un champ magnétique d'amplitude décroissante alternativement positif puis négatif, nous avons imagé par microscopie MFM leurs configurations magnétiques (voir figure 1.16).

Ces images mettent en évidence une très forte anisotropie des parois de domaines, ancrées sur les directions [110] et [-1-10] du cristal de plus en plus nettement à mesure que l'épaisseur de la couche ferromagnétique augmente. Cette anisotropie est mise en évidence ici sur une couche ferromagnétique très mince d'épaisseur 4nm (voir sur la figure 1.16 l'image correspondant à la couche FePt(4nm)/Pt). Elle peut être reliée à la présence de micromacles : expérimentalement, il a été observé au laboratoire que l'épaisseur critique à laquelle apparaissent les premières dislocations (*ie* à laquelle les premières micromacles sont observées) est plus faible dans le cas de FePt que FePd.

La taille des domaines magnétiques mis en jeu diminue très fortement avec l'épaisseur de matériau ferromagnétique. Ceci est en accord avec la diminution exponentielle de la taille d'équilibre des domaines magnétiques avec l'épaisseur dans des couches minces à aimantation perpendiculaire [KAP93]. Ainsi seuls des échantillons ultra-minces nous donnent une configuration magnétique en domaines larges, présentant une faible densité de parois de domaines.

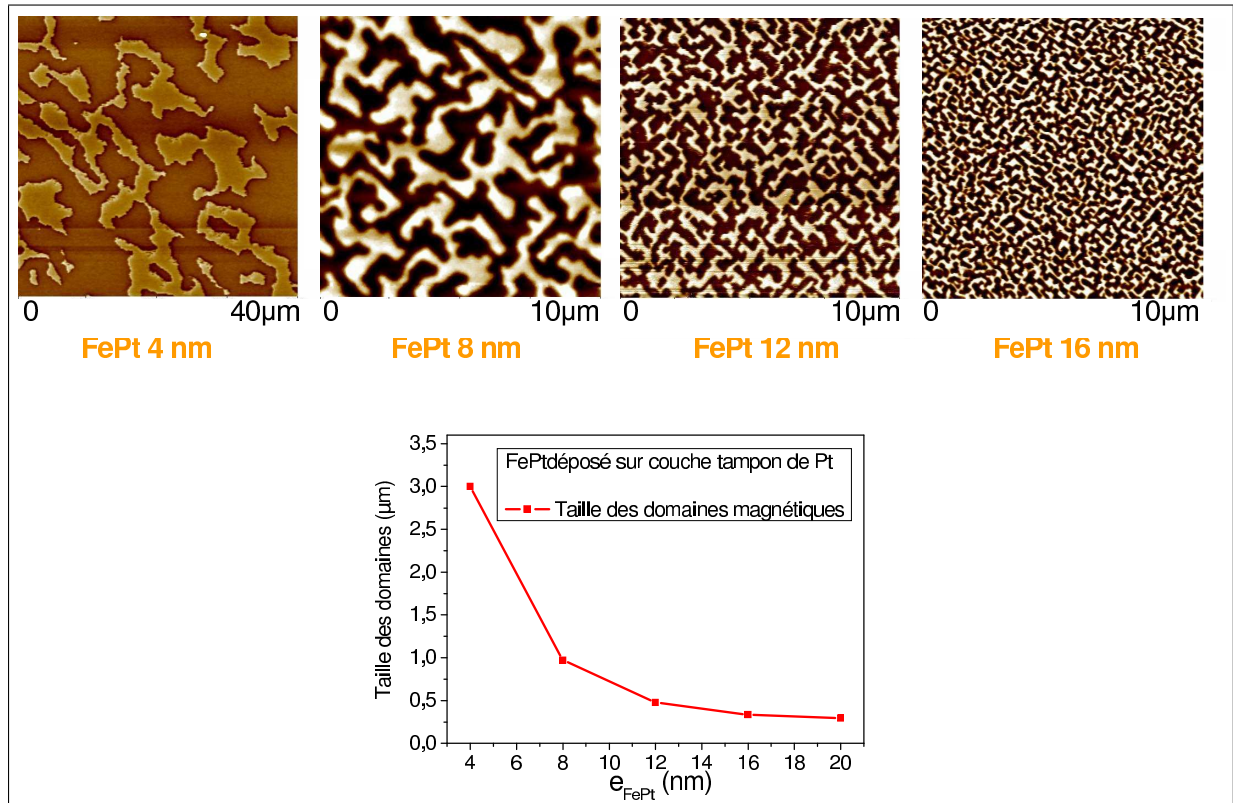


FIG. 1.16: Images obtenues par microscopie MFM de couches ferromagnétiques désaimantées FePt/Pt de différentes épaisseurs. Les images ont pour dimensions $40\mu\text{m} \times 40\mu\text{m}$ pour la couche d'épaisseur 4 nm et $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ pour les couches d'épaisseur 8, 12 et 16 nm. Le bord inférieur des images correspond à la direction [100].

1.5.3 Configurations magnétiques quasi-statiques observées lors du renversement d'aimantation

Le comportement magnétique de ces couches minces FePt de différentes épaisseurs diffère également dans le mécanisme de renversement de l'aimantation. La figure 1.17 donne une image des configurations magnétiques des échantillons en début de renversement. Ces images sont prises par microscopie MFM dans un état rémanent, en champ nul : l'échantillon est amené dans l'état d'aimantation désiré, puis le champ magnétique est coupé et l'échantillon est transporté jusqu'au microscope.

Dans le cas de couches FePt « épaisses » (correspondant sur la figure 1.17 aux films FePt d'épaisseur 12 nm ou 16 nm), le renversement de l'aimantation se déroule via la nucléation de domaines magnétiques inverses en un certain nombre de sites. Les domaines renversés se propagent à partir de ces derniers, en remplissant successivement des « cellules » rectangulaires délimitées par les micromacles. Ce mécanisme de renversement a été largement décrit par Attané [ATT03].

Dans le cas de films FePt très minces (correspondant sur la figure 1.17 aux films FePt d'épaisseur 4 nm ou 8 nm), les micromacles sont peu piégeantes. D'après ces images de configurations magnétiques dans un état quasi-statique, le renversement de l'aimantation se fait de façon compacte, par la propagation d'un domaine magnétique « géant » qui, une fois nucléé, va balayer la surface de l'échantillon.

L'image magnétique correspondant à la couche FePt (4 nm) montre un unique domaine magnétique renversé, délimité par un défaut topographique (une rayure sur l'échantillon, indiquée par des flèches en pointillés) et une frontière alignée suivant la direction [-1-10]. Cette frontière ne correspond à aucun défaut topographique visible et doit donc être associée à la présence d'une micromacle. Sur cette image, la zone renversée l'est complètement, *ie* aucun domaine magnétique ne reste piégé.

L'image correspondant à la couche à la couche FePt (8 nm) est celle d'un cas intermédiaire, dans lequel un seul domaine renversé est imagé, mais où ce domaine n'est pas compact. Elle indique en effet que l'aimantation reste piégée très localement par des micromacles au sein de la zone « renversée ».

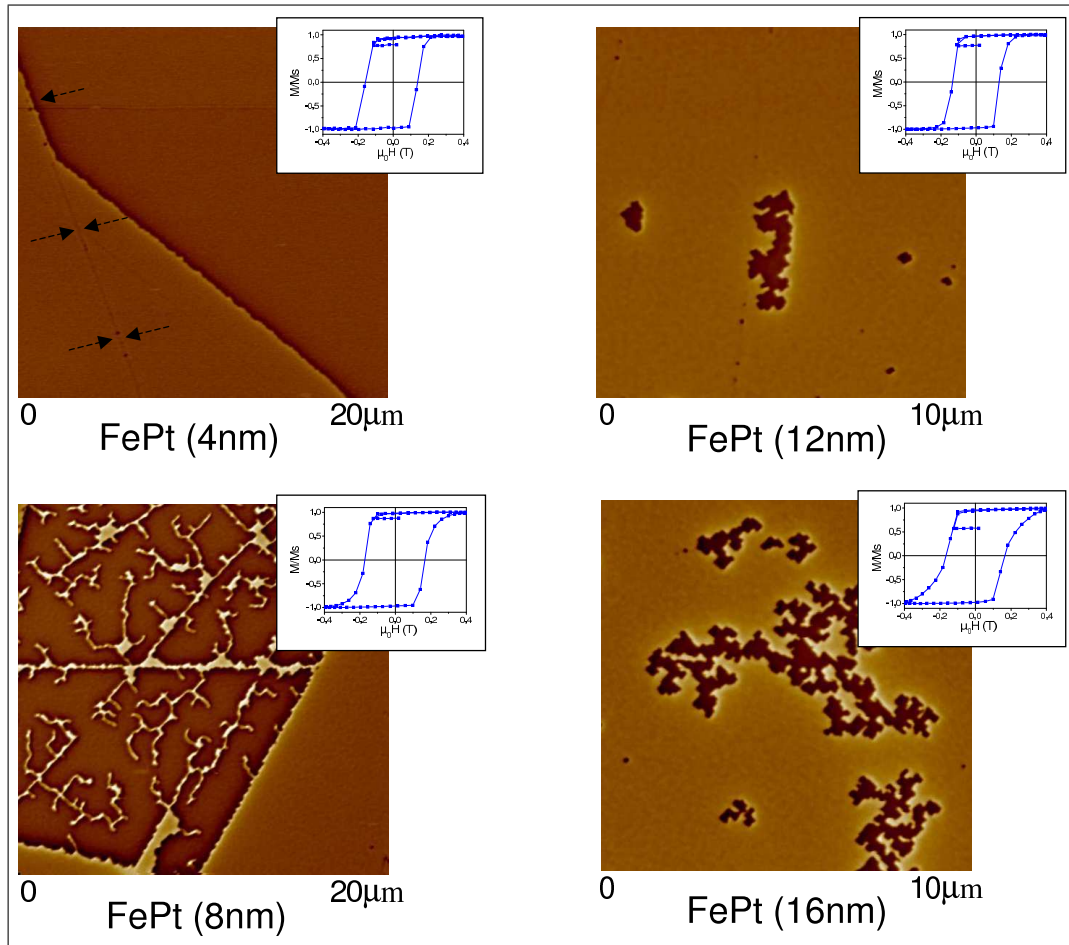


FIG. 1.17: Images MFM ($20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ pour les deux images de gauche et $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ pour les deux images de droite) d'un état magnétique correspondant à un renversement partiel de l'aimantation de la couche ferromagnétique. Le bord inférieur des images correspond à la direction cristallographique $[100]$. Les flèches en pointillés indiquent la présence d'une rayure sur l'échantillon.

Nous pouvons déduire de ces images l'existence pour une couche ferromagnétique FePt déposée sur Pt d'une épaisseur critique située entre 4 et 8nm, en dessous de laquelle la force de piégeage moyenne des micromacules est trop peu importante pour avoir une influence sur le mécanisme de renversement de l'aimantation.

1.5.4 Propagation des domaines magnétiques dans une couche FePt ultra-mince déposée sur Pt

Afin de mieux comprendre les mécanismes régissant le renversement de l'aimantation dans des couches FePt très minces déposées sur couche tampon de platine, nous avons réalisé des mesures d'imagerie Kerr sur un échantillon de structure $FePt/Pt/Cr/MgO(100)$ comportant une couche ferromagnétique FePt d'épaisseur 5nm, dont le cycle d'aimantation est donné sur la figure 1.18. Ces mesures sont basées sur l'effet Kerr Polaire : l'échantillon est placé au centre d'un électro-aimant, la direction du champ appliqué étant perpendiculaire au plan de l'échantillon. Une lumière polarisée issue d'un laser est envoyée sur l'échantillon, le signal réfléchi par ce dernier étant détecté par une caméra : l'état magnétique d'une zone de taille allant jusqu'à $50\mu\text{m} \times 50\mu\text{m}$ de l'échantillon soumis à une impulsion de champ magnétique est suivi en temps réel. La résolution du dispositif est de $0,5\mu\text{m}$. Cette étude a été menée en liaison avec l'équipe d'Alexandra Mougin et Jacques Ferré du Laboratoire de Physique des Solides (LPS) d'Orsay, où ont été obtenues les images.

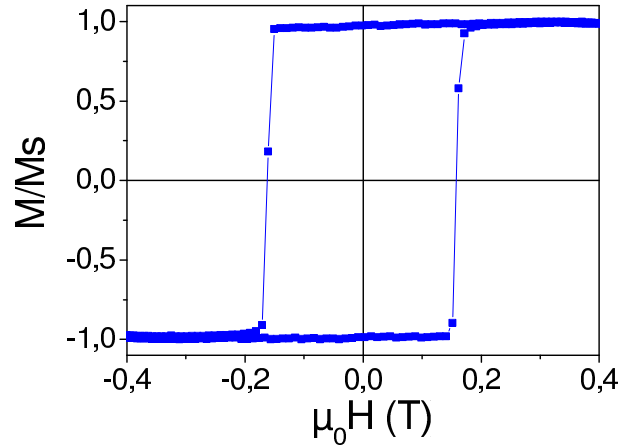


FIG. 1.18: Cycle d'aimantation d'un échantillon FePt(5nm) déposé sur couche tampon de platine (effet Kerr Polaire). Le champ de décrochage est estimé à $\mu_0 H_d = 0,152 T$ et le champ de saturation à $\mu_0 H_{sat} = 0,173 T$.

Trois cas de figure ont pu être distingués suivant l'intensité de l'impulsion de champ. Entre chaque mesure, l'échantillon est à nouveau saturé par un champ magnétique de l'ordre de $-0,42 T$, très supérieur au champ de saturation nominal. Les images données ci-dessous correspondent à la différence entre l'image correspondant à l'état magnétique donné et l'image de l'état magnétique saturé. Deux sources de champ sont utilisées simultanément : un électro-aimant (EA), et une petite bobine (SC) permettant d'appliquer des impulsions peu intenses mais de très faible durée. La superposition des deux sources de champ permet d'appliquer des impulsions courtes tout en atteignant les valeurs de champ souhaitées.

- La figure 1.5.4 présente l'état magnétique de l'échantillon suite à une impulsion de durée $\Delta t = 5,5 \mu s$ et de « faible » amplitude $\mu_0 H_{total} = 0,195 T$. Ce champ est supérieur au champ de saturation nominal de l'échantillon mais rien n'est observé *sur la zone imagée* après des impulsions moins intenses et de même Δt : la durée d'application du champ joue en effet un rôle primordial dans le renversement d'aimantation (voir [SHA94] par exemple). Les phénomènes de renversement d'aimantation associés à des impulsions courtes de champ magnétique mettent en jeu des valeurs de champ supérieures à celles mises en jeu lorsque le champ est appliqué pour des durées plus longues (lors de la description d'un cycle d'aimantation par exemple).

Les domaines magnétiques sont d'allure dendritique et non compacte, à la différence de ce qui avait été observé dans le paragraphe 1.5.3, lors de la description du cycle d'hystérésis en régime quasi-statique : la paroi de domaines est bloquée par de nombreux défauts lors de sa propagation. L'amplitude de l'impulsion de champ appliqué a permis à la paroi de franchir une partie seulement des barrières de potentiel locales, la conduisant sur le chemin de plus facile propagation.

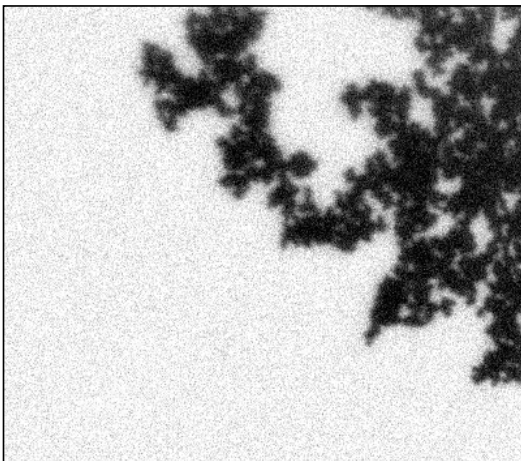


FIG. 1.19: Image par Imagerie Kerr ($37,8 \mu m * 43,2 \mu m$) de la configuration magnétique d'une couche FePt(5nm)/Pt après application d'un « pulse » de champ de $0,195 T$ pendant $5,5 \mu s$ à partir de l'état saturé \downarrow .

- Lorsqu'une impulsion plus courte ($\Delta t = 1,5 \mu s$) mais d'amplitude légèrement supérieure $\mu_0 H = 0,200 T$ est appliquée à l'échantillon, le domaine magnétique nucléé (s'étendant à partir de

la droite vers la gauche sur l'image 1.20a)) devient alors compact et ressemble beaucoup plus à la configuration magnétique obtenue dans le régime quasi-statique. Notons cependant qu'il reste un grand nombre de domaines magnétiques ayant conservé leur aimantation initiale au milieu de la zone renversée.

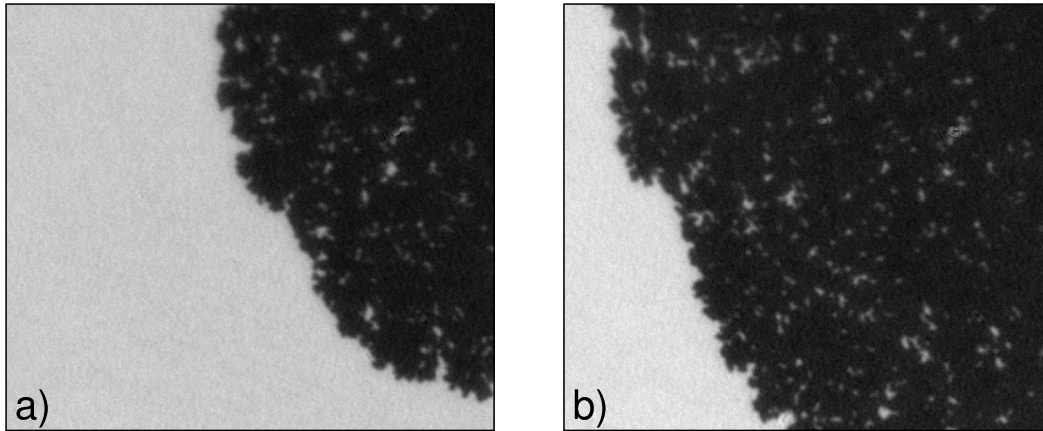


FIG. 1.20: Images par Imagerie Kerr ($37,8\mu\text{m} \times 43,2\mu\text{m}$) de la configuration magnétique d'une couche FePt(5nm)/Pt après application d'un « pulse » de champ de 0,200T pendant $1,5\mu\text{s}$ à partir de l'état saturé \downarrow (image a) puis d'un second « pulse » identique (image b).

La figure 1.20b) montre l'évolution de ce domaine magnétique suite à une nouvelle impulsion de $\Delta t = 1,2\mu\text{s}$ d'un champ de même amplitude. La vitesse de propagation de la paroi magnétique est alors estimée à 12m/s.

- Suite à une impulsion « courte » ($\Delta t = 0,9\mu\text{s}$) mais très intense ($\mu_0 H = 0,296\text{T}$), *ie* correspondant à un champ largement supérieur au champ de saturation de la couche, le domaine nucléé a une allure de « bulle géante », la rugosité de la paroi de domaine étant quasi nulle (figure 1.21a). Le champ appliqué permet à la paroi qui se propage de surpasser toutes les barrières de potentiel rencontrées. Le régime de propagation est un régime de type visqueux. Dans ce régime, l'impulsion doit être de courte durée pour éviter d'avoir un domaine magnétique trop étendu. La figure 1.21b) montre le nouvel état atteint par le domaine magnétique après une seconde impulsion de champ de durée $\Delta t = 0,9\mu\text{s}$. La vitesse de propagation de la paroi est de l'ordre de 17m/s. Notons que cette vitesse correspond à une vitesse asymptotique, le désordre présent au sein de l'échantillon ne pilote plus la morphologie de la paroi, maintenant lisse.

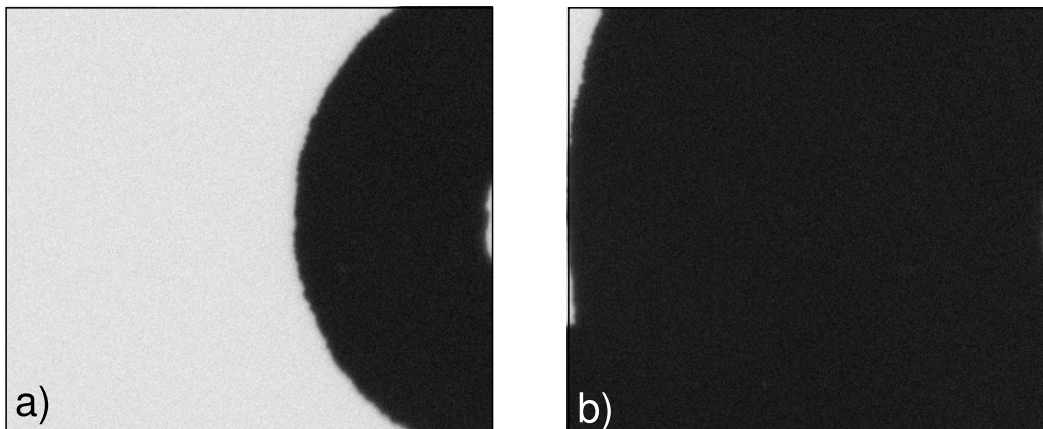


FIG. 1.21: Images par Imagerie Kerr ($37,8\mu\text{m} \times 43,2\mu\text{m}$) de la configuration magnétique d'une couche FePt(5nm)/Pt après application d'un « pulse » de champ de 0,296T pendant $0,9\mu\text{s}$ à partir de l'état saturé \downarrow (image a) puis d'un second « pulse » identique (image b). La zone blanche observée à droite des images est un artefact de mesure.

1.5.5 Evolution des propriétés magnétiques de couches FePt ultra-minces après recuit

Nous avons étudié l'influence d'un recuit sur les propriétés magnétiques de couches FePt/Pt épaisses de seulement quelques nanomètres. En effet, le maintien d'un échantillon à forte température³ pour la réalisation d'un système composé de plusieurs couches rend possible un réarrangement des atomes dans le matériau. Lorsque l'alliage déposé sur une couche tampon de platine est recuit, on peut s'interroger quant à la possibilité d'interdiffusion de la couche tampon dans la couche ferromagnétique.

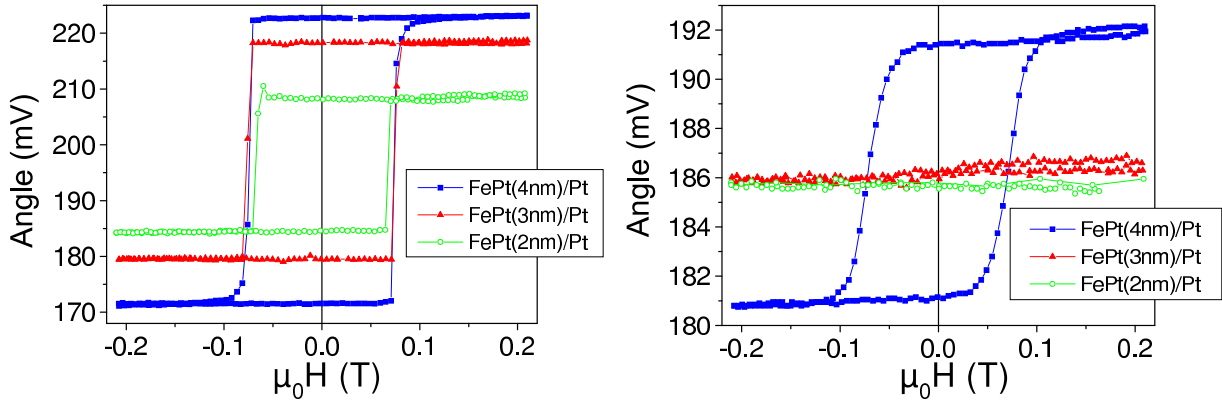


FIG. 1.22: Cycles d'aimantation par Effet Kerr Polaire d'échantillons FePt/Pt, réalisés juste après dépôt (figure de gauche) et après un recuit de 10 minutes à 600°C (figure de droite).

La figure 1.22 montre l'effet d'un recuit de 10 minutes à 600°C sur un système $MgO(3nm)/FePt(xnm)/Pt(60nm)/Cr(3nm)/MgO(100)$, avec $x=2, 3$ ou $4nm$. Le signal Kerr est reporté en ordonnée. Il ne peut cependant pas en être fait une exploitation quantitative du fait de possibles variations liés à des réglages expérimentaux d'un échantillon à l'autre. L'interdiffusion du platine dans la couche ferromagnétique se fait sur les tout premiers nanomètres de l'interface FePt/Pt. A partir de 4nm d'épaisseur de FePt, l'échantillon recuit conserve ses propriétés magnétiques, bien que l'allure « moins carrée » du cycle d'aimantation traduise probablement une baisse de l'anisotropie (l'ordre chimique étant dégradé par interdiffusion).

1.6 Etude des propriétés magnétiques de l'alliage FePt déposé sur substrat MgO(100)

Propriétés magnétiques de la structure FePt/MgO(100)

Les cycles d'aimantation de couches minces FePt/MgO(100) d'épaisseurs allant de 4 à 16nm ont été mesurés par effet Hall extraordinaire sous champ appliqué perpendiculaire (voir figure 1.23). Les échantillons ont été réalisés lors d'une croissance simultanée sur un même substrat, en utilisant un cache mécanique pour obtenir les différentes épaisseurs de matériaux ferromagnétiques.

Tous les cycles d'aimantation présentés ont une allure bien carrée, indiquant une forte anisotropie perpendiculaire, à l'exception de l'échantillon d'épaisseur 4nm. Le cas de cet échantillon peut s'expliquer par le poids relatif de l'épaisseur de la région où la mise en ordre $L1_0$ est fortement perturbée, lors des premiers stades de croissance, du fait de la différence de paramètre de maille entre l'alliage et le substrat. Cette explication est corroborée par la taille des domaines d'équilibre observée sur ce même échantillon désaimanté (voir figure 1.24) : la couche ferromagnétique de faible épaisseur est d'anisotropie perpendiculaire élevée, comme en témoigne la rémanence 100% de son cycle d'aimantation. Cependant, cet échantillon possède une taille des domaines d'équilibre anormalement faible ce qui suggère une plus faible anisotropie, sans doute liée à la présence de nombreux défauts apparus au niveau des premiers stades de croissance.

Nous observons une légère diminution du champ coercitif avec l'épaisseur déposée : $\mu_0 H_c$ va de 0,5T environ pour l'échantillon FePt(4nm)/MgO à 0,38T pour l'échantillon FePt(16nm)/MgO. Cela suggère

³La température de dépôt des couches FePt est de l'ordre de 500°C.

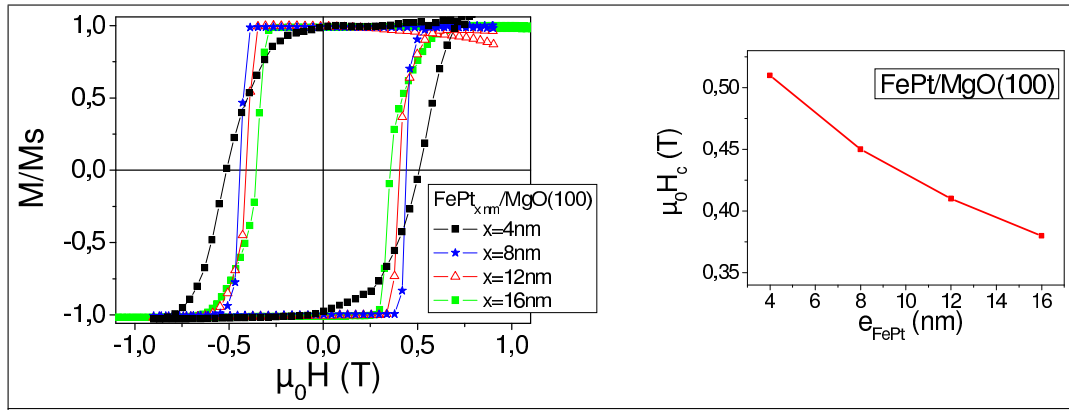


FIG. 1.23: Cycles d'aimantation (effet Hall extraordinaire) de couches ferromagnétiques FePt/MgO de différentes épaisseurs (H selon $[001]$).

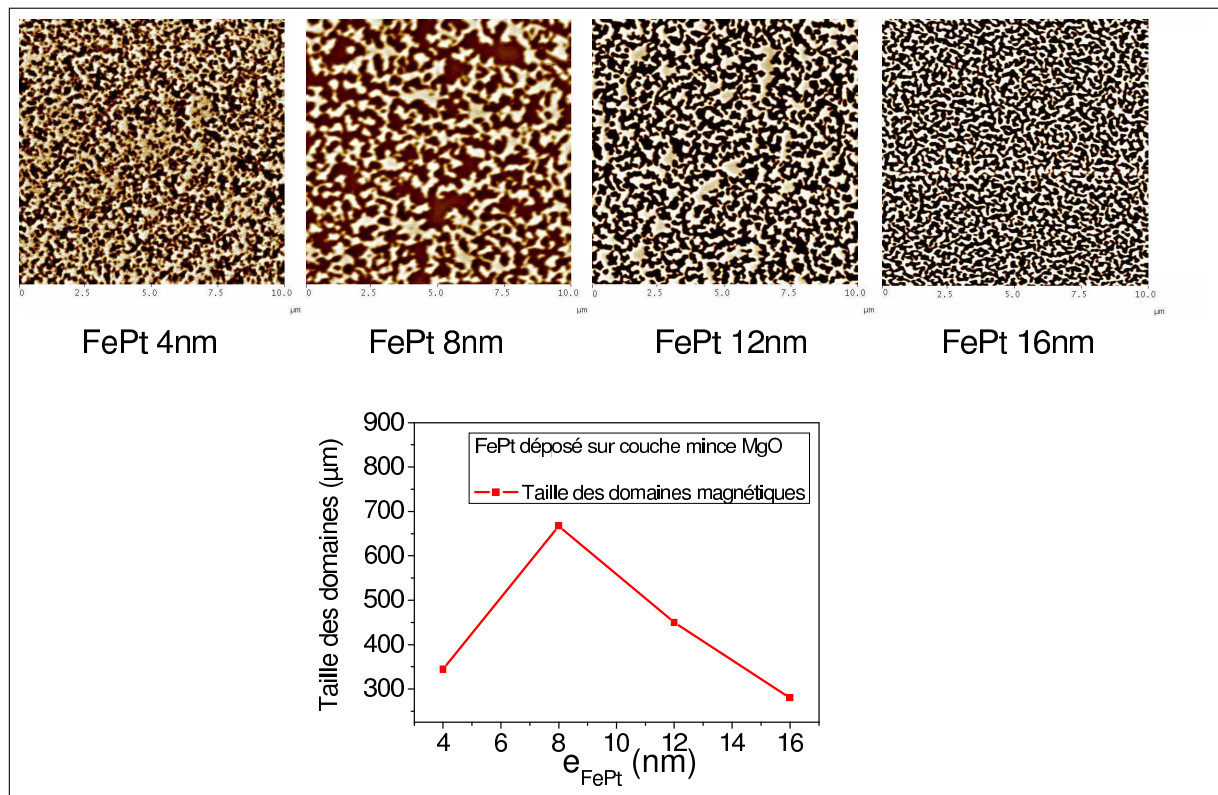


FIG. 1.24: Images par microscopie MFM ($10\mu m * 10\mu m$) de couches ferromagnétiques désaimantées FePt/MgO(100) d'épaisseurs 4, 8, 12 et 16nm (de gauche à droite).

que la coercivité a une origine essentiellement « interfaciale ». En l'occurrence, il est tentant de l'attribuer aux défauts introduits par les relaxations qui perturbent les premiers plans atomiques lors de la croissance.

Sur les images des configurations magnétiques des échantillons désaimantés (voir figure 1.24), nous pouvons noter l'isotropie des parois de domaines. A la différence du système FePt/Pt, il n'y a pas de défauts étendus, tels les micromacles, piégeant les parois de domaines suivant des directions cristallographiques privilégiées.

Au vu de ce qui est obtenu sur ces échantillons, nous pouvons supposer que le cas d'une couche FePt déposée sur barrière tunnel MgO devrait ressembler à ce qui est obtenu ici, à savoir une croissance perturbée au niveau des premières couches déposées du fait de la forte différence de paramètre de maille. Cette couche ferromagnétique devrait être plus coercitive au niveau des premiers stades de croissance.

1.7 Conclusion

De façon générale, l'étude des propriétés magnétiques de couches minces ferromagnétiques à aimantation perpendiculaire est un sujet très vaste qui a été abordé au laboratoire bien avant mon arrivée. Aussi, j'ai pu profiter très largement des acquis dans ce domaine comme base aux développements réalisés dans le courant de mon travail de thèse.

L'étude présentée dans ce chapitre a été menée dans l'objectif de réaliser un système comportant deux électrodes de FePt séparées par un espaceur de faible épaisseur : nous avons observé qu'en adaptant les épaisseurs des couches ferromagnétiques et la nature des substrats sur lesquelles elles étaient déposées, il était possible d'obtenir des films minces FePt ayant des cycles d'aimantation très différents, en particulier ayant des renversement d'aimantation complètement disjoints.

Notons bien qu'ici les couches ferromagnétiques ont été étudiées indépendamment l'une de l'autre : dans le cas d'un système comprenant deux couches FePt, chacune des électrodes va ressentir le champ de fuite de l'autre.

Deuxième partie

Jonctions Tunnel Magnétiques à
aimantation perpendiculaire

Chapitre 2

Physique des Jonctions Tunnel Magnétiques

L'effet de magnétorésistance tunnel a été initialement découvert en 1975 par Jullière (voir paragraphe 2.2.2). Il suscite un engouement croissant depuis que Moodera *et al.* et Miyazaki *et al.* ont observé un large effet à température ambiante [MOO95] [MIY95], ce qui constitue un prérequis pour toute application industrielle. La figure 2.1 en donne un aperçu schématisé : lorsque deux métaux ferromagnétiques séparés par une mince barrière isolante sont aimantés parallèlement l'un à l'autre, la résistance de la structure est généralement « faible ». En revanche, si les deux films ferromagnétiques sont aimantés selon des directions opposées, la résistance de la structure est généralement plus importante.

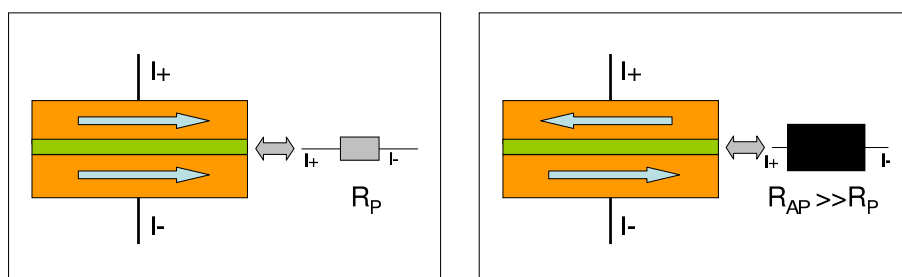


FIG. 2.1: Représentation schématisée de l'effet de magnétorésistance tunnel, entre deux métaux ferromagnétiques séparés par une barrière tunnel.

L'amplitude de l'effet mesuré est donné par le rapport $\frac{R_{AP}-R_P}{R_P}$. A l'heure où j'écris ce manuscrit, la valeur record publiée s'élève à 410% à température ambiante pour des systèmes épitaxiés (publiée par Yuasa *et al.* [YUA06]). Si les métaux ferromagnétiques utilisés conservent leur aimantation sous champ appliqué nul, l'état magnétique de la structure peut être préservé indéfiniment¹ : cette structure peut servir de mémoire magnétique, l'état magnétique du système étant « lu » par le passage d'un courant électrique.

L'effet de magnétorésistance tunnel est connecté à deux phénomènes fondamentaux, à savoir l'asymétrie en spin d'un métal ferromagnétique et la conservation du spin d'un électron lors du franchissement de la barrière par effet tunnel. Dans ce qui suit, nous décrivons tout d'abord le transport tunnel entre deux métaux. Puis nous abordons de façon simple la structure électronique d'un métal ferromagnétique avant de présenter les premiers modèles de transport tunnel entre deux électrodes ferromagnétiques. Enfin, nous abordons les modèles plus élaborés où la structure de bandes de l'ensemble de la jonction électrode/barrière/électrode est prise en compte.

2.1 Le transport par effet tunnel

L'effet tunnel est un mode de transport purement quantique, décrit par la résolution de l'équation de Schrödinger. Il s'agit de la possibilité qu'a une particule de transiter d'un état quantique vers un autre

¹Les deux états magnétiques \uparrow et \downarrow d'un volume magnétique V uniformément aimanté sont séparés par une barrière d'énergie $E_B = K_u V$, où K_u est l'anisotropie du matériau. Le temps caractéristique de renversement spontané de l'aimantation est donné par $\tau = \tau_0 \cdot \exp(E_B / (k_B T))$ où τ_0 (inverse de la fréquence d'essai) est de l'ordre de 1ns [WEL99].

état séparé par une barrière de potentiel, alors que l'énergie de cette particule ne lui permet pas de passer au dessus de la barrière.

Dans un système JTM, introduire une barrière isolante entre deux métaux ferromagnétiques revient à introduire une barrière de potentiel entre ces deux électrodes. Lorsqu'une différence de potentiel est appliquée entre celles ci, un passage de courant est possible lorsque :

- les électrons passent au travers de la barrière par effet tunnel,
- du fait de l'agitation thermique, les électrons peuvent acquérir assez d'énergie pour passer au dessus de la barrière de potentiel lorsque celle-ci est de faible hauteur.

En pratique, la résistance de la JTM diminue fortement lorsque la température augmente essentiellement du fait de l'implication d'électrons d'énergie voisine de E_F dans le transport. Dans les modèles théoriques suivants, on se place à température suffisamment faible pour négliger les effets d'activation thermique.

Le cas du transport tunnel unidimensionnel au travers d'une barrière isolante rectangulaire (voir figure 2.2) est décrit dans tout ouvrage de mécanique quantique. Nous ne le décrirons donc que très sommairement.

La fonction d'onde d'un électron incident, de masse m , pris dans le cadre du modèle de l'électron libre, est donnée par la résolution de l'équation de Schrödinger :

$$H\Psi(x, t) = \frac{i\partial}{\partial t}\Psi(x, t).$$

où H est l'hamiltonien du système. Tous les paramètres du système sont indépendants du temps.

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\frac{\partial^2}{\partial x^2}\Psi(x) + (V(x) - E)\Psi(x) = 0.$$

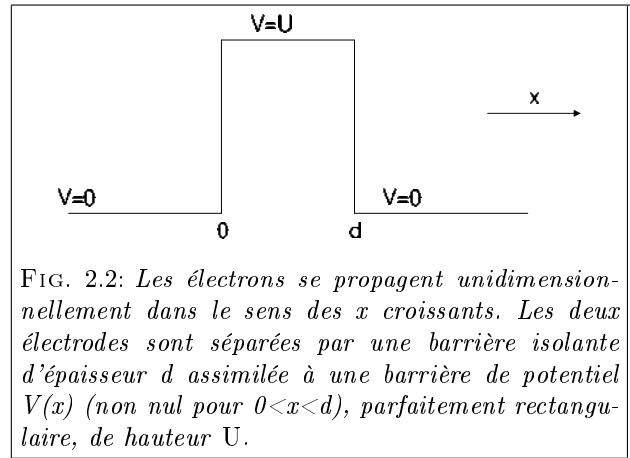


FIG. 2.2: Les électrons se propagent unidimensionnellement dans le sens des x croissants. Les deux électrodes sont séparées par une barrière isolante d'épaisseur d assimilée à une barrière de potentiel $V(x)$ (non nul pour $0 < x < d$), parfaitement rectangulaire, de hauteur U .

Les solutions de cette équation nous donnent la forme des fonctions d'ondes présentes dans les trois parties du système considéré :

- $x < 0$ $\Psi(x) = A_1 e^{i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}}Ex} + A_2 e^{-i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}}Ex}$
- $0 < x < d$ $\Psi(x) = B_1 e^{\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}}(U-E)x} + B_2 e^{-\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}}(U-E)x}$
- $x > d$ $\Psi(x) = C e^{i\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}}E(x-d)}$

A_1, A_2, B_1, B_2, C sont des constantes déterminées en écrivant la continuité de ces fonctions et de leurs dérivées aux interfaces des différentes parties du système.

On peut facilement calculer le coefficient de transmission T , correspondant à la probabilité qu'à une particule d'énergie E de passer la barrière (T est le carré du rapport des amplitudes onde transmise sur onde incidente), dans le cas d'une barrière suffisamment épaisse :

$$T(E) \approx \frac{16E(U - E)}{U^2} e^{-2d\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(U-E)}}$$

pour $E < U$

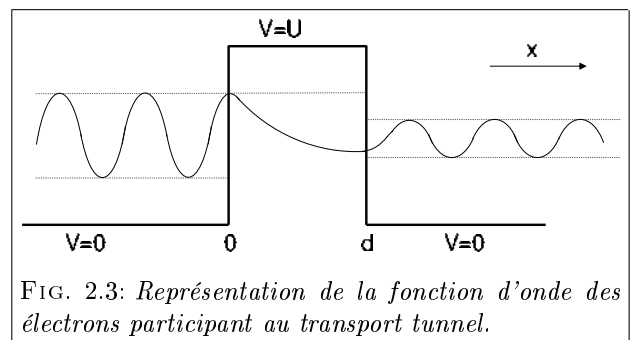


FIG. 2.3: Représentation de la fonction d'onde des électrons participant au transport tunnel.

Retenons de ce résultat les deux points suivants : il y a décroissance exponentielle du facteur de transmission, d'une part avec l'épaisseur de la barrière, et d'autre part avec la différence entre la hauteur de la barrière et l'énergie des électrons de conduction.

Le cas du transport tunnel entre deux métaux séparés par une barrière de potentiel de profil plus réaliste a été décrit par Brinkman [BRI70] et Simmons [SIM63]. Toujours en se plaçant dans le cadre du

modèle de l'électron libre, on considère que la barrière est de hauteur variable $U+u(x)$ ($u \ll U$). L'axe de propagation des électrons est toujours l'axe x . L'électron se situe dans un potentiel $V(x)=0$ pour $x < 0$ et $x > d$, et $V(x)=\phi(x)$ pour $0 < x < d$.

En appliquant une différence de potentiel entre les deux électrodes, un courant tunnel apparaît. On considère que le système est à température assez faible pour que la totalité du courant circulant d'une électrode à une autre soit un courant tunnel.

Simmons a résolu l'équation de Schrödinger associée aux électrons de conduction en se plaçant dans l'approximation WKB (Wentzel-Kramer-Brillouin)². La probabilité de transmission d'un électron est donnée par la formule :

$$D(E_x) \quad \alpha \quad \exp\left(\frac{-2}{\hbar} \int_{s_1}^{s_2} \sqrt{2m(\phi(x) - E_x)} dx\right).$$

où $E_x = mv_x^2/2$ est l'énergie cinétique des électrons allant vers les x croissants. s_1 et s_2 correspondent aux limites de la barrière de potentiel au niveau de Fermi des électrodes métalliques dans leur état d'équilibre ($\Delta s = s_2 - s_1$ pouvant être différent de d , épaisseur nominale de l'isolant).

En utilisant le formalisme de Simmons, on peut calculer le courant net allant de l'électrode de gauche (électrode 1) vers l'électrode de droite (électrode 2) au travers de la barrière de potentiel, en exprimant le nombre d'électrons traversant par effet tunnel dans chaque sens ($N = N_{1 \rightarrow 2} - N_{2 \rightarrow 1}$) :

$$N_{1 \rightarrow 2} = \int_0^{v_m} v_x n(v_x) D_{E_x} dv_x = \frac{1}{m} \int_0^{E_m} v_x n(v_x) D_{E_x} dE_x.$$

v_m est la vitesse maximale des électrons considérés, associée à l'énergie cinétique E_m et $[n(v_x)dv_x]$ correspond au nombre d'électrons par unité de volume ayant une vitesse comprise entre v_x et $v_x + dv_x$.

On tient compte de la température du système en distribuant les électrons dans le solide par la statistique de Fermi-Dirac et on tient compte d'une tridimensionnalité pour la détermination de ce $[n(v_x)dv_x]$. On écrit l'expression suivante (voir [ASH76] pour plus de détails) :

$$n(v)dv_x dv_y dv_z = \frac{m^3}{4\pi^3 \hbar^3} f(E) dv_x dv_y dv_z. \quad (2.1)$$

On intègre alors 2.1 selon v_y et v_z pour ne conserver que $n(v_x)$:

$$n(v_x) = \frac{m^3}{4\pi^3 \hbar^3} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} f(E) dv_y dv_z = \frac{m^2}{2\pi^2 \hbar^3} \int_0^{\infty} f(E_r) dv_r$$

où $E_r = mv_r^2/2$ avec $v_r^2 = v_y^2 + v_z^2$.

En calculant le flux net d'électrons ($N_{1 \rightarrow 2} - N_{2 \rightarrow 1}$), Simmons a écrit la densité de courant comme étant :

$$J = \int_0^{E_m} D(E_x) \frac{me}{2\pi^2 \hbar^3} \int_0^{\infty} (f(E_r) - f(E_r + eV_b)) dE_r dE_x$$

où E_m est l'énergie maximale des électrons de conduction (inférieure à la hauteur de la barrière tunnel) et V_b est la différence de potentiel appliquée entre les deux électrodes.

Pour simplifier cette expression, Simmons a introduit la notion de *hauteur de barrière moyenne* $\bar{\phi}$ définie par : $\bar{\phi} = (1/\Delta s) \int_{s_1}^{s_2} \phi(x) dx$, pour finalement parvenir à l'expression générale de la densité de courant :

$$J = \frac{e}{4\pi^2 \hbar (\beta \Delta s)^2} [\bar{\phi} \cdot \exp(-A \Delta s \sqrt{\bar{\phi}}) - (\bar{\phi} + eV_b) \cdot \exp(-A \Delta s \sqrt{\bar{\phi} + eV_b})] \quad (2.2)$$

avec $A = 2\beta \cdot \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}}$. β est un facteur sans dimension proche de l'unité, introduit pour corriger le remplacement de l'intégrale sur la barrière de la fonction $\phi(x)$ par la hauteur moyenne $\bar{\phi}$. Cette équation 2.2 exprime le courant tunnel en fonction de deux paramètres seulement, la hauteur moyenne de la barrière et

²Dans cette approximation, si $\phi(x)$ n'est pas constant mais varie lentement, la barrière de potentiel peut être vue comme la mise en série de n barrières de potentiel rectangulaire d'épaisseur δx et de hauteur $\phi(x_i)$.

sa largeur. Elle est largement utilisée pour déterminer les caractéristiques générales d'une couche isolante utilisée comme barrière tunnel, à partir d'une courbe expérimentale $J(V)$ (voir paragraphe 5.5).

Nous pouvons développer l'expression 2.2 pour une barrière rectangulaire de hauteur U (dans les cas limites $eV_b \ll \bar{\phi}$ et $eV_b \gg \bar{\phi}$ voir figure 2.4) :

- $eV_b \ll \bar{\phi}$ (voir figure 2.4). Dans ce cas simple, l'expression 2.2 :

$$J = \frac{J_0}{\Delta s^2} \cdot \exp(-A\Delta s \sqrt{\bar{\phi}}) \cdot [\bar{\phi} - (\bar{\phi} + e \cdot V_b) \cdot \exp(-A\Delta s \sqrt{\bar{\phi} + eV_b} + A\Delta s \sqrt{\bar{\phi}})]$$

peut s'écrire, en effectuant un développement limité du terme en racine carrée dans la dernière exponentielle, puis de cette dernière, et en supprimant les termes en V_b^2 :

$$J = J_1 \cdot \frac{\sqrt{\bar{\phi}} \cdot V_b}{\Delta s} \cdot \exp(-A\Delta s \sqrt{\bar{\phi}}) \quad (2.3)$$

avec $J_1 = (e^2 \cdot \sqrt{2m}) / (4\pi^2 \beta \hbar^2)$.

Pour de faibles tensions appliquées aux bornes du système métal/barrière/métal, le courant injecté est proportionnel à la tension appliquée, ce qui confère une allure ohmique au système. La résistance V/I obtenue pour de faibles tensions, appelée *résistance « zéro bias »*, est utilisée pour caractériser un système JTM.

A noter aussi la dépendance du courant injecté en fonction de l'épaisseur d de la barrière isolante en e^{-d}/d .

- $eV_b \gg \bar{\phi}$ (voir figure 2.4). Dans ce cas, l'expression 2.2 peut s'écrire :

$$J = \frac{e^3 (\frac{F}{\beta})^2}{8\pi^2 \hbar U} \cdot \left[\exp\left(\frac{-2\beta}{\hbar e F} \sqrt{mU^3}\right) - \left(1 + \frac{2eV_b}{U}\right) \cdot \exp\left(\frac{-2\beta}{\hbar e F} \sqrt{mU^3} \cdot \sqrt{1 + \frac{2eV_b}{U}}\right) \right] \quad (2.4)$$

où $F = V_b/\Delta s$ est la force du champ électrique dans la couche isolante.

Pour une forte différence de potentiel appliquée entre les électrodes métalliques, comme $eV_b \gg U$, le second terme de l'expression 2.4 peut être négligé et le courant injecté J varie en F^2 donc en V_b^2 .

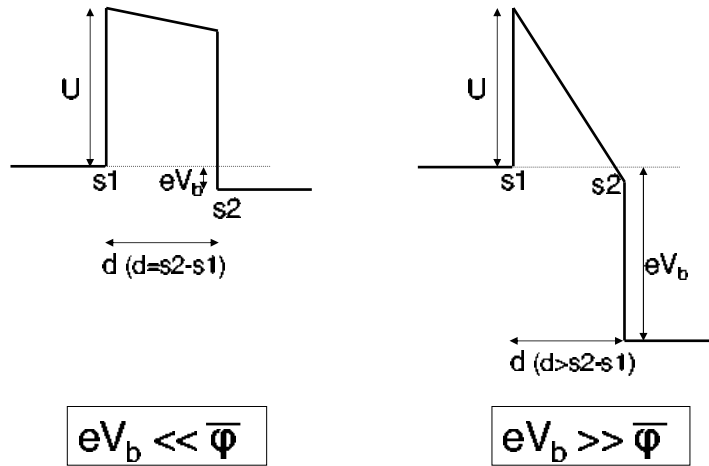


FIG. 2.4: Représentation symbolique d'une barrière de potentiel, d'épaisseur d et de hauteur $\phi(x) = U - eV_b \cdot x/d$, prise entre deux électrodes métalliques.

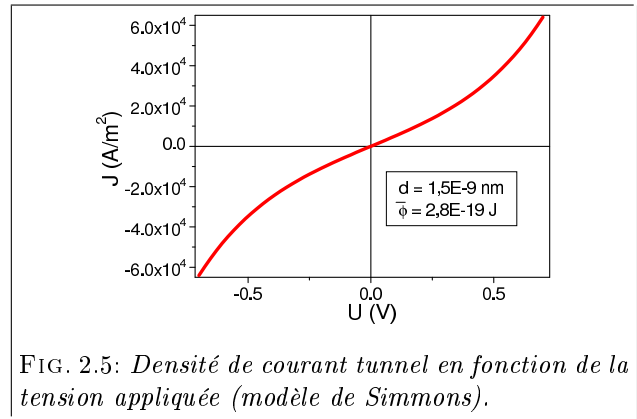
- A gauche : cas où la différence de potentiel entre les deux électrodes métalliques est faible. Alors l'épaisseur effective de barrière est $s_2 - s_1 = d$

La hauteur de barrière moyenne vaut $\bar{\phi} = (1/d) \cdot \int_0^d \phi(x) dx = U - eV_b/2 = U$.

- A droite : cas où la différence de potentiel entre les deux électrodes métalliques est grande. Alors l'épaisseur effective de barrière est $s_2 - s_1 = s_2 - 0 = d \cdot U/eV_b$

La hauteur de barrière moyenne vaut $\bar{\phi} = (1/s_2) \cdot \int_0^{s_2} \phi(x) dx = U/2$.

La figure ci-contre donne l'allure générale d'une caractéristique courant-tension donnée par l'équation 2.2 pour une barrière fine et de hauteur faible (décrite par les paramètres d et $\bar{\phi}$). Nous retrouvons en particulier les deux comportements décrits plus hauts : pour de faibles différences de potentiel, la caractéristique $J(U)$ a une allure linéaire ; à l'inverse, lorsque la tension appliquée augmente, le courant tunnel traversant la barrière augmente de manière parabolique.



2.2 Transport par effet tunnel dans les jonctions tunnel magnétiques

2.2.1 Notions sur la polarisation en spin d'un métal ferromagnétique

Il convient de préciser qu'il existe différents types de matériaux ferromagnétiques, le ferromagnétisme ayant plusieurs origines possibles : des métaux comme les terres rares (le néodyme Nd par exemple) présentant un magnétisme localisé³, des matériaux dilués (GaMnAs par exemple), où le ferromagnétisme est assuré par l'interaction RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida)⁴ ou des métaux « conventionnels », comme le nickel, le cobalt et le fer, présentant un ferromagnétisme itinérant. C'est cette dernière catégorie qui est développée dans ce qui suit.

Ces métaux ferromagnétiques sont composés à partir d'atomes de la fin de la série 3d du tableau périodique des éléments (Fe $4s^23d^6$, Co $4s^23d^7$, Ni $4s^23d^8$). Le remplissage inachevé de cette couche électronique va leur conférer des propriétés particulières. Dans le cas des atomes isolés, la règle de Hund impose un remplissage total de la couche $3d\uparrow$ et un remplissage seulement partiel de la couche $3d\downarrow$, d'énergie plus élevée. Signalons que le transport de courant est assuré par tous les électrons des couches externes, *ie* des couches 4s et 3d.

Au sein d'un solide, la répartition en énergie des états électroniques peut être représentée schématiquement par des bandes paraboliques larges, décalées en énergie par une interaction d'échange lorsque le matériau est ferromagnétique (voir figure 2.6) : les populations des électrons polarisés $\text{spin}\uparrow$ et $\text{spin}\downarrow$ ne sont alors pas égales.

Dans le cas d'un matériau dit *ferromagnétique faible* (c'est le cas du fer), le décalage en énergie des deux demi-paraboles associées aux électrons $\text{spin}\uparrow$ et $\text{spin}\downarrow$ est faible. Le niveau de Fermi coupe les deux sous-bandes $d\uparrow$ et $d\downarrow$. Le courant est alors véhiculé par des électrons s, $d\uparrow$ et $d\downarrow$.

Dans le cas d'un matériau dit *ferromagnétique fort* (c'est le cas du nickel), le décalage en énergie des deux demi-paraboles est important. Le niveau de Fermi ne coupe que la sous-bande de spins minoritaires $d\downarrow$. Le courant est alors véhiculé par des électrons s et $d\downarrow$.

Au final, dans ce modèle simple, les densités d'état au niveau de Fermi d'un matériau ferromagnétique sont régies par les relations $n_{s\uparrow} = n_{s\downarrow}$ et $n_{d\uparrow} \neq n_{d\downarrow}$. Les diagrammes des densités d'états en fonction de l'énergie calculés pour des électrons $\text{spin}\uparrow$ et $\text{spin}\downarrow$ présentent une allure semblable à celle donnée par le modèle des bandes paraboliques. Dans le cas du cuivre, la bande d est en fait complètement remplie et se trouve située au dessous du niveau de Fermi.

³Le magnétisme provient d'électrons portés par des orbitales f de très faible extension spatiale. Ainsi, ces systèmes comportent des électrons f localisés et des électrons de conduction délocalisés, qui n'interagissent (quasiment) pas.

⁴Le magnétisme (ferromagnétisme ou antiferromagnétisme) est induit par les porteurs de charge, qui vont créer une interaction entre les sites magnétiques.

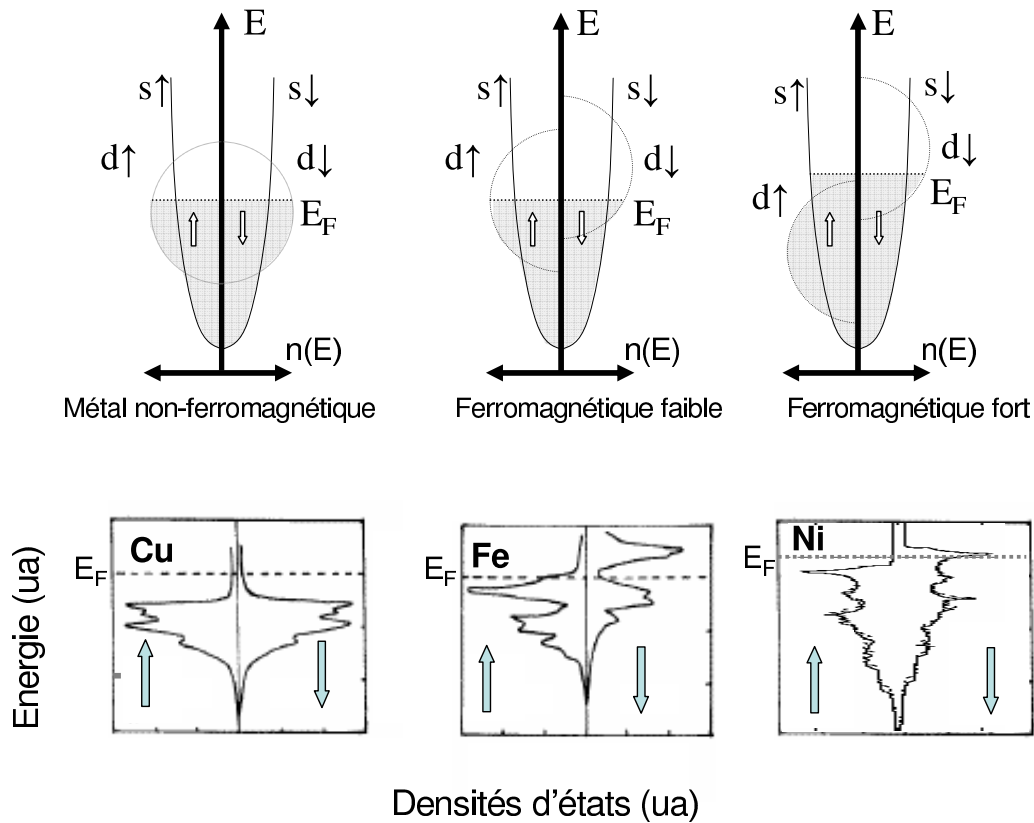


FIG. 2.6: En haut : structure de bande simplifiée d'un métal non ferromagnétique, d'un ferromagnétique faible et d'un ferromagnétique fort. Les densités d'états $n_{\uparrow}(E)$ et $n_{\downarrow}(E)$ des bandes de conduction des métaux sont schématisées par des paraboles décalées en énergie. En bas : diagrammes de densités d'états résolus en spin de Cu, Fe (tirés de [RAZ97]) et de Ni (tiré de [SIN02]).

Cette asymétrie des densités d'état va assurer une asymétrie des propriétés de transport d'un matériau ferromagnétique en fonction de son état d'aimantation et du spin des électrons considérés, suivant le modèle de Mott (1936). En terme de transport de courant, le matériau ferromagnétique peut être modélisé par la mise en parallèle de deux canaux de spins indépendants, associés aux électrons spin \uparrow et spin \downarrow (voir figure 2.7) : $\sigma_{\uparrow} \neq \sigma_{\downarrow}$ où σ représente la conductivité du matériau.

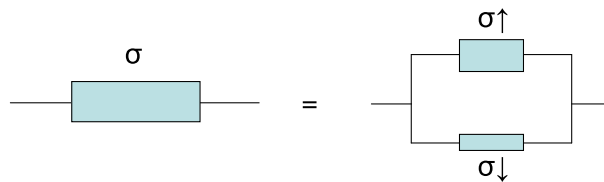


FIG. 2.7: Schéma électrique équivalent du matériau ferromagnétique dans le modèle à deux canaux de spins indépendants (modèle de Mott).

La *polarisation en spin* P est la quantité utilisée pour quantifier cette asymétrie en spin des métaux ferromagnétiques. Il s'agit de la différence des densités d'état au niveau de Fermi pour les deux directions de spin :

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

Ce modèle, reliant l'asymétrie en spin d'un métal ferromagnétique aux seules densités d'états des électrons d_{\uparrow} et d_{\downarrow} au niveau de Fermi, s'est toutefois avéré être trop simpliste pour rendre compte de certains phénomènes. Ainsi, dans le cas d'un matériau ferromagnétique fort, comme le nickel, les seuls porteurs polarisés en spin participant au courant devraient être les porteurs minoritaires d_{\downarrow} . Autrement dit, ce ma-

tériau devrait avoir une polarisation en spin *négative*. Ceci est en contradiction avec les résultats obtenus par Tedrow et Meservez [TED73]. Sur des systèmes *Métal ferromagnétique/barrière/supraconducteur*, ils ont mesuré des polarisations en spin positives pour tous les matériaux qu'ils ont étudié, y compris Ni (voir tableau 2.1). Hertz et Aoi [HER73] ont expliqué ce phénomène par l'hybridation des bandes s et d : les électrons de polarisation de la bande s se polarisent en spin sous l'effet de l'aimantation des bandes d ($n_{\uparrow,s} \neq n_{\downarrow,s}$). Le courant doit être considéré comme véhiculé par des électrons $s\uparrow$, $s\downarrow$, $d\uparrow$ et $d\downarrow$, les électrons s étant plus légers donc plus mobiles.

Mazin [MAZ99] a ainsi écrit que pour définir la polarisation en spin d'un *courant* injecté depuis le ferromagnétique, il convenait de ne pas considérer une densité d'état « générale » au niveau de Fermi $n(E_F)$, mais qu'il fallait prendre en compte la moyenne sur les différentes bandes (s, d, ...) de densités d'états spécifiques ($n_{s,d}, \dots$) pondérées par leurs vitesses de Fermi ($v_{F,s}, v_{F,d}, \dots$). Dans le cas d'un régime de transport ballistique, Mazin a donné la définition suivante de la polarisation en spin du courant :

$$P_2 = \frac{\langle n_{\uparrow,i}(E_F) \cdot v_{F,i} \rangle - \langle n_{\downarrow,i}(E_F) \cdot v_{F,i} \rangle}{\langle n_{\uparrow,i}(E_F) \cdot v_{F,i} \rangle + \langle n_{\downarrow,i}(E_F) \cdot v_{F,i} \rangle}.$$

La figure 2.8 donne ainsi le diagramme de densités d'états relatif aux seuls électrons s dans le cas du cobalt (un ferromagnétique fort). Si la courbe des densités d'états totale nous donne bien $n_{\uparrow}(E_F) < n_{\downarrow}(E_F)$, nous avons l'effet inverse en ne prenant en compte que les électrons de type s : $n_{\uparrow,s}(E_F) > n_{\downarrow,s}(E_F)$.

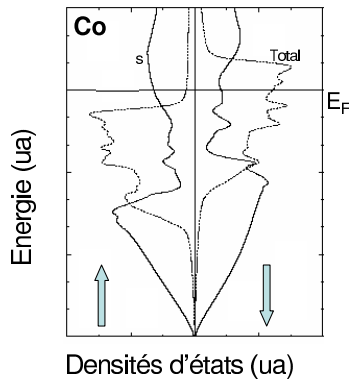


FIG. 2.8: Diagramme des densités d'états du Co (tiré de [TSY97]), total (courbe en pointillés) et relatif aux seuls électrons s (courbe pleine). Les échelles de densités d'états sont différentes pour les deux courbes.

A titre indicatif, le tableau ci-dessous recense des mesures de polarisation en spin de quelques métaux de transition et alliages ferromagnétiques utilisés pour réaliser des dispositifs jonctions tunnel. Soulignons ici que ces valeurs de polarisation sont obtenues expérimentalement en utilisant une barrière tunnel en *alumine amorphe*.

| | Fe | Co | Ni | Co ₅₀ Fe ₅₀ | Ni ₈₁ Fe ₁₉ |
|-----------------|------|------|------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| Tedrow-Meservey | +44% | +34% | +11% | | |
| Monsma-Parkin | +45% | +42% | +31% | +50% | +45% |

TAB. 2.1: Polarisation en spin d'électrodes ferromagnétiques mesurées sur un système FM/Al₂O₃/Al_{supraconducteur} à 0,4K (Tedrow-Meservey [TED73]) et sur un système FM/Al₂O₃/AlCu_{supraconducteur} à 0,25K (Monsma-Parkin [MON00]).

Tsymbal et Pettifor [TSY97] ont en effet modélisé l'influence des liaisons chimiques entre l'électrode ferromagnétique et l'isolant sur le transport tunnel dépendant du spin : suivant la nature de ces liaisons, les électrons s ou d participent plus ou moins au transport tunnel ; ils en concluent que la nature des liaisons électrode/isolant va déterminer l'amplitude et le signe de la polarisation mesurée de l'électrode.

2.2.2 Modèle de Jullière

Jullière a été le premier en 1975 [JUL75] à réaliser des expériences de magnéto-transport par effet tunnel dépendant du spin sur un système tricouche (FM1/I/FM2), composé de deux électrodes ferromagnétiques Fe et Co (FM1 et FM2) séparées par une barrière isolante de Ge amorphe (I).

En définissant la magnéto-résistance tunnel (TMR) comme étant la différence de conductance du système pris dans les états d'aimantation parallèle et antiparallèle, divisée par la conductance du système

dans un état d'aimantation antiparallèle, Jullière a mesuré une valeur de TMR de 14% à 4,2K pour une tension de polarisation appliquée quasi-nulle (mesure à « zéro bias »).

$$TMR = \frac{(G_P - G_{AP})}{G_{AP}} = \frac{(R_{AP} - R_P)}{R_P}. \quad (2.5)$$

Avant cette expérience, des effets de magnéto-transport tunnel avaient déjà été observés en 1971 sur un système composé de nickel granulaire pris dans une matrice de SiO₂ [GIT72] : le courant passe d'un agrégat à un autre par effet tunnel, la résistance du système change lorsqu'un champ magnétique aligne les moments magnétiques des agrégats.

Jullière a interprété son résultat en élaborant un modèle simple qui relie directement l'amplitude de TMR mesurée à la polarisation en spin des électrodes ferromagnétiques : une jonction tunnel magnétique (JTM) comprend deux électrodes ferromagnétiques enserrant une barrière tunnel. L'asymétrie en spin d'un métal ferromagnétique peut être représentée très schématiquement d'un point de vue densité d'états par deux bandes paraboliques associées aux porteurs majoritaires spin↑ et aux porteurs minoritaires spin↓, ces deux bandes étant décalées en énergie par une interaction d'échange (voir figure 2.9). Chaque électrode a donc une différence de densité d'état entre porteurs spin↑ et spin↓, qui va dépendre de son état d'aimantation.

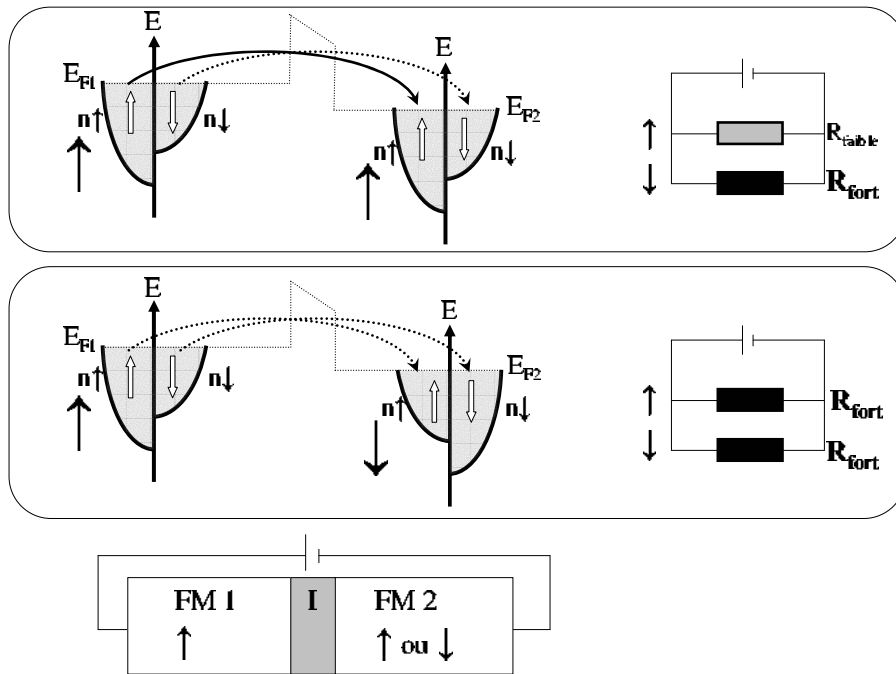


FIG. 2.9: Transport tunnel entre deux métaux ferromagnétiques séparés par une barrière isolante rectangulaire, déformée par l'application d'une différence de potentiel. Les densités d'états $n_{\uparrow}(E)$ et $n_{\downarrow}(E)$ des bandes de conduction des deux métaux ferromagnétiques aimantés sont schématisées par des paraboles décalées en énergie par l'échange.

Dans ce modèle, le transport par effet tunnel conserve le spin des porteurs, ce qui signifie que les électrons de spin↑ (respectivement spin↓) de la première électrode ne pourront être acceptés dans la seconde électrode que par des états libres correspondant au spin↑ (respectivement spin↓). Du point de vue du transport, en tenant compte de la rareté des événements de diffusion des porteurs affectant le spin, un métal ferromagnétique peut être vu comme la mise en parallèle de deux canaux de spins indépendants, de conductivités $\sigma_{\uparrow} \neq \sigma_{\downarrow}$. Dans un état antiparallèle (AP), le canal majoritaire d'une électrode correspond au canal minoritaire de l'autre, d'où au final une conductance G_{AP} faible pour la structure. Dans un état parallèle (P), le canal majoritaire d'une électrode correspond au canal majoritaire de l'autre, ce qui entraîne l'obtention d'une conductance G_P plus importante que G_{AP} (voir figure 2.9).

Jullière a écrit que la conductance du système dans un état d'aimantation donné était proportionnelle au produit des densités d'états participant au transport tunnel dans chacune des électrodes. En notant

$n_{i,\uparrow}$ (respectivement $n_{i,\downarrow}$) la densité d'état des porteurs majoritaires (respectivement minoritaires) de l'électrode i ($i = 1$ ou 2), ceci peut s'écrire :

$$G_P \propto [n_{1,\uparrow} * n_{2,\uparrow} + n_{1,\downarrow} * n_{2,\downarrow}].$$

$$G_{AP} \propto [n_{1,\uparrow} * n_{2,\downarrow} + n_{1,\downarrow} * n_{2,\uparrow}].$$

En reprenant la définition de la polarisation en spin d'un métal ferromagnétique $P = (n_{\uparrow}(E_F) - n_{\downarrow}(E_F)) / (n_{\uparrow}(E_F) + n_{\downarrow}(E_F))$, la TMR d'un système JTM peut s'exprimer de façon très simple en fonction de la polarisation en spin de chacune des électrodes :

$$TMR = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2}. \quad (2.6)$$

Cette expression est appelée « formule de Jullière ». Il n'y a pas de limite théorique à l'amplitude de TMR que l'on peut obtenir (la relation diverge pour des polarisations égales à 1). Cette constatation a motivé des efforts importants pour maîtriser la croissance de matériaux ayant une polarisation en spin de 100% (demi-métaux).

Ce modèle a donné de bons résultats sur des systèmes comportant une barrière isolante amorphe. Ainsi, Moodera *et al.* [MOO95] ont mesuré une valeur de TMR égale à 24% (à 4,2K) sur un système FeCo/Al₂O₃/Co, qu'ils ont décrite comme très proche de celle donnée par la formule de Jullière (27%, en utilisant des valeurs de polarisation en spin de 47% pour CoFe et 34% pour Co).

Néanmoins, ce modèle laisse de côté certains phénomènes physique. Ainsi il ne donne pas d'explication à la décroissance du signal TMR lorsque la tension de polarisation augmente. Ce phénomène est observé systématiquement dans un système JTM et avait déjà été mesuré par Jullière : en augmentant la tension appliquée entre les électrodes jusqu'à quelques mV, il a observé une chute de l'effet magnéto-résistif (TMR < 1%).

Il est important de souligner que d'après ce modèle, la magnéto-résistance tunnel de la structure ne dépend que des électrodes ferromagnétiques la constituant. Plus exactement, l'expression de la TMR ne dépend que de la polarisation des électrodes, celle-ci étant vue comme un paramètre intrinsèque au matériau. Cette idée se révèle inexacte : la valeur de la polarisation en spin du courant extrait du métal ferromagnétique dépend de la barrière tunnel utilisée (voir paragraphe 2.2.1). Ici, les caractéristiques de la barrière tunnel (épaisseur, hauteur, nature de l'isolant) ne sont pas prises en compte.

2.2.3 Modèle de Slonczewski

Slonczewski est le premier à avoir proposé une approche théorique de l'effet de magnéto-résistance tunnel qui prenne en compte la barrière tunnel [SLO89]. Il s'est intéressé à l'étude du transport tunnel entre deux matériaux ferromagnétiques FM1 et FM2, aux propriétés identiques, dont les densités d'état porteurs majoritaires \uparrow /porteurs minoritaires \downarrow sont décrites par le modèle simple des bandes paraboliques décalées en énergie par l'échange. Leurs aimantations forment un angle θ entre elles (θ étant égal à 0 lorsque le système est dans une configuration parallèle). Ces électrodes sont séparées par une barrière isolante, assimilée à une barrière de potentiel rectangulaire, d'épaisseur d et de hauteur U .

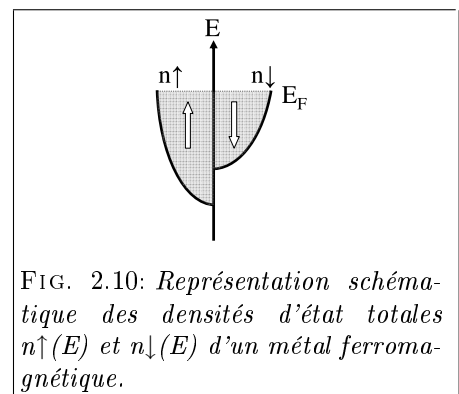


FIG. 2.10: Représentation schématique des densités d'état totales $n_{\uparrow}(E)$ et $n_{\downarrow}(E)$ d'un métal ferromagnétique.

Son calcul est basé sur le modèle de l'électron libre : en considérant une structure comportant des électrodes polycristallines ou amorphes, toutes les orientations cristallines sont moyennées, le système est isotrope du point de vue de l'électron. On peut donc considérer que ce dernier se déplace au sein d'un potentiel moyen, constant. En notant x l'axe de propagation des électrons de conduction, la partie longitudinale de leur Hamiltonien associé s'écrit

$$H_x = -\frac{\hbar}{2m} \frac{d^2}{dx^2} + U(x) - h(x) \cdot \sigma.$$

On prend l'origine $x = 0$ à l'interface entre la première électrode et la barrière tunnel. Le premier terme de l'hamiltonien est un terme cinétique, le deuxième correspond à la barrière de potentiel qui schématise l'isolant ($U(x) = U$ pour $0 < x < d$ et 0 sinon) et le troisième est le terme d'énergie d'échange correspondant à l'interaction du spin de l'électron (σ prend les valeurs 1 ou -1) avec le champ moléculaire h :

$h(x) = h_A$ pour $x < 0$, $h(x) = 0$ pour $0 < x < d$, et $h(x) = h_B$ pour $x > d$. Les deux électrodes étant identiques, $h_A \cdot h_B = h^2 \cdot \cos(\theta)$, où $2h$ est le décalage en énergie entre les bandes \uparrow et \downarrow des électrodes ferromagnétique considérées.

Dans ce modèle, les deux canaux de conduction $\text{spin}\uparrow$ et $\text{spin}\downarrow$ ont des vecteurs d'onde différents que l'on peut exprimer par

$$k_{\uparrow} = \sqrt{\left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)(E - h)}.$$

$$k_{\downarrow} = \sqrt{\left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)(E + h)}.$$

Dans la barrière, le vecteur d'onde des électrons, représentant un facteur d'atténuation, est déterminé par U , la hauteur de la barrière de potentiel. Il s'exprime sous la forme

$$\kappa = \sqrt{\left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)(U - E)}.$$

Après résolution de l'équation de Schrödinger et obtention des fonctions d'onde correspondant aux électrons de conduction dans les trois zones du système, Slonczewski a considéré que les fonctions d'onde incidentes étaient d'incidence quasi normale (ce qui équivaut à dire que la composante transverse k_{\parallel} du vecteur d'onde est nulle). Pour une tension externe V faible appliquée au système (ce qui est le cas en pratique, l'amplitude du signal TMR mesuré chute lorsque la différence de potentiel appliquée à la jonction tunnel est supérieure à quelques mV), on peut également considérer que la majorité du courant tunnel est porté par les électrons de Fermi, et donc ne considérer que la seule énergie E_F ($E = E_{F1} = E_{F2}$). On peut alors écrire la conductance de l'ensemble sous la forme :

$$G = \frac{e^2}{8\pi^2\hbar} \cdot \frac{\kappa \cdot T}{d}$$

où T est le facteur de transmission de la barrière tunnel

$$T = (T_{\uparrow} + T_{\downarrow}) = 8\kappa^2(1 + \cos(\theta))e^{-2\kappa d} \cdot \left[\frac{k_{\uparrow}^2}{(\kappa^2 + k_{\uparrow}^2)^2} + \frac{k_{\downarrow}^2}{(\kappa^2 + k_{\downarrow}^2)^2} \right].$$

Il est alors possible d'exprimer la conductance du système comme une fonction linéaire du cosinus de l'angle θ entre les aimantations des deux électrodes ferromagnétiques

$$G(\theta) = G_0 \cdot (1 + P_{\text{eff}}^2 \cos(\theta)) \quad (2.7)$$

où P_{eff} est désigné comme la polarisation en spin effective de l'ensemble métal ferromagnétique/barrière isolante.

$$P_{\text{eff}} = \frac{k_{\uparrow} - k_{\downarrow}}{k_{\uparrow} + k_{\downarrow}} \cdot \frac{\kappa^2 - k_{\uparrow}k_{\downarrow}}{\kappa^2 + k_{\uparrow}k_{\downarrow}}. \quad (2.8)$$

La magnétorésistance tunnel s'exprime alors sous la forme :

$$TMR = \frac{(G_P - G_{AP})}{G_{AP}} = \frac{2P_{\text{eff}}^2}{1 - P_{\text{eff}}^2}. \quad (2.9)$$

On retrouve avec ce modèle la même expression de la TMR que celle donnée par Jullière, en considérant la polarisation effective (2.8) obtenue par Slonczewski.

P_{eff} est le produit de deux termes. le premier correspond à la polarisation en spin des électrons de conduction à l'énergie de Fermi. C'est à dire qu'il correspond à la polarisation du ferromagnétique seul, telle qu'elle avait été donnée par Jullière. Le second terme dépend de la hauteur de la barrière tunnel par l'intermédiaire de κ . Dans le cas d'une barrière tunnel de hauteur infinie, la polarisation définie par Slonczewski rejoint celle donnée par Jullière.

Ce modèle est le premier évoquant le fait que la polarisation du courant tunnel ne dépend pas exclusivement des caractéristiques des matériaux ferromagnétiques employés comme électrodes : c'est le premier à prendre en compte l'ensemble du système électrodes/isolant.

2.2.4 Effets des interfaces électrodes/barrière sur le transport tunnel polarisé en spin

Toutefois, le modèle de Slonczewski ne tient pas compte de facteurs structurels de la barrière tunnel qui sont importants en pratique comme sa non-uniformité, ou des effets liés aux liaisons chimiques barrière-électrodes. D'autre part, il ne considère pas l'influence des densités d'états des matériaux constituant la jonction et reste donc insuffisant pour prédire le comportement d'un système épitaxié. Des résultats théoriques et expérimentaux récents montrent en effet que l'amplitude et le signe de la TMR dépendent très fortement de la qualité structurelle de la JTM et du choix de la barrière tunnel.

Ainsi, Tsymbal et Pettifor [TSY97] ont modélisé le cas du transport tunnel à partir d'une électrode ferromagnétique (constituée d'un matériau ferromagnétique faible comme Fe ou fort comme Co) vers une électrode métallique non magnétique, au travers d'une barrière isolante supposée sans défaut. La structure de bande de l'électrode injectrice est prise en compte, dans le sens où des polarisations en spin différentes sont attribués aux différents états électroniques (s, d...). Suivant la nature des liaisons modélisant le contact électrode injectrice / barrière, certains types de porteurs vont participer plus que d'autres au transport tunnel. Lorsque les liaisons favorisent le transport des électrons s, la polarisation en spin de l'injecteur mesurée expérimentalement avec une barrière d'alumine amorphe (voir paragraphe 2.2.1) est retrouvée. A l'opposé, lorsque les électrons d sont favorisés, la polarisation en spin calculée pour une électrode injectrice de cobalt est négative.

La nature des liaisons électrode/isolant va influencer fortement sur le transport tunnel des électrons. En particulier, elle va déterminer l'amplitude et le signe de la « polarisation en spin » mesurée de l'électrode.

Cette notion de polarisation en spin du métal ferromagnétique se révèle donc d'un intérêt limité pour prédire le comportement en transport d'une JTM. En effet, le couple formé par le matériau isolant et l'électrode ferromagnétique peut conduire à une sélection particulière des états électroniques participant au transport tunnel.

Voyons un exemple : sur un système comportant deux électrodes de permalloy et une barrière tunnel *asymétrique* $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ta}_2\text{O}_5$, Sharma *et al.* [SHA99] ont mesuré une évolution du signe de la TMR avec la tension appliquée (voir figure 2.11). Il s'agit d'un très fort effet d'interface puisque la seule dissymétrie du système, qu'affecte la tension appliquée, est apportée par la barrière tunnel.

Cette expérience montre que le métal ferromagnétique et la couche isolante doivent être pris comme formant un ensemble : les polarisations en spin des couples $\text{NiFe}/\text{Al}_2\text{O}_3$ et $\text{NiFe}/\text{Ta}_2\text{O}_5$ sont opposées.

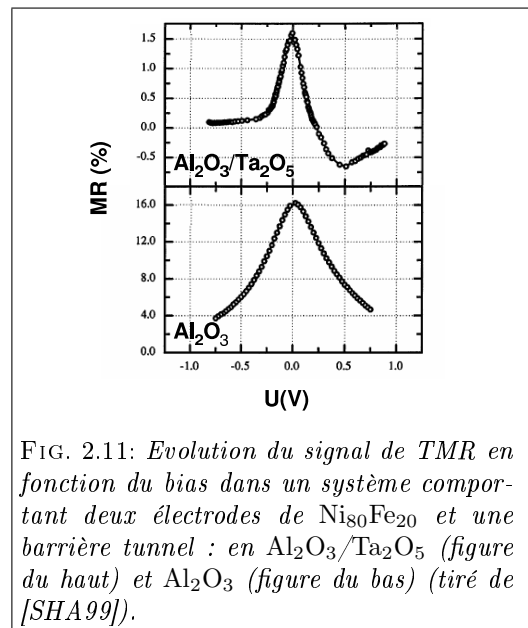


FIG. 2.11: Evolution du signal de TMR en fonction du bias dans un système comportant deux électrodes de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ et une barrière tunnel : en $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ta}_2\text{O}_5$ (figure du haut) et Al_2O_3 (figure du bas) (tiré de [SHA99]).

De même, De Teresa *et al.* [DET99] ont réalisé des mesures de TMR sur des systèmes $\text{Co}/\text{Barrière}/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) où la barrière tunnel est SrTiO_3 (STO), $\text{Ce}_{0.69}\text{La}_{0.31}\text{O}_{1.845}$ (CLO), Al_2O_3 (ALO) ou $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SrTiO}_3$ (ALO/STO). Pour une même tension appliquée (les électrons se propageant depuis l'électrode de Co vers celle de LSMO), ils ont obtenu un effet TMR de signe positif avec les couches isolantes ALO ou ALO/STO et négatif dans les deux autres cas, vérifiant ainsi que la « polarisation en spin des électrodes » dépendait du choix de la barrière tunnel (voir figure 2.12). L'effet obtenu avec la barrière ALO/STO permet de vérifier que l'inversion de polarisation en spin constatée au cours de l'expérience est due à une propriété intrinsèque de l'interface (liaisons spécifiques) entre la couche ferromagnétique et la couche isolante (comme prédit par Tsymbal [TSY97]), plutôt qu'à un effet de propagation au sein de la barrière tunnel.

L'étude de l'effet d'une couche interfaciale de cuivre sur l'amplitude du signal de TMR a été menée par Leclair *et al.* [LEC00] en prenant des systèmes $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Co}$ ou $\text{Co}/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$. L'insertion de quelques monocouches de Cu à l'interface électrode/barrière entraîne une diminution drastique de la TMR, indiquant par là que les états électroniques d'interface jouent un rôle crucial dans le transport

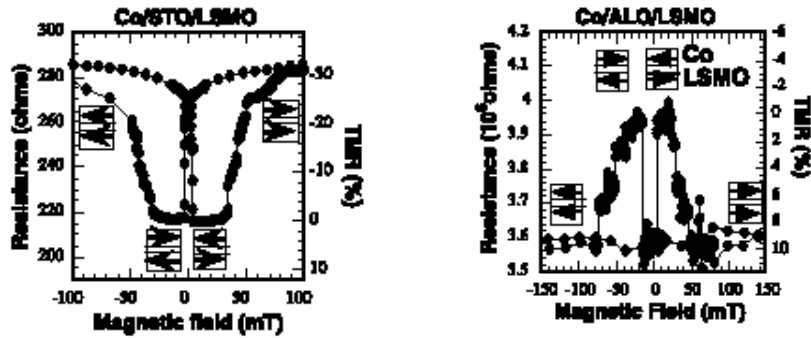


FIG. 2.12: Signal TMR mesuré à 40K sur des systèmes JTM comprenant une barrière isolante différente (tiré de [DET99]).

tunnel polarisé en spin. Les auteurs ont mesuré les variations de l'amplitude de la TMR en fonction de l'épaisseur de cuivre déposée, montrant qu'elles sont différentes suivant que le cuivre est situé au dessus ou au dessous de la barrière tunnel. En vérifiant que la croissance du cuivre se fait différemment sur une couche de cobalt ou une couche d'alumine, ils ont mis en évidence le fait que la qualité de la couche interfaciale est déterminante pour optimiser l'amplitude du signal de magnétorésistance.

2.2.5 Effet de la structure cristalline sur le transport tunnel polarisé en spin

Les expériences présentées dans le paragraphe précédent concernent des JTM élaborées par pulvérisation cathodique et comportant des électrodes polycristallines. Dans des métaux épitaxiés, les densités d'états mises en jeu pour le transport suivant une direction cristalline particulière ne sont plus moyennées.

Ainsi, Leclair *et al.* [LEC02] ont mis en évidence un lien direct entre la structure de bandes et la densité d'états électroniques participant au transport tunnel. Les propriétés de magnéto-transport sont symétriques⁵ sur une JTM $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ comportant deux électrodes polycristallines, mais ils ont relevé une forte asymétrie dans le transport lorsque l'une des deux électrodes est texturée cfc (111) : le diagramme des densités d'états résolu en spin selon la direction (111) du cobalt cfc indique la présence d'une bande de spins minoritaires située au dessus du niveau de Fermi, qui n'intervient dans le transport que lorsque le courant est injecté *vers* l'électrode texturée.

L'influence de l'orientation cristalline d'une électrode ferromagnétique sur l'effet de magnétorésistance tunnel a été étudiée par Yuasa et son équipe [YUA00]. Sur des systèmes $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}$ comportant des électrodes inférieures de Fe de différentes orientations cristallines⁶, l'amplitude du signal de TMR mesuré à température ambiante s'élève respectivement à 13%, 32% et 42% lorsque l'orientation du cristal Fe est (100), (110) ou (211). Ce résultat semble indiquer une anisotropie dans la polarisation en spin des états électroniques participant au courant tunnel : les différents types d'électrons présentent des fonctions d'onde de symétries différentes, le caractère cristallin du système rend le transport des électrons anisotrope. Il faut toutefois rester conscient du fait que le protocole expérimental employé peut conduire à une croissance de la partie supérieure de la structure (barrière tunnel et électrode supérieure) légèrement différente dans chaque cas, et par là fausser le résultat.

2.3 Magnétorésistance tunnel dans des JTM épitaxiées

Pour les scientifiques, les systèmes épitaxiés présentent un avantage important : du fait de l'arrangement (quasi) parfait des atomes, il devient possible de faire des calculs *ab-initio* modélisant ces structures et de reproduire expérimentalement les résultats théoriques obtenus.

Dans les systèmes épitaxiés, le modèle de l'électron libre n'est plus adapté pour décrire les phénomènes de transport : la fonction d'onde de l'électron reflète les symétries du réseau cristallin au sein duquel il se déplace. Les articles théoriques de MacLaren et Butler [MAC99] [BUT01] portant sur des jonctions tunnel

⁵C'est à dire qu'elles ne dépendent pas du signe de la tension appliquée.

⁶L'orientation cristalline de l'électrode inférieure est obtenue en adaptant les substrats utilisés et les conditions de dépôt. Dans ce système, la barrière tunnel est amorphe et l'électrode supérieure est polycristalline.

structurellement parfaites, *ie* complètement épitaxiées, ont montré la nécessité de prendre en compte la structure de bande complète de l'ensemble du système, *ie* des électrodes et de la barrière tunnel. Suivant la nature et l'épaisseur de cette dernière, il est possible de sélectionner les électrons participant au transport tunnel et d'obtenir des effets magnétorésistifs plus importants de plusieurs ordres de grandeur que ceux mesurés jusque là sur des systèmes à barrières amorphes. Ces articles ont donc suscité un très fort engouement au sein de la communauté scientifique pour la réalisation de JTM comportant des barrières tunnel épitaxiées.

2.3.1 Modélisation du transport tunnel polarisé en spin dans les structures Fe/ZnSe/Fe et Fe/MgO/Fe(100)

Fe/ZnSe/Fe et Fe/MgO/Fe sont des systèmes qu'il est facile de faire croître par épitaxie; par conséquent, il devient possible de confronter des mesures expérimentales à des calculs théoriques. Ils constituent donc des candidats idéaux pour la réalisation de calculs *ab-initio*. Dans le cas de Fe/ZnSe/Fe, la croissance se fait avec un faible désaccord de maille (1,4%) en superposant deux mailles de Fe à une maille de ZnSe (les paramètres de maille des deux matériaux sont $a_{\text{Fe}}=2,87\text{\AA}$ et $a_{\text{ZnSe}}=5,67\text{\AA}$). Dans le cas de Fe/MgO/Fe, il y a un faible désaccord de maille (3,5%) entre les deux matériaux suivant la relation d'épitaxie Fe[100]//MgO[110] et une forte différence des énergies de surface qui facilite la croissance bidimensionnelle du MgO sur le fer [VAS96].

En utilisant la méthode Layer Korringa Kohn Rostocker (LKKR) [MAC89], MacLaren et Butler ont modélisé le transport tunnel résolu en spin dans les structures Fe/ZnSe/Fe et Fe/MgO/Fe, prédisant des effets TMR géants pour des épaisseurs de barrière suffisamment grandes. Les résultats obtenus sur ces deux systèmes et les interprétations sont similaires, aussi nous ne les illustrerons que sur la structure Fe/MgO/Fe.

Structure électronique des électrodes

MacLaren *et al.* [MAC99] soulignent la nécessité de prendre en compte les structures électroniques des électrodes et de la barrière résolues suivant l'orientation cristallographique du système. Plus précisément, il s'agit de déterminer quelles sont les symétries des états électroniques mises en jeu au cours du processus.

Les interfaces sont supposées parfaites, les électrons ne diffusent pas à ce niveau, aussi la symétrie des porteurs de charge est conservée tout au long du processus tunnel. Ainsi, un électron de type s injecté depuis la première électrode ne pourra être accepté dans la deuxième que par des états électroniques présentant la même symétrie.

Il devient alors nécessaire de considérer les structures électroniques mises en jeu. Dans une électrode de fer, des états électroniques de différentes symétries coexistent au niveau de Fermi. Ceci provient de l'hybridation d'orbitales atomiques de différents types (s, p_x , p_y , p_z , d_z^2 , $d_{x^2-y^2}$, d_{xy} , d_{yz} , d_{xz}). Suivant l'orientation cristallographique de l'électrode épitaxiée, les symétries des états électroniques présents au niveau de Fermi vont varier et peuvent différer pour les électrons majoritaires (spin \uparrow) et minoritaires (spin \downarrow).

Ainsi, dans le cas d'une électrode de fer orientée (111), les états électroniques correspondant aux porteurs majoritaires *et* minoritaires appartiennent à des bandes de symétrie Λ_1 (hybridation d'états s, p et d) [MAC99]. En revanche, dans une électrode Fe orientée (100), au niveau de Fermi les états électroniques des porteurs majoritaires suivant la direction [001] sont de type Δ_1 (s, p_z , d_z^2), Δ'_2 (d_{xy}) ou Δ_5 (p_x , p_y , d_{xy} , d_{yz}). Les porteurs minoritaires sont de type Δ_2 ($d_{x^2-y^2}$), Δ'_2 (d_{xy}) ou Δ_5 (p_x , p_y , d_{xy} , d_{yz}). C'est à dire que les électrons de caractère « s » se propageant perpendiculairement à la face (100) du fer ne peuvent appartenir qu'aux porteurs majoritaires. Nous verrons dans ce qui suit que c'est cette propriété qui va permettre l'obtention d'un effet TMR particulièrement important.

Soulignons ce résultat : les symétries des états électroniques mises en présence vont dépendre du matériau utilisé et de son orientation cristalline. Dans la suite de ce paragraphe, c'est la structure Fe(100)/MgO(100)/Fe(100) qui est décrite.

Structure électronique de la barrière tunnel

Dans la théorie de l'électron libre, une barrière tunnel est vue comme une simple barrière de potentiel. Son seul effet « filtrant » consiste à apporter un facteur d'atténuation de la forme $e^{-2\kappa d}$ à la conductance

totale (où d est l'épaisseur de la barrière, κ est le taux d'atténuation des fonctions d'onde dans la barrière : $\kappa = \sqrt{(\frac{2m}{\hbar^2})(U - E) + k_{\parallel}^2}$. E représente l'énergie des électrons et U la hauteur de barrière, voir paragraphe 2.2.3).

MacLaren et Butler ont utilisé le formalisme de Landauer-Büttiker pour exprimer la conductance tunnel G comme un coefficient global de transmission. Ce coefficient est la somme des coefficients (probabilités) T de transmission sur tous les canaux de conduction, ie les différents états électroniques : $G = \frac{e^2}{h} \sum_{k_{\parallel}} T(k_{\parallel})$.

Dans cette approche, le vecteur k_{\parallel} est conservé lors du processus de transport tunnel, ce qui nécessite une cohérence du transport parallèlement au plan des couches. Cette hypothèse suppose donc des interfaces parfaites. Le principal résultat obtenu ici est que la structure Fe/MgO/Fe étudiée possède une forte asymétrie en spin de la conductance tunnel, celle-ci augmentant avec l'épaisseur de barrière tunnel MgO.

La figure 2.13 présente l'évolution de la conductance tunnel des différents canaux de spin (canaux de spin majoritaire et minoritaire dans le cas d'un alignement parallèle des aimantations des deux électrodes, et

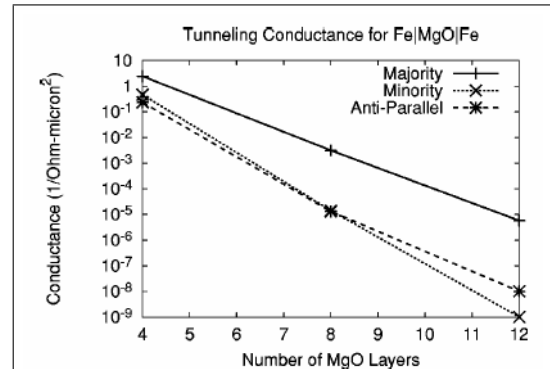


FIG. 2.13: Evolution de la conductance tunnel des canaux de spins majoritaire et minoritaire (cas d'une configuration parallèle des aimantations) et de la conductance totale (cas d'une configuration antiparallèle des aimantations), en fonction de l'épaisseur de barrière MgO (Tiré de [BUT01]). Note : l'épaisseur d'une couche de MgO est 2,1Å.

canal de conductance total dans le cas d'une configuration antiparallèle des aimantations) calculée en fonction de l'épaisseur dans un système Fe/MgO/Fe (100) : la conductance tunnel du canal de spin majoritaire décroît moins vite que les deux autres lorsque l'épaisseur de MgO augmente, conduisant à une amplitude de magnétorésistance croissante à mesure que l'épaisseur de la barrière augmente (au détriment, bien entendu, de l'amplitude du courant transmis).

Ce phénomène est expliqué par le fait qu'une barrière tunnel épitaxiée ne correspond pas seulement à « une barrière de potentiel de hauteur U », mais possède aussi une structure électronique bien définie [MAV00] : les états de Bloch de l'électrode, d'une symétrie donnée, vont se raccorder aux états évanescents de même symétrie dans la bande interdite de la barrière tunnel. Ceci se fait en prenant en compte la structure de bande complexe de la barrière au niveau de sa bande interdite [MAV00], [BUT01] : pour chaque k_{\parallel} et E donnés, on peut associer plusieurs k_z complexes (z étant l'axe perpendiculaire au plan des couches), de la forme $k_z = q + i\kappa$, κ étant le taux d'atténuation (les fonctions d'onde vont décroître en $e^{-\kappa z}$).

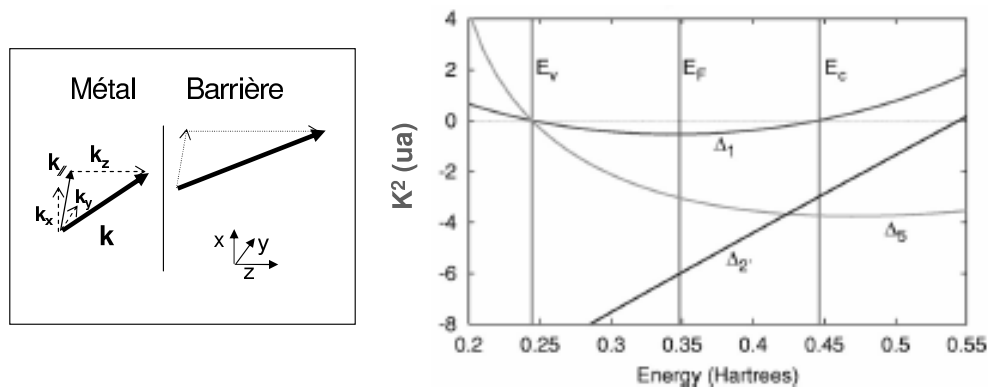


FIG. 2.14: A gauche, décomposition du vecteur d'onde dans le métal et la barrière : le transport tunnel se fait à k_{\parallel} constant, mais différents k_z peuvent correspondre à une même k_{\parallel} . A droite, relation de dispersion $k_x^2(E)$ pour une barrière MgO(100) pour $k_{\parallel} = 0$ (1 Hartree = 27.21 eV) (tiré de [BUT01]).

Dans le cas de MgO, isolant à gap direct, le taux d'atténuation minimum κ_{min} est obtenu pour $k_{\parallel}=0$ (Mavrapoulos *et al.* précisent que dans le cas d'un semiconducteur ou isolant à gap indirect, ce n'est pas forcément le cas). La figure 2.14 représente la structure de bande complexe de la bande interdite du MgO(100) pour $k_{\parallel}=0$ [BUT01]. Les taux d'atténuation des états évanescents de différentes symétries sont donnés par les valeurs de κ^2 au niveau de Fermi : sur cette figure, les états de symétrie Δ_1 sont ceux qui ont le plus faible taux d'atténuation, suivis des états de symétrie Δ_5 puis Δ_2' .

Effet de filtrage des électrons dans une JTM épitaxiée

Un élément essentiel, qui ne peut pas être déduit du modèle de l'électron libre, est qu'une barrière épitaxiée va filtrer les électrons en fonction de leur symétrie.

Mac Laren et Butler ont calculé la conductance en fonction de k_{\parallel} pour différentes épaisseurs de MgO (voir figure 2.15). De façon schématique, deux régimes de transport peuvent être distingués suivant que l'épaisseur de barrière modélisée est forte ou faible.

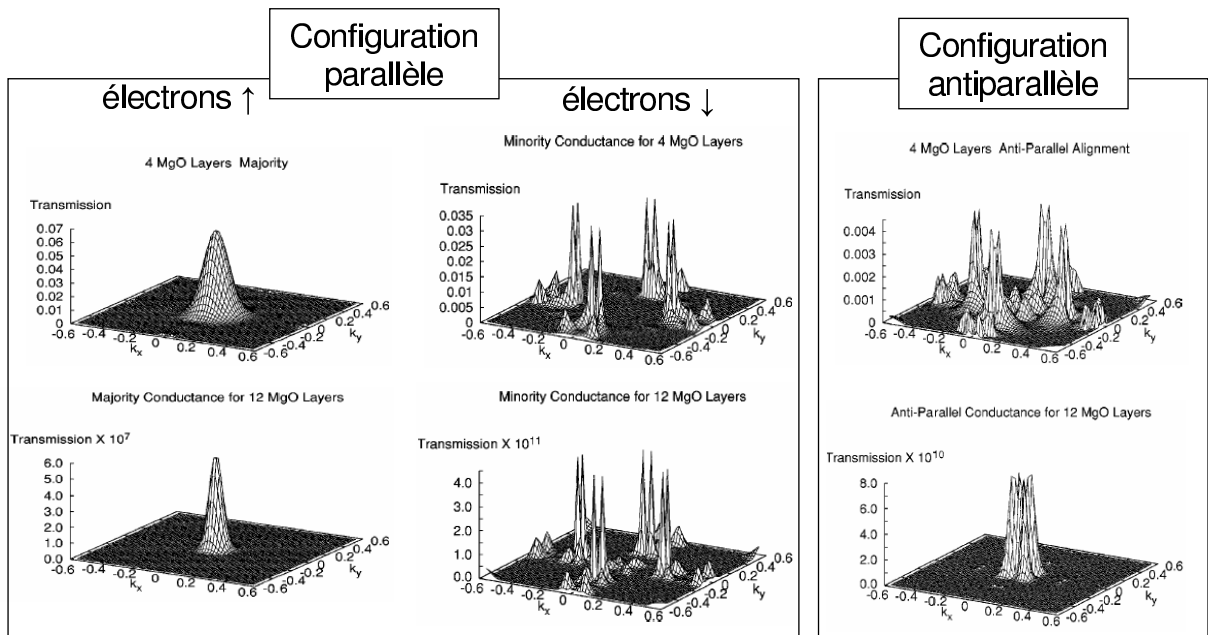


FIG. 2.15: Conductance tunnel autour de $k_{\parallel}=0$ du système Fe/MgO/Fe (100) pour des épaisseurs de barrière tunnel de 4 monocouches (les trois diagrammes du haut) et 12 monocouches (les trois diagrammes du bas). De gauche à droite sont représentées les conductances tunnel des électrons spin \uparrow et spin \downarrow pour une JTM en configuration parallèle, et la conductance tunnel globale pour une JTM en configuration antiparallèle. Les pics de conductance se rapprochent de $k_{\parallel}=0$ lorsque l'épaisseur de MgO augmente. La différence d'amplitude de la conductance entre les configurations parallèle et antiparallèle évolue fortement avec l'épaisseur de barrière tunnel (tiré de [BUT01]).

Pour des barrières épaisses, en régime asymptotique (*ie* pour des épaisseurs suffisamment importantes, où les symétries Δ_2 , etc. . . sont atténuées), la conductance calculée avec une couche isolante MgO est maximale pour $k_{\parallel} \sim 0$, ce qui signifie que le transport tunnel se fait préférentiellement perpendiculairement à la barrière. Le pic de transmission obtenu se resserre autour de $k_{\parallel}=0$ à mesure que l'épaisseur de barrière tunnel augmente (voir figure 2.15), et ce quel que soit le canal de spin considéré (spin \uparrow ou spin \downarrow) ou la configuration magnétique de la structure (P ou AP).

Suivant la symétrie de l'état électronique impliqué dans le transport tunnel, le taux de décroissance de la fonction d'onde associée sera différent pour un k_{\parallel} donné. La figure 2.16 représente la conductance tunnel résolue suivant la structure de bandes de la jonction Fe/MgO/Fe, calculée en $k_{\parallel}=0$ suivant l'épaisseur de barrière MgO pour les électrons du canal majoritaire (figure de gauche) et du canal minoritaire (figure de droite).

Suivant sa nature, un état électronique extrait de la première électrode va être plus ou moins « filtré » par la barrière : il y a une relation de symétrie entre les électrons se propageant dans l'électrode et les états évanescents dans la barrière tunnel. Dans le cas de la barrière tunnel MgO, les états électroniques

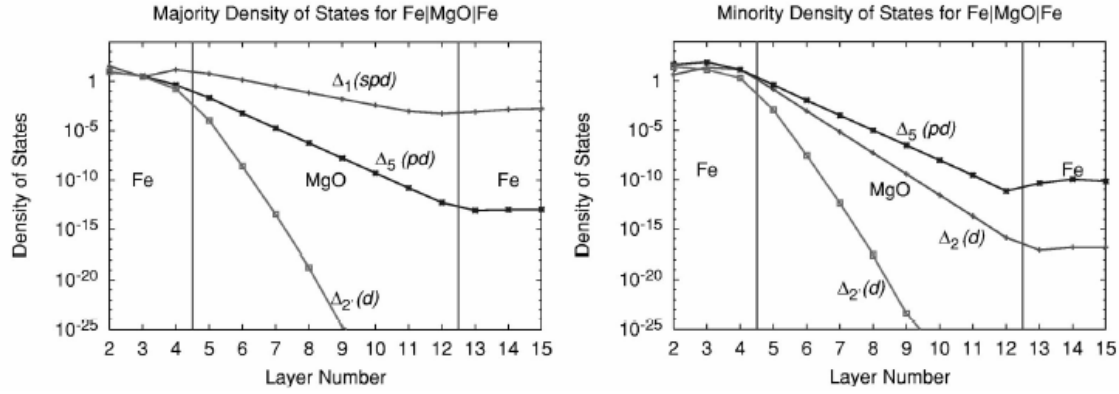


FIG. 2.16: Effet de filtrage des états électroniques de différentes symétrie pour $k_{||}=0$ prise dans une JTM $Fe(100)/MgO(8 \text{ monocouches})/Fe(100)$ dans une configuration magnétique parallèle. À gauche pour les électrons majoritaires et à droite pour les électrons minoritaires (tiré de [BUT01]).

présentant un caractère s sont ceux qui vont s'atténuer le plus lentement, et les états électroniques de caractère d vont avoir une contribution à la conductance de plus en plus négligeable à mesure que l'épaisseur de barrière augmente. Ainsi, dans le cas d'électrodes $Fe(100)$, la bande électronique Δ_1 du canal majoritaire va dominer le transport tunnel et ce de façon d'autant plus importante que l'épaisseur de la barrière augmente. Ces états électroniques n'étant présents que dans la bande de spin \uparrow , le courant de spin majoritaire transmis sera bien supérieur au courant minoritaire dans une JTM présentant la configuration magnétique parallèle. Lorsque la configuration magnétique est dans un état antiparallèle, les électrons de type Δ_1 présents dans la première électrode ne trouvent pas d'état disponible dans la seconde et sont réfléchis par la barrière. Ce sont les électrons de type Δ_5 qui vont assurer la majeure partie du courant tunnel en configuration antiparallèle.

En conséquence, le courant tunnel transmis lorsque la JTM est en configuration antiparallèle est bien moindre que lorsqu'elle est en configuration parallèle, ce qui se traduit par un effet TMR de très forte amplitude.

Pour des épaisseurs de barrière plus faibles, le diagramme de conductance résolu en $k_{||}$ (voir figure 2.15) fait apparaître un certain nombre de « points chauds », des pics de conductance, pour certaines valeurs de $k_{||} \neq 0$ en configuration P (au niveau du canal de spin minoritaire) et en configuration AP. Cet effet peut être relié à la présence d'états d'interface (formés par la brisure de symétrie du cristal au niveau de l'interface). Si la barrière est suffisamment fine, ces états peuvent se coupler l'un à l'autre de part et d'autre de la barrière [WUN02], conduisant à un mécanisme de résonance tunnel et, pour des épaisseurs de barrière suffisamment fines, à la formation de pics de conductance en des points $k_{||}$ particuliers : les électrons de $k_{||} \neq 0$ peuvent avoir une probabilité de transmission tunnel plus importante que ceux de $k_{||}=0$.

C'est ce mécanisme de conductance par des états de résonance interfaciale qui domine le mécanisme tunnel dans le canal de spin minoritaire. Wunnicke [WUN02] et Belashchenko [BEL05] précisent que ce phénomène apparaît pour des jonctions tunnel symétriques (ou quasi symétriques). Ces états de surface, jouant un rôle important dans la transmission tunnel, peuvent être activés par une différence de potentiel appliquée à la structure [TIU04].

En utilisant une autre méthode de calcul, Mathon *et al.* [MAT01] ont étudié eux aussi le transport tunnel polarisé en spin dans le système $Fe(100)/MgO(100)/Fe(100)$ épitaxié. Ils sont arrivés aux mêmes conclusions quant aux mécanismes du transport tunnel, notamment en mettant en évidence la présence de pics de conductance pour $k_{||} \neq 0$. Leurs travaux indiquent toutefois que l'amplitude du signal TMR n'augmente pas indéfiniment avec l'épaisseur de la couche isolante, mais oscille avec l'épaisseur dans le cas de barrières fines (en dessous de 7 monocouches), puis se stabilise vers 1200% dans le cas de barrières épaisses.

Plus récemment, Zhang et Butler [ZHA04] ont effectué des calculs de structure électronique sur des jonctions tunnel épitaxiées symétriques $Co(100)/MgO(100)/Co(100)^7$ et $FeCo(100)/MgO(100)/FeCo(100)$. Sur ces systèmes, ils prédisent un effet TMR encore plus important que sur le système $Fe/MgO/Fe$. L'ex-

⁷Le cobalt étant sous la forme cristallographique cubique centrée.

plication de ce phénomène tient au fait que le canal majoritaire $\text{spin}\uparrow$ ne contient *que* la bande électronique de symétrie Δ_1 . Ainsi, en configuration antiparallèle et en l'absence de diffusion aux interfaces, il n'y a de part et d'autre de la barrière tunnel que des bandes électroniques de symétries différentes pour $k_{\parallel}=0$. Tous les électrons se présentant perpendiculairement à la barrière ($k_{\parallel}=0$) sont alors réfléchis.

Néanmoins, Zhang et Butler mettent l'accent sur la nécessité d'avoir des interfaces parfaites. En présence de désordre, les interfaces vont comporter des centres diffusifs qui peuvent convertir les électrons d'une symétrie vers une autre ; les effets magnétorésistifs sont par conséquent réduits.

2.3.2 Premiers résultats expérimentaux - effet de la qualité des interfaces

Très rapidement, les expérimentateurs ont essayé de reproduire ces résultats théoriques. Ainsi, en 2001, Gustavsson *et al.* [GUS01] ont réalisé une des premières jonctions tunnel entièrement épitaxiées, en utilisant le système hybride Fe/ZnSe/FeCo. Cependant, pour des températures $T < 50\text{K}$, ils rapportent des valeurs de TMR n'allant que jusqu'à 16%. Ils expliquent la faiblesse de l'effet mesuré notamment par un phénomène de piégeage de l'aimantation sur des défauts aux interfaces électrodes/barrière, conduisant à des configurations d'aimantation P et AP qui seraient imparfaites. De plus, au dessus de 50K, ils n'observent plus de magnétorésistance tunnel ; le régime de transport n'est plus tunnel et met en jeu la bande de conduction du semiconducteur.

Toujours en 2001, Bowen *et al.* [BOW01] ont réalisé la croissance de la structure Fe/MgO/FeCo en combinant plusieurs modes d'élaboration (pulvérisation cathodique, ablation laser) et températures de dépôt afin d'obtenir une qualité cristalline optimale. Les auteurs rapportent un résultat de TMR de 60% obtenu à 30K (27% à température ambiante). Ce résultat est à mettre en relation avec celui obtenu par Yuasa *et al.* [YUA00] sur la structure Fe/AL₂O₃/FeCo (100) (13% de TMR température ambiante) mais il reste néanmoins très inférieur à ce qui a été prédit par Butler ou Mathon.

Popova *et al.* [POP02] ont réalisé par épitaxie par jets moléculaires la croissance du système Fe/MgO/Fe modélisé par Butler. Ils ont obtenu un résultat de TMR de 17% à température ambiante avec une barrière MgO de faible épaisseur (0,8nm). Plus récemment, cette même équipe a publié un résultat de TMR de 67% à température ambiante pour une épaisseur de barrière tunnel de 2,5nm [FAU03].

Dans cette partie du chapitre, nous avons mis plusieurs fois l'accent sur l'importance de la qualité des interfaces et de la symétrie de la structure (d'un point de vue structure électronique). Meyerheim *et al.* [MEY02] ont ainsi étudié par diffraction de rayons X en incidence rasante (SXRD, voir paragraphe 3.3) la structure d'une interface MgO(100)/Fe(100) sur des échantillons épitaxiés. Ils ont mis en évidence un phénomène d'oxydation partielle de la surface Fe(100) de l'électrode inférieure lors du dépôt des premières monocouches de la barrière tunnel. Cette oxydation est liée à un excès en oxygène lors du dépôt du MgO, et ne concerne que l'électrode inférieure. Le transport tunnel polarisé en spin dans les structure épitaxiés dépendant essentiellement des états électroniques aux interfaces, Meyerheim et son équipe concluent que la présence de cette couche interfaciale FeO devrait avoir des effets conséquents sur la TMR, et pourrait expliquer que les effets TMR obtenus par mesure soient beaucoup plus faibles que ce qui a été prédit par les calculs théoriques.

En effet, Zhang et Butler ont repris leurs calculs théoriques sur le transport tunnel dans les JTM, en étudiant le système Fe/FeO_x/MgO/Fe, où x est la concentration en oxygène dans la couche interfaciale. Leurs travaux soulignent que la présence de cette couche réduit l'effet TMR de façon drastique. Elle a peu d'incidence sur la conductance en configuration AP, mais en revanche elle la diminue fortement en configuration P.

Très récemment, Tusche *et al.* [TUS05] ont réalisé une étude théorique, appuyée sur des caractérisations structurales, du système Fe/MgO/Fe(100). En adaptant les conditions de dépôt, *ie* en déposant 0,5 monocouche de l'électrode supérieure sous atmosphère partielle d'oxygène, ils ont réussi à obtenir une jonction symétrique Fe/FeO/MgO/FeO/Fe, sur laquelle ils prédisent un effet TMR de l'ordre de plusieurs milliers de pourcents, contre plusieurs dizaines de pourcents seulement dans le cas de la jonction asymétrique Fe/MgO/FeO/Fe.

2.3.3 Derniers résultats expérimentaux

En 2004, Yuasa *et al.* [YUA04a] ont publié un résultat de TMR de 88% à température ambiante (146% à 20K) sur une structure Fe/MgO/Fe (100)⁸ entièrement épitaxiée déposée par MBE sur un substrat de MgO(100). En dépit d'une structure JTM parfaitement symétrique sur le papier, ils ont constaté une forte asymétrie de l'amplitude du signal TMR obtenu en fonction de la tension appliquée (voir figure 2.17). Ils en concluent que leurs jonctions tunnel comportent des défauts aux niveaux des interfaces entre la barrière et les électrodes, ces défauts expliquant la différence de signal TMR par rapport aux prédictions théoriques.

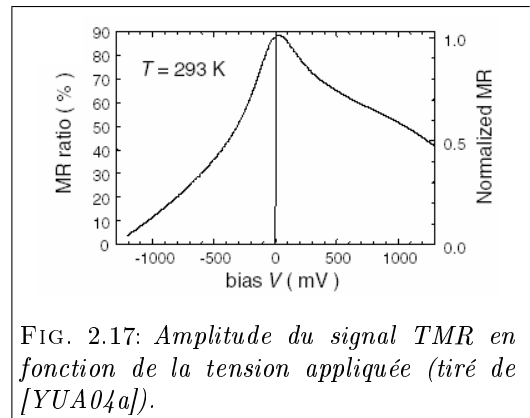


FIG. 2.17: Amplitude du signal TMR en fonction de la tension appliquée (tiré de [YUA04a]).

Après avoir amélioré la qualité cristalline de leur structure (en optimisant les conditions de dépôt, notamment en désorbant l'excès d'oxygène en surface du MgO), Yuasa et son équipe sont parvenus à doubler l'amplitude du signal TMR obtenu (180% à température ambiante et 247% à 20K). En accord avec les prédictions théoriques, ils ont même observé des oscillations de la magnétorésistance en fonction de l'épaisseur de la barrière tunnel (voir figure 2.18).

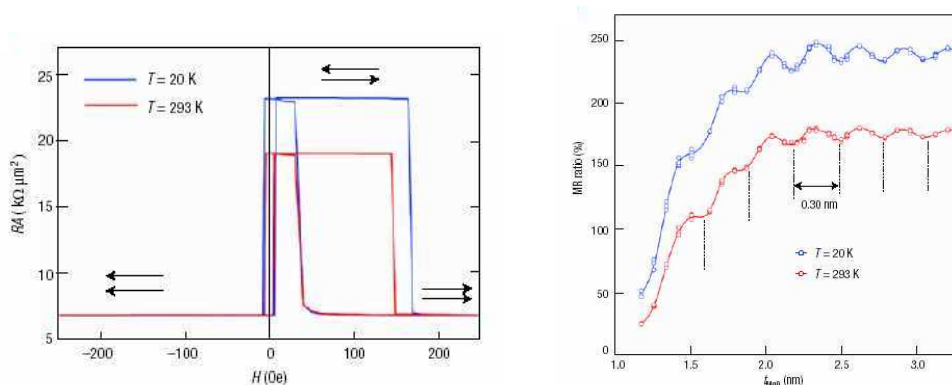


FIG. 2.18: Figure de gauche : résistance de la structure en fonction du champ appliqué. RA correspond au produit « Résistance*Surface » de la jonction mesurée. Figure de droite : amplitude du signal TMR en fonction de l'épaisseur de la couche isolante MgO (tiré de [YUA04b]).

La même année, le groupe de Parkin a publié lui aussi un résultat de magnétorésistance tunnel « géante » (220% à température ambiante) [PAR04]. La structure utilisée CoFe/MgO/CoFe, comportant une barrière tunnel épitaxiée (100) et des électrodes texturées (100), est déposée par pulvérisation cathodique sur des substrats amorphes à température ambiante. Le signal de TMR obtenu à l'issue du dépôt est modeste (moins de 25%) mais il augmente énormément au cours d'un recuit post-dépôt. Les JTM obtenues sont moins riches en informations sur la physique du transport polarisé en spin que celles du groupe de Yuasa (les électrodes sont polycristallines donc plus difficiles à modéliser, le signal de TMR ne varie pas avec l'épaisseur de la barrière), mais la méthode de croissance est plus adaptée pour des applications industrielles.

Enfin, sur le même sujet, et sensiblement au même moment, nous pouvons signaler les travaux de l'équipe de Tiusan *et al.* qui ont obtenu en 2005 un résultat de TMR de 170% sur le système épitaxié Fe/MgO/Fe [TIU06].

Ces deux dernières années, il n'y a pas eu d'autre véritable percée dans le développement de systèmes JTM épitaxiés. Les progrès réalisés dans la course à l'obtention du plus fort signal de TMR ont consisté à

⁸Une couche de cobalt est déposée sur l'électrode supérieure afin de durcir magnétiquement cette dernière et ainsi obtenir une structure JTM ayant des électrodes de champs coercitifs différents.

optimiser les conditions de dépôt afin d'avoir une structure de qualité cristalline meilleure, ou à changer la composition des électrodes. Ainsi, suivant les calculs de Zhang et Butler [ZHA04] prédisant un effet TMR plus important dans le système Co/MgO/Co (100) que dans le système Fe/MgO/Fe (100), Yuasa *et al.* ont fait croître par MBE une structure Co/MgO/Co (100) comportant deux électrodes cubiques centrées sur laquelle ils ont mesuré une amplitude de signal TMR de 410% à température ambiante [YUA06]. C'est à l'heure actuelle la plus forte valeur publiée sur un système épitaxié.

2.4 Densités d'état dans des films ferromagnétiques FePt

A notre connaissance, il n'y a qu'un seul article portant sur le transport tunnel polarisé en spin mettant en jeu une électrode de FePt : Moriyama *et al.* [MOR04] ont publié en 2004 leurs études sur la structure FeCo/Al₂O₃/FePt élaborée par pulvérisation cathodique. Dans ce système, les électrodes sont aimantées dans le plan des couches, l'axe c du FePt étant renversé suivant la direction [110] du substrat, et la barrière tunnel est amorphe. Les auteurs ont rapporté une amplitude de magnétorésistance de 3,6% à température ambiante (34% à 77K).

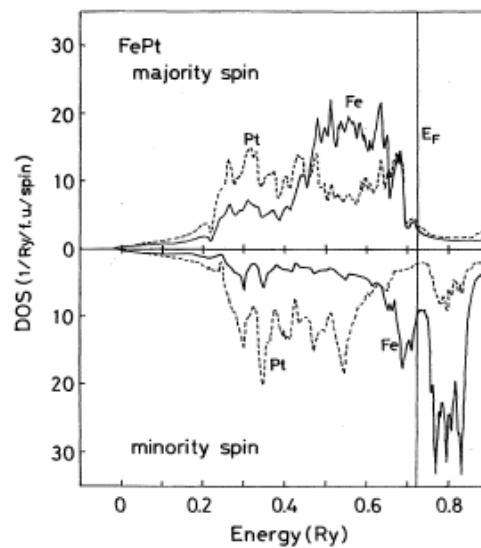


FIG. 2.19: *Diagramme des densités d'états résolu en spin de FePt ordonné dans la phase L1₀, tiré de [SAK94]. Les lignes continues et en pointillés représentent respectivement les densités d'état au niveau de Fe et de Pt. Note : 1Ry = 13,6eV.*

Sakuma *et al.* [SAK94] ont modélisé le diagramme « global »⁹ des densités d'états électroniques en fonction de l'énergie de FePt ordonné dans la phase L1₀ pour les électrons de spin ↑ et de spin ↓ (voir figure 2.19). Notamment les polarisations des électrons « s » et des électrons « d » au niveau de Fermi sont évaluées respectivement à +72% et -45% [MOR04]. Ce diagramme est surtout utile pour interpréter des résultats de magnétorésistance dans des systèmes comportant une barrière amorphe et des électrodes polycristallines. Dans le cas de systèmes épitaxiés, la direction cristallographique joue en effet un rôle primordial, comme montré précédemment.

Une remarque peut néanmoins être tirée de cette figure. Nous pouvons observer qu'il y a un recouvrement quasi-parfait des bandes électroniques *d* des atomes de fer et de platine au sein du canal majoritaire, ce qui donne lieu à une forte hybridation des états électroniques Fe *3d* et Pt *5d* et à une polarisation non nulle des électrons au niveau des atomes de platine : pour les électrons spin↑, les deux atomes Fe et Pt sont quasi indiscernables. Ainsi, le platine ne va pas agir comme un centre de diffusion de spin, contrairement à ce que l'on aurait pu attendre de la part d'un métal « non magnétique ».

Sur les derniers mois de ma thèse, des discussions ont débuté avec P.Ravindran pour le calcul de la structure de bande de FePt résolue suivant les directions cristallographiques. Il faudrait en effet savoir

⁹ie moyenné suivant toutes les directions cristallographiques

quelles sont les symétries des états électroniques au niveau de Fermi, pour des électrons se déplaçant perpendiculairement à la face (100). Malheureusement, à l'heure où j'écris ce manuscrit, nous n'avons pas encore de schéma de structure de bande à présenter.

2.5 Conclusion

Dans le développement de la physique des JTM, la percée majeure résulte d'un changement de paradigme : le transport tunnel polarisé en spin ne dépend pas seulement des propriétés magnétiques des électrodes, mais il faut considérer la structure électronique de l'ensemble du système, en particulier au niveau des interfaces entre la barrière et les électrodes. Ainsi, l'amplitude de l'effet de magnétorésistance tunnel dépend de la similitude des états électroniques de part et d'autre de la barrière : pour pouvoir traverser la barrière par effet tunnel, les électrons doivent trouver un état électronique de symétrie adaptée.

Ceci semble complexifier l'élaboration d'une structure efficace, mais en pratique, le groupe de Parkin a réussi à obtenir un des effets magnétorésistifs les plus importants en utilisant des techniques de croissance et des matériaux adaptés à des applications industrielles : un simple recuit post-dépôt permet un réarrangement cristallographique de son système.

Dans ce travail de thèse, nous avons choisi de travailler sur un système épitaxié FePt/MgO/FePt (100). Ce système doit comporter une barrière tunnel monocristalline orientée (100), aussi nous espérons que certains éléments du filtrage des électrons en fonction de leur spin seront conservés. Notons bien que l'alliage ferromagnétique utilisé, FePt ordonné dans la phase $L1_0$, diffère de l'électrode de fer « classique » (cadre du modèle de Butler). En particulier, notre alliage doit être parfaitement ordonné, tout désordre entraînant une brisure de symétrie pour les électrons.

Chapitre 3

Elaboration et caractérisation structurale des Jonctions Tunnel Magnétiques

Dans ce chapitre, nous allons étudier les caractérisations structurales réalisées sur une JTM FePt/MgO/FePt. A l'heure où ce manuscrit est écrit, certaines mesures sont toujours en cours de dépouillement (caractérisation de l'interface MgO/FePt par rayonnement synchrotron) et seront l'objet d'une publication ultérieure.

3.1 Croissance de la structure FePt/MgO/FePt

La croissance de nos Jonctions Tunnel Magnétiques (JTM) est réalisée entièrement par épitaxie par jets moléculaire, sur des substrats MgO ayant subi une procédure de dégraissage *ex-situ* puis un dégazage *in-situ* dans la chambre d'introduction du bâti d'épitaxie par jets moléculaires. La structure générale d'un échantillon type est présentée dans la figure ci-dessous :

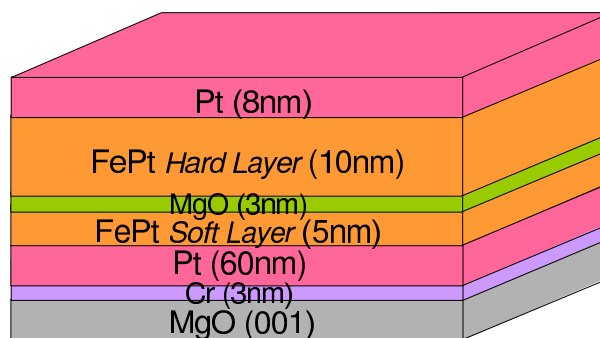
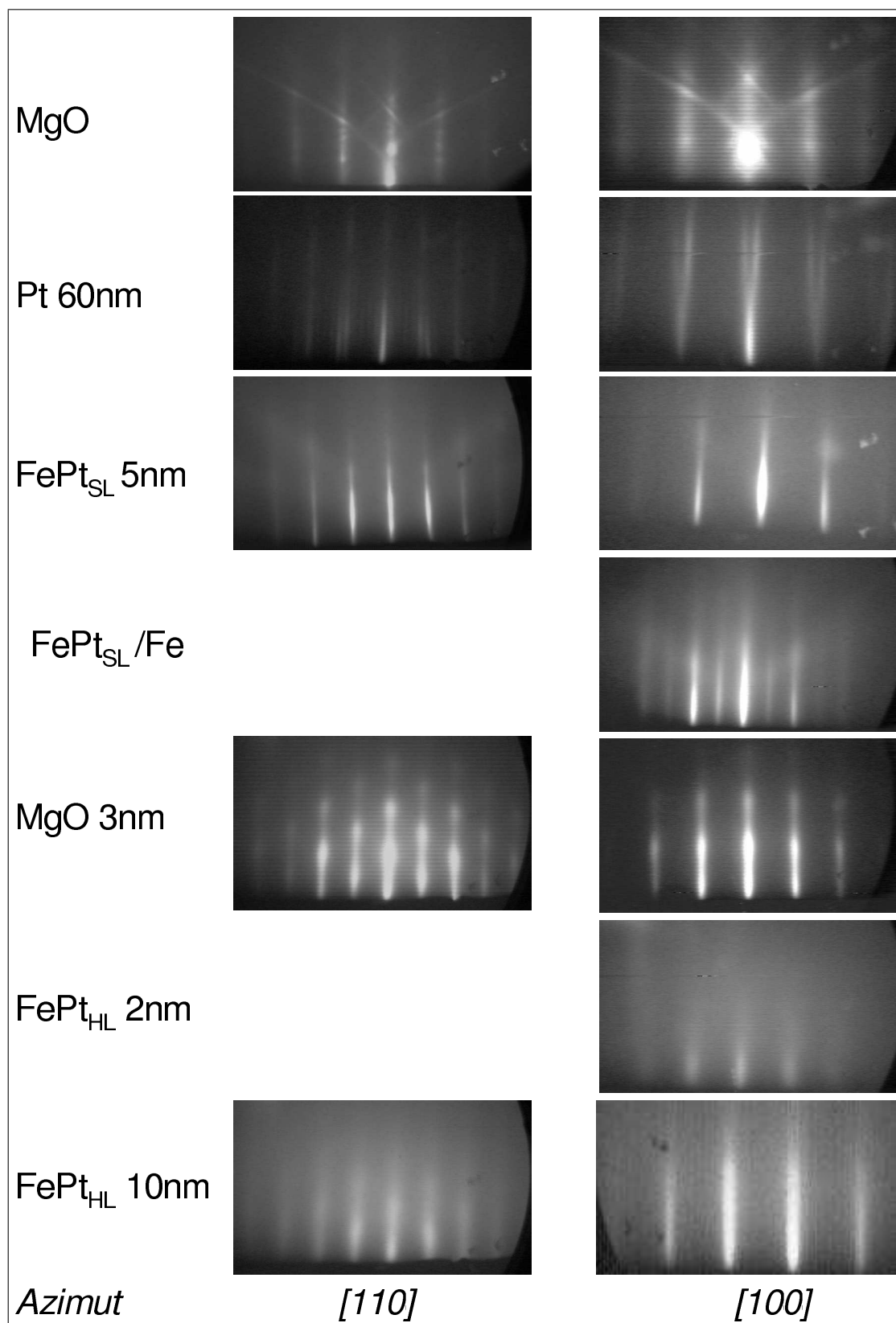


FIG. 3.1: Schéma de structure d'un échantillon MTJ. La direction de croissance correspond à la direction cristallographique $[001]$ du substrat.

En raison des valeurs de champs de renversement faibles obtenus pour une couche ferromagnétique FePt déposée sur couche tampon de platine (voir paragraphe 1.5), nous avons décidé de reprendre cette voie pour la croissance de l'électrode inférieure du système JTM. L'épaisseur retenue pour la couche ferromagnétique est de 5nm afin que le renversement d'aimantation soit aussi abrupt que possible, en évitant un piégeage de l'aimantation par des micromacles qui repousserait son champ de saturation en rendant la propagation des parois plus difficile, et un rôle trop important du champ démagnétisant (lequel étale en champ la fin du renversement en stabilisant les domaines minoritaires).

Il y a un autre intérêt à l'emploi d'une couche tampon de platine épaisse : celle-ci pourra servir de couche d'arrêt de la gravure lors de l'étape de structuration des JTM (voir chapitre 5). La croissance de toute la structure est suivie en continu par RHEED.

Dépôt de la couche tampon de platine et de l'électrode inférieure FePt_{SL} FIG. 3.2: Diagrammes RHEED de la structure $\text{FePt}/\text{MgO}/\text{FePt}/\text{Pt}/\text{Cr}/\text{MgO}(100)$.

Cette partie de la croissance a déjà été décrite dans le paragraphe 1.3.3. La croissance de la structure jusqu'au dépôt de l'électrode inférieure correspond simplement à la croissance d'une couche ferromagné-

tique FePt sur une couche tampon de platine : la couche de chrome et la couche tampon de platine sont déposées à température ambiante, et recuites à 500°C afin d'obtenir une surface de platine lisse. Des images RHEED de cette surface prises après recuit suivant les deux azimuts [100] et [110] sont présentées sur la figure 3.2 (une reconstruction (1x5) est observée). Puis la couche ferromagnétique est déposée à 500°C par codéposition des deux éléments Fe et Pt. La relation d'épitaxie de la couche d'alliage par rapport au substrat s'écrit $FePt(001)[110]//MgO(001)[110]$.

Le suivi RHEED de la croissance de l'électrode de FePt nous donne un profil en tiges reproduisant exactement celui de la couche tampon de platine, ce qui indique une croissance pseudomorphique de la couche d'alliage FePt sur la couche tampon. Le platine a tendance à ségréger en surface dans les alliages bimétalliques FePt [CRE02] [HAL01], essentiellement du fait d'une moindre tension de surface. Aussi, une monocouche de fer (d'épaisseur nominale 1,6Å) est déposée en fin de croissance de façon à améliorer la reprise épitaxiale de la barrière tunnel et à diminuer l'effet de dépolérisation de spin induit par le platine. Une descente en température est effectuée immédiatement après. Le dépôt de cette couche surfacique de fer se traduit par l'apparition d'une reconstruction (2x1) (voir figure 3.2).

Dépôt de la barrière tunnel

La croissance de la barrière tunnel est une étape critique dans toute élaboration de système JTM. Elle doit en particulier être plane, sans fluctuation d'épaisseur pour éviter la formation de *pinholes* et permettre la transmission d'un courant tunnel homogène. De plus, celle-ci doit être aussi parfaite que possible d'un point de vue structural pour que les prévisions théoriques puissent être appliquées (voir chapitre 2.3).

La couche isolante MgO est déposée à partir d'une source solide stœchiométrique de MgO. La procédure de dépôt se scinde en deux étapes successives :

Tout d'abord, trois monocouches sont déposées vers 100°C et à une vitesse de 1,5Å/s. Le profil RHEED obtenu à l'issue de cette première étape montre des tiges larges et diffuses témoignant d'une qualité cristalline très imparfaite (voir figure 3.3). En dépit du dépôt d'une couche de fer à la surface de l'alliage, les diagrammes RHEED indiquent une croissance cube sur cube de l'oxyde sur le FePt, suivant la relation d'épitaxie $MgO(001)[110]//FePt(001)[110]$.

Un recuit à 500°C pendant quelques minutes permet d'améliorer considérablement la qualité structurale de la barrière : au RHEED, les tiges apparaissent comme plus fines et mieux définies.

Enfin, le reste de la couche isolante (typiquement 7 monocouches) est déposé à 500°C et à 0,5Å/s. Les clichés RHEED montrent une surface de MgO relativement plane.

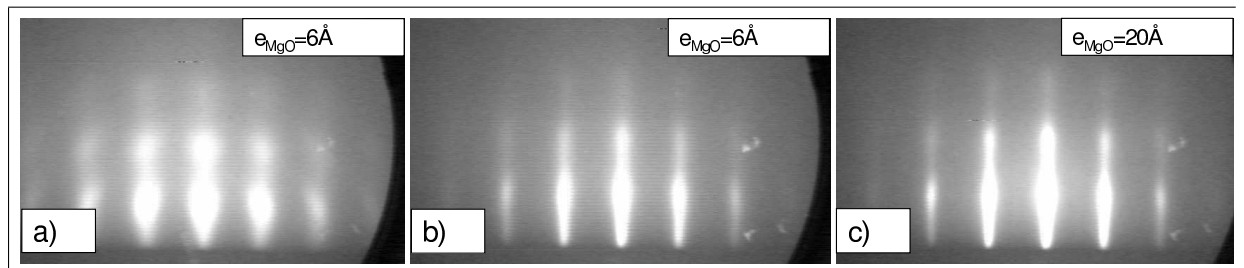


FIG. 3.3: Diagrammes RHEED de la barrière tunnel MgO à différents stades de dépôt (observation suivant l'azimut [100]) :

a) les premiers 6Å de MgO déposés à température ambiante.

b) ces mêmes 6Å de MgO après recuit quelques minutes à 500°C.

c) la barrière tunnel (20Å d'épaisseur) en fin de dépôt.

Au cours du dépôt, nous observons une montée de la pression dans l'enceinte d'évaporation de 3.10^{-10} mbar environ à 3.10^{-9} mbar. Vassent *et al.* [VAS00] ont attribué cet effet à un excès d'oxygène dans le bâti : le MgO est évaporé sous la forme d'espèces Mg(g) et O(g). Au cours de la croissance, le flux d'oxygène qui n'est pas dirigé vers l'échantillon se recombine en O₂(g) au niveau des parois de l'enceinte. Vassent *et al.* soulignent que le MgO déposé est cependant bien stœchiométrique, en raison d'une différence de coefficients d'évaporation entre l'oxygène et le magnésium. La présence d'un excès d'oxygène pose le problème de la possible oxydation de la couche interfaciale de fer : le diagramme RHEED correspondant à la monocouche de fer est en effet altéré au bout de quelques secondes lorsque celle-ci est

laissée sous pression d'oxygène de 3.10^{-9} mbar. Aussi, nous réalisons une montée « flash » de la puissance du canon conduisant à l'évaporation de MgO, suivie par un dépôt immédiat.

Un gros travail sur l'étude de l'interface MgO/FePt a été réalisé par diffraction de rayons X en incidence rasante (SXRD - rayonnement synchrotron, ESRF). Les résultats préliminaires sont donnés dans le paragraphe 3.3.

Une barrière tunnel MgO d'épaisseur 2nm a été imagée *in-situ* juste après son dépôt, à l'aide d'un microscope AFM sous vide équipé d'une pointe conductrice et connecté à la chambre d'évaporation. La rugosité RMS mesurée est de l'ordre de $2,5\text{\AA}$ sur une image de dimensions $0,6\mu\text{m} \times 0,6\mu\text{m}$ (voir figure 3.4). Notons bien que ce résultat correspond à la rugosité de l'ensemble de la structure et ne constitue que la limite supérieure à la rugosité de la seule barrière tunnel : sur la cartographie du courant tunnel associée à cette image de topographie, les zones correspondant à un amincissement véritable de la barrière tunnel sont celles où un courant tunnel plus grand est détecté.

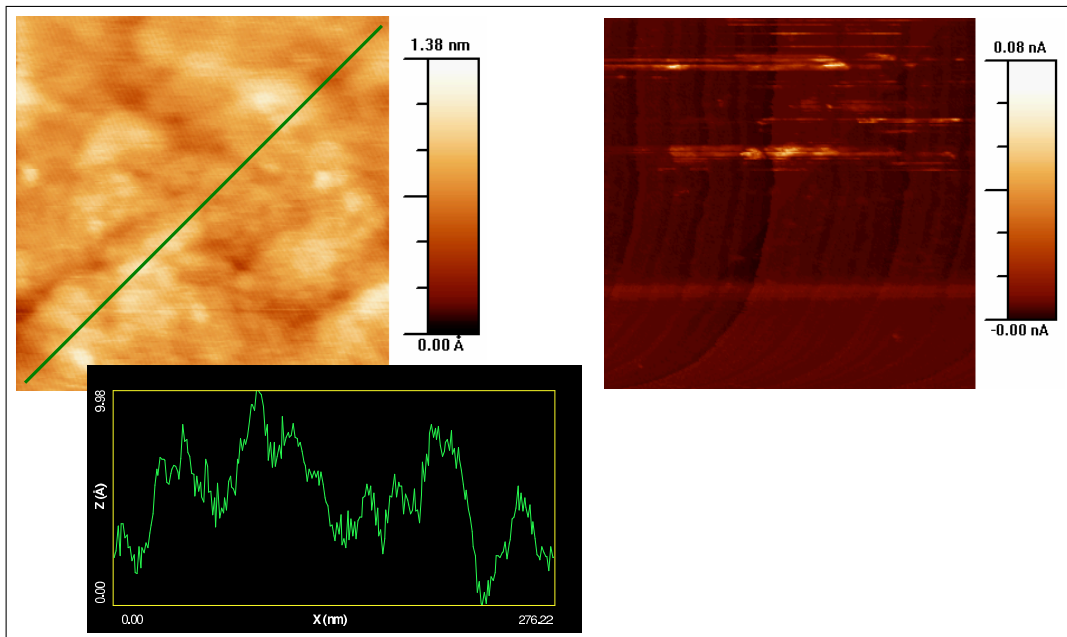


FIG. 3.4: Image par AFM *in-situ* ($200\text{nm} \times 200\text{nm}$) équipée d'une pointe conductrice de la structure MgO(2nm)/FePt/Pt/Cr/MgO(100). À gauche : topographie. À droite : cartographie du courant traversant la barrière tunnel MgO pour une différence de potentiel appliquée 60mV : aucun courant ne passe, sauf en quelques « trous ».

Dépôt de l'électrode supérieure FePt_{HL}

Cette étape de la croissance s'est avérée être la plus délicate : malgré un désaccord de maille important entre la barrière MgO ($a_{\text{MgO}}=4,21\text{\AA}$) et la couche ferromagnétique ($a_{\text{FePt}}=3,85\text{\AA}$ soit $\frac{\Delta a}{a} \sim 9\%$), nous devons reprendre la croissance épitaxiale d'une couche FePt qui soit ordonnée dans la phase $L1_0$ suivant le seul variant [001]. De plus, la qualité cristalline de l'interface est certainement essentielle pour éviter une dépolarisation en spin des porteurs au niveau du franchissement de la barrière tunnel. Des images par microscopie électronique à transmission (TEM) de la structure, présentées dans le paragraphe 3.4 permettent d'estimer la qualité cristallographique des interfaces.

Là encore, nous avons mis au point une croissance en deux étapes. En effet, quelles que soient les conditions expérimentales utilisées (dépôt à température ambiante ou à température élevée, en codépôt ou couche par couche), une croissance réalisée d'une seule étape conduit au mieux à une couche ferromagnétique ordonnée suivant les trois variants [001], [010] et [100]. Une telle dispersion des axes d'anisotropie magnétocristalline implique l'obtention d'une structure ayant un axe facile d'aimantation mal défini, ce qui est à éviter.

Dans un premier temps, nous réalisons la croissance de 2nm d'alliage FePt en couche par couche à 170°C , par dépôt alterné de monocouches de fer pur et de platine pur. L'idée est de « forcer » une mise

en ordre $L1_0$ dans le seul variant perpendiculaire en évitant la nucléation de grains ordonnés selon un des deux variants planaires.

La première monocouche déposée, en contact direct avec la barrière MgO, est constituée de fer, en symétrie avec l'interface inférieure MgO/FePt. La température du dépôt, 170°C , a été ajustée empiriquement : à 500°C , le film devient immédiatement tridimensionnel ; à température ambiante, l'ordre chimique du film interfacial n'est pas optimal. Dès le début de la croissance, les tiges RHEED associées à l'électrode ferromagnétique ne se situent pas dans le prolongement de celles associées à la couche MgO, ce qui signifie qu'il y a immédiatement relaxation des contraintes épitaxiales à l'interface FePt/MgO (voir paragraphe 3.4 pour une imagerie en microscopie à transmission des interfaces FePt/MgO et MgO/FePt).

Cette première couche FePt(2nm) est recuite quelques minutes à 500°C , jusqu'à observation d'un affinement des tiges RHEED (voir figure 3.2). Puis, le reste de la couche ferromagnétique (8nm) est déposé par codépôt des deux éléments Fe et Pt à 500°C . Les tiges RHEED associées à cette seconde électrode de FePt sont plus larges que celles associées à l'électrode inférieure (voir figure 3.2), ce qui est indicatif d'une plus grande mosaïcité. Soulignons toutefois que l'absence de tiges de surstructure sur le cliché RHEED pris selon l'azimut $[100]$ indique que la croissance se produit selon le seul variant $L1_0$ $[001]$.

Dépôt de la couche protectrice Pt

En fin de croissance, une couche protectrice (*capping*) de platine d'épaisseur 8nm est déposée à basse température. Cette couche a deux raisons d'être : d'une part elle protège le fer de l'alliage de l'oxydation, et son épaisseur relativement importante permet de « sécuriser » l'étape de gravure de la couche SiO_2 lors de la structuration des échantillons (voir paragraphe 5.3.4). La gravure pourra être stoppée au niveau de cette couche protectrice, avec une marge de manoeuvre suffisante pour être sûr de ne pas détériorer l'électrode ferromagnétique supérieure.

3.2 Diffraction de rayons X : diffraction aux grands angles (XRD)

La diffraction de rayons X est une technique d'analyse *ex-situ* non destructive. Elle est sensible aux paramètres structuraux du cristal, car les longueurs d'onde mises en jeu sont du même ordre de grandeur que les distances interatomiques : les rayons X ont la propriété d'être diffractés par l'arrangement atomique de la matière traversée. Les techniques de diffraction X permettent alors de caractériser structurellement des matériaux, ou des empilements de matériaux sous forme de films minces. Une mesure de diffraction X aux grands angles donne accès à des informations comme les distances interatomiques des atomes d'un réseau cristallin, la qualité structurale du cristal analysé ou le degré d'ordre chimique à longue distance.

3.2.1 Principe

Les rayons X sont des ondes électromagnétiques, que l'on peut décrire par une fonction d'onde de vecteur d'onde \vec{k} et d'amplitude $\exp(-2i\pi \vec{k} \cdot \vec{r})$. Après diffusion sur un atome, l'onde diffusée est de vecteur d'onde \vec{k}' de même norme que \vec{k} (diffusion élastique) et une amplitude $f \cdot \exp(-2i\pi \vec{k}' \cdot \vec{r} + \phi)$. f correspond au facteur de diffusion atomique de l'atome considéré, *ie* son pouvoir diffusant (il est caractéristique de l'atome). On note $\vec{\Delta k} = \vec{k}' - \vec{k}$ le vecteur de diffusion. ϕ est un terme de déphasage.

L'intensité diffusée par un cristal va correspondre à la somme des ondes diffusées par tous les atomes de ce cristal.

Un des appareils de mesure utilisés est schématisé sur la figure 3.5. Il comporte un tube émetteur de rayons X, qui va émettre un rayonnement vers un échantillon. Une partie de ce rayonnement est diffractée vers un détecteur mobile.

Le faisceau incident est issu d'une cathode de cobalt (radiations $\lambda_{\text{Co-K}\alpha} = 1,7890\text{\AA}$ et $\lambda_{\text{Co-K}\beta} = 1,6207\text{\AA}$ - diffractomètre Philips X'Pert) ou de cuivre ($\lambda_{\text{Cu-K}\alpha} = 1,5406\text{\AA}$ et $\lambda_{\text{Cu-K}\beta} = 1,3922\text{\AA}$ - diffractomètre Seifert XRD 3000 PTS). Il est rendu aussi monochromatique que possible par un monochromateur en graphite.

3.2.2 Conditions de diffraction

Dans un cristal, la diffusion des rayons X se fait sur les plans cristallins (hkl), h, k et l étant les indices de Miller. La distance interréticulaire entre deux plans (hkl) est notée d_{hkl} , a, b, c étant les paramètres

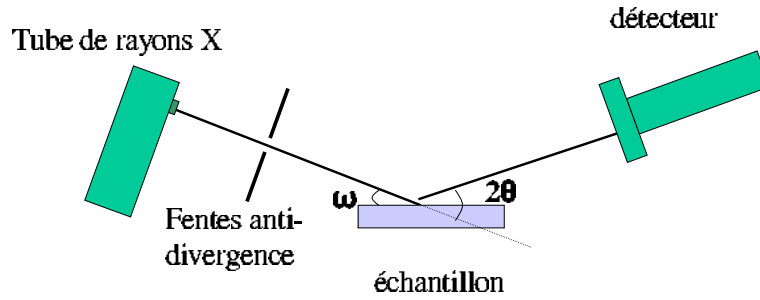


FIG. 3.5: Schéma de l'appareil de mesure. Le tube de rayons X est fixe, le détecteur est mobile (angle θ), ainsi que l'échantillon qui peut tourner autour d'un axe perpendiculaire à la feuille (angle ω) ou dans son plan.

de maille (pour une maille cubique ou quadratique) du matériau dans les trois dimensions de l'espace, cette distance s'écrit

$$d_{hkl} = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{h}{a}\right)^2 + \left(\frac{k}{b}\right)^2 + \left(\frac{l}{c}\right)^2}}. \quad (3.1)$$

On note 2θ l'angle de diffraction. Les ondes diffusées sont constructives, et conduisent à l'obtention d'un pic de diffraction si θ obéit à la loi de Bragg $\lambda = 2d_{hkl} \sin(\theta)$.

La grandeur physique mesurée est l'intensité diffusée $I(\theta)$, θ étant relié à h, k, l par la loi de Bragg. Cette intensité est proportionnelle au carré de l'amplitude du champ d'ondes diffusées : $I_{hkl} \propto |A_{hkl}|^2 \propto F_{hkl} \cdot F_{hkl}^*$ où F_{hkl} est le facteur de structure de la maille, c'est à dire le pouvoir diffractant de la maille qui dépend de $\theta(hkl)$ et de la nature des atomes impliqués.

$F_{hkl} = \sum_{\text{atomes } j} f_j \cdot \exp(-2i\pi(x_j h + y_j k + z_j l))$ où x_j, y_j et z_j sont les coordonnées du $j^{\text{ème}}$ atome de la maille élémentaire. Ainsi, pour une couche de FePt chimiquement ordonnée dans la structure $L1_0$ (figure 3.6), la maille élémentaire peut être décrite par deux atomes de fer en $(0,0,0)$ et $(a/2, a/2, 0)$ et deux atomes de platine en $(0, a/2, c/2)$ et $(a/2, 0, c/2)$, ce qui nous donne un facteur de structure de la forme :

$$F_{hkl} = f_{Fe}(1 + e^{-i\pi(h+k)}) + f_{Pt}(e^{-i\pi(k+l)} + e^{-i\pi(h+l)})$$

Ce facteur de structure est nul pour certains triplets d'entiers (h, k, l) : la structure $L1_0$ interdit la présence de pics (hkl) avec $(h+k)$ impair.

- $F_{hkl} = 0$ si $(h+k)$ est impair
- Si $(h+k)$ est pair :
 - Si h et k sont pairs, alors $F_{hkl} = 2f_{Fe} - 2f_{Pt}$ dans le cas où l est impair, et on a $F_{hkl} = 2f_{Fe} + 2f_{Pt}$ si l est pair
 - Si h et k sont impairs, alors $F_{hkl} = 2f_{Fe} + 2f_{Pt}$ dans le cas où l est impair, et on a $F_{hkl} = 2f_{Fe} - 2f_{Pt}$ si l est pair

Il y a au final une « extinction » des pics de diffraction pour certaines combinaisons d'indices, et une différence d'intensité possible entre les pics de diffraction « non-éteints ». Ainsi :

$$F_{002} = F_{004} = F_{113} = 2f_{Fe} + 2f_{Pt}$$

$$F_{001} = F_{003} = F_{112} = 2f_{Fe} - 2f_{Pt}$$

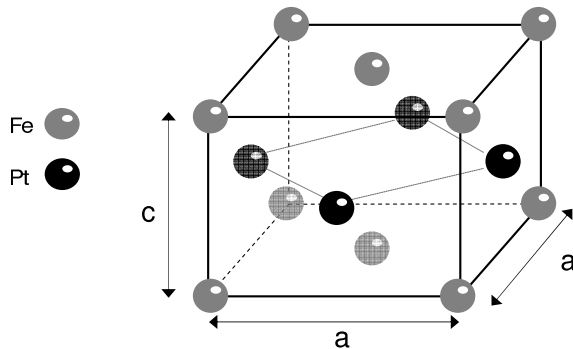


FIG. 3.6: Structure tétragonale $L1_0$ du matériau FePt. a et c sont les paramètres de maille du matériau dans le plan et hors du plan.

Les pics intenses comme (002) ou (004) sont la signature d'une structure tétragonale (ou cubique). Ils apparaissent quelle que soit la qualité cristallographique de la phase $L1_0$ obtenue. On les appelle pics

fondamentaux. Les pics d'intensité moindre comme (001) ou (003) sont la signature de l'alternance de plans atomiques de fer et de platine. Leur intensité dépendra de la mise en ordre chimique dans la phase L1₀. On les appelle pics de surstructure.

Dans le cas d'un alliage FePt désordonné, ou d'une couche de platine, la structure de la maille est de symétrie cubique faces centrées. Les pics de diffraction pour lesquels h, k et l sont de parités différentes sont « éteints ». Seuls les pics fondamentaux seront observés.

3.2.3 Description des mesures

La figure 3.7 présente les deux types de scan qu'il est possible de faire avec la technique de diffraction X aux grands angles :

- les scans dits « $2\theta - \omega$ », où ω et 2θ évoluent conjointement, permettant principalement de mesurer les distances d_{hkl} entre des plans atomiques hkl parallèles au plan de la surface de l'échantillon (les plans (001)). Lorsque l'angle d'incidence varie, des pics de diffraction apparaissent aux positions angulaires pour lesquelles la loi de Bragg est satisfaite.

En prenant un angle de décalage $\delta\omega$ approprié ($\omega = \theta + \delta\omega$) et en choisissant une direction d'incidence adaptée, le scan est réalisé sur des plans atomiques hkl non parallèles à la surface de l'échantillon, comme (113) par exemple.

Trois facteurs conditionnent l'espacement angulaire entre des pics de mêmes indices (hkl) associés aux différentes couches d'un système multicouches : la différence de paramètre de maille, l'état de relaxation des couches déposées les unes sur les autres et l'inclinaison de l'une par rapport à l'autre.

Suivant les plans (hkl) scannés, différentes informations sur les paramètres de maille des couches minces étudiées sont accessibles. D'après la relation 3.1 et la condition de diffraction de Bragg, les pics (001) ne nous renseigneront que sur le paramètre de maille associé à la direction perpendiculaire au plan des couches. Pour avoir accès aux paramètres de maille dans le plan et ainsi avoir une idée des contraintes épitaxiales exercées sur les couches, il faut scanner des raies dites asymétriques comme par exemple (113).

- les scans dits « ω », aussi appelés « rocking curves », pour lesquels on effectue un scan en faisant varier l'angle ω , 2θ restant constant (et choisi de façon à correspondre à un pic de diffraction). Ces scans permettent d'évaluer la cohérence spatiale dans le plan de la surface. Plus le pic détecté sera fin, meilleure sera la cohérence planaire du matériau associé à la position θ (hkl) choisie.

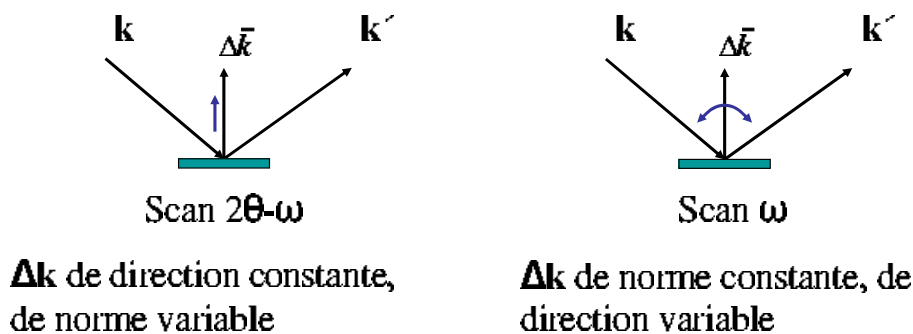


FIG. 3.7: Types de balayage en diffraction de rayons X. On note \mathbf{k} le vecteur d'onde de l'onde incidente, \mathbf{k}' le vecteur d'onde de l'onde diffusée et $\Delta\mathbf{k}$ le vecteur de diffraction.

Il est possible de réaliser une cartographie de l'espace réciproque (où les distances d_{hkl} entre les différents plans cristallins sont converties en distances $2\pi/d_{hkl}$) en faisant l'acquisition successive de courbes $2\theta - \omega$ pour des valeurs initiales de ω différentes. Cela nous permet de représenter les données sous la forme d'une carte de contours d'isointensité en fonction des positions θ et ω . Le schéma 3.8 nous indique différents points du réseau réciproque d'un matériau cubique (simple) orienté (001) pour un faisceau de rayons X incident selon [110]. Dans le cas d'un cristal infini parfait, un réseau de taches de diffraction ponctuelles est obtenu. Dans un cristal réel, il existe des défauts de structure et les dimensions considérées ne sont plus infinies, ce qui introduit un allongement des taches de diffraction dans le réseau réciproque.

De plus, en fonction du réseau cristallin considéré, certaines réflexions n'ont pas lieu suivant le facteur de structure du matériau considéré. Ainsi, dans le cas d'un matériau cubique faces centrées comme le platine, seules les réflexions pour lesquelles les trois indices (h,k,l) sont de même parité sont autorisées. Ce schéma 3.8 nous indique les positions dans l'espace réciproque des différents pics de diffraction dans le cas d'une couche déposée de façon contrainte sur un matériau de paramètre de maille plus grand (schéma b), ou de façon complètement relaxée (schéma c).

Dans le cas d'un empilement de matériaux cubiques épitaxiés, on peut avoir une croissance pseudomorphe du matériau B sur le matériau A. Ce qui signifie que les paramètres de maille dans le plan de croissance sont identiques, d'où des taches de diffraction alignées verticalement selon q_x . En revanche, les paramètres de maille d'origine de A et B n'étant pas semblables, le matériau B voit son paramètre de maille perpendiculaire au plan des couches déformé en accord avec la loi de Poisson. Si le matériau B croît de façon relaxée sur A, les taches de diffraction associées à B suivront les paramètres du réseau du matériau B massif.

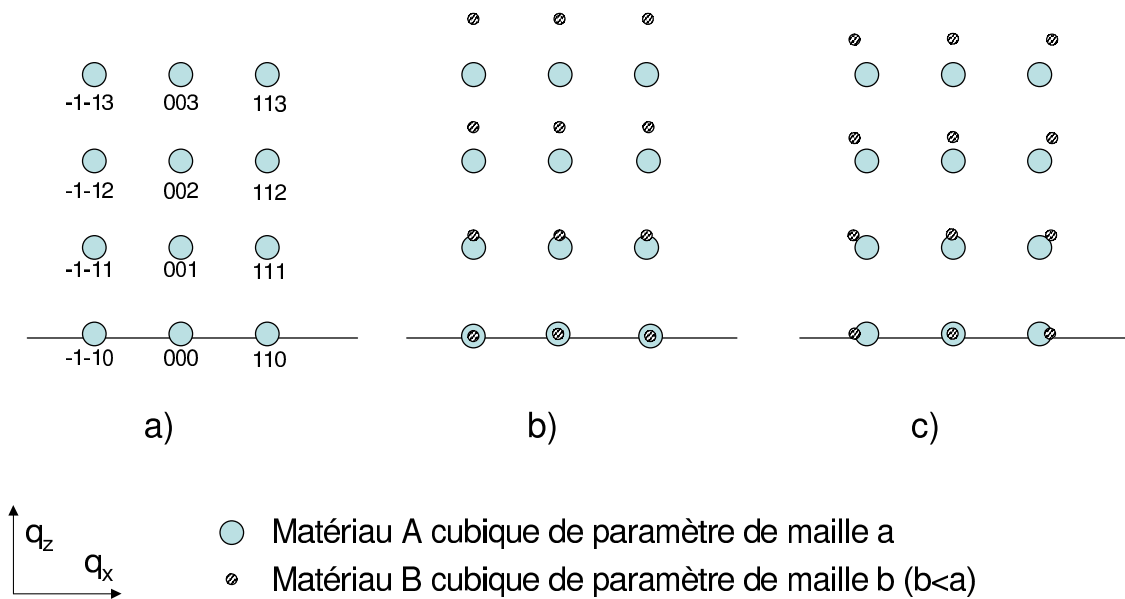


FIG. 3.8: Sur ce schéma, le faisceau de rayons X est incident suivant la direction $[110]$ du cristal. q_x et q_z représentent les coordonnées du réseau réciproque respectivement dans le plan et perpendiculairement au plan. Dans le cas d'un matériau cubique simple, toutes les raies de diffraction sont observées.

3.2.4 Mesure de l'ordre chimique à longue distance

Les couches ferromagnétiques que nous étudions sont des alliages equiatomiques de fer et de platine que nous cherchons à organiser selon la phase $L1_0$. Cette phase consiste en une alternance de plans atomiques purs de fer et de platine.

Si on note n_{Fe} le taux d'occupation par des atomes de Fe des sites des plans riches en Fe, et n_{Pt} le taux d'occupation par des atomes de Pt des sites des plans riches en Fe ($n_{Fe} + n_{Pt} = 1$), on peut définir le paramètre d'ordre à longue distance S d'une couche de FePt comme étant $S = |n_{Fe} - n_{Pt}|$. Il s'agit d'une indication de la qualité structurale des couches minces obtenues. En pratique, la notion d'ordre peut recouvrir deux aspects : S peut décrire un écart à la répartition idéale des atomes au sein d'une couche ordonnée de façon homogène, mais peut aussi représenter une fraction volumique de domaines complètement ordonnés dans une couche hétérogène où des domaines ordonnés côtoient des domaines désordonnés. Pour une phase complètement désordonnée, $n_{Fe} = n_{Pt} = 1/2$ et S est nul. A l'inverse, pour une phase parfaitement ordonnée, $n_{Fe} = 1$ et $n_{Pt} = 0$, d'où un paramètre d'ordre à longue distance égal à l'unité. Pour un alliage partiellement ordonné, ce qui est le cas en pratique, S est compris entre 0 et 1. L'ordre chimique local étant responsable de l'anisotropie magnéto-cristalline, le paramètre d'ordre S est un critère intéressant pour évaluer les propriétés magnétiques de nos échantillons.

La figure 3.9 décrit les réseaux réciproques associés à des mailles FePt ordonnées dans la phase $L1_0$, ou prises dans une phase désordonnée. Ce schéma nous permet de visualiser quels sont les pics de diffraction

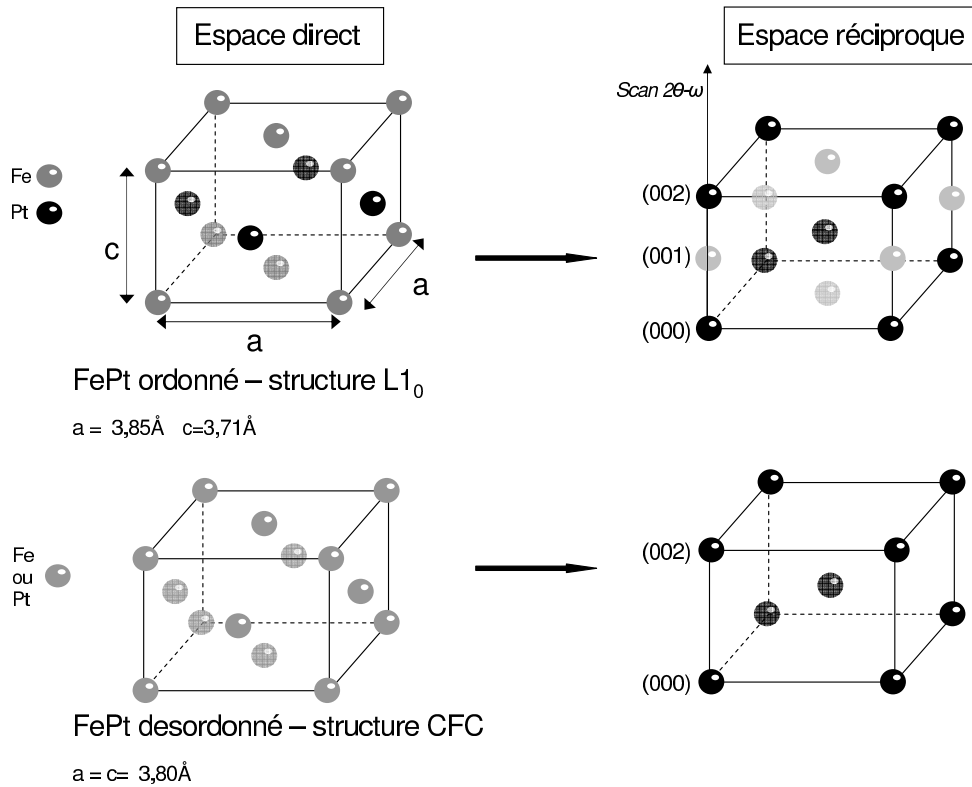


FIG. 3.9: Structures cristallographiques d'alliages FePt respectivement pris dans la phase ordonnée L1₀ et dans une phase désordonnée. Dans le réseau réciproque associé au réseau direct, les taches claires correspondent aux taches de surstructure, indicatrices de la mise en ordre L1₀.

qui doivent ressortir d'un scan « $2\theta - \omega$ ». Ce n'est que dans le cas d'un échantillon ordonné qu'il y a présence d'un pic de surstructure (001).

Le paramètre d'ordre S peut être évalué à partir du rapport des intensités d'un pic de surstructure (001) ou (003) et d'un pic fondamental (002) ou (004) [MAR00], l'intensité du pic de surstructure étant liée à la bonne mise en ordre dans la phase L1₀. Expérimentalement, ces intensités s'expriment par :

$$I_{hkl} = A(\theta) \cdot L(\theta) \cdot P(\theta) \cdot (1/\sin(\theta)) \cdot F_{hkl} \cdot F_{hkl}^* \quad (3.2)$$

Dans l'expression 3.2, A correspond au facteur d'absorption du matériau considéré. L est le facteur de Lorentz, un facteur correctif tout comme P , le facteur de polarisation. Ces termes correctifs dépendent de la géométrie de l'expérience et des appareils utilisés. Le terme $1/\sin(\theta)$ est la prise en compte de la variation du volume diffractant avec θ .

Pour un alliage de FePt, le produit $F_{hkl} \cdot F_{hkl}^*$ va dépendre de la réflexion (hkl) considérée (pic fondamental ou de surstructure) [GEH97] :

$$F_{hkl} \cdot F_{hkl}^*_{(fond)} = 4 \cdot [(\text{Re}(f_{\text{Fe}}) \cdot e^{-M} + \text{Re}(f_{\text{Pt}}) \cdot e^{-M})^2 + (\text{Im}(f_{\text{Fe}}) \cdot e^{-M} + \text{Im}(f_{\text{Pt}}) \cdot e^{-M})^2],$$

$$F_{hkl} \cdot F_{hkl}^*_{(sur)} = 4 \cdot S^2 \cdot [(\text{Re}(f_{\text{Fe}}) \cdot e^{-M} - \text{Re}(f_{\text{Pt}}) \cdot e^{-M})^2 + (\text{Im}(f_{\text{Fe}}) \cdot e^{-M} - \text{Im}(f_{\text{Pt}}) \cdot e^{-M})^2]$$

où f_{Fe} (respectivement f_{Pt}) est le facteur de diffusion atomique du fer (respectivement du platine), dont les valeurs des parties réelle et imaginaire sont tabulées dans les tables internationales de cristallographie. M est le facteur de Debye-Waller, relié au paramètre de Debye-Waller β par la relation $M = \beta \cdot [\sin(\theta)/\lambda]^2$. M corrige le désordre introduit par l'agitation thermique des atomes. En considérant les deux rapports d'intensité I_{001}/I_{002} et I_{003}/I_{004} , M et S sont déterminés.

3.2.5 Résultats expérimentaux sur les structures JTM FePt/MgO/FePt

Scan $2\theta - \omega$

La figure 3.10 présente le scan $2\theta - \omega$ réalisé sur une structure MTJ d'un échantillon typique. La structure nominale déposée est $\text{Pt}_{3\text{nm}}/\text{FePt}_{10\text{nm}}/\text{MgO}_{3\text{nm}}/\text{FePt}_{5\text{nm}}/\text{Pt}_{60\text{nm}}/\text{Cr}_{3\text{nm}}/\text{MgO}(100)$. Le diagramme laisse apparaître de façon claire un dédoublement des raies FePt (00k), phénomène qui est surtout visible aux grands angles *ie* pour les raies FePt (003) et FePt (004). Ce décalage en θ des pics de diffraction (00k) indique qu'il y a une différence de paramètre de maille (paramètre de maille c , selon [001]) entre les deux électrodes de FePt.

La différence d'intensité relative entre les deux contributions de chaque doublet FePt (00k) est liée à deux effets. La différence de taille des électrodes tout d'abord, la couche la plus épaisse étant d'épaisseur 10nm contre 5 nm pour la couche la plus fine. Le second point est le phénomène d'absorption des rayons X dans la matière, qui rend moins aisée la détection des couches « enterrées », et donc ici de l'électrode inférieure. Dans notre cas, ces deux effets vont dans le même sens, ce qui ôte toute ambiguïté à l'attribution des pics : le plus intense correspond à l'électrode supérieure $\text{FePt}_{10\text{nm}}/\text{MgO}$, l'épaulement étant associé à l'électrode inférieure $\text{FePt}_{5\text{nm}}/\text{Pt}$.

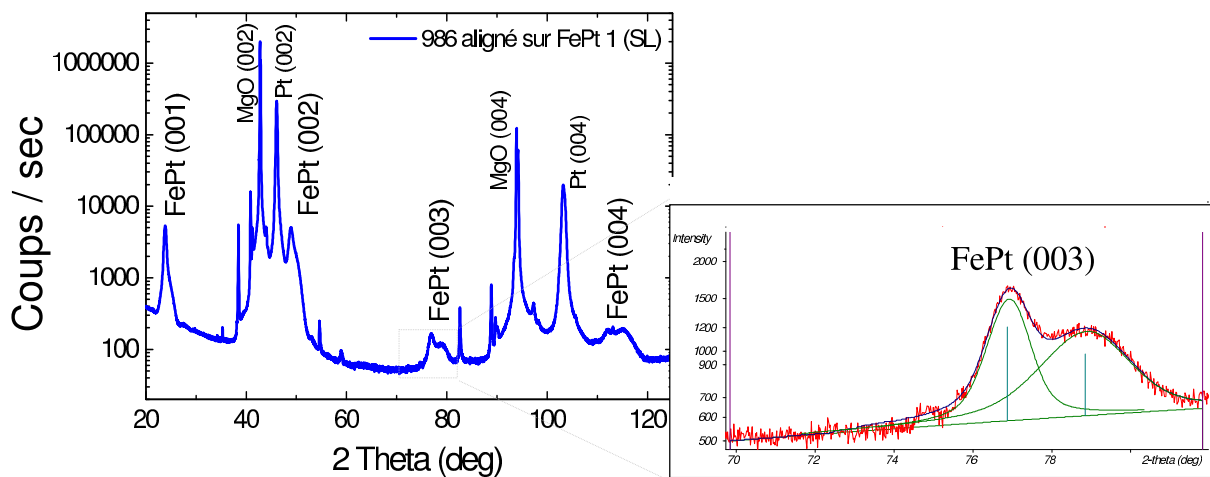


FIG. 3.10: *Diffraction pattern of the structure $\text{FePt}_{10\text{nm}}/\text{MgO}_{3\text{nm}}/\text{FePt}_{5\text{nm}}$ (anode Cu, figure de gauche). The beam is incident along the $[100]$ direction of the crystal. The sharp peaks are associated with the substrate (radiations $\text{Cu}_{K\alpha}$, $\text{Cu}_{K\beta}$, $\text{Cu}_{L\alpha}$...). The ω adjustment of the sample is conducted in such a way as to obtain the absolute maximum intensity of the thinnest layer, $\text{FePt}_{5\text{nm}}$. A « fit » of the two contributions of the FePt (003) peak is added (figure de droite).*

Dans un empilement de films minces, il est fréquent que les cristallites soient déformés par des contraintes. Une distribution aléatoire de contraintes va entraîner un léger décalage en position des pics de diffraction associés à chaque cristallite. On modélise fréquemment la répartition des contraintes par une loi normale, qui impose alors une allure gaussienne au pic de diffraction d'une couche mince. A cet effet, il faut ajouter celui lié à la taille finie des cristallites, qui fait que les pics de diffraction associés ne sont pas ponctuels dans l'espace réciproque. Au final, un pic de diffraction correspond à la convolution d'un profil gaussien $G(x)$ et d'un profil lorentzien $L(x)$ ayant le même sommet, appelée fonction de Voigt $V(x)$. On propose traditionnellement pour cette dernière une approximation par une fonction pseudo-Voigt $P(x) = \eta \cdot G(x) + (1-\eta) \cdot L(x)$ avec $0 \leq \eta \leq 1$ [MET98].

Paramètres de maille suivant [001]

Le tableau 3.1 regroupe les paramètres structuraux des différentes couches de la jonction tunnel. Signalons que la couche d'accrochage de chrome est trop fine pour créer un pic de diffraction suffisamment intense pour être détecté. Quant au signal correspondant à la *barrière tunnel* MgO, il est noyé par le pic de diffraction associé au substrat ($\text{MgO}(100)$).

Les paramètres de maille du substrat MgO et du Pt correspondent aux valeurs tabulées des matériaux « massifs » ($a=4,213\text{\AA}$ pour MgO et $a=3,923\text{\AA}$ pour Pt). En revanche, les deux électrodes FePt présentent des paramètres de maille très différents suivant [001] ($\frac{\Delta c}{c} \sim 2\%$). Si la couche supérieure $\text{FePt}_{10\text{nm}}/\text{MgO}$ présente un paramètre de maille hors plan très proche de la valeur du matériau massif ($c=3,71\text{\AA}$), le

| | (001) | | (002) | | (003) | | (004) | | c(Å) | ecart type |
|----------------------|---------------------|--------------------|---------------------|--------------------|---------------------|--------------------|---------------------|--------------------|------|------------|
| | $2\theta(^{\circ})$ | FWHM($^{\circ}$) | $2\theta(^{\circ})$ | FWHM($^{\circ}$) | $2\theta(^{\circ})$ | FWHM($^{\circ}$) | $2\theta(^{\circ})$ | FWHM($^{\circ}$) | | |
| MgO | | | 42,79 | 0,12 | | | 93,89 | 0,12 | 4,21 | 8^{-4} |
| Pt | | | 46,05 | 0,26 | | | 103,19 | 0,52 | 3,93 | 2^{-3} |
| FePt _{5nm} | 24,34 | 1,59 | 49,87 | 1,82 | 78,65 | 2,82 | 115,28 | 3,65 | 3,64 | 2^{-3} |
| FePt _{10nm} | 23,84 | 0,618 | 48,91 | 0,87 | 76,84 | 0,93 | 111,92 | 1,52 | 3,71 | 5^{-4} |

TAB. 3.1: Détermination des paramètres de maille des différentes couches de l'empilement. 2θ correspond à la position du pic de diffraction et FWHM est sa largeur à mi-hauteur. Les paramètres de maille sont donnés à $\pm 0,01\text{\AA}$.

paramètre de maille de la couche inférieure FePt_{5nm}/Pt présente une valeur inhabituellement faible, et ce malgré une bonne mise en ordre L1₀ attestée par la présence de pics de surstructure (001) et (003) de forte intensité.

Ce point peut être expliqué par la réalisation d'un scan $2\theta - \omega$ sur un pic de diffraction asymétrique, qui permet d'avoir accès aux paramètres de maille dans le plan des couches (voir la cartographie RMS présentée plus loin) : $a_{\text{FePt}(5\text{nm})} = a_{\text{Pt}} = 3,92\text{\AA}$. Cette électrode FePt(5nm) croît de façon pseudomorphe sur la couche tampon de platine. L'étirement de la maille de l'alliage dans le plan entraîne une réduction du paramètre de maille hors plan du fait de la loi de Poisson. L'électrode supérieure FePt(10nm) croît de façon complètement relaxée sur la barrière tunnel et adopte donc les paramètres structuraux de la couche FePt massive. Rappelons que $(a_{\text{Pt}} - a_{\text{FePt-bulk}})/a_{\text{Pt}} \sim 2\%$, contrainte qui peut être progressivement relaxée avec l'épaisseur du dépôt, alors que l'écart $(a_{\text{MgO}} - a_{\text{FePt-bulk}}) a_{\text{MgO}} \sim 12\%$ est trop important pour permettre une croissance aussi contrainte, même transitoirement.

Mosaïcité des électrodes ferromagnétiques

Des scans ω ont été réalisés au niveau des pics de diffraction (00k) des deux électrodes ferromagnétiques (voir figure 3.11). Nous ne présentons ici que les résultats obtenus sur les pics d'ordre élevé, car pour des faibles angles il est difficile de pouvoir séparer les contributions des deux électrodes. Ainsi, au niveau du pic (001), le signal en ω associé à l'électrode fine est complètement noyé par celui de l'électrode épaisse.

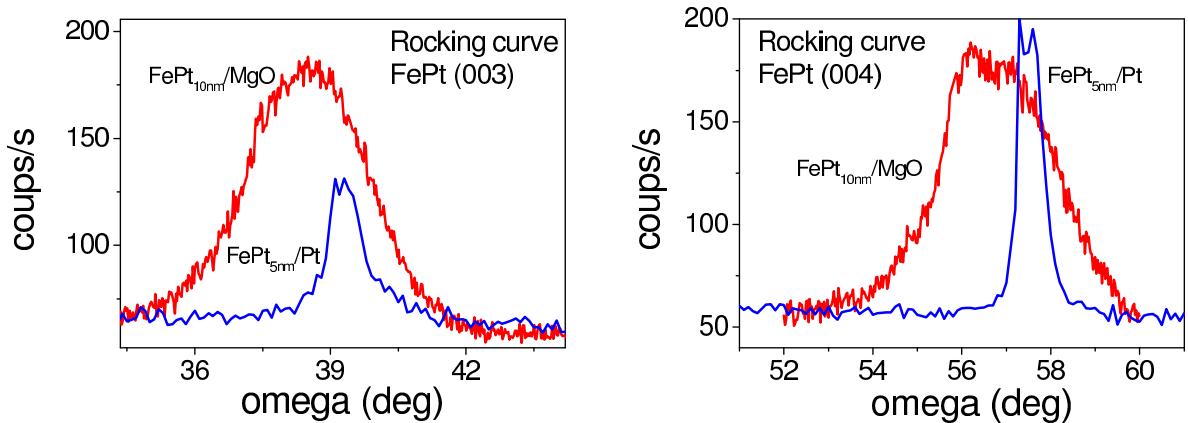
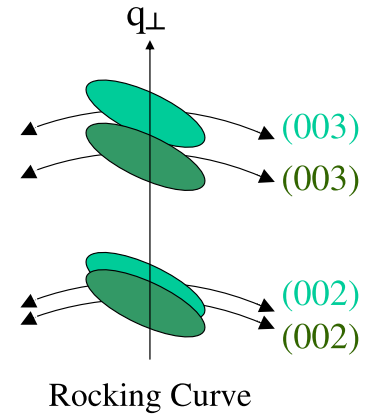


FIG. 3.11: Balayage en ω au niveau des pics de diffraction (003) et (004) des deux électrodes de FePt (anode Cu).

| | (003) | | (004) | |
|----------------------|--------------------|--------------------------|---------------------|--------------------------|
| | $\theta(^{\circ})$ | $\Delta\omega(^{\circ})$ | $2\theta(^{\circ})$ | $\Delta\omega(^{\circ})$ |
| FePt _{10nm} | 38,46 | 2,89 | 56,03 | 2,58 |
| FePt _{5nm} | 39,31 | 0,88 | 57,46 | 0,60 |

TAB. 3.2: θ correspond à la position angulaire du pic (00k) sur le scan $2\theta - \omega$ à laquelle est effectuée la « rocking curve ».

$\Delta\omega$ est la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction obtenus sur les scans ω . Elle nous permet d'évaluer la mosaïcité des électrodes FePt : celle-ci correspond à une distribution angulaire de la direction de croissance (voir figure 3.12), qui a pour effet d'élargir en ω des pics de diffraction.

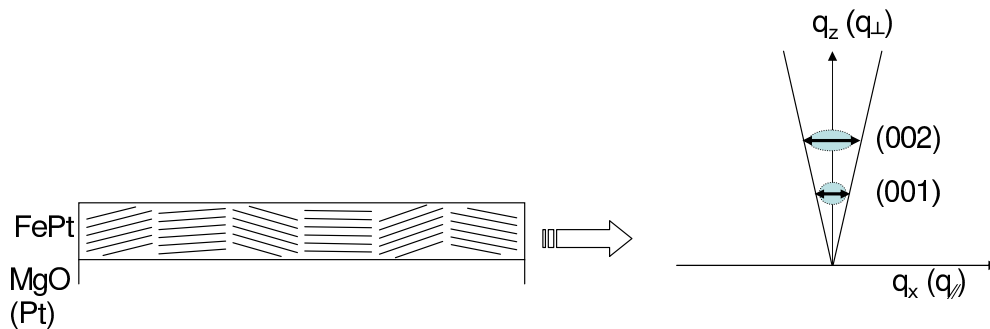


FIG. 3.12: Représentation de la mosaïcité de la couche FePt. L'effet d'une désorientation angulaire des plans de diffraction entraîne un élargissement en ω des pics de diffraction.

La largeur à mi-hauteur $\Delta\omega$ des pics de diffraction d'une « rocking curve » est en fait déterminée par deux effets : la longueur de cohérence latérale des cristallites (*ie* dans le plan des couches), L_{lat} donnée par la formule de Scherrer, et la mosaïcité de la couche représentée par un angle η . On peut considérer que la forme du pic de diffraction global est donné par la convolution de deux gaussiennes. $\Delta\omega$ est donné par :

$$(\Delta\omega)^2 = \eta^2 + \left(\frac{k \cdot \lambda}{2L_{lat} \cdot \sin(\theta)}\right)^2 \quad (\text{en radians}).$$

λ est la longueur d'onde du faisceau de rayons X et k un facteur correctif de valeur prise généralement à 0,9.

Les scans ω des pics FePt(003) et FePt(004) sont donnés en figure 3.11. La mosaïcité n'est a priori pas la même pour les raies fondamentales et les raies de surstructure : dans le cas où des domaines désordonnés côtoient des domaines ordonnés, on peut imaginer qu'un de ces types de domaines soit plus ou moins désorienté par rapport à la direction de croissance [001]. Cependant, l'imagerie par microscopie électronique à transmission (voir paragraphe 3.4) n'a pas permis de mettre en évidence la coexistence de deux phases d'ordres chimiques différents au sein d'une même électrode. Nous pouvons donc poser en approximation $\eta_{\text{fondamental}} = \eta_{\text{surstructure}} = \eta$ et évaluer une mosaïcité moyenne pour chaque électrode.

On obtient $\eta_{\text{FePt}(5\text{nm})} = 0,4^{\circ}$ et $\eta_{\text{FePt}(10\text{nm})} = 2,5^{\circ}$. Nous pouvons en tirer deux remarques :

- tout d'abord, la mosaïcité de la couche inférieure est très faible, et du même ordre de grandeur que la mosaïcité de la couche tampon de platine (évaluée quant à elle à $0,3^{\circ}$). Ce résultat n'est pas surprenant compte tenu du fait que la croissance de la couche FePt(5nm) se fait de façon pseudo-morphe et complètement contrainte : il y a une parfaite continuité entre les plans atomiques des deux films,
- ensuite, on obtient pour la couche FePt(10nm) une mosaïcité bien supérieure à celle de l'électrode fine. Compte tenu des difficultés liées à la croissance de cette couche ferromagnétique sur la barrière tunnel, l'importance de cette mosaïcité se comprend tout à fait : elle est imputable à la forte déformation imposée par la barrière tunnel MgO ($\frac{\Delta a}{a} \sim 12\%$), à laquelle s'ajoutent peut être des effets liés à la rugosité plus forte de la couche de MgO par comparaison avec la couche tampon de platine.

Paramètre d'ordre à longue distance

Les paramètres d'ordre chimique à longue distance des deux couches ferromagnétiques sont évalués à partir du rapport des intensités intégrées des pics fondamentaux et de surstructure. Les expressions de l'intensité du pic fondamental et du pic de surstructure données dans le paragraphe 3.2.4 comportent deux inconnues, le paramètre d'ordre S et le paramètre de Debye-Waller β . Il est donc nécessaire d'avoir accès à un couple de rapports d'intensités $I_{\text{surstructure}}/I_{\text{fondamental}}$ pour pouvoir déterminer simultanément S et β : l'accès à la raie FePt(004) a nécessité l'utilisation du diffractomètre à anode de cuivre, ce qui n'a été le cas que sur un nombre réduit d'échantillons. Nous avons mesuré un paramètre de Debye-Waller expérimental $\beta=0,16\text{\AA}^2$, en accord avec ce qui est donné dans la littérature. Nous avons utilisé cette valeur pour tous les échantillons étudiés par diffraction de rayons X dans cette thèse.

Les paramètres d'ordre des deux électrodes FePt sont élevés, avec $S=0,9$ pour FePt(5nm) et $S=0,7$ pour FePt(10nm). L'incertitude sur ces mesures est toutefois assez grande, de l'ordre de 10%, en grande partie du fait de la proximité du pic FePt(002) avec un pic de diffraction Pt(002) très intense, proximité qui rend la déconvolution délicate.

Cartographie des pics de diffraction dans le réseau réciproque

La figure 3.13 nous donne des cartographies dans l'espace réciproque des pics (003) et (004) de la structure, ramenées en coordonnées « $2\theta - \omega$ » et « ω ». Ces pics de diffraction (00x) sont d'ordre x suffisamment élevé pour que la faible différence de paramètre de maille perpendiculaire des couches ferromagnétiques douces et dures conduise à des taches de diffraction bien séparées. On retrouve là les mêmes éléments caractéristiques déjà décrits :

- le pic de diffraction associé à la couche douce est de forme allongée suivant 2θ à cause de la très faible épaisseur mise en jeu. Il est de largeur relativement faible suivant ω , ce qui indique une bonne qualité structurale,
- le pic de diffraction associé à la couche dure est de forme allongée suivant ω , indiquant une qualité structurale moins bonne. Sa position en 2θ est plus faible, indiquant un paramètre de maille plus important suivant [001].

Toutefois, nous pouvons remarquer sur ces cartographies une différence de comportement de l'échantillon suivant que le faisceau X est incident selon [100] ou [110] : dans ce dernier cas, les taches de diffraction des deux couches ferromagnétiques ne sont plus centrées sur une même position en ω . Ce phénomène illustre la désorientation de la couche FePt(10nm) par rapport au reste du système, c'est à dire que la croissance de la couche supérieure ne se fait pas dans le plan du substrat, mais inclinée selon un certain angle α avec la direction cristallographique [110]. Cette désorientation est également observée par microscopie électronique à transmission (voir paragraphe 3.4).

L'angle de désorientation α est donné par la différence de centrage en ω des pics de réflexion. Cet angle α est évalué à $0,97^\circ$ pour les deux réflexions (003) et (004). L'apparition d'une désorientation est encore une illustration de la difficulté à reprendre une croissance univariant d'une couche de FePt $L1_0$ sur une barrière tunnel de MgO.

La détermination des paramètres de maille dans le plan des couches se fait à partir de scans effectués sur des raies asymétriques (hkl), où les distances inter-plans sélectionnées par la loi de Bragg sont de la forme $d_{hkl} = \frac{1}{\sqrt{(\frac{h}{a})^2 + (\frac{k}{b})^2 + (\frac{l}{c})^2}}$ (pour un matériau tétragonal de paramètres de maille a, b, c)

Une cartographie du réseau réciproque autour de la raie (-1-13) du FePt est présentée en figure 3.14. Les directions de balayage « $2\theta-\omega$ » et « ω » y sont indiquées. La tache la plus intense est associée à la réflexion (-1-13) du platine, pour $q_x = -2,264$ et $q_z = 4,809 \text{\AA}^{-1}$, ce qui correspond à des paramètres de maille dans le plan et hors du plan de $3,92\text{\AA}$ ($3,923\text{\AA}$ pour du platine massif). Les taches associées aux deux électrodes de FePt sont très proches :

- pour la couche épaisse, $q_x = -2,308$ et $q_z = 5,081\text{\AA}^{-1}$, soit $a = 3,85\text{\AA}$ et $c = 3,71\text{\AA}$. Le centrage en q_x et q_z de la couche dure est celui d'une couche de FePt « massive » ce qui signifie que la couche supérieure de FePt croît relaxée sur la barrière tunnel MgO,
- pour la couche fine, $q_x = -2,264$ et $q_z = 5,178\text{\AA}^{-1}$, ce qui correspond respectivement à des paramètres structuraux $a = 3,92\text{\AA}$ et $c = 3,64\text{\AA}$.

Le caractère contraint de cette électrode sur la couche tampon de platine est mis en évidence ici par l'égalité des q_x associés aux deux films, qui indique une égalité des paramètres de maille dans le plan. Il y a donc une croissance pseudomorphe. Dans le même temps, cette contrainte dans le plan des couches se traduit par un q_z plus important pour la couche FePt(5nm) que pour la couche FePt(10nm), en accord

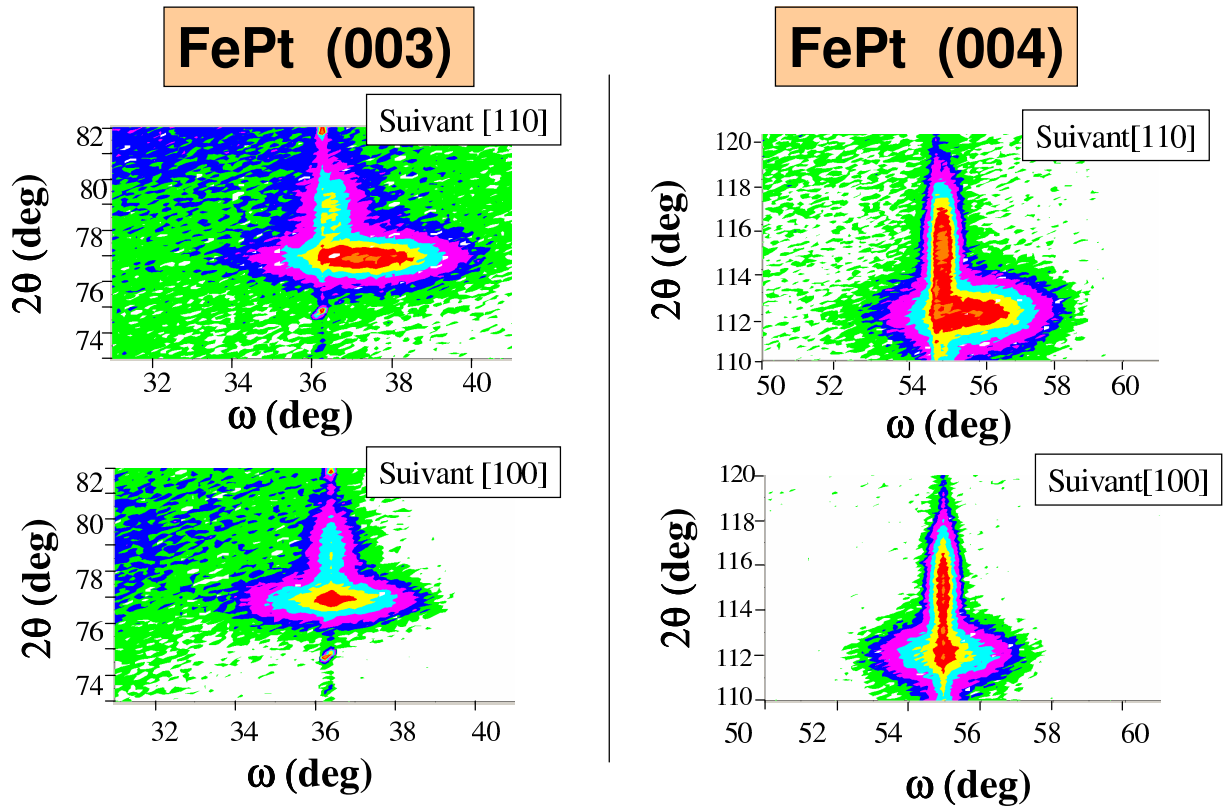


FIG. 3.13: Cartographie de l'espace réciproque (« Reciprocal Space Map ») au voisinage des pics de diffraction (003) et (004) du FePt. Les cristallites associés à la couche douce SL et à la couche dure HL sont désaxés les uns par rapport aux autres.

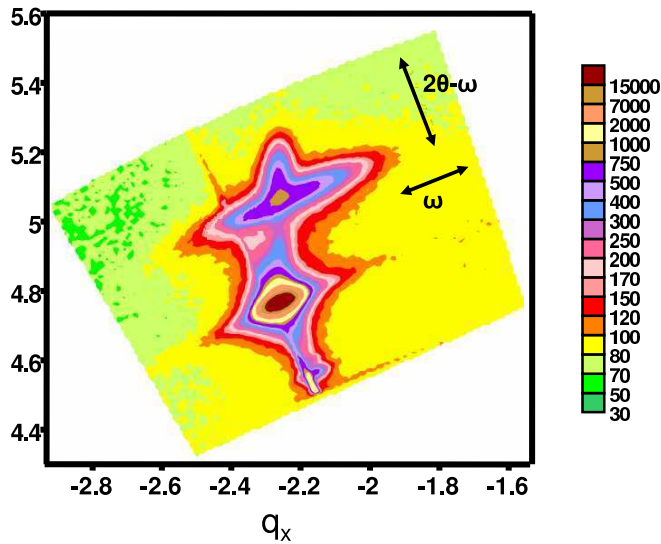


FIG. 3.14: Cartographie de l'espace réciproque au voisinage de la raie (-1-13) de FePt et de Pt. L'échelle de couleur est en coups par seconde.

avec la loi de Poisson qui prévoit une compression de la maille cristalline de FePt(5nm) selon la direction perpendiculaire au plan de l'échantillon.

La figure 3.15 donne une cartographie de l'espace réciproque à proximité des pics de diffraction (-1-14) des deux électrodes FePt(5nm) et FePt(10nm). (-1-14) correspond à un pic « éteint » pour le platine et à un pic de surstructure pour FePt ordonné dans la phase $L1_0$: il s'agit de la première raie de surstructure asymétrique d'ordre assez élevé pour avoir une séparation des signaux correspondant aux deux électrodes. Sur cette figure, les maxima d'intensité de chacune des deux électrodes sont bien distincts, ce qui permet de mieux apprécier les différences de structure entre les deux couches ferromagnétiques.

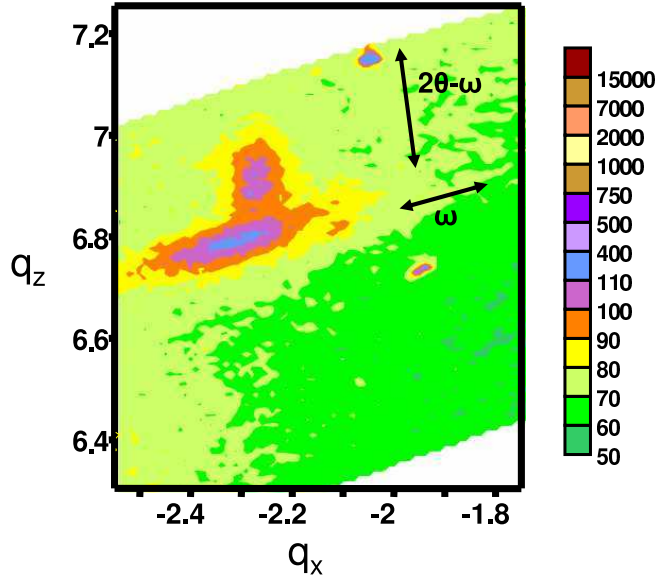


FIG. 3.15: Cartographie de l'espace réciproque au voisinage de la raie (-1-14) de FePt. L'échelle de couleur est en coups par seconde.

Déformation de la maille du film FePt/Pt

Afin d'apprécier l'ampleur des déformations de la maille FePt que nous observons sur l'électrode FePt(5nm), nous nous proposons d'estimer le coefficient de Poisson de cet alliage, à partir des mesures des coordonnées q_x et q_z de la couche de FePt contrainte. Pour cela, on considère ici que l'on a une contrainte plane, uniforme suivant deux dimensions, de la forme $\sigma_{xx}=\sigma_{yy}=\sigma$, $\sigma_{zz}=0$ et $\sigma_{ij}=0$ pour $i \neq j$.

Les termes de déformation sont reliés à ces termes de contraintes par le tenseur de souplesse selon la relation

$$\epsilon_{ij} = S_{ijkl} \cdot \sigma_{kl}. \quad (3.3)$$

Du fait de sa structure $L1_0$, FePt est un matériau orthotrope (orthogonal et anisotrope), ce qui va nous permettre d'exprimer la relation 3.3 suivant la forme :

$$\epsilon_{xx} = \frac{1}{E_x} \sigma_{xx} - \frac{\nu_{yx}}{E_y} \sigma_{yy}.$$

$$\epsilon_{yy} = -\frac{\nu_{xy}}{E_x} \sigma_{xx} + \frac{1}{E_y} \sigma_{yy}.$$

$$\epsilon_{zz} = -\frac{\nu_{xz}}{E_x} \sigma_{xx} - \frac{\nu_{yz}}{E_y} \sigma_{yy}.$$

où les E_i sont les modules d'Young longitudinaux (du fait de la structure $L1_0$ du matériau, on a $E_x = E_y$) et ν_{ij} les coefficients de Poisson. Des coefficients ν_{ij} quasi semblables quels que soient i, j ayant été mesurés par Ichitsubo [ICH04] sur FePd, un alliage de structure identique et de propriétés proches ($\nu_{12}=0,398$ et $\nu_{13}=0,399$), nous pouvons faire l'approximation d'un unique coefficient de Poisson ν pour le matériau FePt et écrire :

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} \quad \text{et} \quad \epsilon_{zz} = \frac{-2\nu}{1-\nu} \epsilon_{xx}.$$

Les termes de déformation correspondent directement aux variations de paramètre de maille du matériau et à la variation du volume de la maille, soit $\Delta V = V - V_0 = (2\epsilon_{xx} + \epsilon_{zz})V_0$ ou encore

$$\frac{(a \cdot a \cdot c) - (a_0 \cdot a_0 \cdot c_0)}{a_0 \cdot a_0 \cdot c_0} = \frac{\Delta V}{V_0} = 2\epsilon_{xx} - \frac{2\nu}{1-\nu} \epsilon_{xx} = \left(\frac{a - a_0}{a_0}\right) \cdot \left(2 - \frac{2\nu}{1-\nu}\right).$$

On obtient par ce calcul un coefficient de Poisson $\nu=0,38$ pour notre couche ferromagnétique FePt. Ce résultat est très proche de celui obtenu par Ichitsubo sur le matériau FePd ordonné dans la phase $L1_0$. Il nous permet de remarquer que cette couche FePt ultra-mince, d'épaisseur 5nm seulement, possède les mêmes propriétés mécaniques que le FePt « massif ».

3.3 Diffraction de rayons X : diffraction en incidence rasante (SXRD)

3.3.1 Principe

La diffraction de rayons X en incidence rasante est une variante de la diffraction X classique, adaptée à l'étude cristallographique d'une surface : cette technique permet d'effectuer des mesures quantitatives des distances interatomiques perpendiculairement et parallèlement à la surface et, à partir de modèles, de remonter à la composition chimique (comme la présence d'une oxydation) d'une interface. A la différence de la diffraction X aux grands angles présentée précédemment, cette technique ne sonde que les couches atomiques proches de la surface, c'est pourquoi l'intensité diffractée est relativement faible. Ceci contraint à l'utilisation d'une source de radiations intense, le rayonnement synchrotron, pour avoir des intensités décelables : nous avons pu utiliser cette technique pour analyser les tous premiers stades de la croissance de la barrière tunnel MgO sur la première électrode ferromagnétique.

Dans la théorie de la diffraction de rayons X, le cristal envisagé est généralement considéré comme étant infini et les pics de diffraction correspondent à des positions angulaires 2θ précises, pour lesquelles la loi de Bragg est respectée. Dans le cas d'un cristal réel, les cristallites sont de tailles finies et les pics sont élargis de façon inversement proportionnelle à la taille des objets diffractant. C'est ce qui a été vu lors de l'étude de la structure JTM par diffraction aux grands angles.

La diffraction sous incidence rasante fait intervenir la surface de l'échantillon, qui constitue une brisure nette du cristal : le réseau réciproque est constitué de tiges de troncature (la surface est un objet 2D) [ROB86], et comme le faisceau pénètre de quelques nm dans le film, ces tiges sont modulées par les pics de Bragg. L'intensité de ces tiges entre les pics de Bragg est déterminée par la structure atomique fine de l'interface.

Pour résumer, deux types d'informations peuvent être obtenues par ces mesures de SXRD :

- les paramètres structuraux de couches surfaciques ultra-minces, ici en particulier ceux de la barrière tunnel MgO. A la différence des mesures XRD effectuées en laboratoire, les seules couches sondées sont la barrière tunnel, l'électrode ferromagnétique et la couche tampon de platine. Le signal provenant de la couche isolante MgO n'est donc pas noyé par celui provenant du substrat. Ces données sont tirées de « scans hkl » classiques,
- la modification de structure de couches interfaciales. Le SXRD permet de déterminer l'état cristallographique et chimique d'une surface et d'une interface. Dans notre cas, il s'agit d'étudier l'oxydation de l'électrode ferromagnétique FePt au niveau de l'interface MgO/FePt (apparition éventuelle d'un oxyde $\text{Fe}_x\text{O}_{1-x}$). Ce renseignement est donné par l'analyse fine des tiges de troncature [MEY02].

Les mesures SXRD ont été réalisées en fin de thèse. Aussi, au moment où j'écris ces lignes, l'exploitation des résultats est loin d'être terminée. Tout ce qui a rapport avec l'étude des tiges de troncature sera publié ultérieurement : dans ce paragraphe, nous nous limitons à l'étude de la relaxation en paramètre de maille de la barrière tunnel MgO sur l'électrode inférieure FePt. Tous les scans présentés ont été réalisés en suivant les coordonnées des différents matériaux dans l'espace réciproque : l'élément de référence est le platine, c'est à dire qu'un pic de diffraction situé à la position $h=h_0$, $k=k_0$ et $l=l_0$ - où h_0 , k_0 et l_0 sont des indices de Miller - correspond au pic de diffraction (h_0 k_0 l_0) du platine.

La figure 3.16 donne les réseaux réciproques des différents matériaux FePt, MgO, Pt. Un « l-scan » (respectivement un « h-scan ») correspond à l'exploration dans l'espace réciproque des pics de diffraction de différents indices l , pour h et k fixés (respectivement k et l fixés). Un « hh-scan » correspond à l'exploration des pics d'indices $h=k$, pour l fixé. Les « h-scans » et « hh-scans » permettent d'avoir accès directement aux paramètres de maille dans le plan.

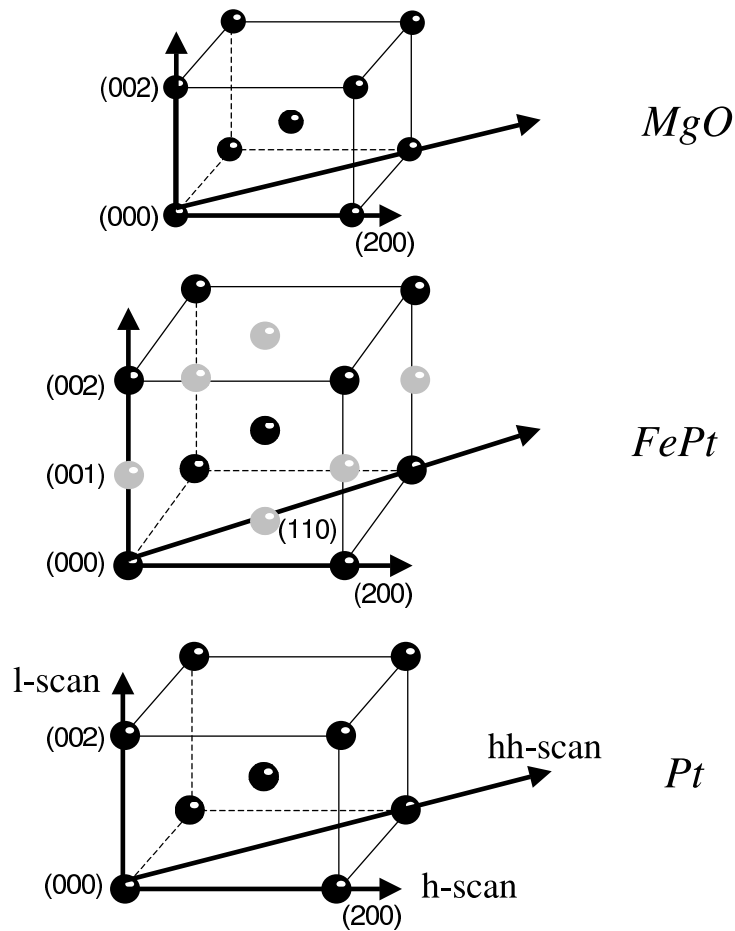


FIG. 3.16: Représentation schématique des réseaux réciproques des différents matériaux étudiés. Pour l'alliage FePt, les taches claires correspondent aux pics de surstructure et les taches sombres aux pics fondamentaux.

3.3.2 Description des échantillons mesurés

Les expériences ont été menées sur la ligne de lumière BM32 à l'ESRF. Différents échantillons ont été élaborés par épitaxie par jets moléculaire (voir tableau 3.3) au laboratoire. Ils ont été transportés à l'ESRF au moyen d'une valise de transport spécifique, développée au laboratoire. Elle permet le maintien sous ultra-vide ($P \sim 10^{-8}$ mbar) des échantillons qui sont ainsi transférés jusqu'au diffractomètre à rayons X. Différents systèmes ont été analysés. Dans tous les cas, l'épaisseur de l'alliage ferromagnétique déposé est la même (5nm), et la couche terminale de MgO a été recuite pendant la même durée (quelques minutes). Les paramètres étudiés sont l'influence de la couche interfaciale de fer et de l'épaisseur de la barrière tunnel déposée.

| Numéro de l'échantillon | Interface | e_{MgO} (mc) |
|-------------------------|-----------|-----------------------|
| 1157 | Fe | 6 |
| 1158 | Fe | 3 |
| 1159 | Fe | 2 |
| 1160 | / | 2 |
| 1161 | Fe | 1 |
| 1162 | Fe | 0.5 |

TAB. 3.3: Echantillons analysés par SXRD de structure $\text{MgO}(x\text{nm})/\text{FePt}(5\text{nm})/\text{Pt}(60\text{nm})/\text{Cr}/\text{MgO}(001)$: l'interface MgO/FePt a été étudiée avec et sans couche interfaciale de fer, l'épaisseur de cette dernière étant de $1,6\text{\AA}$. L'épaisseur e_{MgO} de la barrière est donnée en nombre de monocouches.

Les cycles d'aimantation en champ perpendiculaire de ces échantillons ont été mesurés par effet Kerr, à l'issue des mesures de diffraction X. Ces cycles d'aimantation, donnés sur la figure 3.17, montrent une bonne homogénéité des propriétés magnétiques : la rémanence est parfaite dans tous les cas, le champ coercitif reste faible et le renversement d'aimantation est toujours abrupt.

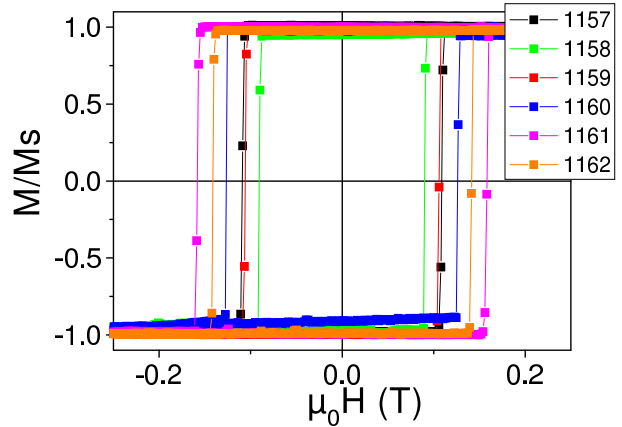


FIG. 3.17: Cycles d'aimantation des échantillons mesurés par SXRd (effet Kerr polaire).

3.3.3 Etude par SXRd de la structure MgO/FePt/Pt

La figure 3.18 présente les « h-scans » de deux échantillons. Les pics de diffraction sont repérés par des flèches sur la figure a) ; ils sont indexés suivant les indices de Miller du platine : un pic de diffraction relevé pour $h=1,00$ signifie que le matériau associé est situé dans l'espace réciproque exactement à la même place que le platine (ce qui correspond donc à une distance interatomique $a=3,92\text{\AA}$). Un pic de diffraction relevé pour $h=1,86$ signifie que le matériau associé a un paramètre de maille $3,92 \times 2 / 1,86\text{\AA}$, soit $4,21\text{\AA}$.

Tout d'abord, remarquons que les deux pics principaux ont exactement pour coordonnées $h=2$ et $h=4$. Ces pics sont tous les deux associés aux matériaux FePt et Pt : nous avons vu dans le paragraphe 3.2.5 que l'électrode ferromagnétique inférieure FePt croît de façon complètement contrainte sur la couche tampon de platine ; elle adopte donc le même paramètre de maille dans le plan $a=3,92\text{\AA}$. La couche tampon de platine étant une couche « enterrée », la majeure partie du signal de ces pics provient de la couche ferromagnétique FePt. Ceci sera confirmé par la réalisation de « l-scans », permettant de séparer les pics de diffraction associés au FePt et au Pt.

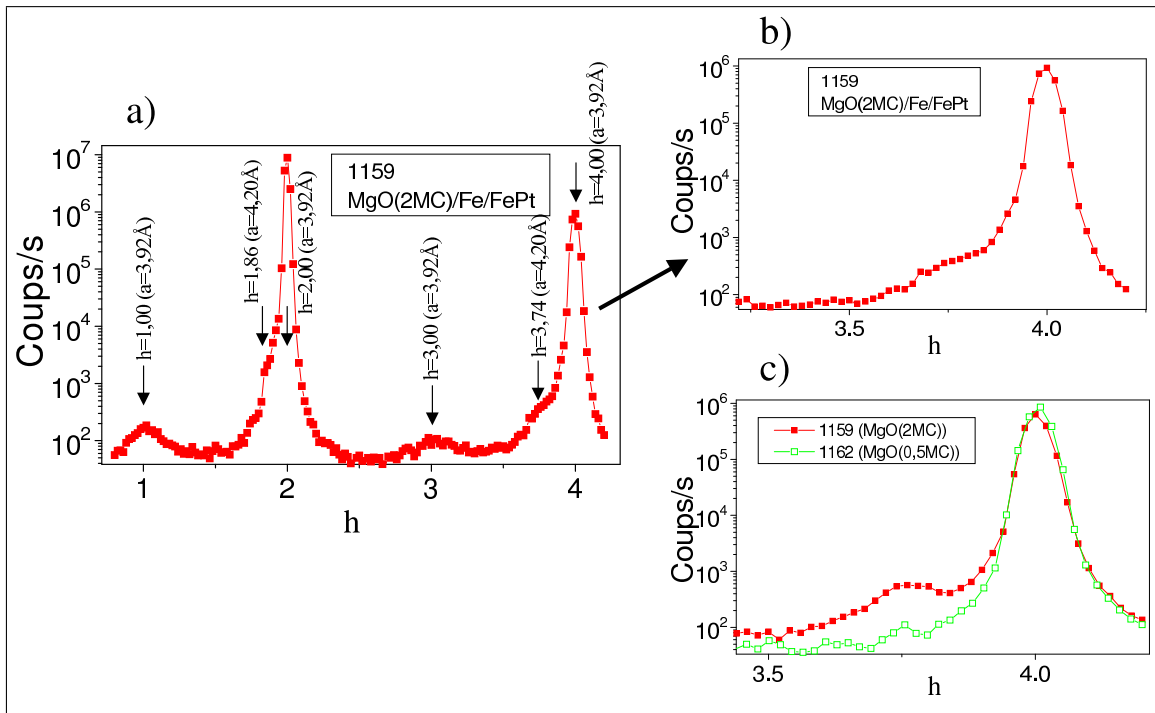


FIG. 3.18: « h-scan » ($k=0$ et $l=0,05$) réalisés sur les échantillons 1159 ($e_{\text{MgO}}=2$ monocouches) et 1162 ($e_{\text{MgO}}=0,5$ monocouches).

Deux pics de très faible amplitude apparaissent pour $h=1$ et $h=3$. Ils doivent donc être attribués aux matériaux FePt ou Pt. Cependant, d'après la figure 3.16, il n'existe pas de pic de diffraction FePt($h00$) ou Pt($h00$) avec $h=1$ ou $h=3$. Ces pics ont a priori trois origines possibles :

- il pourrait s'agir de pics de diffraction associés à des variants dans le plan de FePt - qui seraient ultra-minoritaires au vu des amplitudes mises en jeu. Ces variants, ayant leur axe c renversé dans le plan des couches seraient eux aussi contraints sur le platine. Ceci donnerait naissance à une maille $L1_0$ tétragonale ayant des paramètres de maille c et a vérifiant $c > a$. Cette hypothèse me semble très peu probable,
- il peut s'agir de « pics interdits ». Du fait de la présence de défauts dans le platine ou le FePt, certaines mailles peuvent présenter une structure cristallographique cubique face centrée défectueuse, pour laquelle les pics de diffraction qui devraient être « éteints » ne le sont pas.

Les pics positionnés en $h=1,86$ et $h=3,74$ ($\pm 0,01$) sur la figure 3.18 a) - positions déterminées par déconvolution - peuvent être attribués à la barrière tunnel MgO. Les positions relevées correspondent à un paramètre de maille $a=4,20\text{\AA}$ ($\pm 0,02\text{\AA}$), ce qui indique que la barrière tunnel MgO est complètement relaxée à l'issue d'un dépôt de seulement 2 monocouches. Notons que ces pics n'apparaissent pas sur la figure 3.18 c), présentant un « h-scan » obtenu sur l'échantillon comportant une couche MgO d'épaisseur nominale 0,5 monocouche trop faible pour donner un pic de diffraction.

Les mêmes observations peuvent être portées à partir d'un « hh-scan », à une différence près : sur les courbes présentées en figure 3.19, les pics de surstructure FePt(110) et FePt(330) apparaissent très nettement en plus des pics fondamentaux FePt(220) et FePt(440). Nous avons superposé sur cette figure les hh-scans des échantillons 1159 et 1160. Ces deux échantillons comportent une structure nominale quasi-identique, MgO(2monocouches)/FePt avec pour l'échantillon 1160 une absence de couche interfaciale de fer. Sur ces diffractogrammes, rien ne permet de différencier ces deux échantillons.

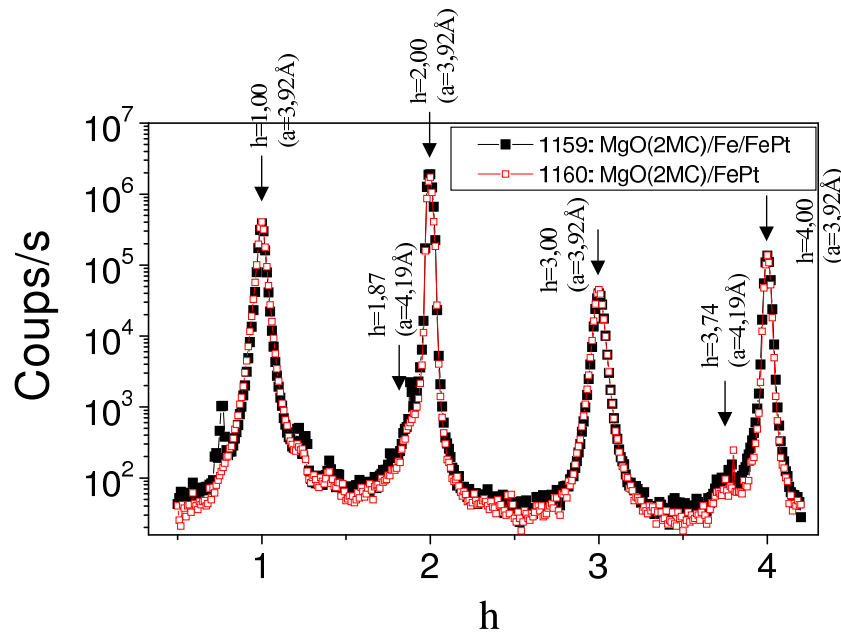


FIG. 3.19: *hh-scan* ($l=0,05$) réalisé sur les échantillons 1159 ($e_{\text{MgO}}=2$ monocouches) et 1160 ($e_{\text{MgO}}=2$ monocouches, ne comportant pas de couche interfaciale de fer).

Les « l-scans » permettent de séparer les pics de diffraction associés au FePt et au Pt (voir figure 3.20). Le platine est associé au seul pic de diffraction Pt(002), relevé pour $l=2$. Les pics les plus intenses, associés au FePt, sont situés aux positions $l=1,09$ ($\pm 0,01$) (pic de surstructure) et $l=2,16$ ($\pm 0,01$) (pic fondamental), correspondant à un paramètre de maille perpendiculaire $c_{\text{FePt}}=3,62\text{\AA}$.

Notons que le pic de diffraction MgO(002) ne connaît aucune évolution *en position* avec l'épaisseur de MgO déposée, seule son intensité augmente. Ceci permet à nouveau de mettre en évidence une relaxation immédiate en paramètre de maille de la couche MgO déposée.

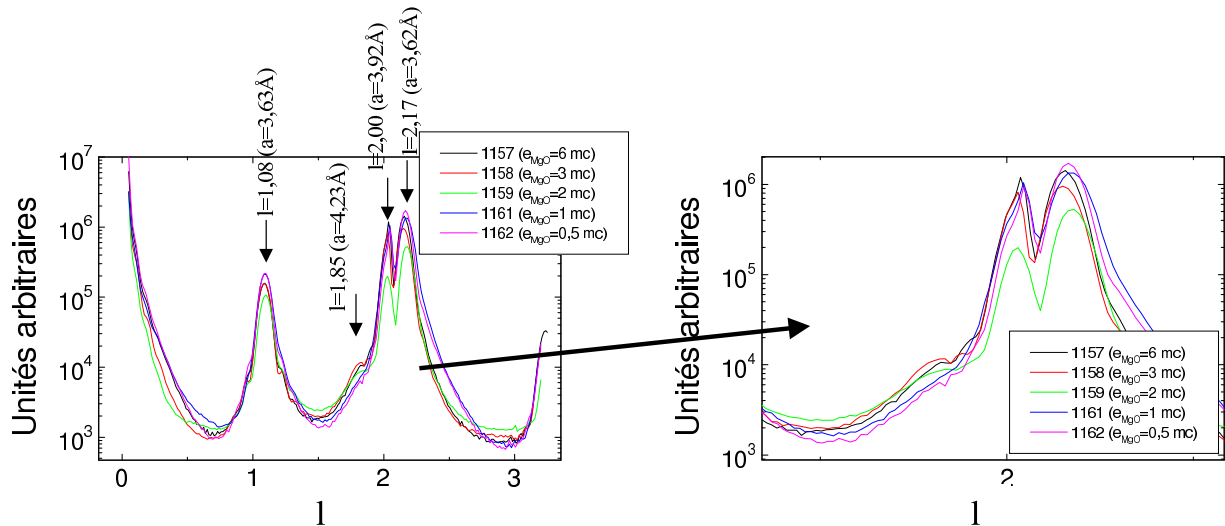


FIG. 3.20: « l -scans » ($h=2$ et $k=0$) réalisés sur les différents échantillons étudiés (e_{MgO} allant de 0,5 à 6 monocouches).

3.4 Microscopie électronique en transmission (TEM)

3.4.1 Principe

La microscopie électronique en transmission (*Transmission Electronic Microscopy* - TEM) est une technique d'imagerie performante, permettant notamment de visualiser les plans atomiques d'une surface ou encore, par observation de la section d'un échantillon, d'étudier l'organisation cristalline d'un empilement de couches minces. Elle regroupe plusieurs techniques de caractérisation que l'on peut mettre en oeuvre sur un microscope TEM, suivant les équipements dont il dispose. Les techniques de base sont l'imagerie (champ clair ou champ sombre) et la diffraction. Cette dernière est possible grâce au système complexe de lentilles de projection qui permet de visualiser le plan focal image. Un champ sombre est une image où une seule tache de diffraction est sélectionnée. Dans un champ clair, l'ensemble des composantes de Fourier est sélectionné. Plusieurs ouvrages décrivent le fonctionnement de cet appareil (voir [AGI90] par exemple).

Pour construire l'image d'un échantillon mince, un faisceau d'électrons émis par un canon à électrons est accéléré à quelques centaines de kilovolts, généralement de 100 à 400kV. Le microscope utilisé (JEOL4000EX) permet d'obtenir un faisceau énergétique à 400keV et de disposer d'une résolution de 0,165nm. En traversant le milieu cristallin, le réseau de plans atomiques de l'échantillon diffracte les électrons ($2d_{\text{hkl}} \cdot \sin(\theta) = n\lambda$ avec $\lambda = 2/\sqrt{2meV}$). Un système de lentilles de condensation va contrôler la convergence du faisceau et la région d'irradiation. Les électrons diffractés ou transmis sont collectés par un système de diaphragmes et de lentilles de projection. Le contraste observé sur l'image provient des variations d'intensité des réflexions de Bragg associées à l'arrangement atomique de la zone irradiée.

L'intensité du faisceaux électronique transmis au travers de l'échantillon est atténuée par des processus inélastiques dont le nombre augmente avec l'épaisseur de l'échantillon. Ce dernier doit donc être aminci jusqu'à une épaisseur compatible avec la transmission des électrons (typiquement quelques 10 à 200nm).

3.4.2 Observation de la structure JTM

L'image 3.21, obtenue par microscopie électronique en haute résolution, montre l'empilement des couches et permet de constater la planéité de la barrière tunnel, ainsi que la bonne cristallinité du système. En particulier, nous n'avons pas observé de *pinhole* (de trou) au niveau de la barrière tunnel.

En dépit de différences de paramètres de maille assez importantes, $\frac{4,21-3,92}{4,21} \sim 7\%$ pour la croissance de l'électrode inférieure et $\frac{4,21-3,85}{4,21} \sim 9\%$ pour la croissance de l'électrode supérieure, l'épitaxie de l'ensemble de la structure visualisée au RHEED au cours de son élaboration se fait cube sur cube. Il faut alors logiquement considérer la présence de défauts permettant de relaxer les contraintes épitaxiales. Au vu de l'important désaccord de maille, il est possible de prévoir la présence de dislocations introduites très rapidement, en début de croissance, au niveau des interfaces.

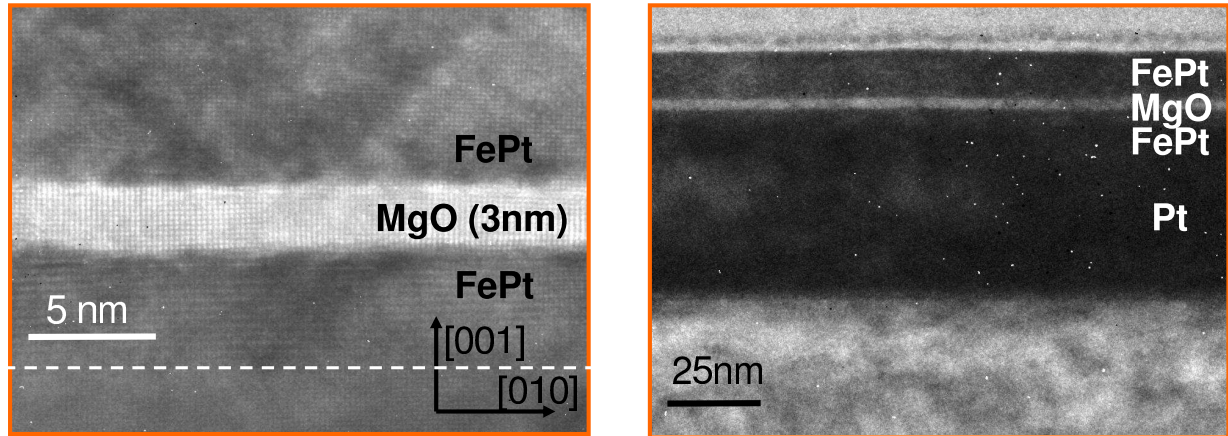


FIG. 3.21: Section transverse d'une JTM FePt/MgO/FePt observée en haute résolution. la mise en ordre $L1_0$ apparaît de façon nette au niveau de l'électrode inférieure.

L'observation de la structure en coupe transverse met en évidence deux types de défauts (voir figure 3.23) :

- des dislocations parfaites au niveau des deux interfaces FePt/MgO et MgO/FePt : le défaut se caractérise par l'insertion d'une colonne atomique supplémentaire (interface FePt/MgO) ou au contraire le déficit d'une colonne atomique (interface MgO/FePt),
- une croissance *tiltée* de l'électrode supérieure sur la barrière tunnel. Cet effet avait déjà été constaté par diffraction de rayons X aux grands angles, il est là visualisé directement.

Notons que ces défauts n'empêchent pas une bonne épitaxie du système.

Dans le cas où seules les dislocations relaxeraient la contrainte épitaxiale, la distance moyenne entre celles-ci devrait correspondre à l'accommodation des paramètres de maille de part et d'autre de chaque interface. C'est à dire, en faisant abstraction de la présence de toute espèce chimique autre que FePt ou MgO à l'interface, qu'il devrait y avoir une dislocation tous les 5,5nm au niveau de l'interface MgO($a=4,21\text{\AA}$)/FePt($a=3,92\text{\AA}$) et une tous les 4,6nm pour l'interface FePt($a=3,85\text{\AA}$)/MgO($a=4,21\text{\AA}$).

En pratique, au niveau de l'interface barrière/électrode inférieure, nous observons en moyenne une dislocation tous les 13 plans atomiques d'oxyde, *ie* une distance moyenne entre dislocations de 5,5nm : le film d'oxyde est totalement relaxé par ces dislocations.

De façon surprenante, la densité de dislocations au niveau de l'interface supérieure est moindre (une dislocation tous les 19 plans atomiques d'oxyde, *ie* une tous les 8,0nm en moyenne) et ce en dépit d'un plus grand désaccord de maille à accommoder. Dans un premier temps, nous pouvons essayer d'expliquer cette différence par le *tilt* de l'électrode supérieure par rapport à la barrière : les dislocations ne sont pas la seule manière de relaxer les contraintes épitaxiales à ce niveau, il faut considérer une combinaison *tilt* + dislocations.

Les mesure de diffraction X nous renseignent sur l'angle de désalignement α entre les plans (100) de FePt et de MgO. Cet angle est de l'ordre de l'arcsecond, ce qui au final est bien insuffisant pour expliquer le nombre de dislocations relativement faible. En effet, en considérant les paramètres de maille $a_{FePt}=3,85\text{\AA}$ et $a_{MgO}=4,21\text{\AA}$, la présence d'une dislocation tous les 19 plans atomiques d'oxyde demande une concordance de 19 plans de MgO avec 21 plans de FePt, ce qui correspondrait à un angle de désalignement $\alpha \sim 8^\circ$. Un tel angle n'est pas plus observé sur les images de microscopie à transmission qu'il n'a été mesuré par diffraction X.

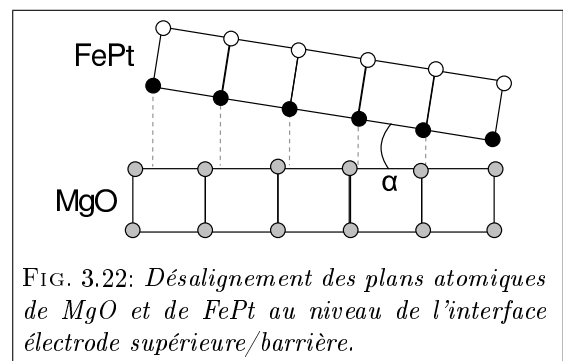


FIG. 3.22: Désalignement des plans atomiques de MgO et de FePt au niveau de l'interface électrode supérieure/barrière.

De fait, il est donc plus vraisemblable de considérer que la mise en ordre dans la structure $L1_0$ est perturbée au niveau des tout premiers plans lors de la croissance. Cette explication est en accord avec les mesures de propriétés magnétiques et structurales de couches ultra-minces d'alliage FePt déposées

directement sur substrat MgO, qui indiquent une croissance fortement perturbée au niveau des premiers stades de la croissance, peu favorable à une mise en ordre optimale de l'alliage (voir chapitre 1.6). Cette hypothèse conduit à envisager l'obtention d'une couche de FePt interfaciale de paramètre de maille latéral voisin de celui de l'alliage désordonné ($a \sim 3,80 \text{ \AA}$), ce qui pourrait expliquer la distance moyenne mesurée entre les dislocations.

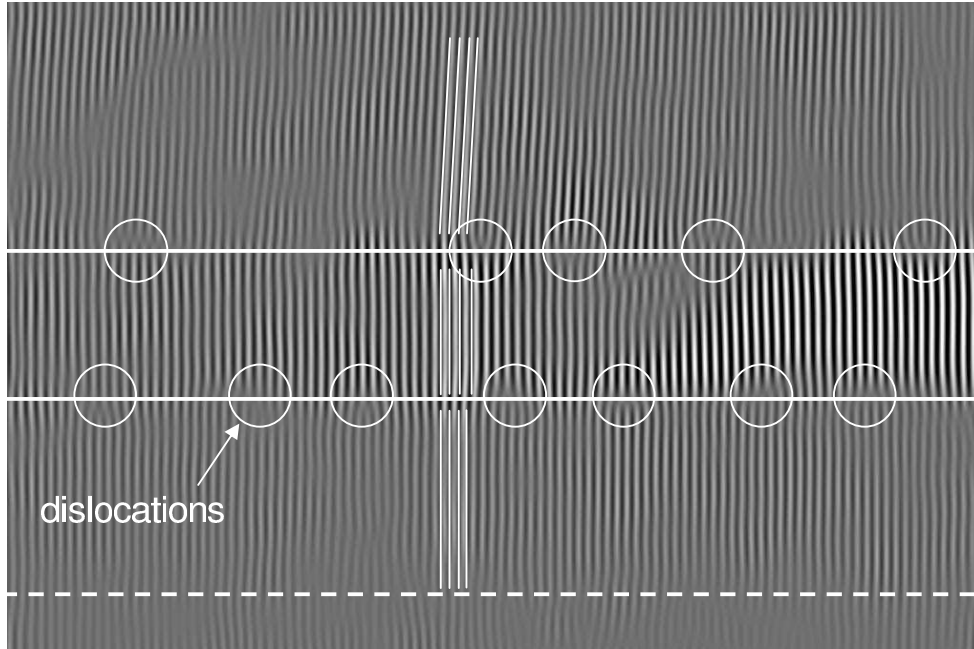


FIG. 3.23: Section transverse de la structure JTM. Sur la figure de gauche, le désalignement des axes cristallographiques de l'électrode supérieure est observé. La figure de droite consiste en un filtrage de Bragg des plans (010) : les dislocations sont repérées par les cercles blancs.

3.5 Conclusion globale sur les propriétés structurales

La croissance de l'intégralité de l'empilement correspondant à la structure JTM se fait cube sur cube sur le substrat de MgO(100). Ceci amène à considérer le processus de relaxation des contraintes au niveau de chacune des couches « utiles », *ie* les deux électrodes et la barrière tunnel :

- la croissance de la première électrode de FePt se fait de façon complètement contrainte sur la couche tampon de platine,
- la barrière de MgO et la seconde électrode de FePt croissent de façon complètement relaxée.

Nous observons le même mécanisme de relaxation des contraintes épitaxiales au niveau des deux interfaces entre les électrodes et la barrière tunnel, consistant en un réseau de dislocations parfaites. Il faut alors s'interroger sur l'impact de ces dernières sur le transport polarisé en spin : les défauts d'interface peuvent occasionner un renversement du spin des électrons [STRO02], et devraient perturber localement le filtrage électronique par une barrière tunnel épitaxiée. Toutefois, cette prédiction pessimiste est à nuancer par le fait que les récentes mesures de TMR réalisées sur des systèmes épitaxiés ont donné de très bons résultats, malgré la présence avérée de dislocations aux interfaces entre la barrière et les électrodes [YUA04b], [FAU04].

Pour ce qui est de la mise en ordre structurale, les propriétés des électrodes sont très bonnes « en volume », les paramètres d'ordre de chacune d'elle indiquant une bonne mise en ordre dans la structure $L1_0$ (avec un paramètre d'ordre chimique $S=0,9$ pour l'électrode inférieure et $S=0,7$ pour l'électrode supérieure). Un point d'interrogation subsiste néanmoins à propos des propriétés des électrodes au niveau des interfaces avec la barrière. Ce sont celles ci qui vont jouer un rôle déterminant dans le transport tunnel polarisé en spin (voir chapitre 2) et il semblerait que la mise en ordre dans la phase $L1_0$ soit localement moins bonne au niveau de l'interface FePt(10nm)/MgO.

Chapitre 4

Couplage magnétique entre électrodes

Dans ce chapitre, nous décrivons l'ensemble des propriétés magnétiques observées sur la structure FePt/MgO/FePt prise globalement, c'est à dire comportant les deux couches ferromagnétiques potentiellement en interaction. Nous avons mené une étude des différents phénomènes de renversement d'aimantation ayant lieu lors du parcours de cycles d'aimantation majeurs et mineurs.

En dressant l'état de l'art sur les jonctions tunnel magnétiques, on ne trouve que très peu de résultats sur des jonctions comportant des électrodes à aimantation perpendiculaire. De tels systèmes ont pourtant un grand intérêt. En effet, le passage à l'aimantation perpendiculaire est envisagé - pour de futures générations de mémoires MRAM (*Magneto Resistive Random Access Memory*) - pour l'obtention de systèmes de très haute densité, en particulier car cette géométrie permet l'utilisation de couches plus épaisses et donc présentant un volume ferromagnétique plus important (d'où une plus grande stabilité thermique). D'autre part, cette géométrie permet la mise en oeuvre de l'effet Hall extraordinaire comme moyen de détection électrique du renversement d'aimantation de l'une des couches, ce qui pourrait trouver un intérêt dans des dispositifs à propagation de parois. Cependant, la nécessité de vaincre l'effet de forme pour établir une aimantation perpendiculaire conduit naturellement à la mise en oeuvre de matériaux présentant une forte anisotropie. Les couches minces correspondantes présentent généralement un champ coercitif élevé, ce qui n'est pas souhaitable pour l'électrode douce d'une mémoire. Cet inconvénient pourrait être surmonté par la mise en oeuvre de procédures d'enregistrement thermiquement assisté [SOU99] ou de spin-torque [SLO96] pour générer le renversement d'aimantation.

À notre connaissance, le seul résultat concernant des jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire a été obtenu par Nishimura *et al.* avec un système d'électrodes GdFeCo et TbFeCo associées - via des couches interfaciales de CoFe(1nm) - à une barrière tunnel en alumine [NIS02]. Ce groupe a publié un résultat de TMR (*Tunneling MagnetoResistance*) de 55% à température ambiante sur cette structure.

Il semblerait que cette quasi-absence de résultats soit due en partie aux difficultés rencontrées dans la réalisation d'un système multiniveaux de couches à aimantation perpendiculaire. Tout comme en aimantation planaire, les flux créés par les domaines magnétiques d'un système à aimantation perpendiculaire, se bouclent inévitablement d'une couche sur l'autre.

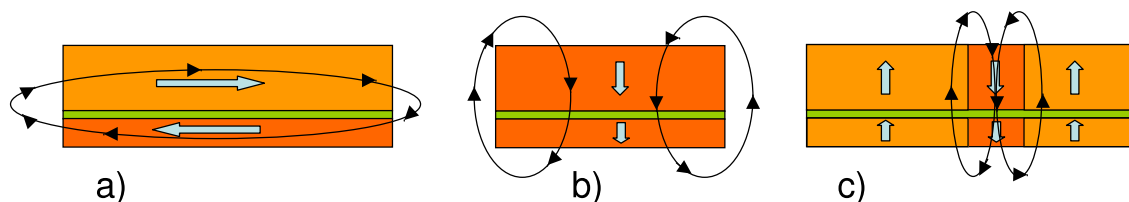


FIG. 4.1: Bouclage des champs de fuite rayonnés par des structures à aimantation planaire (figure a) ou perpendiculaire (figures b et c).

Tant dans les systèmes planaires que perpendiculaires, l'obtention d'un bon découplage entre les aimantations des deux électrodes est indispensable à une mise en oeuvre pratique. En aimantation planaire, pour des couches non infinies, les lignes de champ se rebouclent entre les deux électrodes, générant un couplage antiferromagnétique, d'autant plus important pour des structures de petites dimensions (voir figure 4.1 a)). Ce couplage antiferromagnétique se traduit par un décalage en champ du cycle d'hystérésis

de l'électrode douce, en fonction de l'état d'aimantation de l'électrode dure. En aimantation perpendiculaire, le couplage entre des électrodes uniformément aimantées est ferromagnétique aux petites dimensions (voir figure 4.1 b)). Cette situation a été observée par Baltz *et al.* dans une vanne de spin à aimantation perpendiculaire (sur un système de multicouches Co/Pt) [ROD06] [BAL05]. Le phénomène est plus complexe dans des couches continues en présence de domaines magnétiques, où l'on peut s'attendre à une réplique des configurations en domaines magnétiques entre les deux électrodes (voir figure 4.1 c)).

Lors de processus dynamiques, et tout particulièrement lorsque l'aimantation de l'électrode douce est cyclée un grand nombre de fois (processus d'écriture de l'information magnétique), des processus plus complexes ont été mis en évidence par Gider *et al.* [GID98] pour une vanne de spin à aimantation planaire. En effet, une démagnétisation progressive de l'électrode dure a été observée, pour des champs externes appliqués bien inférieurs au champ coercitif de cette dernière. L'explication tient dans le mécanisme de renversement, par propagation de parois magnétiques, lesquelles créent un champ important à leur aplomb dans la seconde électrode : le passage répété des parois dans l'électrode douce entraîne ainsi une désaimantation progressive de l'électrode dure.

Dans ces deux configurations d'aimantation planaire [LEW03] ou perpendiculaire [WIE05], l'analyse expérimentale détaillée ou l'imagerie par microscopie à force magnétique (MFM) ont montré que l'interaction magnétostatique entre les deux électrodes pouvait conduire à des structures à domaines magnétiques « en miroir », où l'une des deux couches ferromagnétiques réplique la configuration en domaines de l'autre.

Notons cependant une différence notable dans la physique mise en jeu : dans le cas d'une aimantation planaire, le champ de fuite est maximal au niveau des parois magnétiques : dans le cas d'une paroi de Néel, le champ est rayonné essentiellement dans le plan du film, perpendiculairement à la paroi. Dans le cas d'une aimantation perpendiculaire, le champ de fuite est également maximal au niveau des parois, mais il est rayonné hors du plan du film (voir figure 4.1 c)). Il est planaire à l'aplomb de la paroi.

Pour conclure ce tour d'horizon de la littérature, soulignons à nouveau la quasi absence de résultats sur des systèmes jonctions tunnel à aimantation perpendiculaire (les travaux cités précédemment concernent des vannes de spin). Notons également que les travaux de Baltz *et al.* concernent des matériaux à faible M_s ($M_s = M_{Co} \cdot e_{Co} / (e_{Co} + e_{Pt})$; $M_s \sim 340 \text{ kA/m}$ [BAL05]), ce qui favorise un couplage modéré par l'action du champ dipolaire.

Qu'en est-il de notre système, FePt/MgO/FePt ? Par comparaison aux travaux publiés sur les vannes de spin, il combine plusieurs difficultés :

- la croissance d'une phase chimiquement ordonnée, qui exige une qualité structurale bien maîtrisée, tout particulièrement en ce qui concerne l'orientation cristallographique du substrat. L'établissement d'un ordre chimique élevé est la condition de l'apparition de l'anisotropie magnétocristalline, et donc de l'aimantation perpendiculaire,
- des électrodes épaisses (5 et 10nm) à aimantation rémanente élevée ($M_s = 1040 \text{ kA/m}$), d'où un champ dipolaire important, qui peut être source de couplage dans le cas de nanostructures ou de configurations en domaines magnétiques (le rayonnement d'un film uniformément aimantée étant nul),
- enfin, l'espaceur non magnétique, pour permettre un transport appréciable par effet tunnel doit être mince (typiquement $< 3 \text{ nm}$), ce qui accroît encore la probabilité d'un couplage dipolaire entre les électrodes

Sauf indication explicite, la structure des échantillons étudiés dans ce chapitre est Pt_{6nm} / FePt_{10nm} / MgO_{3nm} / FePt_{5nm} / Pt_{60nm} / Cr_{3nm} / MgO (100). Les différentes mesures magnétiques ont été réalisées par MFM, effet Kerr et VSM.

4.1 Propriétés magnétiques générales de la JTM FePt/MgO/FePt

4.1.1 Cycle d'aimantation majeur (entre deux états d'aimantation saturés)

Les cycles d'aimantation des échantillons ont été réalisés à température ambiante par Effet Kerr Polaire (PMOKE) et à l'aide d'un Magnétomètre à Echantillon Vibrant (VSM) afin d'obtenir une estimation quantitative des aimantations mises en jeu.

Sur la figure 4.2 a), nous présentons une mesure d'aimantation en fonction du champ appliqué ($M(H)$), mesure réalisée par effet Kerr polaire, avec en encart la courbe dérivée associée $\frac{dM}{dH} = f(H)$. Celle-ci permet de visualiser plus clairement les champs de « décrochage », coercitif et de saturation de chacune des

deux couches ferromagnétiques.

Nous pouvons remarquer ici que les deux électrodes sont parfaitement rémanentes, l'aimantation du système sous champ nul étant égale à l'aimantation à saturation. Il y a deux sauts d'aimantation bien séparés, ce qui donne accès aux configurations d'aimantations parallèles et antiparallèles. Le cycle est aussi parfaitement symétrique par rapport au champ nul.

Il y a donc une absence de couplage décelable entre les couches magnétiques de la structure JTM lors d'un cycle d'aimantation majeur. Le tableau 4.1 regroupe les principaux champs caractérisant le cycle d'aimantation présenté sur la figure 4.2 a). Les valeurs exactes de ces champs varient légèrement d'un échantillon à l'autre.

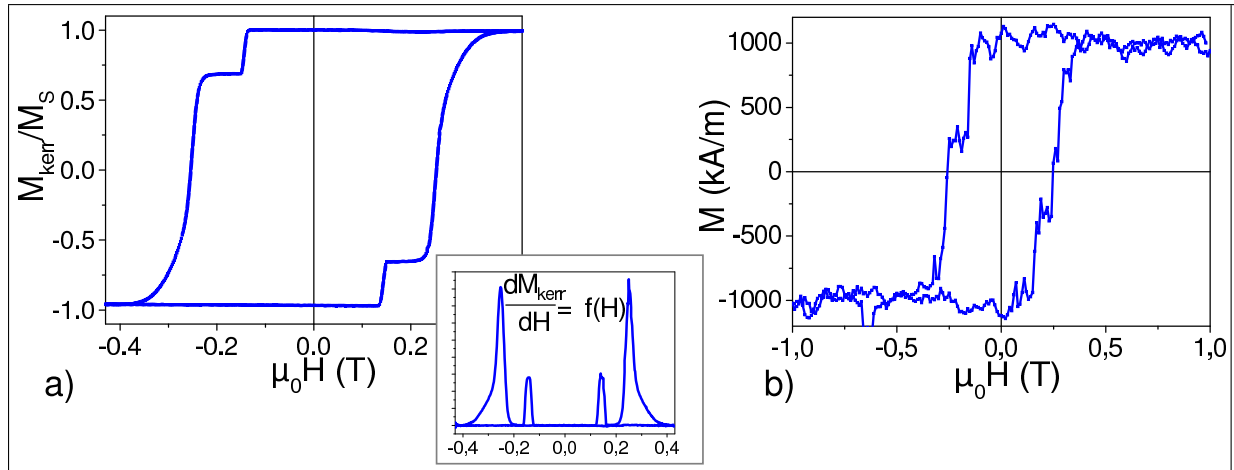


FIG. 4.2: Cycle d'aimantation majeur d'une structure $\text{FePt}_{10\text{nm}}/\text{MgO}_{3\text{nm}}/\text{FePt}_{5\text{nm}}$, mesuré par Effet Kerr Polaire (figure a) et VSM (figure b)), H étant perpendiculaire au plan des couches. Par effet Kerr Polaire, le signal mesuré (M_{kerr}) ne correspond pas exactement à l'aimantation de la structure, le signal de la couche enterrée étant plus faible que le signal de la couche supérieure.

| | $\mu_0 H_d$ (en T) | $\mu_0 H_c$ (en T) | $\mu_0 H_{\text{sat}}$ (en T) |
|------------------------------------|--------------------|--------------------|-------------------------------|
| SL ($\text{FePt}_{5\text{nm}}$) | 0,121 | 0,143 | 0,165 |
| HL ($\text{FePt}_{10\text{nm}}$) | 0,180 | 0,245 | 0,390 |

TAB. 4.1: Principaux champs de renversement associés à chacune des deux électrodes, estimés à partir de la courbe $M(H)$ décrivant un cycle majeur.

Sur la figure 4.2 a), il apparaît nettement que les amplitudes relatives des deux sauts d'aimantation ne sont pas reliées aux épaisseurs des couches ferromagnétiques, c'est-à-dire 5nm pour la couche inférieure et 10nm pour la couche supérieure, ce qui devrait nous donner un rapport des amplitudes de un pour deux. En effet, la mesure effectuée est une mesure optique, dans laquelle la couche supérieure ($\text{FePt}_{10\text{nm}}/\text{MgO}$), directement exposée au faisceau laser, est vue de façon moins atténuée que la couche inférieure. La figure 4.2 b) donne une mesure d'aimantation $M(H)$ absolue, réalisée au VSM, qui permet de vérifier ce bon rapport des amplitudes.

L'électrode inférieure, $\text{FePt}_{5\text{nm}}/\text{Pt}$, a le champ coercitif le plus faible et sera qualifiée de couche douce (SL pour *Soft Layer*). Dans un dispositif JTM, c'est l'électrode qui est censée assurer la détection de champ magnétique extérieur (cas d'une tête de lecture) ou permettre l'écriture de l'information (cas des MRAM) en renversant son aimantation pour ainsi conduire aux configurations parallèle et antiparallèle. L'électrode supérieure, $\text{FePt}_{10\text{nm}}/\text{MgO}$, de champ coercitif plus fort, sera qualifiée de couche dure (HL pour *Hard Layer*). Dans un dispositif JTM, cette électrode doit rester insensible au champ magnétique extérieur.

La valeur de M_s du système a été mesurée à l'aide d'un VSM. M_s est de l'ordre de 1000kA/m, ce qui est proche des valeurs habituellement rapportées pour un alliage FePt stoechiométrique (par exemple un M_s de 1140kA/m a été rapporté par Weller [WEL99]).

4.1.2 Aimantation et désaimantation de la structure

Courbes de première aimantation et de désaimantation

Partant d'un échantillon « brut de dépôt », sans histoire magnétique, la *première aimantation* consiste à l'amener à saturation. Sur la figure 4.3a), nous superposons au cycle d'hystérésis majeur présenté en 4.1.1 la courbe de première aimantation (en pointillés) du système.

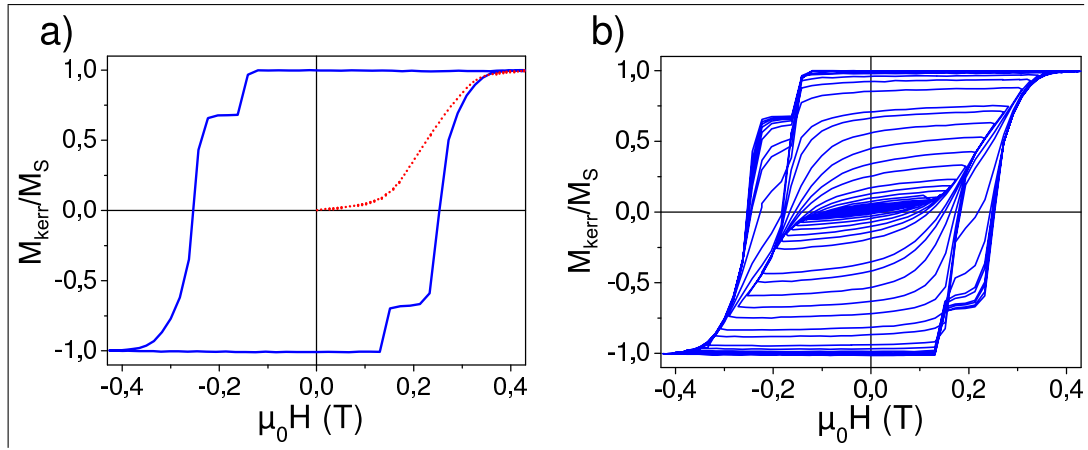


FIG. 4.3: a) Courbe de première aimantation (en pointillés) du système étudié.
b) Courbe de désaimantation du même échantillon (Effet Kerr Polaire).

Le cycle majeur est d'allure carrée et révèle un renversement successif des deux électrodes, saturées vers 0,4T, avec une rémanence de 100% en champ nul. Nous observons deux sauts d'aimantation abrupts pour des champs coercitifs bien distincts, la courbe d'aimantation $M(H)$ étant parfaitement plane entre le champ de saturation de la couche douce $H_{\text{sat,SL}}$ et le champ de décrochage de la couche dure $H_{\text{d,HL}}$.

Cependant, la courbe de première aimantation ne témoigne en aucune façon de la présence de deux couches ferromagnétiques différentes : un seul saut d'aimantation est observé, ce qui est une indication d'interactions magnétostatiques intenses entre les deux couches ferromagnétiques. En partant d'un état désaimanté, un champ appliqué de l'ordre du champ de saturation de la couche douce $H_{\text{sat,SL}}$ ne suffit pas à saturer cette dernière. On peut faire l'hypothèse que les domaines magnétiques \uparrow et \downarrow (« up » et « down ») présents dans la couche dure rayonnent un champ magnétique suffisamment intense pour « bloquer » magnétiquement un certain nombre de domaines de la couche douce et ainsi empêcher cette dernière de parvenir à l'état saturé. Ce résultat est comparable à ce qu'avait obtenu Baltz [BAL05] sur des systèmes multiniveaux à base de Co/Pt : en fonction de l'épaisseur de la couche dure et par là de l'intensité du champ magnétique que rayonnent les domaines magnétiques de cette dernière, la courbe de première aimantation peut présenter un ou deux sauts d'aimantation.

La figure b) représente la courbe de désaimantation du même échantillon, c'est à dire le suivi (ici par Effet Kerr Polaire) de l'aimantation lorsqu'un champ magnétique alternativement positif puis négatif, d'amplitude décroissante, est appliqué suivant une direction facile d'aimantation (ici perpendiculaire au plan des couches). Cette courbe permet de visualiser un effet de couplage magnétostatique entre les deux couches ferromagnétiques : pour un champ $H_{\text{appliquée}} > H_{\text{sat,SL}}$, on ne voit pas toujours un saut net correspondant au renversement d'aimantation de la couche douce SL.

Lorsque la couche dure HL est complètement saturée, elle ne rayonne aucun champ magnétique et n'a donc aucune influence sur le renversement d'aimantation de la couche douce. En revanche, si HL n'est pas complètement saturée, il existe au sein de cette couche des domaines magnétiques \uparrow et \downarrow qui entraînent l'apparition d'un champ rayonné dans l'espace, en particulier au niveau de SL : le champ de fuite rayonné va pouvoir influencer sur le retournement de cette électrode. Pour une couche magnétique à aimantation perpendiculaire, le champ rayonné est le plus intense au niveau des parois magnétiques, pour décroître progressivement en s'en éloignant (voir paragraphe 4.3.3). L'amplitude du champ de fuite moyen rayonné va donc dépendre de la taille des domaines magnétiques (autrement dit de la quantité de parois mises en jeu). Dans notre cas, ceci va se traduire par un couplage plus ou moins fort entre les deux couches ferromagnétiques suivant l'état d'aimantation de HL : lorsque HL est presque complètement saturée, les domaines magnétiques mis en jeu sont majoritairement de grande taille et le nombre de parois de

domaines est minimisé. Le champ de fuite rayonné est alors faible et n'a pour seul effet que de décaler le champ coercitif de la couche douce. Plus HL se désaimante ($\frac{M}{M_s} \rightarrow 0$), plus le couplage entre les deux couches s'accroît. Il n'y a alors plus qu'un seul champ coercitif, les deux couches se comportant comme si elles ne formaient qu'une seule couche ferromagnétique. Les différents états de couplage magnétostatique seront décrits plus en détail au paragraphe 4.4.

Etats non-aimantés

Les deux exemples présentés dans cette partie (état magnétique *brut de dépôt*, état magnétique *désaimanté*) permettent de visualiser un effet d'interaction entre les deux électrodes ferromagnétiques de la structure.

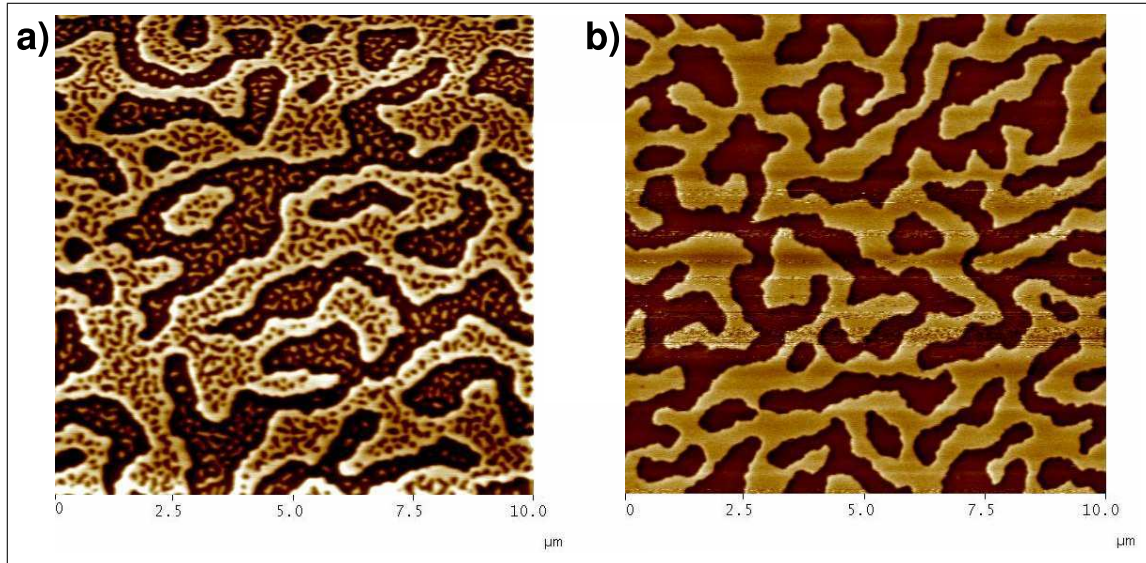


FIG. 4.4: Images MFM de taille $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$

a) Echantillon JTM $\text{FePt}(10\text{nm})/\text{MgO}(3\text{nm})/\text{FePt}(5\text{nm})/\text{Pt}$ dans un état « brut de dépôt »

b) Echantillon témoin $\text{FePt}(5\text{nm})/\text{Pt}$ (couche ferromagnétique unique) dans un état « brut de dépôt ».

La figure 4.4 a) présente une image par microscopie MFM d'un de nos échantillon JTM dans un état brut de dépôt, c'est à dire avant qu'il n'ait connu la moindre histoire magnétique. Les configurations magnétiques observées correspondent à un état hors équilibre, obtenu à l'issue de la croissance.

Lors de l'acquisition de l'image MFM, la pointe magnétique sonde les flux émanant des domaines de la couche inférieure comme de la couche supérieure. Sur les images ci-dessus, un seul contraste d'intensité est observé - les domaines magnétiques sont clairs (aimantation \uparrow) ou sombres (aimantation \downarrow). Cette absence de modulation d'intensité des domaines observés peut indiquer soit qu'une seule électrode est imagée (le flux rayonné par l'électrode inférieure étant trop faible), soit qu'il y a réplication de domaines magnétiques d'une couche sur l'autre. En pratique, nous visualisons sur ce système de façon reproductible - et ce quelle que soit la pointe MFM utilisée - des contrastes intermédiaires correspondant à des états magnétiques ($\text{SL}\downarrow/\text{HL}\uparrow$) ou ($\text{SL}\uparrow/\text{HL}\downarrow$). Nous en verrons ainsi un exemple dans le paragraphe 4.2.2. Ceci permet de valider la deuxième hypothèse : ici, l'absence de contraste intermédiaire permet de conclure à une superposition des configurations domaines des couches douce et dure.

Nous observons sur cette figure 4.4 a) un phénomène d'instabilité de forme des domaines magnétiques, qui s'apparente à ce qui a été décrit par Samson *et al.* sur des couches simples de FePd [SAM99] : du fait de l'histoire magnétique particulière liée à la croissance de l'échantillon, il y a superposition de deux tailles de domaines magnétiques très différentes l'une de l'autre. Notamment, on reconnaît sur cette image des domaines magnétiques dont la forme et les dimensions importantes sont semblables à ce qui est imagé sur une couche magnétique unique $\text{FePt}(5\text{nm})/\text{Pt}$ prise dans un état brut de dépôt (figure 4.4 b)).

L'explication de ce phénomène tient au fait que les domaines magnétiques apparaissent dès les premières étapes de la croissance, pour de très faibles épaisseurs de matériau déposé. Ainsi, dans une couche

de FePd, ils ont pu être imagés par MFM à partir de 1,4 nm d'épaisseur [SAM99], c'est à dire environ 4 monocouches déposées. Dans une couche de FePt, nous avons pu constater l'apparition de domaines magnétiques pour des épaisseurs d'alliage inférieures à 2nm. D'après le modèle de Kaplan [KAP93], dans le cas de matériaux à forte anisotropie perpendiculaire¹, ces domaines créés en cours de croissance vont correspondre à des configurations de grande période.

Kaplan a relié la taille d'équilibre d de domaines magnétiques à l'épaisseur h des couches minces (dans le régime $d \gg h$) selon la relation :

$$\ln\left(\frac{d}{h}\right) = \frac{\pi \cdot D_0}{2h} + C.$$

où $D_0 = 2\sigma_w / (\mu_0 M_s^2)$, C étant une constante, D_0 la longueur dipolaire et σ_w le coût en énergie par unité de surface d'une paroi de domaine.

D'après cette relation, d va décroître quand l'épaisseur h de matériau déposé va augmenter. Ici, l'électrode supérieure en début de croissance va ressentir le champ de fuite créé par les larges domaines magnétiques de l'électrode douce (taille d'équilibre 3 à 4 μm) séparée par les 3nm de barrière tunnel. Un phénomène de réplication de domaines magnétiques va alors se produire, *ie* les domaines formés au sein de l'électrode supérieure après quelques nanomètres de dépôt vont présenter la même morphologie que ceux de l'électrode douce. Ensuite, le dépôt se poursuivant, l'augmentation de l'épaisseur de l'électrode supérieure doit provoquer, d'après la formule de Kaplan, une décroissance exponentielle de la taille d'équilibre des domaines magnétiques, taille à laquelle les domaines précédemment formés cherchent à s'adapter². De ce fait, les domaines initialement apparus sont fortement hors d'équilibre car trop grands. La diminution de la distance moyenne entre parois est alors possible soit par instabilité de forme des parois initialement formées (apparition d'ondulations, de digitations [SAM99]) soit par nucléation de nouveaux domaines à l'intérieur des domaines existants.

Notons que c'est un phénomène qu'il n'est plus possible d'observer une fois que l'échantillon a été exposé à des champs magnétiques. Cette configuration magnétique a l'intérêt de nous montrer dès maintenant que l'électrode inférieure, de faible épaisseur, a une influence sur les domaines magnétiques de l'électrode supérieure en cours de croissance.

Lorsque le même échantillon est imagé après avoir subi un cycle de désaimantation (figure 4.5), on observe une seule configuration de domaines, de taille caractéristique 350 nm. Ceci illustre bien le couplage magnétostatique entre les deux électrodes ferromagnétiques à l'oeuvre au cours de la procédure de désaimantation présentée dans la figure 4.3 b).

Cet échantillon a ensuite été gravé jusqu'au niveau de la barrière tunnel MgO, sur toute sa surface à l'exception de plots circulaires. Une image MFM prise autour d'un de ces plots est montrée en 4.6 : Au niveau du plot, la totalité de la structure FePt/MgO/FePt/Pt est toujours présente. Nous retrouvons la même configuration de domaines que celle présentée sur l'image 4.5 (avec en rajout quelques poussières non magnétiques). L'absence de tout contraste d'intensité nous indique qu'il y a réplication des domaines magnétiques d'une couche sur l'autre.

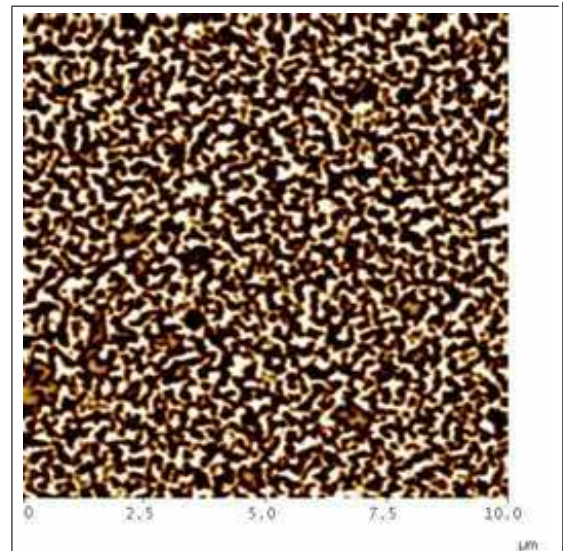


FIG. 4.5: image MFM (taille $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$) de l'échantillon déjà imagé dans la figure 4.4, après un cycle de désaimantation.

Autour du plot, le seul matériau ferromagnétique encore présent est la couche douce FePt(5nm)/Pt, ce qui nous permet de comparer immédiatement les configurations de domaines des deux électrodes. Les

¹ayant un facteur de qualité $Q = 2K_u / \mu_0 M_s^2 > 1$. Pour FePt, $K_u = 5.10^6 \text{ J/m}^3$ et $M_s = 1,04.10^6 \text{ A/m}$ donc $Q=7,4$.

²Notons que la température de croissance nominale de l'électrode supérieure est 500°C (donnée par un thermocouple en contact avec le molybde), c'est à dire qu'elle est censée être légèrement supérieure à la température de Curie du matériau ($T_C \sim 470^\circ\text{C}$ [WEL99]). Le fait de pouvoir observer ce phénomène d'instabilité de forme indique que la température en surface de l'échantillon est inférieure de quelques dizaines de degrés à ce qui était attendu.

domaines imagés autour du plot sont parfaitement semblables à ce qui est observé sur une couche unique FePt(5nm)/Pt prise dans un état désaimanté (voir chapitre 1.5.2). Notons surtout les tailles très différentes des domaines stabilisés dans la couche douce et dans la structure complète. Cette grande différence dans les morphologies d'équilibre joue un rôle essentiel dans les phénomènes de couplage/découplage entre les électrodes. Nous reviendrons sur ce point un peu plus loin dans ce chapitre.

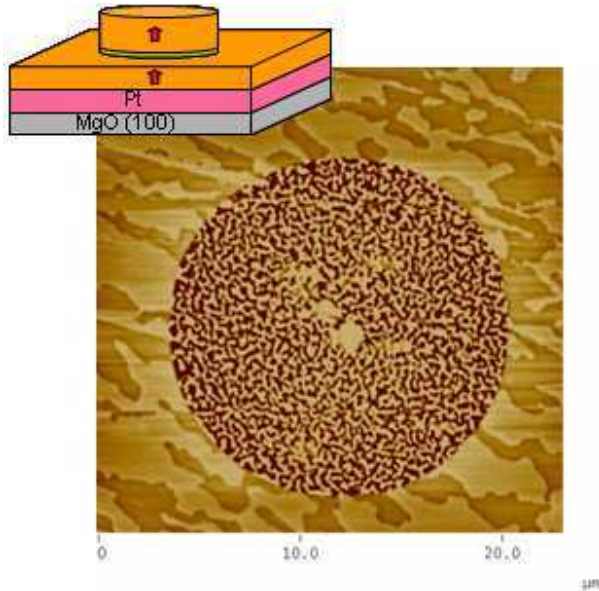


FIG. 4.6: Image ($22,5\mu\text{m} \times 22,5\mu\text{m}$) par microscopie MFM de la structure FePt/MgO/FePt/Pt dans un état désaimanté. L'échantillon est gravé sur toute sa surface jusqu'au niveau de la barrière tunnel, sauf au niveau de quelques plots circulaires, tels que celui imagé ici (une poussière est présente au centre du plot).

4.2 Imagerie magnétique des différents états magnétiques observés lors d'un cycle majeur

Partant de cette étude préliminaire, nous avons essayé de comprendre les mécanismes permettant un renversement indépendant (découplage) de nos électrodes lors de la description d'un cycle d'aimantation majeur, et ce malgré la présence d'interactions magnétostatiques intenses entre les deux couches ferromagnétiques de la structure JTM. En nous servant de la propriété de rémanence totale de nos échantillons, nous avons suivi par effet Kerr le renversement d'aimantation de nos échantillons pour atteindre l'état d'aimantation désiré. Ensuite, après retour à champ nul, lequel ne modifie pas l'aimantation, nous avons imagé par MFM les configurations magnétiques ainsi obtenues, c'est à dire correspondant à diverses étapes du renversement d'aimantation des électrodes ferromagnétiques. Ainsi, nous pouvons avoir un éclairage sur les mécanismes en oeuvre responsables du couplage ou du découplage des aimantations.

4.2.1 États saturés

Le principe du MFM est détaillé dans le paragraphe 1.4.2. Rappelons seulement que c'est le champ de fuite rayonné par l'échantillon qui est détecté par la pointe. Ainsi, l'image magnétique d'une couche complètement saturée ne présente pas de contraste d'intensité.

L'imagerie par MFM d'un échantillon JTM pris dans un état saturé va nous permettre de visualiser des défauts de saturation - des zones où l'aimantation reste piégée dans un état non-renversé malgré l'application à l'échantillon d'un champ magnétique supérieur à son champ de saturation macroscopique - ce qui nous facilitera l'interprétation des images associées à des états magnétiques divers.

Etat saturé (SL↑/HL↑)

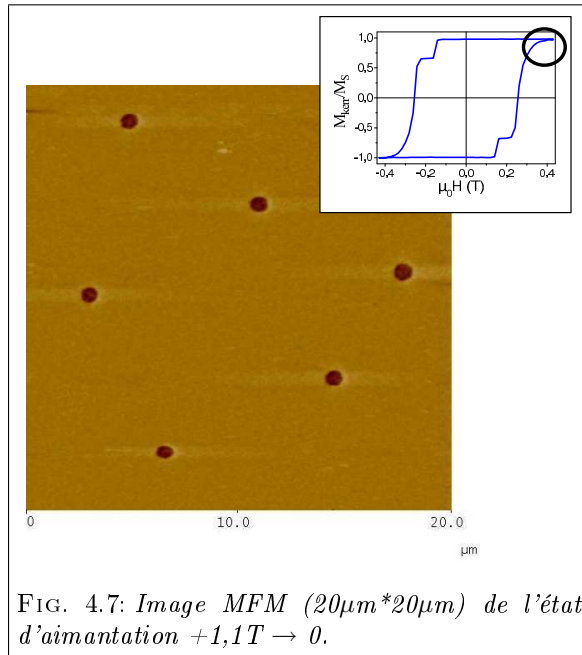


FIG. 4.7: Image MFM ($20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$) de l'état d'aimantation $+1,1\text{T} \rightarrow 0$.

Une image MFM d'un échantillon amené dans l'état magnétique saturé « $+1,1\text{T}$ » correspondant à une configuration des aimantations (SL↑/HL↑) est présentée sur la figure 4.7. On observe sur cette image un certain nombre de défauts magnétiques, ne correspondant pas à la configuration majoritaire ↑/↑. ces défauts ont une forme en bulle « géante », de diamètre caractéristique *apparent* 650nm (avec une distribution de taille faible), que l'on observe même après avoir préalablement amené l'échantillon à 7T au lieu de $1,1\text{T}$ (Rappelons que l'image est toutefois prise à champ nul). Notons que la taille apparente des défauts obtenus par imagerie MFM (qui occupent en apparence $0,5\%$ de l'image) ne correspond pas nécessairement à la dimension réelle de ces bulles magnétiques. En effet, la convolution entre l'aimantation de la pointe et le champ magnétique « émis » par les bulles peut conduire à une sur-estimation de leur diamètre. La valeur mesurée MFM (650nm) doit donc être considérée comme une borne supérieure de la dimension réelle.

Etat saturé (SL↓/HL↓)

A la fin du renversement de l'aimantation de la couche dure, *ie* lorsque l'état magnétique (SL↓/HL↓) est atteint, on retrouve ces défauts de saturation avec un contraste d'intensité inversé et une même distribution de taille. Alexandra Mougin, du Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay, a réalisé sur une structure JTM une étude d'imagerie par microscopie basée sur l'effet Kerr polaire magnéto-optique (PMOKE pour *Polar Magneto-Optical Kerr Effect*), dont les résultats sont présentés dans le paragraphe 4.5 de ce chapitre. La résolution de son dispositif de mesure étant de l'ordre de $0,4\mu\text{m}$, elle a pu observer ces défauts de saturation et constater qu'ils apparaissent aux mêmes positions dans les états (SL↑/HL↑) et (SL↓/HL↓). Ce qui conforte l'idée selon laquelle ces défauts magnétiques seraient liés à des défauts de structure.

En ce qui concerne les images MFM, rappelons que c'est le champ de fuite au niveau de la pointe qui est détecté et non pas directement

l'aimantation de l'échantillon. Ainsi, un domaine sombre (respectivement clair) sur une image MFM n'indique pas nécessairement la présence d'une aimantation ↓. Il peut très bien s'agir d'une absence d'aimantation (ou d'une aimantation moins forte, ou renversée dans le plan) par rapport à un environnement fortement aimanté ↑ (respectivement ↓).

Ici, le fait de retrouver des défauts d'aimantation, qu'il n'est pas possible de « saturer », aux mêmes positions dans les deux états saturés d'aimantations opposées corrobore l'hypothèse selon laquelle il s'agirait de zones non-magnétiques - hypothèse peu probable, car cette zone contient des atomes de fer - ou

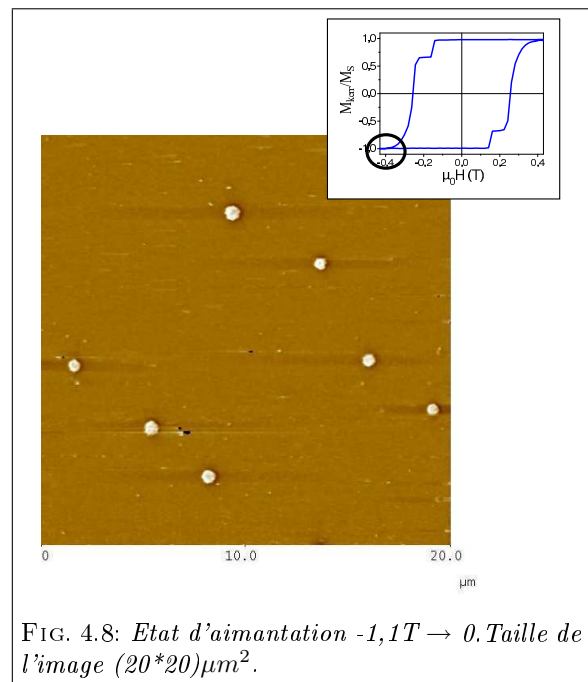


FIG. 4.8: Etat d'aimantation $-1,1\text{T} \rightarrow 0$. Taille de l'image (20×20) μm^2 .

de faible anisotropie. Dans ce cas, c'est le champ de fuite de l'ensemble de la couche mince qui s'engouffre localement au niveau des défauts et fixe leur direction d'aimantation apparente dans une direction opposée à celle de l'ensemble de la couche.

Le processus expérimental utilisé pour les mesures décrites dans les prochains paragraphes est le suivant : l'échantillon est tout d'abord saturé en champ positif à $+1,1\text{T}$, bien au delà du champ de saturation macroscopique. Puis, sur le banc de mesure par effet Kerr, le champ magnétique est porté à un champ négatif H_{\min} correspondant à un état d'aimantation particulier ($\mu_0 H_{\min}$ allant de 0 à $-0,43\text{T}$). Enfin, le champ est coupé, la configuration magnétique restant figée dans l'état associé au champ H_{\min} considéré. En effet, au niveau macroscopique, il n'y a pas de variation d'aimantation lors du retour à $\mu_0 H_{\text{appliqué}}=0\text{T}$, nous pouvons donc supposer que la configuration en domaines magnétiques reste également essentiellement inchangée (microscopiquement, cette invariance est associée au piégeage des parois magnétiques). L'échantillon est alors imagé par MFM. Sauf indication explicite, afin de s'affranchir de tout problème d'inhomogénéité des propriétés magnétiques³, les images ont été volontairement réalisées sur la même région de l'échantillon, localisée à l'aide d'un défaut observé optiquement (une rayure sur l'échantillon). Chaque image MFM réalisée est ainsi associée à un cycle d'aimantation indiquant l'état magnétique de l'échantillon.

4.2.2 Renversement de l'électrode douce SL

Dans ce paragraphe, nous traitons des configurations magnétiques observées lors du renversement d'aimantation de la couche douce, la couche dure étant toujours saturée. A l'inverse, le paragraphe suivant décrira l'état magnétique de la couche dure en cours de renversement, la couche douce étant déjà saturée. Ces observations vont servir de préalable à l'étude sur le couplage entre les deux électrodes.

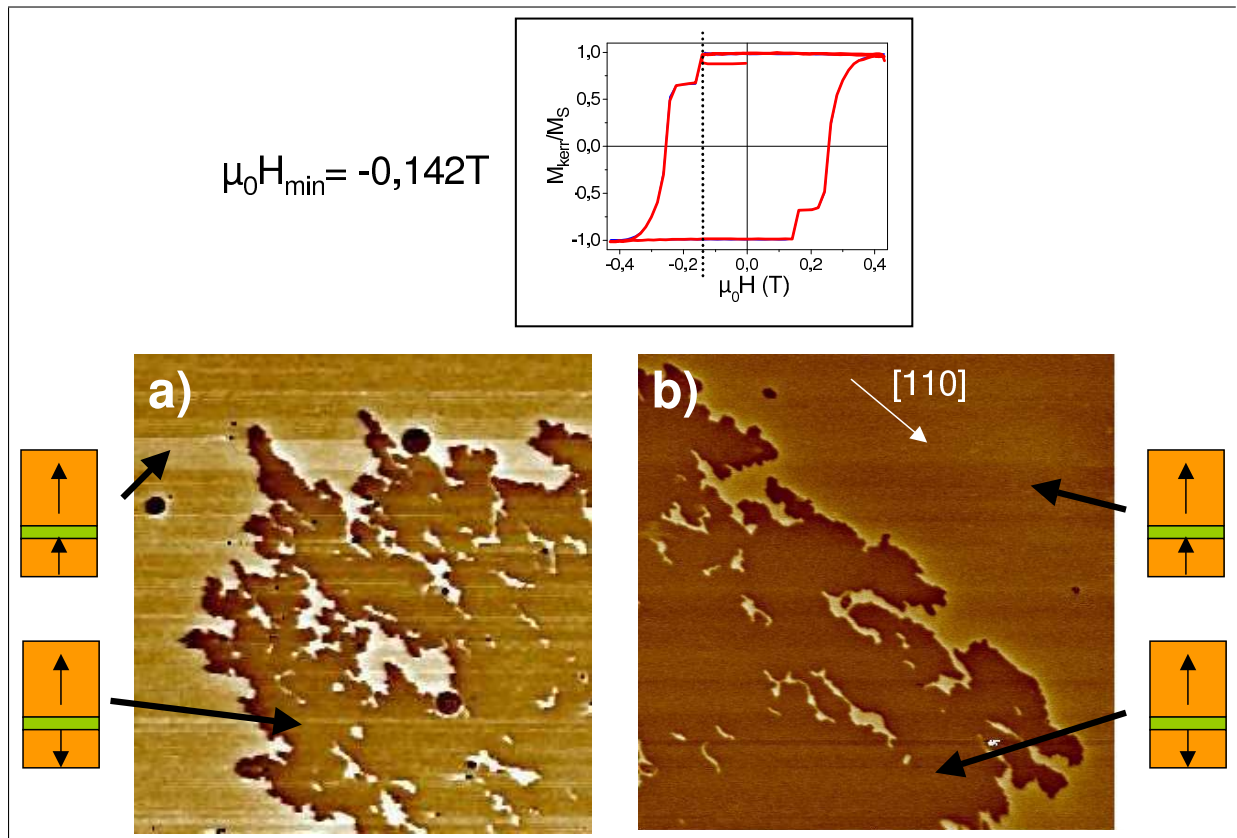


FIG. 4.9: Images MFM (taille $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$) correspondant à l'état d'aimantation $\mu_0 H_{\min} = -0,142\text{T}$. Les images a) et b) sont prises sur deux zones différentes. Le bord inférieur des images correspond à la direction cristallographique $[100]$.

³Une inhomogénéité pourrait résulter de possibles fluctuations spatiales en composition de la couche ferromagnétique.

Pour $|\mathbf{H}_{\min}| < |\mathbf{H}_{n,SL}|$, les images magnétiques des échantillons JTM ne montrent aucune évolution par rapport à ce qui est observé dans l'état saturé : il n'y a pas de nucléation visible de domaines magnétiques avant le champ de décrochage de la couche douce, ce qui montre la bonne rémanence du système au niveau microscopique. Les images présentées en figure 4.9 donnent la configuration en domaines magnétiques de la couche douce au milieu de son renversement d'aimantation. Les domaines magnétiques au niveau de l'électrode douce inférieure sont vus « par transparence », l'électrode dure supérieure étant saturée et ne rayonnant pas de champ de fuite. Les images a) et b) ont été prises sur deux zones différentes distantes de plusieurs centaines de micromètres.

Une fois le renversement d'aimantation ($SL\uparrow \rightarrow SL\downarrow$) initié, celui-ci est très abrupt. Ainsi, nous n'avons pas réussi à imager de site de nucléation au niveau de la couche douce. En effet, le renversement d'aimantation met en jeu la croissance d'un « unique » domaine magnétique aimanté $SL\downarrow$ qui « balaie » l'échantillon. Ainsi, nous observons une paroi de domaine principale, que nous avons pu suivre sur des centaines de micromètres, et qui correspond à une interface entre deux domaines semi-infinis, les zones renversée $SL\downarrow$ et non-renversée $SL\uparrow$ de l'échantillon.

Entre deux états magnétiques distincts du renversement d'aimantation, il faut se déplacer sur l'échantillon sur des distances macroscopiques (quelques millimètres) pour retrouver l'interface entre les deux zones $SL\uparrow$ et $SL\downarrow$.

L'image 4.9 b) illustre parfaitement ce phénomène : lors du renversement d'aimantation de la couche douce, la paroi magnétique se propageant divise l'échantillon en deux zones :

- une où l'aimantation est toujours $SL\uparrow$ et où il n'y a absolument aucune modification observable par rapport à l'état saturé. Les points « sombres » imagés correspondent aux défauts de faible anisotropie décrits dans le paragraphe précédent. Notons que ces derniers semblent bloquer localement le renversement d'aimantation de SL : les bulles sombres de l'image 4.9a) sont entourées d'une mince couronne aimantée $SL\uparrow$, au sein de la zone déjà renversée $SL\downarrow$ de la couche douce,
- une où l'aimantation est complètement renversée, à l'exception de quelques domaines magnétiques $SL\uparrow$ d'allure filiforme : l'existence de ces domaines, laissés en place après le passage de la paroi, est imputable à un désordre local au sein de la couche douce.

Cette paroi principale présente un profil dendritique. Sa forme résulte d'une compétition entre un phénomène de piégeage de la paroi par des défauts de structure, et l'élasticité de l'interface associée au coût en énergie de la paroi. Rappelons ici que la densité en énergie d'une paroi de Bloch est proportionnelle à $\sqrt{AK_u}$ [TRE99], où A est la constante d'échange du matériau et K_u son anisotropie uniaxiale⁴, ce qui nous donne une densité énergétique de paroi de $3,45 \cdot 10^{-5}$ J/m². Dans un système à forte anisotropie comme FePt, où l'énergie de paroi est élevée, le fait de laisser en place des domaines filiformes après le passage de la paroi principale indique donc un piégeage fort des parois magnétiques.

Sur l'image 4.9 b), l'anisotropie des parois de domaines est particulièrement bien visible. Elles sont ancrées suivant les directions $[110]$ et $[1-10]$ du cristal. À la lumière de ce qui est décrit au chapitre 1.5 dans les systèmes FePt/Pt, on en déduit que la propagation de la paroi dans l'électrode douce est guidée par un réseau de micromacles.

⁴Pour FePt, $A=6,9 \cdot 10^{-12}$ J/m et $K_u=5 \cdot 10^6$ J/m³ [ATT03].

4.2.3 Renversement de l'électrode dure HL

Au niveau du palier d'aimantation situé entre le champ de saturation de l'électrode douce $H_{\text{sat,SL}}$ et le champ de décrochage de l'électrode dure $H_{\text{d,HL}}$, le cycle d'aimantation de la structure est parfaitement horizontal (voir figure 4.2). Au niveau microscopique, la couche douce est complètement saturée. En revanche, au sein de la couche dure, l'image magnétique 4.10 nous informe que le champ de fuite sondé par la pointe MFM au niveau des défauts de faible anisotropie est différent de ce qui a été imagé dans un état saturé (voir figure 4.7) : l'état magnétique au centre du défaut a été altéré. Nous avons pu constater que cette modification était due au renversement d'aimantation au sein de la couche douce⁵, ce qui indiquerait qu'il s'agirait de zones plus facilement renversables. Notons qu'elles ne constituent aucunement des centres de nucléation privilégiés au niveau de l'électrode dure.

Nous n'avons constaté aucune évolution magnétique de la couche dure au niveau de ce palier d'aimantation.

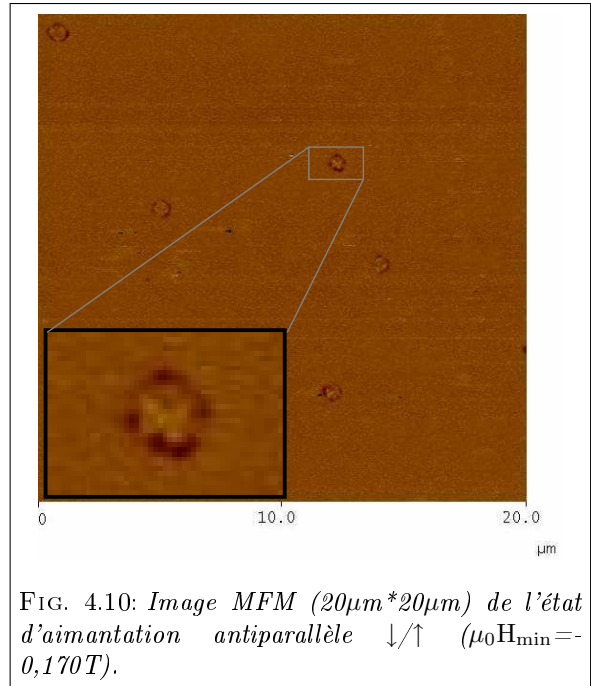


FIG. 4.10: Image MFM ($20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$) de l'état d'aimantation antiparallèle \downarrow/\uparrow ($\mu_0 H_{\text{min}} = -0,170\text{T}$).

La figure suivante (figure 4.11) décrit le renversement d'aimantation de la couche dure. Les différentes images correspondent chacune à un stade du renversement d'aimantation lors de la description du cycle d'aimantation majeur de la structure. Ici, le mécanisme de renversement est toujours dominé par la propagation de parois, mais celle-ci est beaucoup moins abrupte et la nucléation de domaines magnétiques renversés est beaucoup plus fréquente : on compte une trentaine de sites de nucléation sur l'image 4.11 a) de taille ($10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$), à comparer avec ce qui est observé au niveau de la couche douce (un site de nucléation sur une zone de quelques $10000\mu\text{m}^2$).

Pour un état magnétique H_{min} voisin du champ de décrochage de la couche dure $H_{\text{d,HL}}$, l'image 4.11 b) indique une propagation « lente » des domaines renversés à partir de tous les sites de nucléation. Ainsi, au niveau de cette image un cinquième de l'aimantation est orientée \downarrow , et 14 grands domaines disjoints sont dénombrés. La percolation de tous ces domaines nucléés a lieu au niveau du champ coercitif $H_{\text{c,HL}}$ de la couche dure (image 4.11 c)). Cependant, à la différence de ce qui est observé au niveau de la couche douce (voir figure 4.9 b)), le domaine renversé \downarrow n'est pas compact et présente une morphologie dendritique. La saturation de la couche dure se fait par la disparition progressive d'une assemblée de défauts de saturation, correspondant à des « lambeaux » de la couche présentant toujours l'aimantation initiale (images 4.11 d) et e)).

A noter que ces images ne montrent pas de couplage magnétostatique entre électrodes : il n'y a pas de renversement d'aimantation \downarrow vers \uparrow de la couche douce sous l'effet du champ de fuite rayonné par les domaines de la couche dure.

⁵Au moment du passage de la paroi-principale, le champ total ressenti est égal à ($H_{\text{appliquée}} + H_{\text{fuite}}$), au champ externe additionné du champ de fuite créé par la paroi de domaines.

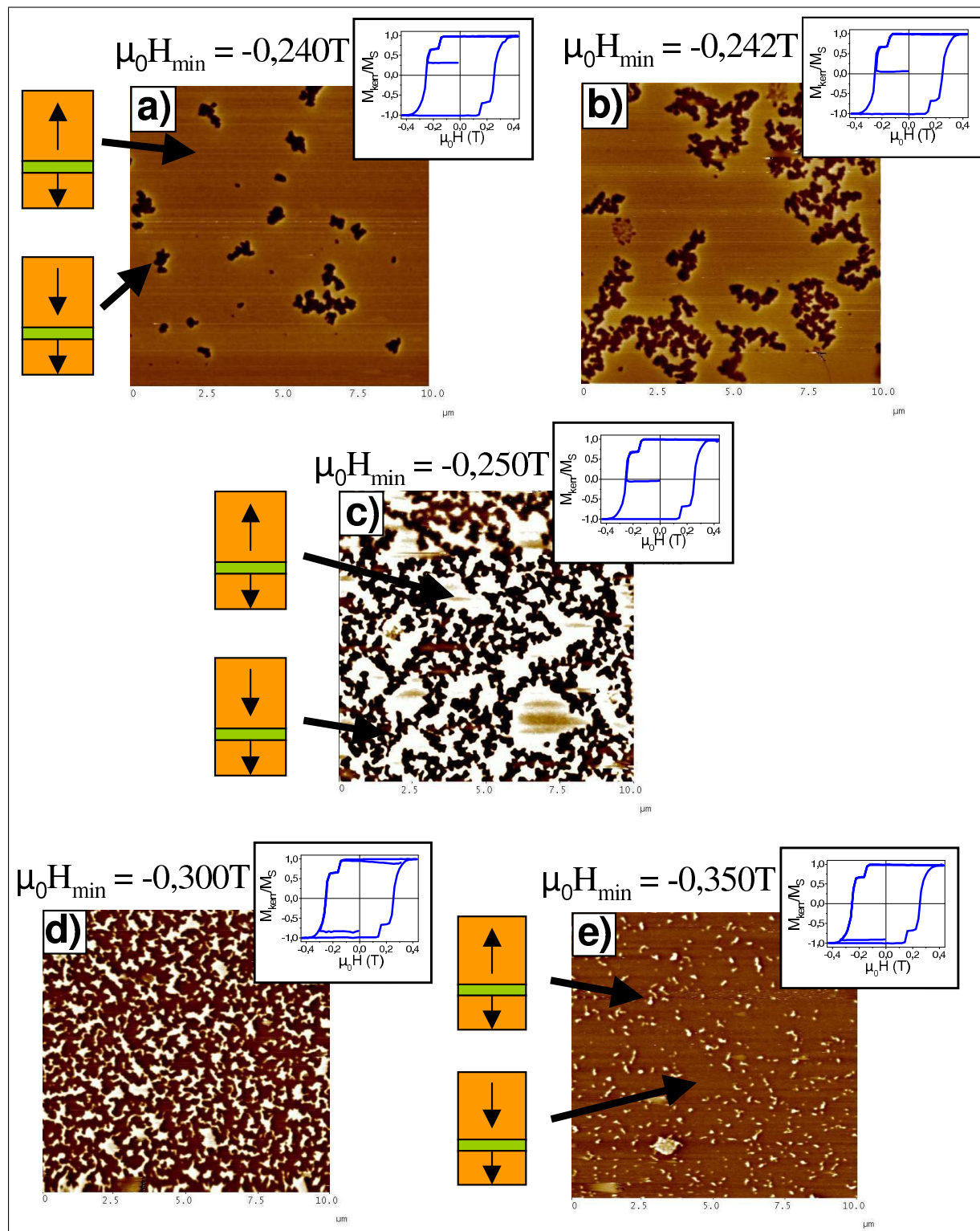


FIG. 4.11: Images MFM ($10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$) des configurations magnétiques correspondant à différentes étapes du retournement de l'aimantation de l'électrode dure du système JTM FePt/MgO/FePt.

4.3 Couplage entre électrodes par action de la couche douce SL

Nous allons maintenant étudier l'influence de l'état d'aimantation d'une électrode sur le renversement de l'aimantation de la deuxième. Cette première partie va traiter de l'action de la couche douce sur la couche dure, *ie* lorsque la structure est soumise à des champs magnétiques inférieurs au champ de décrochage de la couche dure $|H_{\text{appliquée}}| < |H_{\text{d,HL}}|$: parler de couplage entre les deux électrodes semble alors en contradiction avec ce qui a été dit dans les paragraphes précédents 4.1.1 et 4.2. Nous allons voir qu'il est possible de provoquer un renversement d'aimantation de la couche dure pour des champs appliqués à priori faibles, notamment en réalisant un grand nombre de cycles de la couche douce (paragraphe 4.3.3) ou en augmentant l'épaisseur de cette couche douce (paragraphe 4.3.4).

4.3.1 Cycle mineur du renversement de la couche douce

Malgré un bon découplage ferromagnétique observé - que ce soit au niveau macroscopique, où le cycle d'aimantation de la structure présente un palier horizontal (figure 4.2) ou au niveau microscopique, où les images MFM du renversement d'aimantation de la couche douce SL ne laissent pas apparaître de domaine nucléé dans HL - nous avons été surpris par l'allure des cycles d'aimantation mineurs mettant en jeu le renversement de SL : il y a en effet observation d'un décalage entre le champ coercitif $\mu_0 H_{\text{c,SL}}$ d'un cycle majeur et le champ coercitif $\mu_0 H_1$ de cette même couche au cours d'un cycle mineur (voir figure 4.12) : c'est à dire au niveau d'un renversement d'aimantation $(\text{SL}\downarrow/\text{HL}\uparrow) \rightarrow (\text{SL}\uparrow/\text{HL}\uparrow)$ et au niveau du renversement suivant $(\text{SL}\uparrow/\text{HL}\uparrow) \rightarrow (\text{SL}\downarrow/\text{HL}\uparrow)$, lorsque l'état saturé $(\text{SL}\uparrow/\text{HL}\uparrow)$ obtenu à l'issue du premier renversement est un état saturé par un champ $\mu_0 H_{\text{appliqué}} < 0,180\text{T}$ pour l'échantillon étudié, *ie* lorsqu'il n'y a pas d'incursion en champ dans la plage de renversement de l'électrode dure⁶ :

- $\mu_0 H_{\text{c,SL}} = 0,143\text{T}$,
- $\mu_0 H_1 = 0,134\text{T}$.

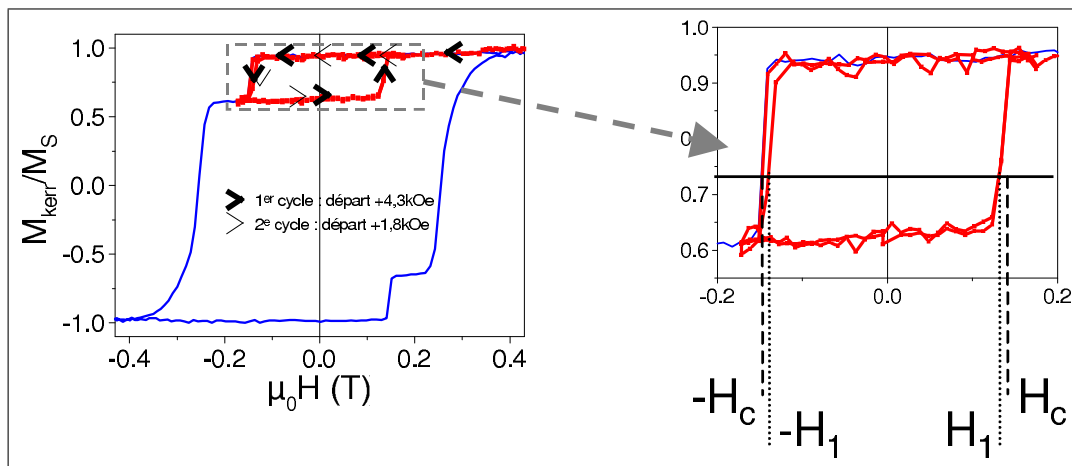


FIG. 4.12: Cycle mineur effectué sur la structure JTM en suivant la procédure suivante : partant de l'état saturé $(\text{SL}\uparrow/\text{HL}\uparrow)$, le champ est porté à $-0,180\text{T}$ pour obtenir la configuration antiparallèle $(\text{SL}\downarrow/\text{HL}\uparrow)$. Puis on réalise un cycle d'aimantation entre $0,180\text{T}$ et $-0,180\text{T}$: on observe un décalage du champ coercitif entre le cycle majeur et le cycle mineur.

Nous observons donc un décalage de $0,01\text{T}$ environ entre ces deux champs coercitifs. Ce résultat est le même pour tout cycle mineur ne mettant en jeu que le renversement d'aimantation de SL, c'est à dire pour des champs appliqués en dehors de la plage de renversement de l'électrode dure :

$-0,180\text{T} < \mu_0 H_{\text{appliqué}} < 0,180\text{T}$: un enchaînement de plusieurs cycles mineurs conduit toujours au même champ coercitif $\mu_0 H_1$.

Pour retrouver une valeur de champ coercitif $\mu_0 H_{\text{c,SL}} = 0,143\text{T}$, il est nécessaire de revenir au préalable à un état « saturé » correspondant à un champ autour de $H_{\text{c,HL}}$. Pour des incursions en champ entre $H_{\text{sat,SL}}$ et $H_{\text{c,HL}}$, le champ coercitif mesuré $\mu_0 H_1$ augmente progressivement jusqu'à $0,143\text{T}$.

Cette expérience est rapportée sur la figure 4.13. Sur cette figure, les courbes représentées sont les courbes dérivées dM/dH des cycles d'aimantation. Elles permettent de visualiser plus précisément les champs de renversement mis en jeu :

⁶Nous observons exactement le même effet lors d'un cycle mineur de la couche douce à partir de l'état saturé $(\text{SL}\downarrow/\text{HL}\downarrow)$.

- un cycle d'aimantation majeur entre $+0,430\text{T}$ et $-0,430\text{T}$ est effectué, ce qui donne accès au champ coercitif de la couche douce $\mu_0 H_{c,SL} = 0,143\text{T}$,
- l'état initial de l'échantillon avant chaque cycle mineur correspond à un état largement saturé (SL \uparrow /HL \uparrow) à $+0,430\text{T}$,
- le premier état intermédiaire de la procédure fait suite au renversement d'aimantation (SL \uparrow /HL \uparrow) \rightarrow (SL \downarrow /HL \uparrow). Il correspond à un champ d'arrêt $\mu_0 H_{\min} = -0,190\text{T}$ qui est le même sur tous les cycles mineurs de l'expérience. Le renversement d'aimantation (SL \downarrow /HL \uparrow) \rightarrow (SL \uparrow /HL \uparrow) est ici toujours associé au même champ coercitif H_1 ,
- le deuxième état intermédiaire correspond à un champ d'arrêt $\mu_0 H_{\max}$ qui varie suivant le cycle mineur entre $+0,200\text{T}$ et $+0,400\text{T}$: l'état saturé (SL \uparrow /HL \uparrow) alors obtenu dépend du cycle mineur,
- le troisième état intermédiaire correspond à nouveau au champ d'arrêt $\mu_0 H_{\min} = -0,190\text{T}$. Mais cette fois, le champ coercitif associé au renversement d'aimantation (SL \uparrow /HL \uparrow) \rightarrow (SL \downarrow /HL \uparrow) dépend du cycle mineur réalisé,
- le champ magnétique est alors porté à $+0,430\text{T}$. L'état intermédiaire précédent étant le même pour tous les cycles mineurs, on retrouve là encore dans tous les cas un champ coercitif H_1 associé au renversement d'aimantation (SL \downarrow /HL \uparrow) \rightarrow (SL \uparrow /HL \uparrow).

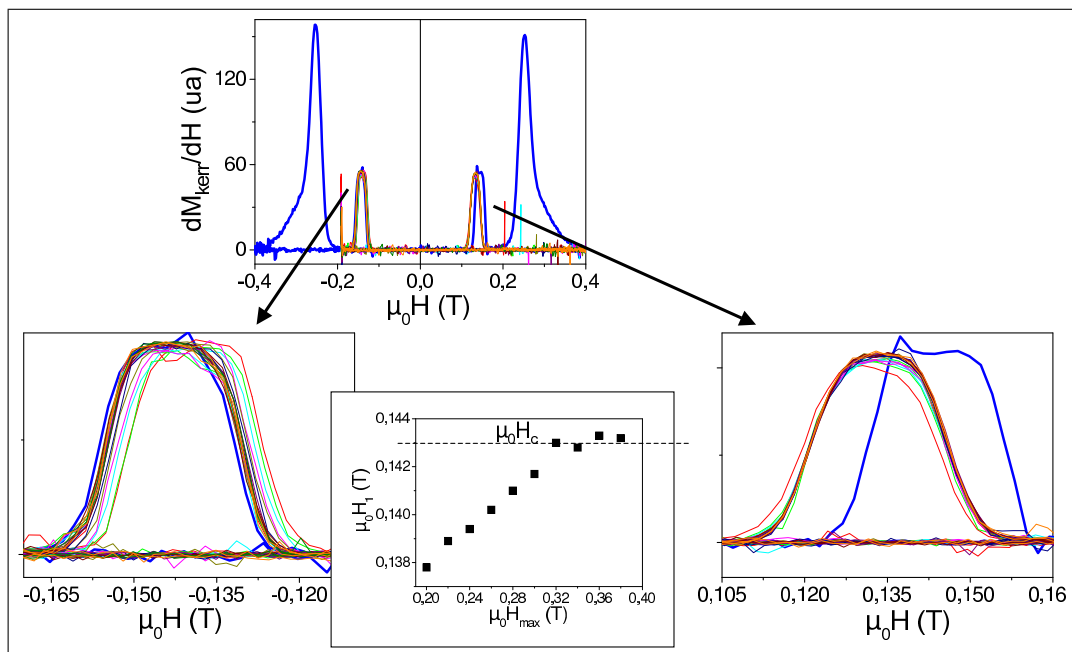


FIG. 4.13: Procédure de cyclage employée :

- Etat initial : $\mu_0 H_{\text{initial}} = +0,430\text{T}$
- Etat intermédiaire 1 : $\mu_0 H_{\min} = -0,190\text{T}$
- Etat intermédiaire 2 : $\mu_0 H_{\max}$ variant de $+0,2$ à $+0,4\text{T}$
- Etat intermédiaire 3 : $\mu_0 H_{\min} = -0,190\text{T}$
- Etat final : $\mu_0 H_{\text{fin}} = +0,430\text{T}$

Les courbes représentées sont les courbes dérivées du signal Kerr par rapport au champ appliqué (effet Kerr polaire, H perpendiculaire à l'échantillon).

L'effet observé témoigne de la présence d'interactions magnétostatiques entre les deux électrodes ferromagnétiques de la structure. Ces interactions varient suivant l'histoire magnétique de l'échantillon, le décalage en champ du renversement d'aimantation de la couche douce SL ne peut qu'être lié à une modification de l'état magnétique de la couche dure HL après un renversement d'aimantation de SL.

Nous n'avons pas observé de domaine magnétique nucléé au sein de HL au niveau du palier d'aimantation compris entre $H_{\text{sat},SL}$ et $H_{d,HL}$. La présence de tels domaines est cependant probable, comme le suggère la désaimantation progressive de la couche dure lors de cyclages répétés de l'aimantation de la couche douce (voir paragraphe 4.3.3). Il apparaît dès lors possible que le champ de fuite provenant de ces domaines explique les modifications observées sur les cycles d'aimantation de la couche douce.

La figure ci-contre correspond à la courbe de désaimantation de l'électrode douce seule : partant d'un système où les deux couches ferromagnétiques sont dans le même état saturé ($SL\uparrow/HL\uparrow$), on amène la structure dans l'état antiparallèle ($SL\downarrow/HL\uparrow$) avant de l'exposer à un champ magnétique perpendiculaire d'amplitude décroissante, oscillant entre des valeurs positives et négatives.

D'un point de vue macroscopique, le cycle $M(H)$ ne laisse apparaître aucun couplage entre les deux couches ferromagnétiques, l'électrode dure restant saturée à l'issue du processus. Avec cependant, lors des tout premiers stades de la désaimantation, une aimantation de SL qui se renverse entre les deux valeurs de champs H_1 et $-H_1$ différents de la valeur du champ coercitif de l'électrode lors de la description d'un cycle d'aimantation majeur.

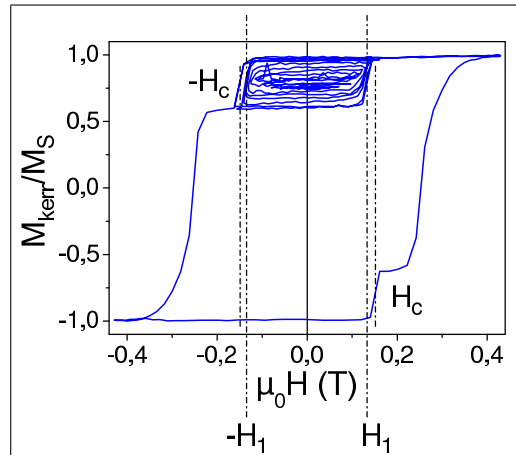


FIG. 4.14: Courbe de désaimantation de SL seule (effet Kerr Polaire).

4.3.2 Désaimantation de SL seule

À l'issue de ce processus de désaimantation, on retrouve pour SL la configuration en larges domaines magnétiques des films FePt de très faible épaisseur déposés sur couche tampon de platine (voir chapitre 1.3.3). La couche dure HL étant saturée, l'électrode douce peut être imagée par transparence.

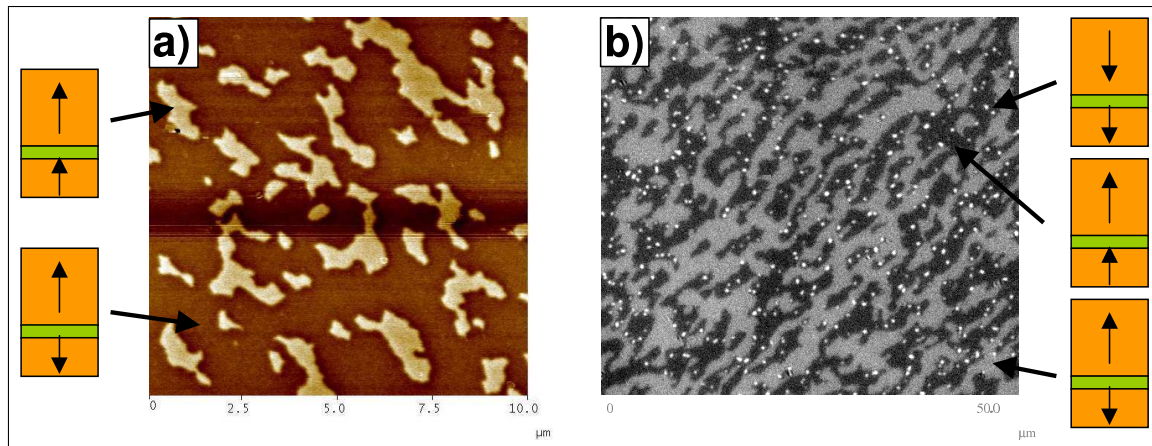


FIG. 4.15: Image MFM (de taille $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$) pour a) et Image par microscopie Kerr (de taille $54\mu\text{m} \times 48,6\mu\text{m}$) pour b) d'une structure JTM après désaimantation de l'électrode douce (la procédure est celle donnée sur la figure 4.14). L'image de gauche est obtenue en partant de l'état saturé $+1,1\text{T}$. L'image de droite est obtenue en partant de l'état « saturé » à $+0,4\text{T}$, alors qu'il reste quelques petits défauts de saturation (Note : le contraste d'intensité sur l'image b) est l'inverse de celui associé à l'image a)).

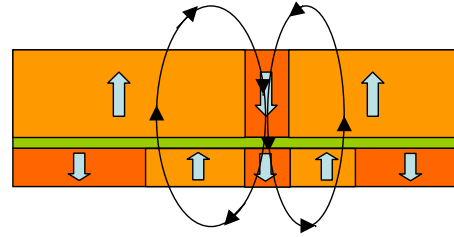
Lorsque l'état magnétique initial est un état véritablement saturé, *ie* exempt de défauts de saturation, aucun domaine HL renversé \downarrow n'a pu être observé sur l'échantillon à l'issue de la procédure de désaimantation (voir l'image a)) : ceci semble indiquer un découplage magnéto-statique parfait entre les deux électrodes. Le découplage semble être conservé quelle que soit l'histoire magnétique de la couche douce, lorsqu'il n'y a pas d'incursion en champ au niveau des champs de renversement de la couche dure. Ce qui a pour conséquence la possibilité d'amener SL à tout état d'aimantation désiré sans modifier l'aimantation de HL.

En revanche, lorsque l'état initial ($SL\uparrow/HL\uparrow$) comporte quelques défauts de saturation au sein de HL, la procédure de désaimantation de SL se déroule également sans que l'on ne détecte de couplage entre les deux électrodes à partir de l'analyse du cycle d'hystérésis⁷. En revanche, l'imagerie révèle que la situation

⁷Les cycles d'hystérésis sont semblables et correspondent à ce qui est présenté sur la figure 4.14, quel que soit l'état

est très différente au niveau microscopique : les défauts de saturation présents dans la couche dure pour un champ $\mu_0 H = 0,4T$ sont relativement nombreux, typiquement entre 60 et 70 sur une image de taille ($20\mu m * 20\mu m$) et de diamètre caractéristique apparent inférieur à 100nm. A l'issue de la procédure de désaimantation, cette taille apparente augmente jusqu'à quelques centaines de nanomètres.

Il est intéressant de constater que ces défauts guident la désaimantation de SL : sur l'image 4.15 b), les domaines HL \downarrow - en blanc intense, répartis de façon homogène sur l'image - sont tous situés au sein de zones aimantées \uparrow dans SL. Ceci peut être interprété par un effet du champ de fuite rayonné par ces défauts de saturation aimantés \downarrow , qui aide à stabiliser autour d'eux des domaines d'aimantation opposée \uparrow au sein de SL.



4.3.3 Désaimantation de la structure par cyclage de SL

Introduction

La principale application envisagée pour les JTM_s consiste actuellement en leur intégration dans des mémoires magnétiques non volatiles (MRAM). Les deux configurations P et AP de la structure constituent les deux états « 0 » ou « 1 » d'un bit, la lecture de l'information magnétique se faisant par le passage d'un courant électrique et la mesure de la résistance de la structure JTM. L'écriture du bit est réalisée par le renversement d'aimantation d'une des électrodes (l'électrode douce), l'aimantation de la seconde (électrode dure) restant inchangée.

Ainsi, dans un dispositif de mémoire, l'aimantation de l'électrode dure est idéalement fixée définitivement, par exemple dans un état \uparrow . Les deux états magnétiques possibles de la structure sont (SL \uparrow / HL \uparrow) et (SL \downarrow / HL \uparrow). Cependant, si les deux couches ne sont pas parfaitement découplées magnétiquement, des domaines magnétiques peuvent être créés au sein de l'électrode dure HL lors du renversement d'aimantation de SL. Ces domaines magnétiques vont se développer à chaque renversement de SL, conduisant ainsi à une structure dans laquelle HL est désaimantée et où la mémoire magnétique (bit 0 ou 1) est perdue. Dans ce cas, il devient nécessaire de « réinitialiser » le bit au bout d'un certain nombre d'opérations en re-saturant HL⁸.

L'étude de la stabilité de JTM_s à aimantation planaire lors du cyclage en aimantation de l'électrode douce est un sujet qui a déjà été abordé par plusieurs équipes [GID98] [THO00].

Ainsi, Gider *et al.* ont étudié deux types de JTM_s, une structure A où l'une des électrodes est durcie par couplage d'échange avec un matériau anti-ferromagnétique et une structure B où l'une des électrodes est dure « naturellement ». Si la JTM A est stable sur plus de 10^7 cycles de SL, en revanche l'aimantation de la couche dure de la JTM B décroît de façon logarithmique avec le nombre de cycles de SL (voir figure 4.16). Lorsque l'aimantation de SL est retournée par rotation de l'échantillon au milieu du champ, les deux types de structure sont stables à l'issue d'un grand nombre de renversement de SL. La désaimantation observée peut s'expliquer par la présence de parois de domaines dans la couche douce au moment de son renversement d'aimantation : le champ de fuite rayonné localement par ces parois peut excéder largement les champs de renversement des couches mises en jeu [THO00].

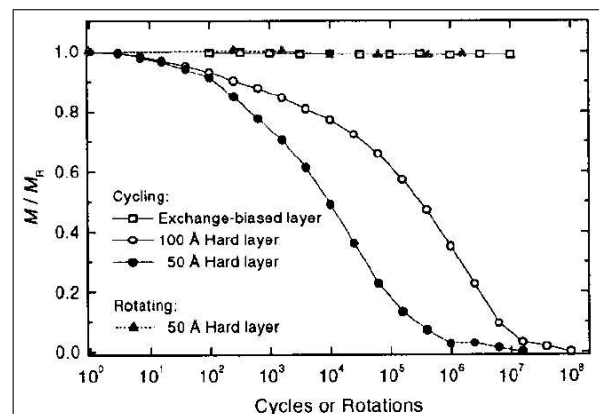


FIG. 4.16: Evolution de l'aimantation de l'électrode dure lors du cyclage de SL. L'aimantation de HL n'évolue pas lorsque l'électrode est durcie par un antiferromagnétique ou lorsque le cyclage se fait par rotation de l'échantillon dans le champ extérieur (tiré de [GID98]).

saturé initial +1,1T ou +0,4T.

⁸Notons qu'il faut prendre en compte la taille du bit d'information : ceci n'est valable que si des domaines magnétiques opposés peuvent apparaître, c'est à dire pour des médias de « grande » taille.

Description de la mesure

Nous avons à notre tour étudié la stabilité magnétique de nos structures JTM FePt/MgO/FePt lors d'un cyclage répété de la couche douce : à l'aide d'un banc de mesure par effet Kerr, nous avons suivi l'évolution de l'aimantation de la structure lors de cycles entre les configurations magnétiques (SL \uparrow /HL \uparrow) et (SL \downarrow /HL \uparrow). Il s'agit à notre connaissance de la première étude de ce type en configuration perpendiculaire. L'échantillon mesuré est un échantillon « pleine plaque », *ie* non structuré. Ce point a son importance car il permet alors la propagation de parois de domaines lors du renversement d'aimantation de la couche douce et donc le rayonnement d'un champ de fuite local qui va pouvoir affecter l'électrode dure.

Dans une salle climatisée - précaution expérimentale pour une meilleure stabilité du signal Kerr - l'échantillon initialement largement saturé à +1,1T est soumis à un cyclage répété (2000 cycles) du champ appliqué perpendiculairement aux couches. L'excursion en champ se situe entre deux valeurs H_{fin} et $-H_{\text{fin}}$ comprises entre le champ de saturation de l'électrode douce $H_{\text{sat,SL}}$ et le champ de décrochage de l'électrode dure $H_{\text{d,HL}}$: le champ maximum appliqué est suffisamment fort pour renverser totalement l'aimantation de SL mais il reste trop faible pour avoir un effet *direct* sur HL ($\mu_0 H_{\text{applique}} < \mu_0 H_{\text{d,HL}}$).

En pratique, le processus expérimental repose sur la réalisation de cycles d'aimantation « rapides », comprenant très peu de points et effectués en quelques secondes. L'état de l'aimantation de l'échantillon est sondé par effet Kerr, avec une précision toute relative lors de ces cycles rapides. Aussi, tous les 20 cycles, un cycle permettant une acquisition plus détaillée est réalisé : il permet l'accès précis à certains paramètres comme la forme du cycle, son champ coercitif, l'aimantation rémanente. A l'issue des 2000 cycles, un cycle d'aimantation majeur du système est réalisé. Ce dernier cycle permet de restituer le signal acquis et d'estimer les éventuelles dérives signal Kerr. Notons que le signal Kerr correspond à la somme des contributions des aimantations des deux couches (l'atténuation plus grande du signal de la couche inférieure du fait de l'absorption de la lumière dans la structure implique cependant que les deux couches ne contribuent pas dans le rapport de leurs aimantations absolues).

Observation de la désaimantation de la structure par cyclage de SL

La figure 4.17 donne l'évolution du signal Kerr mesuré au cours d'une procédure de 2000 cycles d'aimantation réalisés entre les champs $\mu_0 H_{\text{fin}} = +0,170\text{T}$ et $-\mu_0 H_{\text{fin}}$. C'est l'ellipticité du signal Kerr qui a été analysé lors de cette expérience et non pas son angle, ce qui explique la différence d'allure des cycles d'aimantation présentés ici avec ceux des autres paragraphes (voir figure 4.2 par exemple). Cette différence d'allure correspond à une différence dans les amplitudes relatives des signaux Kerr associés aux deux couches ferromagnétiques. Sans pouvoir l'expliquer, nous avons en effet constaté empiriquement que la représentation de l'ellipticité nous permet de faire ressortir de façon beaucoup plus nette le signal correspondant à l'aimantation de l'électrode enterrée (SL).

La désaimantation progressive de la structure se traduit par le décalage progressif du cycle mineur vers le bas du diagramme (l'aimantation moyenne de l'électrode dure - initialement saturée - décroît). En outre, le cycle est de moins en moins carré, ce qui peut être associé au fait que l'aimantation de l'électrode douce ne se retourne plus que partiellement entre $-H_{\text{fin}}$ et H_{fin} (ce que suggère la diminution observée de l'amplitude du cycle). L'aimantation de l'électrode dure est partiellement entraînée dans le cycle mineur effectué (sans qu'il soit bien sûr possible de saturer cette électrode dure pour les valeurs du champ appliqué). Venons en maintenant à une analyse plus détaillée.

Les figures 4.17 a) et b) permettent de visualiser quelques cycles d'aimantation typiques enregistrés au fil de la procédure de cyclage. Les premiers cycles sont parfaitement carrés, avec une aimantations maximale M_{max} égale à l'aimantation rémanente M_r , et correspondent bien au signal d'aimantation de la couche douce dans un cycle majeur. Au cours de la procédure, les cycles successifs conservent initialement une allure carrée, encore observée de façon nette sur le 200^{ème} cycle par exemple. Ils changent cependant rapidement d'aspect pour adopter la forme d'un fuseau, ce qui se traduit sur la figure 4.17 c) par un décrochage du champ coercitif du cycle mineur : il n'y a plus de saut d'aimantation ni d'indication d'une saturation de la couche douce, malgré un champ appliqué H_{fin} nominalement supérieur à son champ de saturation : le système atteint un régime de couplage entre les deux électrodes, le cycle d'aimantation effectué par l'électrode douce est visiblement perturbé par l'état magnétique atteint par l'électrode dure. Il semble probable que les domaines formés dans HL, largement démagnétisée, s'opposent à la propagation des parois lors du renversement de l'aimantation de SL, qui reste maintenant dans un état magnétique de plus en plus figé. Ce dernier point peut être déduit de la forte diminution de l'amplitude du cycle effectué.

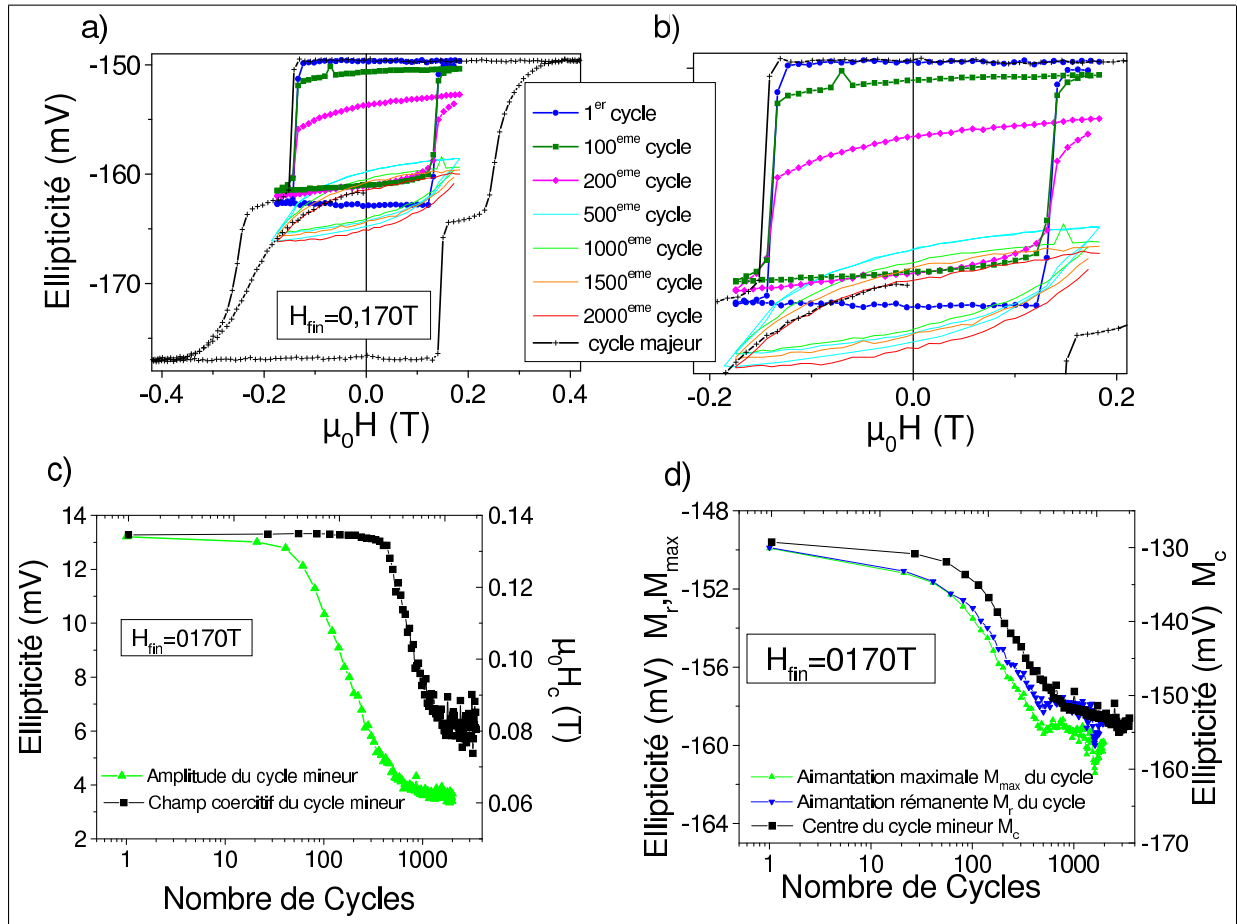


FIG. 4.17: Désaimantation de la structure par cyclage de l'aimantation de SL entre $-0,170\text{T}$ et $0,170\text{T}$. L'ellipticité du signal Kerr est mesurée en mV : la valeur « brut » relevée dépend des réglages expérimentaux

a), b) Cycles d'aimantation détaillés

c) Amplitude et champ coercitif du cycle mineur en fonction du nombre de cycles effectués

d) Aimantation maximale et aimantation rémanente en fonction du nombre de cycles effectués.

Considérons sur la figure 4.17 b) le centre des différents cycles d'aimantation mineurs. Ce centre M_c correspond à l'aimantation moyenne \bar{M} de la structure au cours du cycle mineur considéré (en fait, les contributions relatives des deux électrodes ne sont pas exactement proportionnelles aux aimantations du fait de l'absorption de la lumière dans la structure). Prenons l'exemple du premier cycle mineur : \bar{M}_{HL} correspond à l'aimantation à saturation de l'électrode dure (l'aimantation reste toujours \uparrow au cours de ce cycle) et en moyenne l'aimantation de la couche douce est nulle : $M_{SL} = 0$. Il en résulte que $M_c = \bar{M}_{SL} + \bar{M}_{HL} = M_{HL, \text{saturation}}$. Au cours de la procédure de cyclage, une diminution de cette aimantation M_c est rapportée sur la figure 4.17 d). Ce phénomène indique une diminution de l'aimantation de la couche dure, de manière similaire à ce qui a été observé par Gider [GID98] et Thomas [THO00].

Ceci est corroboré par l'évolution de l'amplitude des cycles mineurs avec le nombre de cycles effectués (voir figure 4.17 c)) : la diminution de l'amplitude des cycles mineurs peut s'expliquer en envisageant l'apparition de domaines magnétiques au sein de l'électrode dure. Ces domaines vont pouvoir évoluer sous l'action du champ subi (champ appliqué extérieur + champ dipolaire lié à l'apparition de domaines magnétiques au sein de la couche douce) et vont ainsi participer au signal Kerr global de l'échantillon.

L'évolution de l'amplitude normalisée des cycles d'aimantation successifs peut être ajustée par une loi de la forme $e^{-(N/N_0)^\beta}$ où N est le numéro du cycle et N_0 et β sont des constantes ($N_0 \sim 260$ et $\beta \sim 0,9$). Il est toutefois difficile de tirer de cet ajustement autre chose qu'une indication sur la rapidité du processus de désaimantation. En effet, les aimantations des deux électrodes sont sondées par effet Kerr : le début de la procédure correspond à un état où seule l'électrode dure se désaimante, la fin de la procédure à un

état magnétique difficile à décrire sans données supplémentaires (par exemple des images magnétiques), où les deux électrodes sont couplées. Ce comportement diffère là nettement de ce qui a été observé dans le cas de JTMs à aimantation planaire [GID98] [THO00], cas où l'électrode douce continue à décrire un cycle d'hystérésis proche du cycle initial.

A l'aide de cette figure 4.17, il est possible de reconstituer l'histoire magnétique de l'échantillon au cours de la procédure de cyclage :

- le début de la procédure correspond à un état où les deux électrodes sont saturées et sont magnétiquement indépendantes,
- au bout de quelques dizaines de cycles, l'amplitude du cycle mineur décroît (voir figure 4.17 c)). Ici, pour un champ de fin de cycle $\mu_0 H_{\text{fin}} = 0,170\text{T}$, un décrochage de la courbe *amplitude en fonction du nombre de cycles* est observé au bout de $N=40$ cycles : des domaines magnétiques sont créés au sein de la couche dure et évoluent en fonction du champ appliqué. La couche dure commence donc à se désaimanter, mais avant cela, il n'y a pas d'indication d'une désaimantation de la couche douce : le cycle d'aimantation observé est toujours parfaitement carré, comme en témoigne l'adéquation entre les aimantations maximale M_{max} et à champ nul M_r du cycle mineur (voir figure 4.17 d)),
- puis la couche douce commence elle aussi à se désaimanter : elle évolue dans le champ de fuite créé par les domaines magnétiques de l'électrode dure et se couple magnétiquement avec cette dernière. SL ne parvient plus à atteindre l'état saturé : sur la figure 4.17 d), un décrochage entre les aimantations M_{max} et M_r est observé à partir de $N=80$ cycles. Notons qu'un saut d'aimantation est toujours observé sur le cycle mineur,
- enfin, à l'issue de $N=280$ cycles entre $\pm 0,170\text{T}$, la figure 4.17 c) montre une chute brutale du champ coercitif du cycle mineur. Pour $N < 280$, un saut d'aimantation est toujours observé, indiquant que les deux électrodes ne sont pas complètement couplées : SL parvient à renverser une bonne partie de son aimantation malgré la stabilisation de ses domaines magnétiques introduite par le champ de fuite de HL. Au delà de cette limite, les cycles d'aimantation mineurs ont une allure de fuseau. Le couplage magnétostatique entre les deux couches est alors trop important pour pouvoir distinguer un saut d'aimantation lors de la description des cycles mineurs. Notons que le centre du cycle mineur continue à diminuer (voir figure 4.17 d)), ce qui indique qu'il y a toujours une évolution des configurations magnétiques des deux couches : elles continuent alors à se désaimanter conjointement.

Discussion sur la désaimantation observée

Rappelons ici qu'une couche mince ferromagnétique infiniment étendue et uniformément aimantée, *ie* complètement saturée, ne crée pas de champ de fuite et ce quelle que soit la direction d'aimantation⁹. Ainsi, dans le cas d'un système comportant deux couches ferromagnétiques totalement rémanentes, il ne peut y avoir (en l'absence de rugosité des deux couches) de champ de fuite - et donc de couplage éventuel entre les électrodes - qu'au moment du renversement d'aimantation d'une électrode : à ce moment, des domaines magnétiques apparaissent et vont rayonner un champ de fuite. Le champ magnétique ressenti localement par la deuxième couche ferromagnétique n'est plus H_{applique} mais $H_{\text{applique}} + H_{\text{fuite}}$. Ce champ *peut* être suffisant pour permettre la nucléation de domaines d'aimantation opposée au sein de la seconde électrode si la relation $\mu_0 H_{\text{applique}} + \mu_0 H_{\text{fuite}} \geq \mu_0 H_{n,HL}$ est vérifiée localement.

Pour expliquer la désaimantation progressive de leur structure JTM à l'issue d'un cyclage de la couche douce, Thomas *et al.* [THO00] ont ainsi considéré le champ de fuite créé par les domaines magnétiques apparaissant au sein de SL au niveau de chacun de ses renversements d'aimantation. A partir du modèle qu'ils ont développé, Thomas *et al.* ont en effet calculé que le champ de fuite rayonné à l'aplomb d'une paroi de domaine d'un domaine magnétique de SL était largement supérieur au champ coercitif de l'électrode dure de leur système.

Dans notre cas, l'électrode douce de notre structure est un matériau à aimantation perpendiculaire, FePt. Les domaines magnétiques sont séparés par des parois de Bloch. Notons que des simulations magnétiques plus abouties montreraient la présence de *Néel Caps* (chapeaux de Néel) au sein de ces parois, ce qui fait de la paroi de Bloch pure une approximation de la réalité. Dans un modèle bidimensionnel, soient x et z les axes parallèle et perpendiculaire à la surface aimantée. Considérons une paroi de Bloch

⁹Soulignons bien que ceci n'est vrai que dans le cas d'un film mince : un plot ayant un diamètre de l'ordre de quelques centaines de nanomètres aimanté uniformément ($+M_S$) créera un champ de fuite non négligeable. Le champ rayonné par un plot en son centre est donné par un calcul simple de magnétostatique et s'écrit $H_{\text{fuite}} = \frac{M_S}{2} \left(\frac{e+h}{\sqrt{R^2+(e+h)^2}} - \frac{h}{\sqrt{R^2+h^2}} \right)$, où e est l'épaisseur de la couche ferromagnétique, R est le rayon du plot et h est la hauteur de vol. Au premier ordre, en considérant $R \gg e, h$, cette expression devient $H_{\text{fuite}} = \frac{M_S}{2} \left(\frac{e}{R} \right)$.

centrée en $x=0$ et séparant deux domaines magnétiques infinis d'aimantations opposées. Le profil de l'aimantation normalisée m est représenté sur la figure 4.18 a). m s'écrit sous la forme :

$$m = \frac{2}{\pi} \cdot \text{Arctan}\left(\frac{\pi \cdot x}{\delta}\right). \quad (4.1)$$

δ est l'épaisseur de la paroi de Bloch. δ a pour valeur $\delta = \pi \cdot \left(\frac{A}{K_1}\right)^{1/2}$ [TRE99], où A est la constante d'échange du matériau et K_1 son anisotropie uniaxiale. Dans le cas du matériau FePt, $\delta \sim 4\text{nm}$.

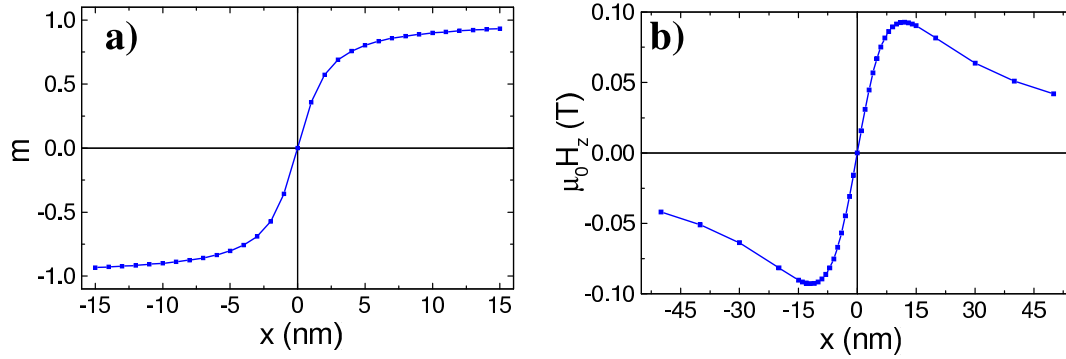


FIG. 4.18: a) Aimantation normalisée autour d'une paroi de Bloch (centrée sur $x=0$) dans une couche FePt.
b) Composante perpendiculaire du champ de fuite rayonné à $h=8\text{nm}$ dessus d'une paroi de Bloch (épaisseur de la couche ferromagnétique $e=5\text{nm}$).

Le FePt est un matériau à très forte anisotropie (et donc aimantation) perpendiculaire, aussi nous ne prenons en compte ici que la composante du champ de fuite H_z perpendiculaire au plan du film ferromagnétique, composante dont on peut penser qu'elle joue le rôle le plus important tant dans sa contribution à la coercivité s'opposant au déplacement des parois dans la seconde électrode que dans les phénomènes de nucléation. On peut montrer que le champ H_z rayonné à une hauteur h par une couche ferromagnétique¹⁰ d'épaisseur e ayant le profil d'aimantation en arctangente décrit par la figure 4.18 a) peut s'écrire :

$$\mu_0 H_z = \frac{\mu_0 \cdot M_S}{\pi} \cdot \left[\text{Arctan}\left(\frac{x}{\delta/\pi + h}\right) - \text{Arctan}\left(\frac{x}{e + \delta/\pi + h}\right) \right] \quad (4.2)$$

où x est la distance au centre de la paroi et δ est l'épaisseur de la paroi.

le profil du champ H_z rayonné est représenté sur la figure 4.18 b). La valeur maximale de ce champ est donnée lorsque la dérivée en x de l'expression ci-dessus s'annule, c'est à dire que l'on peut écrire :

$$\mu_0 H_{z,\max} = \mu_0 \cdot M_S \cdot \left[\frac{2}{\pi} \cdot \text{Arctan}\left(\sqrt{1 + \frac{e}{h + \delta/\pi}}\right) - \frac{1}{2} \right]. \quad (4.3)$$

Le champ rayonné est proportionnel à l'aimantation à saturation de la couche ferromagnétique, aussi pour un matériau à fort M_S comme FePt, H_z peut atteindre de très fortes valeurs. Notons que la valeur du champ ainsi estimée surestime quelque peu la valeur réelle : les domaines de fermeture qui apparaissent au sein de la paroi de Bloch réelle (« Néel caps ») permettent de réduire l'amplitude du champ de fuite. Sur la figure 4.19 sont représentées deux courbes donnant pour deux hauteurs de vol l'évolution du champ de fuite maximum rayonné au niveau d'une paroi de domaine en fonction de l'épaisseur de la couche FePt. Les deux hauteurs de vol ont été prises de façon à pouvoir représenter les champs de fuite mis en jeu au sein de la structure FePt/MgO/FePt.

Dans le cas d'une couche FePt d'épaisseur 5nm (SL), nous nous intéressons au champ rayonné au centre de l'électrode d'épaisseur 10nm, *ie* à une hauteur de vol $e_{\text{MgO}} + 1/2 \cdot e_{\text{HL}} = 8\text{nm}$. Sur la figure 4.19, ceci correspond à un champ $\mu_0 H_{z,\max} = 0,09\text{T}$. Au niveau du renversement d'aimantation de SL, le champ maximum ressenti localement par HL va correspondre à la somme $\mu_0 H_{z,\max} + \mu_0 H_{c,\text{SL}} = 0,23\text{T}$: localement, le champ ressenti par HL est supérieur à son champ de nucléation, ce qui peut expliquer la désaimantation de la structure. Notons bien toutefois que nous n'avons jamais pu observer par MFM de domaine magnétique nucléé dans la couche dure à l'issue d'un renversement de SL lors de la description

¹⁰Modélisée par deux surfaces chargées de signes opposés.

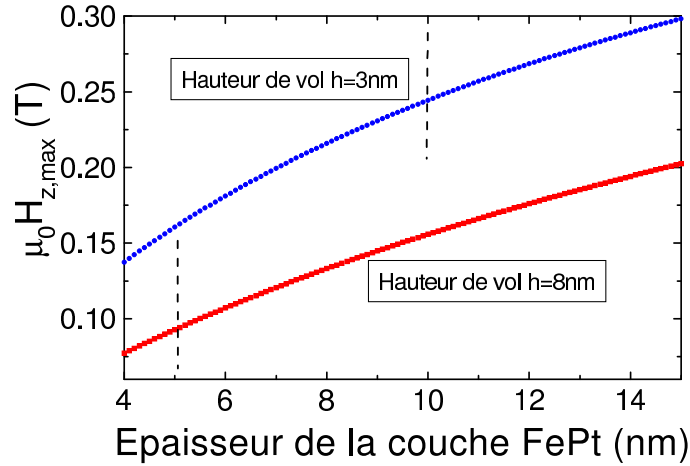


FIG. 4.19: *Champ de fuite maximum créé au niveau d'une paroi de domaine dans une couche FePt en fonction de l'épaisseur de cette dernière. Le champ est calculé ici pour deux hauteurs de vol, 3nm et 8nm.*

d'un cycle majeur : ce champ 0,23T est un champ maximal, qui n'est rayonné que très localement, et probablement sur une faible durée étant donné le mode de renversement de l'aimantation dans la couche douce par propagation de parois de domaines (voir paragraphe 4.2.2) : une paroi de domaine principale balaie l'échantillon. Partant d'un état saturé, la quantité de domaines magnétiques nucléés au sein de HL à l'issue d'un renversement d'aimantation de SL doit donc être très faible.

Dans le cas d'une couche FePt d'épaisseur 10nm (HL), c'est le champ rayonné au centre de l'électrode d'épaisseur 5nm qui est à prendre en compte. Autrement dit, la hauteur de vol à considérer est de 5,5nm. Ceci correspond à un champ $\mu_0 H_{z,\max}=0,19\text{T}$: le champ de fuite rayonné par des domaines créés au sein de HL est suffisamment fort pour avoir un effet important sur SL. Ceci permet de comprendre l'obtention d'un régime où les deux électrodes se couplent magnétiquement lorsque la couche dure se désaimante.

Soulignons toutefois que la situation expérimentale est en fait plus complexe. En effet, au voisinage de la paroi magnétique, il est créé d'un côté une région de champ \uparrow , de l'autre une région de champ \downarrow . La largeur de transition ne dépasse pas la largeur de la paroi ($\sim 4\text{nm}$), *ie* une distance plus courte que le rayon critique d'une bulle magnétique stable dans l'alliage FePt¹¹.

Influence du champ d'arrêt H_{\min}

Cette procédure de désaimantation de la structure JTM par cyclage de l'électrode douce a été réalisée pour cinq valeurs de champ $\mu_0 H_{\text{fin}}$ différentes : 0,15T, 0,16T, 0,17T, 0,18T et 0,19T. Le dernier champ correspond à un cas à part dans le sens où il est plus important que le champ de nucléation de l'électrode dure : la désaimantation du système est alors la plus rapide, l'amplitude du cycle mineur commençant à décroître dès le début de la procédure (voir figure 4.20 a)).

Penchons nous vers le cas des quatre autres champs H_{fin} . Une première constatation s'impose d'emblée : plus l'amplitude de H_{fin} est grande, plus la structure se désaimante rapidement. La figure 4.20 a) nous indique que l'amplitude des cycles mineurs diminue plus ou moins vite suivant l'importance de H_{fin} : pour $\mu_0 H_{\text{fin}}=0,15\text{T}$, c'est à dire pour $\mu_0 H_{\text{fin}}$ à peine supérieure au champ de saturation de SL, le système se désaimante le plus lentement.

En regardant plus finement l'évolution de l'amplitude des cycles mineurs en fonction du nombre de cycles, nous pouvons toutefois remarquer que le décrochage de l'amplitude a lieu sensiblement au même moment, pour un nombre de cycles $N > 40$, quel que soit le champ H_{fin} . C'est seulement après ce décrochage

¹¹Dans le cas d'une couche mince FePt d'épaisseur e , aimantée uniformément, la création d'une bulle magnétique inverse nécessite la formation d'une paroi de domaine, de coût énergétique $\sqrt{AK_u}$ où A est la constante d'échange du matériau et K_u son anisotropie uniaxiale. Une compétition s'établit alors entre le terme Zeeman, favorable à la formation d'un domaine inverse et l'énergie de la paroi. Lorsque le terme Zeeman l'emporte, le domaine magnétique apparu est stable. En dessous d'un rayon critique R_c , la zone d'aimantation inverse ne peut que disparaître. R_c est donné par la relation $R_c = \sqrt{AK_u}/(2 \cdot \mu_0 \cdot M_S \cdot H_n)$. Dans le cas de FePt, avec $\mu_0 H_n$ pris à 0,18T, on obtient $R_c \sim 15\text{nm}$.

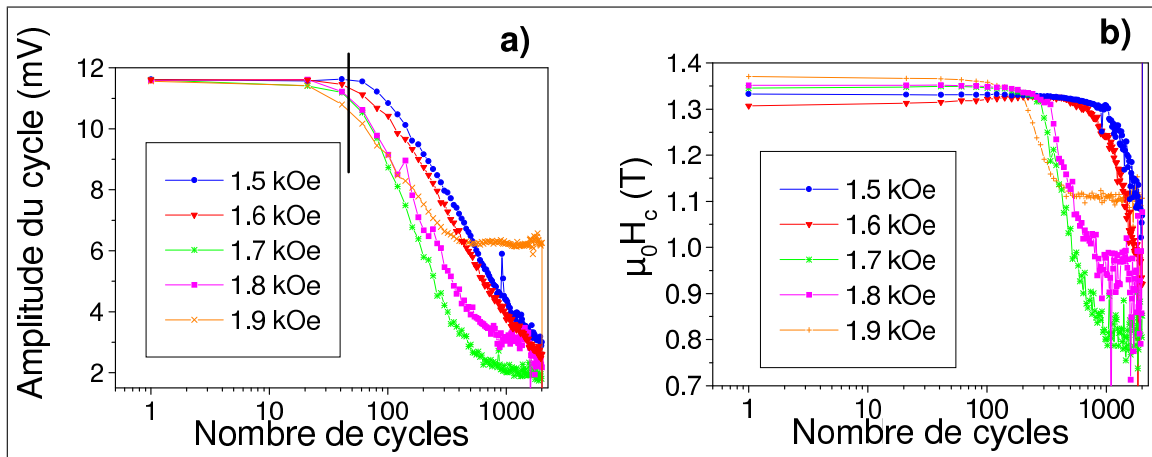


FIG. 4.20: a) Evolution de l'amplitude du cycle mineur pour différents H_{fin}
 b) Evolution du champ coercitif du cycle mineur pour différents H_{fin} .

que chacune des courbes suit sa propre évolution : les différents champs H_{fin} employés sont insuffisants à eux seuls pour conduire à la nucléation de domaines magnétiques au sein de HL : $\mu_0 H_{\text{fin}} < \mu_0 H_{\text{d,HL}}$ quel que soit le champ H_{fin} employé ici ; c'est au moment du renversement d'aimantation de SL que les domaines magnétiques peuvent être créés : $\mu_0 H_{\text{c,SL}} + \mu_0 H_{\text{z,max}} > \mu_0 H_{\text{d,HL}}$, où $\mu_0 H_{\text{z,max}}$ correspond au champ de fuite maximum rayonné par les domaines magnétiques de SL.

L'amplitude du champ H_{fin} n'a donc pas d'incidence sur la nucléation de domaines magnétiques au sein de HL. En revanche, elle influe sur la vitesse de désaimantation de la structure : les champs H_{fin} appliqués sont suffisamment importants pour affecter des domaines magnétiques déjà existants, et en faciliter la propagation.

La figure 4.20 b) donne l'évolution du champ coercitif du cycle mineur en fonction du nombre de cycles. Deux comportements peuvent être distingués, en fonction de la valeur de $\mu_0 H_{\text{fin}}$: pour $\mu_0 H_{\text{fin}} = 0,15\text{T}$ ou $0,16\text{T}$, le décrochage du champ coercitif, correspondant à l'adoption par le cycle mineur d'une allure de fuseau, a lieu de façon relativement tardive au bout de $N \sim 700\text{-}800$ cycles. En revanche, pour $\mu_0 H_{\text{fin}} = 0,17\text{T}$ ou $0,18\text{T}$, il se produit au bout de seulement 300 cycles environ : il n'y a pas d'évolution progressive du point de décrochage avec l'augmentation du champ maximum H_{fin} appliqué, mais plutôt une transition brutale. Nous pouvons en déduire l'existence d'une valeur de champ « critique », entre $0,16\text{T}$ et $0,17\text{T}$, favorisant l'évolution de domaines magnétiques nucléés dans la couche dure HL, et par conséquent accélérant l'obtention du régime où le couplage magnétique entre les deux électrodes est total.

Perspectives

Dans l'article qu'ils ont publié, Gider *et al.* [GID98] ont observé que la vitesse de désaimantation de leur structure JTM dépendait de l'épaisseur de l'électrode dure HL. Ce point pourrait facilement être testé sur notre système, afin d'augmenter sa stabilité magnétique. En effet, si il est difficile de changer l'épaisseur de SL dans notre système (voir paragraphe suivant), nous avons constaté qu'augmenter l'épaisseur de HL ne dégradait pas les propriétés magnétiques de la jonction FePt/MgO/FePt d'un point de vue découplage des électrodes.

Enfin, insistons sur le fait que l'expérience de cyclage menée dans cette section concerne un échantillon pleine plaque. La désaimantation de la structure que nous avons pu observer ici ne signifie pas que le système conservera ce comportement magnétique « instable » une fois structuré : la structuration de l'échantillon en plots larges de quelques centaines de nanomètres, *ie* de taille inférieure à la taille des domaines d'équilibre de SL, devrait empêcher la formation de domaines magnétiques au sein de SL¹². D'autres sources de couplage sont alors à considérer, en premier lieu le champ de fuite rayonné sur les bords des plots. Le système FePt/MgO/FePt présenté ici comporte un avantage appréciable, à savoir la taille des domaines magnétiques d'équilibre mis en jeu au niveau de l'électrode douce (quelques micromètres). Ainsi, lors du renversement d'aimantation de SL, ceci devrait permettre d'éviter l'apparition de parois de domaines dans des plots de tailles relativement importantes.

¹²Ceci devrait cependant être vérifié expérimentalement : il est possible que la lithographie induise des défauts en bord de structure.

4.3.4 Effet d'une augmentation de l'épaisseur de SL

En conservant la même épaisseur nominale d'électrode dure $e_{HL}=10\text{nm}$, nous avons fait varier l'épaisseur de la couche ferromagnétique douce de 4 à 12nm (voir figure 4.21) en utilisant un cache mécanique au cours du dépôt.

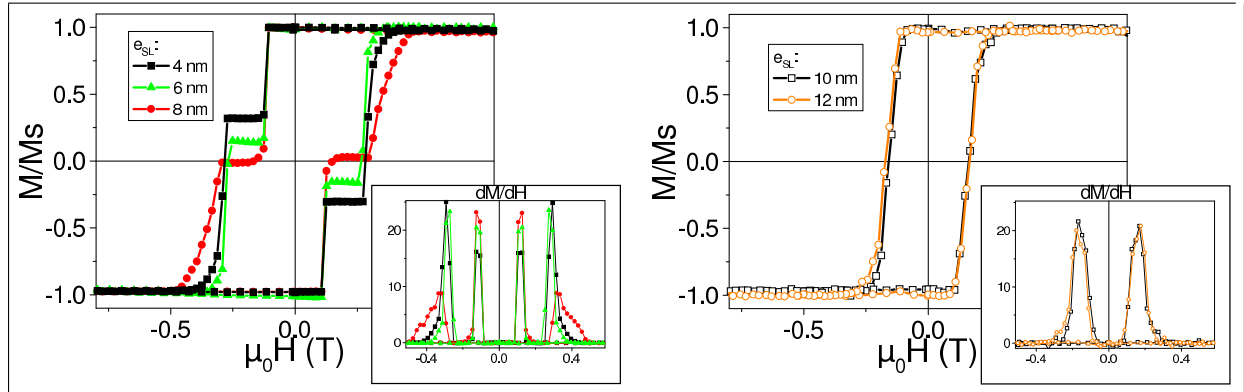


FIG. 4.21: Cycles d'aimantation de structures JTM FePt(10nm)/MgO(3nm)/FePt(xnm), mesurés par Effet Hall Extraordinaire (H perpendiculaire au plan des couches).

lors de la description de cycles d'aimantation majeurs, il apparaît assez clairement qu'il existe deux comportements magnétiques de la structure FePt/MgO/FePt qui sont fonction de l'épaisseur de la couche douce : sur la figure 4.21, il y a une limite abrupte entre les cas où les deux électrodes sont découplées (pour une épaisseur de couche douce $e_{SL} \leq 8\text{nm}$) ou sont magnétiquement couplées (pour $e_{SL} \geq 10\text{nm}$). Précisons que cette limite dépend de l'échantillon étudié, *ie* plus précisément des champs de renversement d'aimantation des deux électrodes. Ainsi, une limite située entre $e_{SL}=12$ et $e_{SL}=14\text{nm}$ a été observé sur un échantillon ayant des champs coercitifs $\mu_0 H_{c,SL}=0,136\text{T}$ et $\mu_0 H_{c,HL}=0,446\text{T}$.

Une information importante est donnée par ces cycles d'aimantation, à savoir le champ de décrochage de la structure couplée correspond exactement au champ de décrochage de la couche douce dans une structure découplée. Ceci indique que c'est le renversement d'aimantation de SL qui va gouverner le renversement d'aimantation de toute la structure JTM.

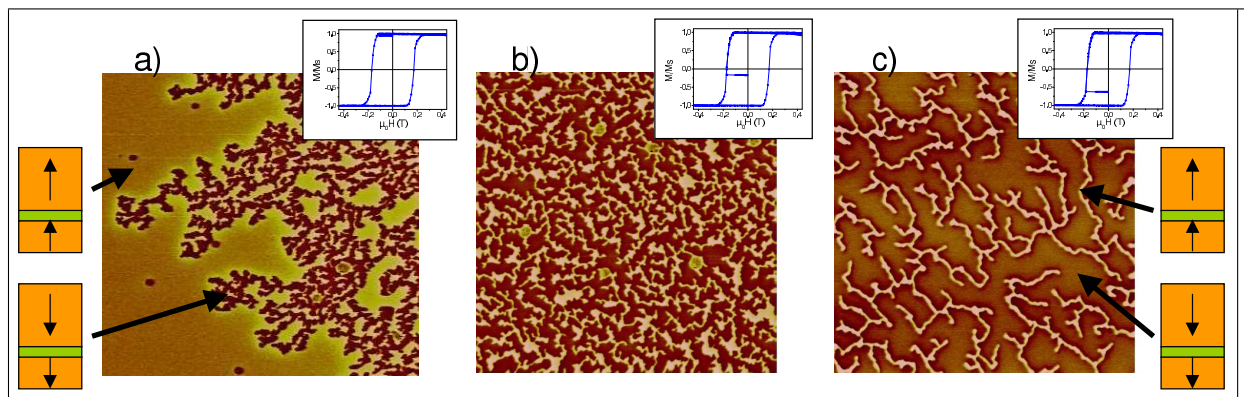


FIG. 4.22: Images MFM ($20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$) de différents états de renversement d'aimantation du système JTM couplé FePt(10nm)/MgO(3nm)/FePt(10nm).

La figure 4.22 présente les configurations magnétiques imagées à différents états de renversement d'aimantation du système couplé. Quel que soit l'état de renversement, seuls deux contrastes d'intensité sont observés, correspondant à des états magnétiques (SL \uparrow /HL \uparrow) et (SL \downarrow /HL \downarrow), indiquant que tout domaine magnétique nucléé au sein de la couche douce est répliqué dans la couche dure.

L'image 4.22 a) est le pendant de l'image 4.9 a) du paragraphe 4.2.2 correspondant au renversement d'aimantation de l'électrode douce d'une structure découplée. La division de l'image en deux zones d'aimantations opposées est retrouvée. Dans le cas de la structure JTM couplée, il y a donc tout d'abord nucléation de domaines magnétiques au sein de la couche douce, ce qui est corroboré par la faible valeur

du champ de nucléation de la structure couplée ; il y a nucléation à partir d'un site et propagation du domaine magnétique renversé dans tout l'échantillon. Mais le renversement d'aimantation de la couche douce entraîne immédiatement celui de l'électrode dure, les domaines magnétiques créés au sein de cette dernière bloquant alors le renversement de toute la structure. Le champ de saturation H_{sat} de la structure couplée est compris entre les champs de saturation des deux électrodes d'une structure magnétiquement découplée.

Pour comprendre ce phénomène de découplage/couplage des deux électrodes en fonction de l'épaisseur de SL, il convient de s'interroger sur les différences de propriétés magnétiques existant entre deux couches ferromagnétiques FePt/Pt(001) de tailles voisines. D'après la figure 4.19, le champ de fuite rayonné à 8nm (*ie* au centre de l'électrode dure) par des parois de domaine au sein de couches ferromagnétiques FePt d'épaisseurs 8 et 10nm est quasi-semblable. Dans les deux cas, la relation $\mu_0 H_{\text{fuite}} + \mu_0 H_{\text{c,SL}} > \mu_0 H_{\text{d,HL}}$ est respecté ; dans les deux cas HL devrait se renverser en même temps que SL.

Le couplage ou découplage entre les deux électrodes provient du mode de renversement de la couche ferromagnétique FePt/Pt (voir paragraphe 1.3.3) : au sein d'une électrode FePt/Pt de faible épaisseur, l'aimantation se renverse par la propagation d'une paroi de domaine qui balaye l'échantillon en laissant peu de domaines magnétiques non renversés derrière elle : la propagation dans SL étant rapide, Les domaines magnétiques n'ont pas le temps de nucléer dans HL. Les mesures dynamiques réalisées sur une JTM FePt(10nm)/MgO(3nm)/FePt(5nm) présentées dans le paragraphe 4.5.2 permettent de bien appréhender ce phénomène.

A la différence, dans une couche FePt de « forte » épaisseur, l'aimantation se renverse en laissant un grand nombre de domaines magnétiques non renversés, piégés sur des micromacles, qui vont rayonner un champ de fuite. Ce piégeage de l'aimantation est observé ici sur l'image 4.22 c) de la configuration magnétique du système couplé en fin de renversement d'aimantation. Nous pouvons donc expliquer le couplage observé par un guidage par le réseau de micromacles des domaines magnétiques nucléés dans SL, favorisant ainsi la fracturation du domaine magnétique en cours de propagation, et par là l'augmentation du champ de fuite rayonné par SL.

4.4 Imagerie d'états magnétiques couplés

Nous avons observé sur la courbe de désaimantation d'un échantillon JTM FePt(10nm)/MgO(3nm)/FePt(5nm) qu'en décrivant des cycles d'aimantation mineurs il est possible d'avoir accès à des états où les deux électrodes sont magnétiquement couplées (voir figure 4.3). Dans cette partie, nous avons étudié le couplage magnétostatique entre les deux électrodes de la structure JTM prises dans des états non-saturés, c'est à dire lorsque le renversement d'aimantation de SL met en jeu des domaines magnétiques exposés au champ de fuite rayonné par l'électrode HL non saturée. Afin de visualiser les mécanismes à l'origine du couplage entre les couches, nous avons utilisé les techniques de mesure par effet Kerr et de MFM, en figeant des configurations magnétiques et en les observant par MFM sous champ appliqué nul. Rappelons que ces mesures ne sont possibles que du fait de la rémanence totale des électrodes.

4.4.1 Description macroscopique

Le processus expérimental suivi consiste à saturer l'échantillon à +0,430T, puis à abaisser le champ magnétique jusqu'à un champ H_{min} négatif correspondant à une étape du renversement d'aimantation de HL. Le champ magnétique est alors soit ramené au champ de saturation (c'est ce qui est étudié dans ce paragraphe, voir figure 4.23) soit amené à un champ final H_{fin} positif correspondant à une étape du renversement de l'électrode douce (c'est ce qui est présenté dans les trois paragraphes suivants). A l'aide de ces mesures macroscopiques, nous pouvons distinguer quatre régimes dans le renversement d'aimantation des deux électrodes suivant la valeur de H_{min} à laquelle le renversement d'aimantation de l'électrode dure est stoppé.

De façon générale, les mesures macroscopiques ne révèlent aucun couplage magnétostatique lorsque H_{min} est proche de $H_{\text{d,HL}}$, c'est à dire au début du renversement d'aimantation de la couche dure. Puis, après un état intermédiaire comprenant deux sauts d'aimantation très rapprochés, lorsque H_{min} se rapproche du champ coercitif de la couche dure nous observons une transition vers une situation dans laquelle il n'y a qu'un seul renversement d'aimantation (voir figure 4.24). La configuration magnétique de HL bloque le renversement d'aimantation de l'ensemble.

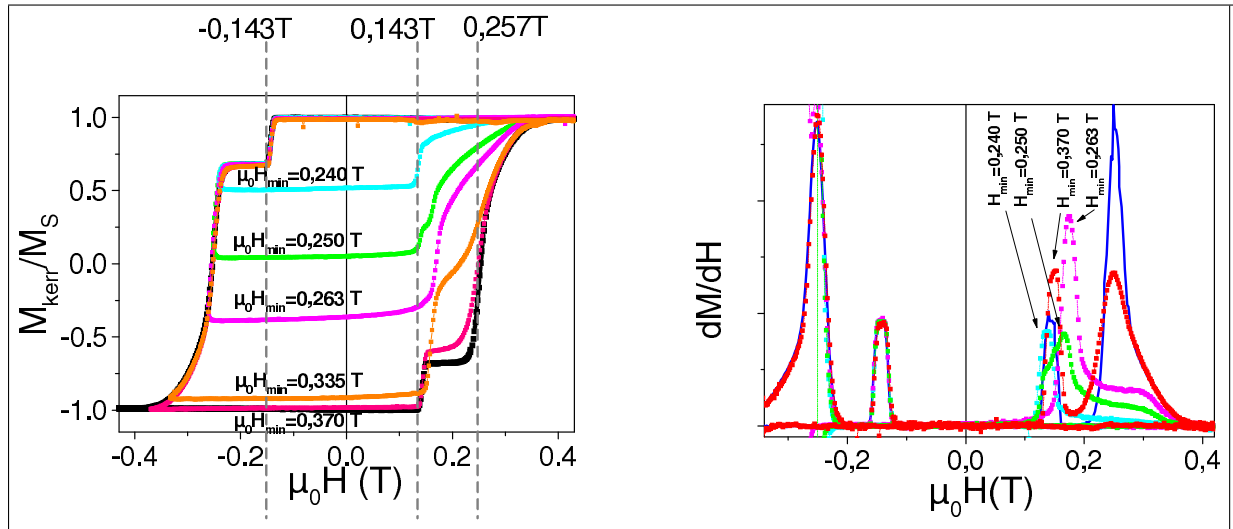


FIG. 4.23: Cycles mineurs (champ appliqué : $0,43T \rightarrow \mu_0 H_{\min} \rightarrow 0,43T$) et leurs courbes dérivées.

- $\mu_0 H_{\min} = -0,240T$ Pas de couplage macroscopique entre les deux électrodes
- $\mu_0 H_{\min} = -0,250T$ SL seule se renverse, puis les deux électrodes se couplent magnétiquement
- $\mu_0 H_{\min} = -0,263T$ Couplage total entre les deux électrodes
- $\mu_0 H_{\min} = -0,335T$ HL et SL se découpent
- $\mu_0 H_{\min} = -0,370T$ HL et SL se découpent.

Ainsi, le « champ coercitif » de la structure couplée (*ie* le champ pour lequel la dérivée seconde de $M(H)$ s'annule) augmente jusqu'à atteindre un maximum à $0,176T$. Notons que ce renversement d'aimantation correspond bien à un renversement simultané des deux électrodes et non pas à un retard dans le retournement de la couche douce seule dû au champ de fuite rayonné par les domaines magnétiques de la couche dure. En effet, l'amplitude du saut d'aimantation unique observé sur les cycles d'hystérésis est beaucoup plus importante que celle liée à SL seule, observée dans le cycle majeur. Par ailleurs, ce retournement couplé abaisse le champ de saturation du système global.

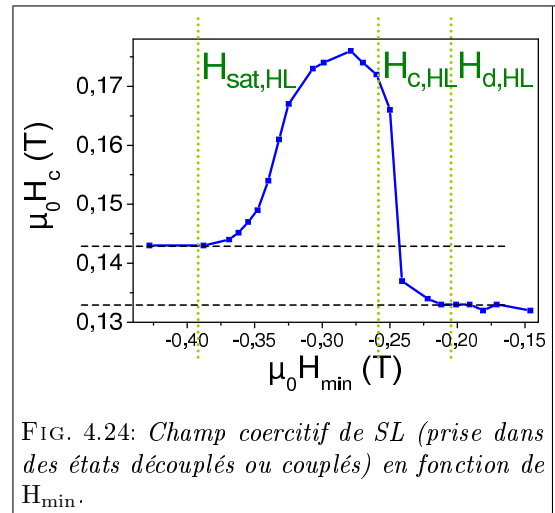
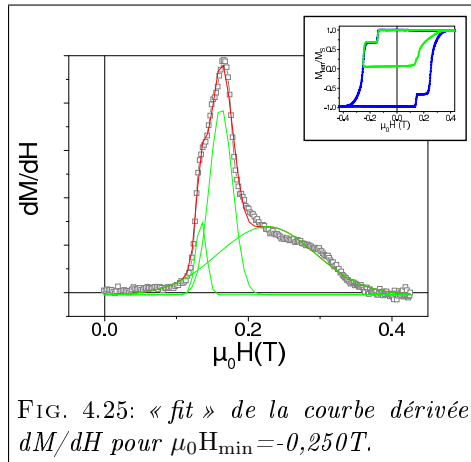


FIG. 4.24: Champ coercitif de SL (prise dans des états découplés ou couplés) en fonction de H_{\min} .

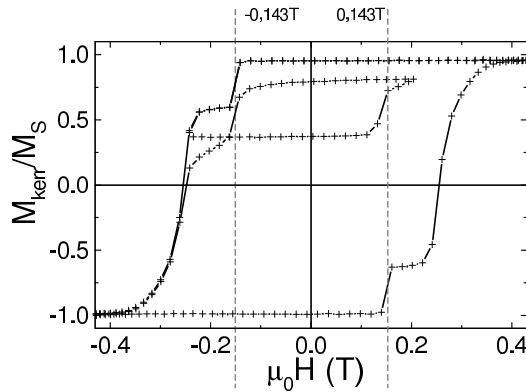
Enfin, pour un champ $\mu_0 H_{\min} = -0,335T$ correspondant à un renversement presque complet de l'aimantation de la couche dure, nous observons un découplage des deux électrodes avec un retour au champ coercitif $\mu_0 H_{c,SL} = 0,143T$ du cycle majeur. La figure 4.24 montre bien comment le champ coercitif de la couche douce $H_{c,SL}$ évolue en fonction de l'excursion en champ à laquelle a été préalablement soumis le système.



Le cas $\mu_0 H_{\min} = -0,250 T$ présenté en figure 4.23 décrit un comportement « hybride » : dans ce cas, la couche dure a été amenée à une aimantation intermédiaire. La courbe dérivée dM/dH associée au cycle d'aimantation peut être ajustée par trois contributions (voir figure ci-contre). La première est centrée sur $0,134 T$, elle correspond au renversement d'aimantation de la couche douce seule. La deuxième, centrée sur $0,162 T$, peut être interprétée comme un renversement couplé associant les aimantations des deux électrodes. La dernière est centrée sur $0,239 T$, ce qui est légèrement inférieur au champ coercitif de l'électrode dure et correspond là aussi à un renversement couplé des deux électrodes.

Deux hypothèses peuvent être avancées pour expliquer ce comportement :

- le renversement d'aimantation se produit selon deux mécanismes successifs : le début du renversement d'aimantation de SL est initié sans couplage puis sous l'effet de l'état magnétique de HL, les domaines magnétiques sont stabilisés au sein de SL, ce qui amène un retournement couplé des deux électrodes,
- le renversement d'aimantation se produit selon deux mécanismes simultanés : suivant les zones considérées de l'échantillon, la couche dure comporte une fraction plus ou moins grande de domaines renversés $HL\downarrow$, de sorte que l'aimantation de SL ne va être bloquée que sur une partie de l'échantillon. La configuration magnétique de l'échantillon à ce moment du renversement d'aimantation est imagée en 4.4.4. Nous verrons donc dans ce paragraphe que cette deuxième hypothèse est vérifiée. Par des mesures macroscopiques, un élément de réponse est cependant apporté par la figure 4.26 : le cycle mineur représenté, réalisé pour un champ $\mu_0 H_{\min} = -0,244 T$, a une amplitude¹³ légèrement supérieure à l'amplitude du saut d'aimantation associé au renversement de SL seule, dans le cycle majeur. Ceci indique une participation de l'électrode dure au saut d'aimantation observé.



Dans les paragraphes suivants, nous présentons les configurations magnétiques observées dans l'électrode douce, dans le courant du renversement de son aimantation, et ce en fonction de l'état d'aimantation de l'électrode dure. Pour ce faire, l'électrode dure est amenée à l'aimantation désirée par un parcours partiel du cycle majeur, puis le champ est renversé jusqu'à observer un début de renversement de l'électrode douce. Finalement, le champ est ramené à une valeur nulle et l'état magnétique rémanent est observé. Notons que les images MFM permettent d'identifier sans ambiguïté les contributions au signal de chacune des deux électrodes.

¹³L'amplitude du cycle est donnée par la différence d'aimantation à champ nul entre les états « \uparrow » et « \downarrow ».

4.4.2 Description microscopique - H_{\min} proche de $H_{d,HL}$

Lorsque le champ H_{\min} est pris à proximité de $H_{d,HL}$, le renversement d'aimantation de l'électrode douce n'est apparemment pas perturbé au vu des mesures macroscopiques. A partir de la courbe dérivée dM/dH présentée en figure 4.23a), nous pouvons raisonnablement faire l'hypothèse que les deux électrodes - douce et dure - se retournent successivement.

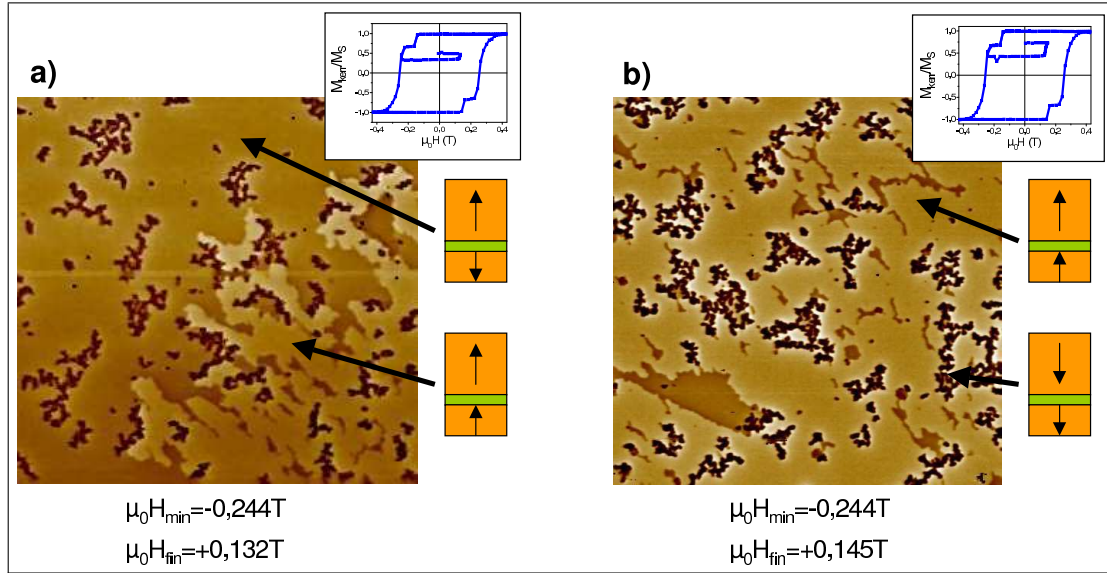


FIG. 4.27: Images MFM ($20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$) des configurations magnétiques des deux électrodes lorsque HL est en début de renversement et SL en milieu de renversement d'aimantation.

Les images 4.27a) et b) correspondent respectivement aux procédures ($\mu_0 H_{\min} = -0,244\text{T} / \mu_0 H_{\text{fin}} = 0,132\text{T}$) et ($\mu_0 H_{\min} = -0,244\text{T} / \mu_0 H_{\text{fin}} = 0,145\text{T}$). Les domaines magnétiques correspondant aux deux électrodes sont observés simultanément, le signal magnétique de la couche douce apparaissant par transparence au travers de celui associé à la couche dure : sur ces images, les domaines magnétiques les plus sombres correspondent aux domaines $HL\downarrow$, puis viennent les domaines $SL\downarrow$, et les plus clairs sont les domaines $SL\uparrow$. Nous retrouvons le comportement magnétique décrit en 4.2.2 correspondant au renversement d'aimantation de l'électrode douce au cours du cycle majeur : un domaine magnétique géant ayant une paroi ancrée suivant les directions $[110]$ et $[-1-10]$ du cristal se répand sur tout l'échantillon. Des petits domaines filiformes non renversés, de configuration magnétique $(SL\downarrow/HL\uparrow)$, subsistent là encore après le passage de cette paroi principale balayant l'échantillon.

Sur ces images, nous visualisons un effet de HL sur SL. Ainsi, sur l'image a), la paroi du grand domaine \downarrow de la couche douce est le plus souvent ancrée sur des domaines renversés \downarrow de la couche dure. Cependant, il n'y a pas de réplication des configurations magnétiques, et au final, le couplage observé entre les deux électrodes est suffisamment localisé pour ne pas laisser de traces évidentes sur les données macroscopiques.

4.4.3 Description microscopique - H_{\min} proche de $H_{c,HL}$

La figure 4.28 présente les images MFM des configurations magnétiques obtenues à l'issue des procédures ($\mu_0 H_{\min} = -0,260\text{T} / \mu_0 H_{\text{fin}} = 0,150\text{T}$) pour a), ($\mu_0 H_{\min} = -0,260\text{T} / \mu_0 H_{\text{fin}} = 0,160\text{T}$) pour b) et ($\mu_0 H_{\min} = -0,260\text{T} / \mu_0 H_{\text{fin}} = 0,200\text{T}$) pour c). Les courbes dérivées montrent que le renversement d'aimantation de la structure vers l'état \uparrow/\uparrow est principalement réalisé par un renversement couplé des deux électrodes entre 0,130T et 0,200T (voir figure 4.23).

Ici, le renversement d'aimantation de SL donne lieu à une réplication partielle des domaines magnétiques. Celle-ci doit s'interpréter comme « un guidage » des domaines $SL\uparrow$ qui se propagent entre les bornes fixées par le champ de fuite intense au niveau des parois de domaine de la couche dure. Le contraste d'intensité des images MFM permet d'observer le renversement de SL en même temps que celui de HL : les zones claires correspondent à des endroits où les deux couches ferromagnétiques sont aimantées \uparrow . Le champ H_{\min} correspondant à l'arrêt du renversement \uparrow vers \downarrow de la couche dure a été fixé à $-0,260\text{T}$, ce qui correspond sur l'image a) à 61% de domaines renversés $HL\downarrow$.

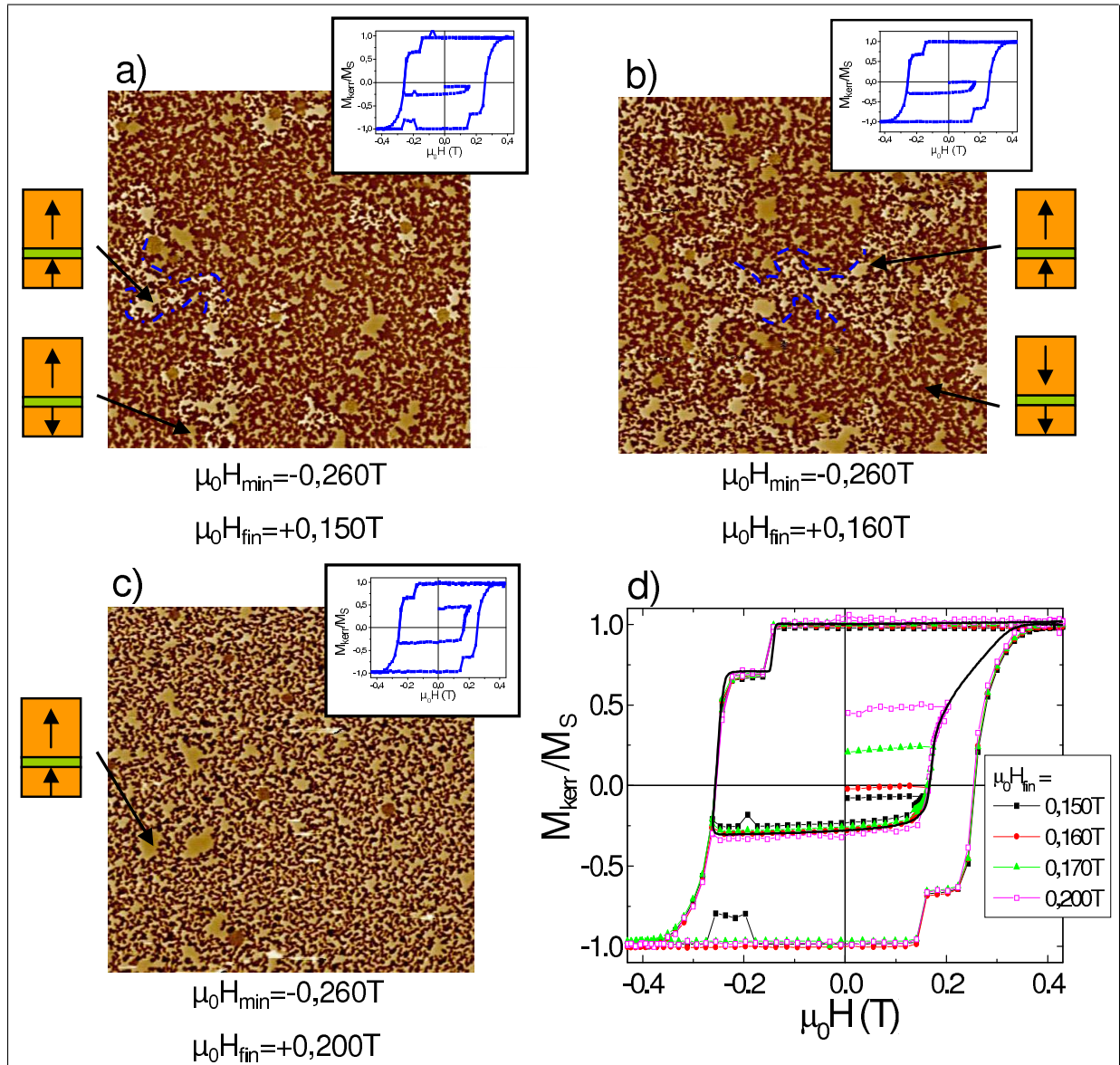


FIG. 4.28: Images MFM ($20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$) des configurations magnétiques des deux électrodes lorsque HL et SL sont en milieu de renversement d'aimantation et cycles d'aimantation associés.

L'image a) est associée à un champ $\mu_0 H_{\text{fin}} = 0,150\text{T}$ correspondant au début du renversement des électrodes couplées. Les interactions dipolaires entre les deux électrodes modifient radicalement le processus de renversement de SL observé jusqu'à alors : la propagation de domaines magnétiques est bloquée, ce qui rend possible l'observation de plusieurs sites de nucléation à partir desquels les domaines magnétiques se propagent : huit domaines (SL \uparrow /HL \uparrow) séparés sont imagés sur une surface de $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$. Par comparaison, rappelons que nous n'observons guère qu'un seul domaine se propageant dans SL lorsque HL est saturée.

Sur l'image b), nous observons que le renversement d'aimantation couplé se fait par un guidage mutuel des domaines magnétiques. Les domaines magnétiques de l'électrode dure rayonnent un champ de fuite qui favorise la réplique de domaines dans SL en bloquant la propagation de parois dans cette dernière électrode. Cependant, la réplique des domaines n'est pas parfaite. Ainsi, en certains points, la paroi de domaine présente dans SL parvient à franchir un point de blocage, c'est à dire un espace séparant deux domaines magnétiques de HL disjoints : au niveau de ces points, l'aimantation dans SL est alors renversée sur l'intégralité de la surface définie par le domaine d'arrivée dans HL. Bien que l'on soit en dessous du champ de décrochage de HL ($\mu_0 H_{\text{fin}} < 0,18\text{T}$), la fraction de domaines aimantés \downarrow dans la couche dure a légèrement diminué, passant de 61% à 56%.

Toujours pour un champ $\mu_0 H_{\text{min}} = -0,260\text{T}$, sur l'image c) nous n'observons plus que deux contrastes

d'intensité - des domaines sombres (représentant 40% de l'image) et des domaines clairs - pour $\mu_0 H_{\text{fin}} = 0,200\text{T}$: il n'y a plus d'indication d'un comportement magnétique spécifique à SL. Le système JTM se comporte alors comme une couche ferromagnétique unique, le renversement de l'aimantation dans les deux électrodes se fait par réplication de domaines.

4.4.4 Description microscopique - Retour à un cas intermédiaire : H_{min} entre $H_{\text{d,HL}}$ et $H_{\text{c,HL}}$

Revenons maintenant au cas intermédiaire évoqué dans le paragraphe 4.4.1. Pour $\mu_0 H_{\text{min}} = -0,250\text{T}$, le cycle d'hystérésis présente deux sauts d'aimantation lors du retour à l'état saturé (SL \uparrow /HL \uparrow), l'un correspondant au renversement d'aimantation de SL seule et le second au renversement d'aimantation des électrodes couplées. La figure 4.29 présente une image MFM de la configuration magnétique observée à l'issue de la procédure ($\mu_0 H_{\text{min}} = -0,250\text{T}$ / $\mu_0 H_{\text{fin}} = 0,140\text{T}$).

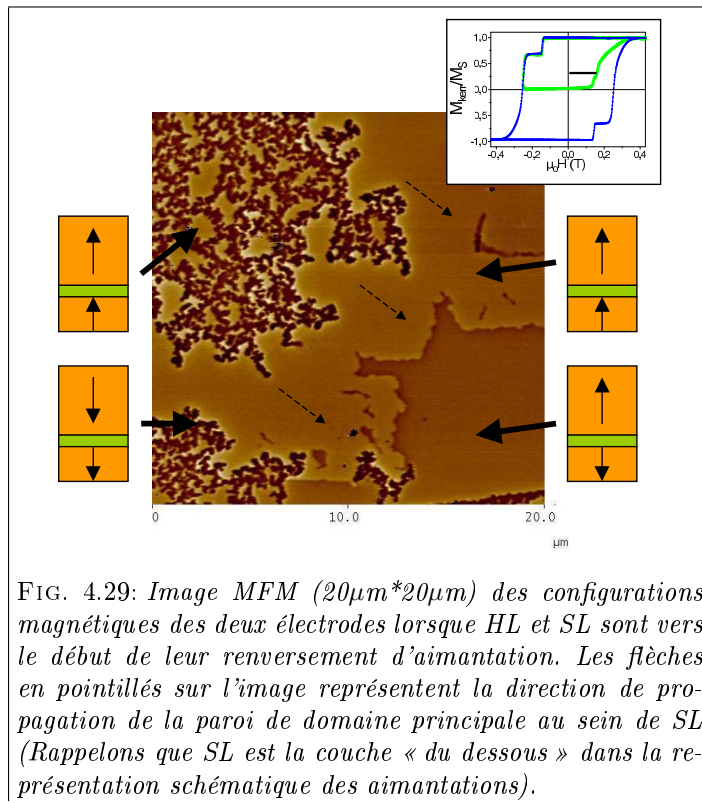


FIG. 4.29: Image MFM ($20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$) des configurations magnétiques des deux électrodes lorsque HL et SL sont vers le début de leur renversement d'aimantation. Les flèches en pointillés sur l'image représentent la direction de propagation de la paroi de domaine principale au sein de SL (Rappelons que SL est la couche « du dessous » dans la représentation schématique des aimantations).

Sur cette image, les deux états de couplage décrits précédemment sont parfaitement retrouvés : sur sa partie gauche, l'image comporte une importante fraction de domaines HL \downarrow , qui bloquent le renversement d'aimantation de SL. En revanche, le contraste d'intensité de l'image laisse apparaître la présence d'une paroi de domaine très longue, qui peut clairement être associée au renversement d'aimantation « down » vers « up » de SL seule. Comme signalé précédemment, cette paroi principale laisse derrière elle des domaines (SL \downarrow /HL \uparrow) d'allure filiforme ; par ailleurs, elle se retrouve piégée localement là où la couche dure est aimantée \downarrow .

L'observation des deux mécanismes de renversement de l'électrode douce - renversement « libre », par propagation d'un domaine géant qui balaye l'échantillon, et renversement « bloqué », par réplication de domaines magnétiques entre la couche douce et la couche dure - est simultanée.

L'observation de deux sauts d'aimantation successifs sur le cycle d'hystérésis (voir figure 4.23) s'explique par le fait que dans les deux mécanismes de renversement d'aimantation de SL décrits - renversement par réplication de domaines avec HL ou renversement dit « libre », analogue à ce qui se passe lors de la description du cycle d'aimantation majeur - le deuxième se termine beaucoup plus tôt : ce qui laisse donc raisonnablement supposer que la propagation des domaines magnétiques nucléés au sein de HL est assez inhomogène. Ainsi, lorsque HL est dans un état magnétique correspondant au début de son renversement d'aimantation, certaines zones de l'échantillon comportent une forte proportion de domaines HL \downarrow , mais ce n'est pas le cas en d'autres endroits. Ainsi, lorsqu'un champ magnétique positif est appliqué à partir de cet état magnétique, les domaines magnétiques apparaissant lors du renversement d'aimantation de SL peuvent être piégés ou pas. Les zones où les domaines magnétiques peuvent se propager quasiment sans entraves vont se renverser rapidement, ce qui conduit à la saturation précoce (SL \uparrow /HL \uparrow) d'une partie importante de l'échantillon - le reste se renversant par réplication de domaines magnétiques avec HL.

4.4.5 Description microscopique - H_{min} proche de $H_{\text{sat,HL}}$

Nous allons maintenant étudier le cas limite où l'électrode dure est amenée dans un état proche de la saturation. lorsque H_{min} se rapproche de $H_{\text{HL,sat}}$, les cycles d'aimantation mineurs montrent un découplage progressif des électrodes, avec la réapparition de deux sauts d'aimantation nets correspondant

aux retournements séparés de SL et HL. Deux images MFM associées aux procédures ($\mu_0 H_{\min} = -0,350\text{T}$ / $\mu_0 H_{\text{fin}} = 0,150\text{T}$) pour a) et ($\mu_0 H_{\min} = -0,350\text{T}$ / $\mu_0 H_{\text{fin}} = 0,155\text{T}$) pour b) sont présentées sur la figure 4.30. Le champ $\mu_0 H_{\min} = -0,350\text{T}$ correspond à 92% de domaines HL renversés \downarrow .

On observe quatre contrastes d'intensité sur ces images, correspondant aux quatre configurations magnétiques possibles :

- en blanc intense, (SL \uparrow /HL \uparrow),
- en blanc plus fade, (SL \downarrow /HL \uparrow). Il s'agit des domaines non renversés dans HL au niveau du cycle majeur,
- en brun clair, (SL \uparrow /HL \downarrow),
- en brun foncé (SL \downarrow /HL \downarrow).

C'est dans ce mode de couplage que l'effet de HL sur le renversement de SL est le plus visible. L'image 4.30 b) peut ainsi être divisée en deux parties, une où SL est aimantée \downarrow et une où SL est très majoritairement aimantée \uparrow . Ceci indique que le mécanisme gouvernant le renversement d'aimantation de l'électrode douce est à nouveau un mécanisme mettant en jeu la propagation d'un domaine magnétique à partir d'un « unique » site de nucléation. Ce mécanisme est cependant altéré par des « îlots de défauts magnétiques » correspondant aux défauts de saturation de l'électrode dure. En effet, nous pouvons distinguer sur l'image 4.30 a) plusieurs sites où la nucléation a eu lieu dans SL, la propagation d'un domaine magnétique à partir de ces sites étant bloquée par l'état magnétique de HL.

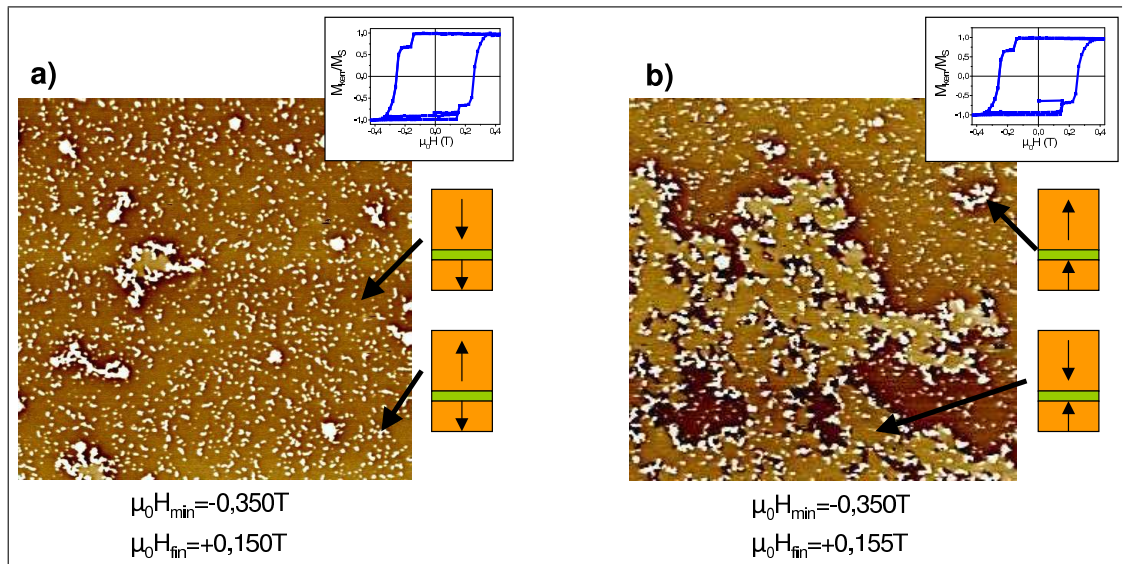


FIG. 4.30: Images MFM ($20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$) donnant les configurations magnétiques des deux électrodes lorsque HL est en fin de renversement et SL en milieu de renversement d'aimantation.

Ici, les très nombreux défauts de saturation \uparrow de HL rayonnent un champ magnétique qui va guider et/ou bloquer le retournement de SL. Ainsi, sur l'image b), la paroi de domaine principale séparant les deux parties de l'image aimantées majoritairement SL \uparrow et SL \downarrow suit parfaitement une courbe reliant les défauts de saturation de HL. Les domaines magnétiques de l'électrode douce ont visiblement du mal à s'affranchir du guidage mis en place par HL et à se propager de façon indépendante, bien que le renversement d'aimantation de SL puisse se dérouler sans qu'il n'y ait de phénomène de réplication de domaines. En cela, le comportement magnétique de la structure observé ici, lorsque H_{\min} est proche de $H_{\text{sat,HL}}$, diffère énormément de ce qui a été décrit dans le paragraphe 4.4.2, pour H_{\min} proche de $H_{\text{d,HL}}$, et ce bien que la proportion des domaines d'aimantation minoritaire dans HL puisse être sensiblement la même. Ainsi, nous pouvons observer ici la présence de domaines SL \downarrow de grande taille au sein de la zone de l'échantillon aimantée majoritairement SL \uparrow .

Notons également la mise en évidence d'un effet magnétostatique de SL sur HL, effet qui n'avait pas été observé dans les modes de couplage décrits précédemment : deux tailles caractéristiques de domaines HL \uparrow apparaissent, chacune de celles-ci étant associée sur l'image à un contraste d'aimantation. Les petits domaines correspondant à la configuration magnétique (SL \downarrow /HL \uparrow), les plus grands à la configuration (SL \uparrow /HL \uparrow). Les défauts de saturation présents dans HL au champ H_{\min} sont en effet agrandis là où l'aimantation de SL est piégée, *ie* au niveau des sites de nucléation de SL et au niveau des paroi de domaines de SL. Le champ de fuite rayonné par SL est alors maximum ; il est suffisant pour accroître la

tailles des domaines magnétiques de HL à ce niveau : les deux couches ferromagnétiques influent l'une sur l'autre, HL en piégeant les parois de domaines, SL en permettant une augmentation de la taille de ces domaines piégeants.

4.4.6 Conclusion

Bien que les cycles d'aimantation majeurs ne laissent pas apparaître de traces d'un couplage entre les deux couches ferromagnétiques, nous avons pu mettre en évidence dans cette section la possibilité d'obtenir différents mécanismes de renversement de SL suivant l'état magnétique de HL.

D'une manière générale, on introduit des « défauts magnétiques » en plaçant HL dans un état d'aimantation non saturé. Ces défauts vont agir comme des sites de piégeage, à même de bloquer la propagation des parois de domaine dans SL, par le champ de fuite qu'ils rayonnent. La rémanence des échantillons étant totale, nous avons montré qu'il est possible de choisir une configuration magnétique de HL qui conduise à tel ou tel mécanisme de renversement de SL : l'état d'aimantation de HL peut être adapté pour moduler la force du couplage entre les deux électrodes.

4.5 Dynamique de la propagation de domaines magnétiques dans les JTM FePt/MgO/FePt

Cette étude d'imagerie Kerr sur des JTM a été réalisée en collaboration avec l'équipe d'Alexandra Mougin et Jacques Ferré du Laboratoire de Physique des Solides (LPS). Rappelons que la résolution optique de leur banc de mesure est de l'ordre de $0,5\mu\text{m}$. Toutes les images présentées dans cette partie correspondent à la différence entre les données expérimentales associées à l'état saturé (SL \uparrow /HL \uparrow) (uniformément noir) et à l'état magnétique obtenu (blanc, ou différents contrastes de gris suivant l'état magnétique).

4.5.1 Imagerie lors de la description du cycle d'hystérésis

Un cycle d'aimantation majeur de la structure a été réalisé : les champs coercitifs mesurés sur l'échantillon étudié sont $\mu_0 H_{c,SL}=0,120\text{T}$ et $\mu_0 H_{c,HL}=0,232\text{T}$. Aucune image des configurations magnétiques de SL lors de son renversement d'aimantation n'a été prise, mais nous confirmons que nous n'avons jamais pu observer de domaine magnétique nucléé dans HL à l'issue de ce renversement d'aimantation. En revanche, la propagation des domaines magnétiques dans l'électrode dure a pu être imagée (voir figure 4.31). L'image représente deux stades de propagation des domaines magnétiques, pour un même champ appliqué $\mu_0 H_{\text{appliqué}}=-0,232\text{T}$: les domaines en gris correspondent à une propagation durant les 3 premières secondes et les domaines en blanc la propagation durant les 37 secondes suivantes. Notons bien que c'est durant les toutes premières secondes que la propagation est la plus rapide : les premiers domaines renversés empêchent la propagation du fait de l'effet dipolaire qu'ils créent.

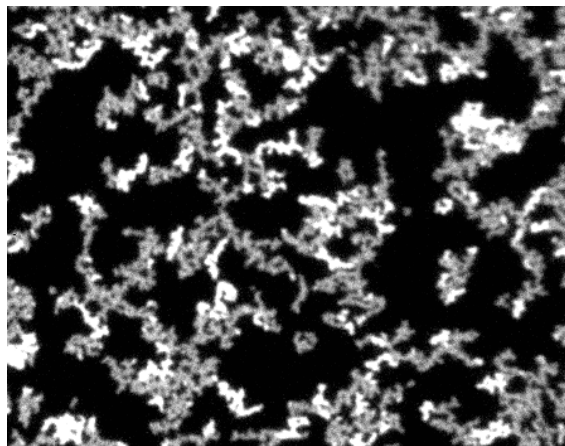


FIG. 4.31: Image par microscopie Kerr ($48,6\mu\text{m} \times 37,8\mu\text{m}$) de la configuration magnétique observée lors de la description du cycle majeur, après application d'un champ $\mu_0 H_{\text{appliqué}}=-0,232\text{T}$ pendant 3 secondes (domaines gris) puis pendant 37 secondes supplémentaires (domaines blancs).

4.5.2 Propagation des domaines dans la couche douce

Partant d'un état saturé (SL↑/HL↑), nous avons essayé de faire nucléer un domaine magnétique dans la couche douce par application d'une impulsion de champ. Ainsi, après un « pulse » de champ de $-0,170\text{T}$ appliqué durant $1\mu\text{s}$, nous observons le domaine elliptique de la figure 4.32 a).

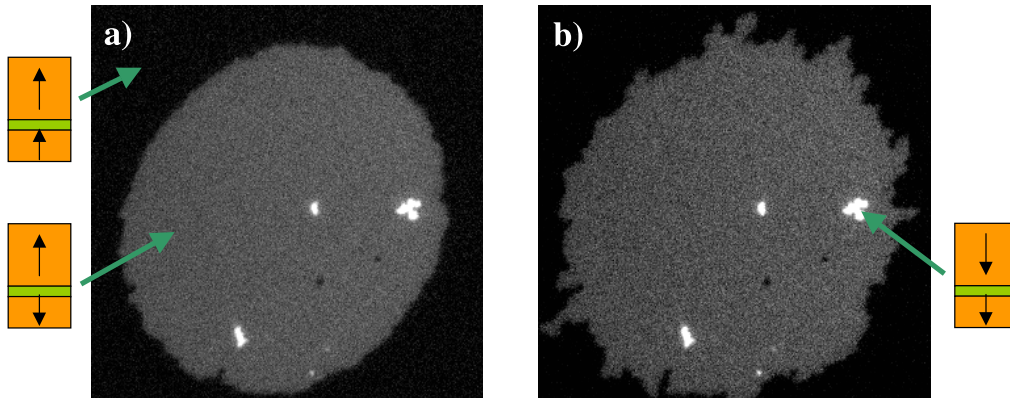


FIG. 4.32: Images par microscopie Kerr ($32,4\mu\text{m} * 32,4\mu\text{m}$) de la configuration magnétique observée :

a) après un « pulse » de champ de $-0,170\text{T}$ pendant $1\mu\text{s}$, la configuration magnétique initiale de l'échantillon étant (SL↑/HL↑)

b) après application d'un champ de $-0,089\text{T}$ pendant 60s , à partir de l'état magnétique précédent

Le bord inférieur des images correspond à la direction cristallographique [100].

Nous pouvons noter dès à présent une différence de comportement magnétique de la JTM avec ce qui a été présenté dans le paragraphe précédent, *ie* lors de la description du cycle d'hystérésis : à ce moment, le champ magnétique était appliqué pendant des durées « longues » et l'expérience ne faisait apparaître aucun domaine nucléé dans HL avant d'avoir atteint un champ de l'ordre de $-0,231\text{T}$ (l'électrode douce était complètement saturée ↓ avant le renversement de la couche dure). Ici, en travaillant sur un système (SL↑/HL↑) avec des impulsions de champ courtes mais intenses, de petits domaines magnétiques - en blanc intense sur l'image - correspondant à un renversement d'aimantation de HL apparaissent pour une amplitude de champ appliqué très inférieure au champ de renversement de l'électrode dure.

Partant de l'état magnétique décrit par la figure a), l'application d'un champ d'amplitude « faible » $-0,089\text{T}$ pendant 60s nous amène dans l'état magnétique donné par la figure b) : pour cette valeur de champ, la bulle magnétique nucléée dans SL se propage en adoptant une forme dendritique. Nous pouvons remarquer que les domaines nucléés dans HL à l'issue du premier « pulse » de champ ne sont pas affectés.

A la lumière de ce qui a été décrit dans le paragraphe 4.3.3, nous pouvons supposer que ces domaines (ici en blanc) nucléés au sein de HL au niveau de la paroi de domaine présente dans la couche douce, par superposition de l'effet dipolaire (le champ de fuite perpendiculaire maximal rayonné à l'aplomb d'une paroi de domaine d'une couche FePt épaisse de 5nm est $\mu_0 H_{z,\text{max}} = 0,09\text{T}$) et de l'effet Zeeman ($\mu_0 H_{\text{appliqué}} = 0,170\text{T}$ au moment de l'impulsion de champ). Puis, quand le domaine elliptique se propage dans SL, ces défauts HL↓ n'évoluent plus car ils ne bénéficient plus de ce champ supplémentaire lié à la présence de la paroi dans l'électrode douce. En outre, à la fin de l'impulsion intense, aucun nouveau domaine HL↓ ne peut apparaître au niveau de la paroi de domaine du domaine gris SL↓, car la somme du champ de fuite rayonné par la paroi et du champ extérieur reste très inférieure au champ de nucléation de HL ($\mu_0 H_{\text{total}} < 0,18\text{T}$).

Soulignons qu'il y a deux inconnues à considérer dans cette expérience : d'une part l'amplitude du champ de fuite rayonné par la paroi d'un domaine présent dans la couche douce et d'autre part la valeur du champ de nucléation *local* de l'électrode dure. Ainsi, par exemple, pour quantifier l'amplitude de la contribution attribuable au champ dipolaire rayonné par la paroi magnétique de la couche douce, il faudrait procéder en deux étapes :

- tout d'abord, en régime impulsif, déterminer le champ de nucléation de l'électrode dure à partir d'un état magnétique (SL↓/HL↑) en appliquant des impulsions de champ d'amplitude décroissante.
- puis, sur la même zone de l'échantillon et à partir d'un état magnétique (SL↑/HL↑), déterminer l'ampli-

tude minimale de l'impulsion de champ à appliquer pour avoir nucléation dans les deux électrodes.

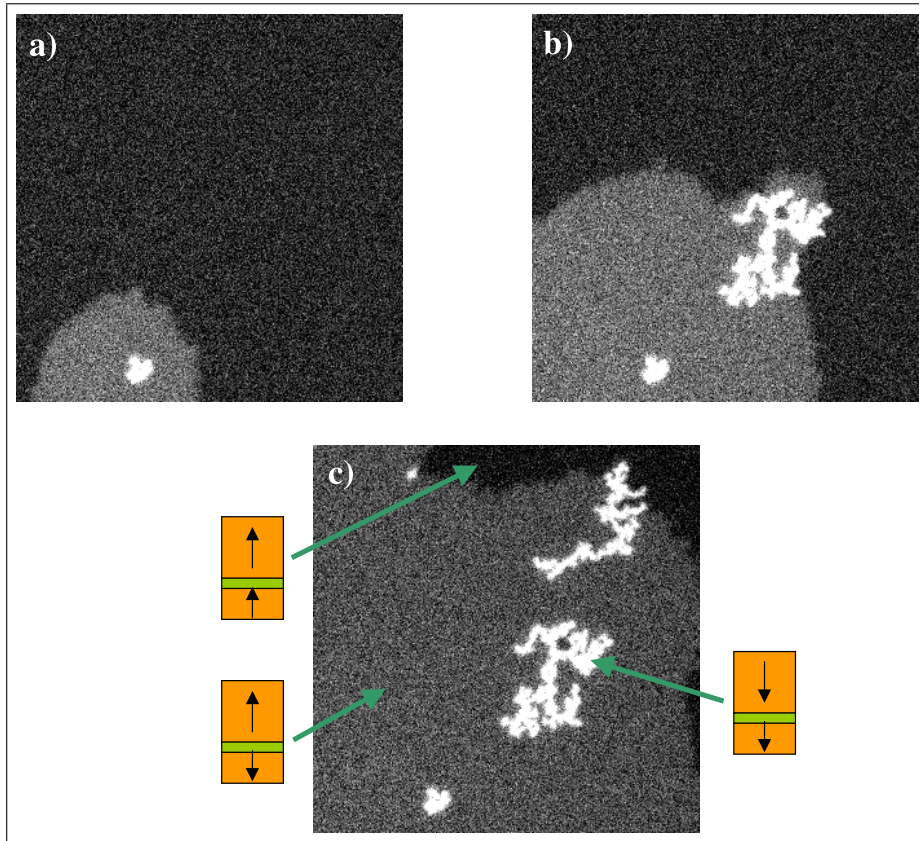


FIG. 4.33: Images obtenues par effet Kerr ($32,4\mu\text{m} \times 32,4\mu\text{m}$) de la configuration magnétique observée :

- a) après un premier « pulse » de champ de $-0,1815\text{T}$ pendant $0,5\mu\text{s}$, la configuration magnétique initiale de l'échantillon étant (SL \uparrow /HL \uparrow)
- b) après application d'un second « pulse » identique à partir de l'état magnétique « a »
- c) après application d'un troisième « pulse » identique à partir de l'état magnétique « b ».

La figure 4.33 présente le résultat de l'application d'impulsions successives. L'échantillon est tout d'abord amené à saturation dans l'état magnétique (SL \uparrow /HL \uparrow), puis un premier « pulse » de champ de $-0,1815\text{T}$ est appliqué pendant $0,5\mu\text{s}$ (image a)). Sans revenir à la saturation, une seconde impulsion identique est appliquée à partir de l'état magnétique précédent (image b)), puis une troisième (image c)).

Au moment de chaque impulsion de champ, des domaines nucléent dans la couche dure et se propagent au voisinage du bord du domaine de la couche douce. Dès qu'ils se retrouvent au milieu de bulle d'aimantation renversée de la couche douce, ces domaines n'évoluent plus : c'est le cas par exemple du domaine blanc apparu au centre de l'image b) et que nous retrouvons absolument inchangé sur l'image c). Par ailleurs, aucun nouveau domaine HL \downarrow n'apparaît au niveau des zones de SL déjà renversées. Soulignons que sur ces images, les domaines magnétiques HL \downarrow nucléés au sein de HL apparaissent comme étant à l'intérieur du domaine renversé SL \downarrow . Ils sont cependant certainement créés au niveau de la paroi de domaine de l'électrode douce, au moment de la propagation, et non pas à l'intérieur ou l'extérieur du domaine SL \downarrow . Après la troisième impulsion de champ, le système a été laissé dans l'état magnétique décrit par la figure c) pendant quarante minutes, sans qu'aucune évolution ne soit constatée.

Il est également intéressant de constater que, le champ appliqué durant l'impulsion étant très supérieur au champ de propagation dans l'électrode douce, nous obtenons un domaine de forme compacte (bulle) au sein de celle-ci. A l'opposé, les domaines qui apparaissent dans l'électrode dure adoptent une morphologie dendritique, qui témoigne de l'influence de défauts sur leur chemin de propagation : le champ appliqué devrait être bien plus important au sein de l'électrode dure pour obtenir une morphologie compacte.

Partant de l'état magnétique saturé (SL \downarrow /HL \downarrow) cette fois-ci (uniformément blanc sur l'image), l'appli-

cation d'une impulsion de très forte amplitude entraîne la propagation de domaines magnétiques $HL\uparrow$ sur une fraction importante de la bulle renversée $SL\uparrow$. La figure 4.34 a) donne ainsi un exemple de l'évolution de l'état magnétique de l'échantillon soumis à un « pulse » de champ de $+0,192T$ pendant $0,3\mu s$. Un seul domaine $HL\uparrow$ peut être distingué. Son allure est dendritique, avec différentes ramifications convergeant vers un seul centre : nous pouvons en déduire que la croissance de ce domaine $HL\uparrow$ s'est faite de façon à peu près isotrope par une propagation ininterrompue accompagnant l'avancée de la bulle $SL\uparrow$.

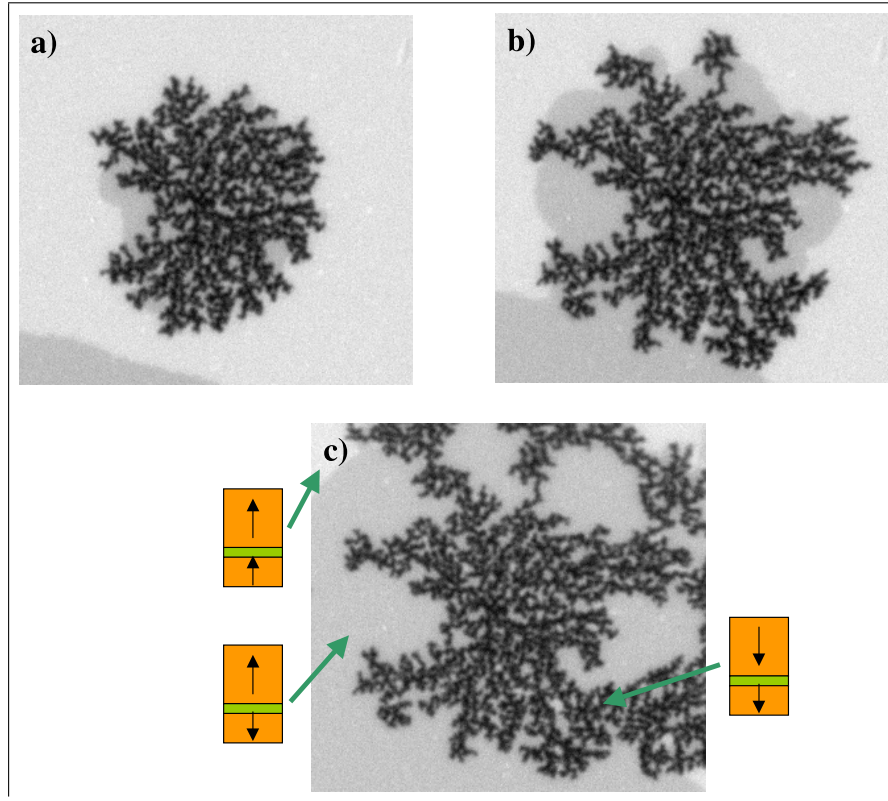


FIG. 4.34: Images obtenues par effet Kerr ($32,4\mu m * 30,2\mu m$) de la configuration magnétique observée :

- a) après un premier « pulse » de champ de $-0,1923T$ pendant $0,3\mu s$, la configuration magnétique initiale de l'échantillon étant ($SL\downarrow/HL\downarrow$)
 b) après application d'un second « pulse » de même amplitude pendant $0,1\mu s$, à partir de l'état magnétique « a) »
 c) après application d'un troisième « pulse » de même amplitude pendant $0,2\mu s$, à partir de l'état magnétique « b) ».

Après une nouvelle impulsion de champ ($+0,192T$ pendant $0,1\mu s$) appliquée à l'état magnétique précédent, le domaine magnétique $HL\uparrow$ (en noir sur l'image) accompagne toujours la progression du domaine $SL\uparrow$ (en gris), mais de façon moins homogène : en de nombreux endroits, sa progression s'est interrompue et le front d'avancée de la bulle $SL\uparrow$ se trouve délogé. Comme dans les cas précédents, les branches du domaine $HL\downarrow$ « déconnectées » de la paroi de la bulle $SL\uparrow$ ne peuvent plus évoluer. Comme avancé plus haut, ce phénomène de décrochage témoigne de l'inhomogénéité des propriétés magnétiques locales de l'échantillon : le domaine magnétique $HL\uparrow$ suit des chemins de plus facile propagation, le champ appliqué étant encore trop faible pour lui permettre de surpasser toutes les barrières de potentiel rencontrées.

4.5.3 Etude de la propagation dans un état magnétique non saturé

Partant de l'état saturé ($SL\uparrow/HL\uparrow$), la figure 4.35 a) donne la configuration magnétique de l'échantillon après application d'un champ intense $\mu_0 H = -0,212T$ pendant 20 secondes : l'aimantation de l'électrode douce est complètement renversée, et quelques petits domaines $HL\downarrow$ sont apparus au cours du processus (dont la nucléation résulte certainement de la superposition de l'effet dipolaire et du terme Zeeman).

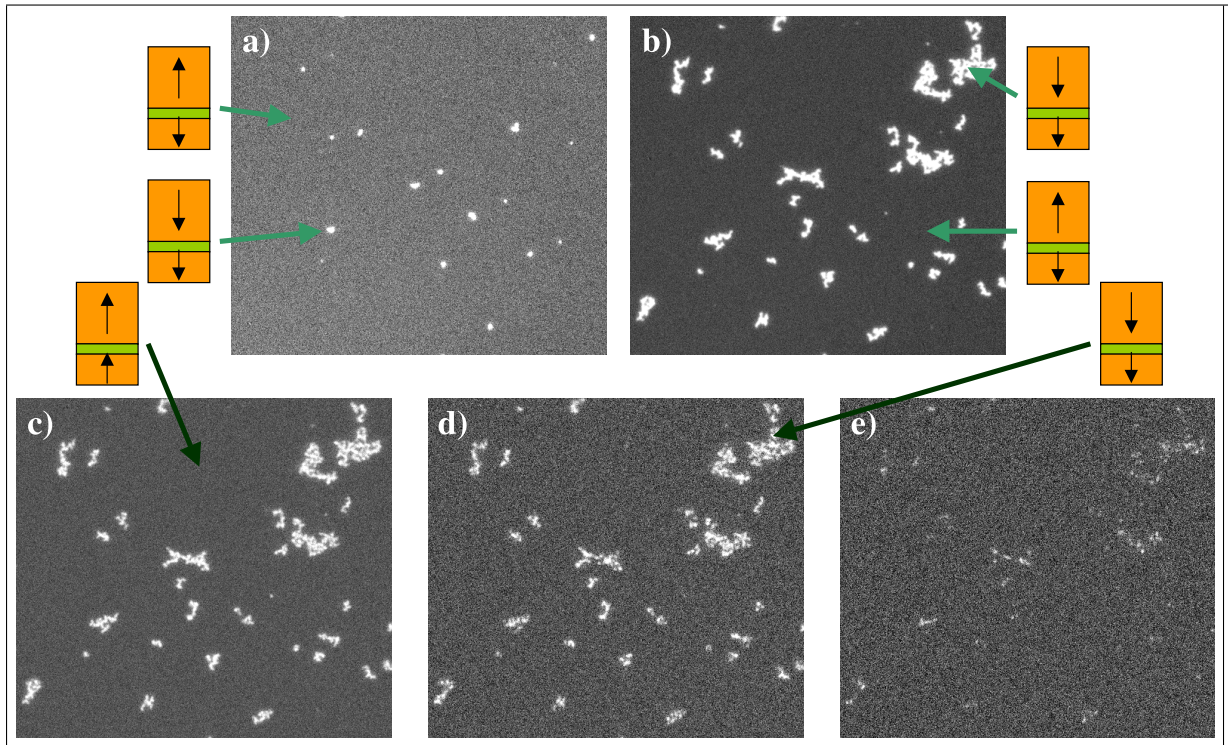


FIG. 4.35: Images par Imagerie Kerr ($54,0\mu\text{m} \times 48,6\mu\text{m}$) de la configuration magnétique observée :
 a) après application d'un champ $\mu_0\text{H} = -0,212\text{T}$ pendant 20s, la configuration magnétique initiale de l'échantillon étant (SL↑/HL↑)
 b) après application d'un champ $\mu_0\text{H} = -0,228\text{T}$ pendant 50s, à partir de l'état magnétique « a) »
 c) après application d'un champ $\mu_0\text{H} = +0,230\text{T}$ pendant 20s, à partir de l'état magnétique « b) »
 d) après application d'un champ $\mu_0\text{H} = +0,299\text{T}$ pendant 50s, à partir de l'état magnétique « c) »
 e) après application d'un champ $\mu_0\text{H} = +0,346\text{T}$ pendant 1s, à partir de l'état magnétique « d) ».

Par l'application d'un champ $\mu_0\text{H} = -0,228\text{T}$ pendant 50 secondes à partir de l'état magnétique précédent, la configuration magnétique de la figure b) est obtenue : nous observons la nucléation de domaines HL↓ en de nombreux endroits de l'image, et un début de propagation de la part de quelques uns d'entre eux.

L'image suivante c) correspond à un renversement du champ vers des champs positifs : un champ $\mu_0\text{H} = +0,230\text{T}$, légèrement inférieur au champ coercitif de HL, est appliqué pendant 20 secondes à l'état magnétique donné par la figure b). L'électrode douce se renverse complètement, mais les domaines HL↓ filiformes apparus à l'étape précédente sont toujours là et il est remarquable de constater qu'ils n'ont quasiment pas évolué. Ils semblent toutefois plus fins que dans le cas précédent. Après application de $\mu_0\text{H} = +0,299\text{T}$ pendant 50 secondes, nous observons sur l'image d) que les petits domaines blancs HL↓ sont de plus en plus fins et commencent à disparaître. La dernière image, l'image e), donne un aperçu de leur évolution après application d'un champ $\mu_0\text{H} = +0,346\text{T}$ pendant 1 seconde. Pour un même champ appliqué pendant 2 secondes, les derniers domaines HL↓ disparaissent complètement : l'échantillon est alors à nouveau saturé (SL↑/HL↑).

4.6 Conclusion globale sur l'étude du couplage entre électrodes

Nous avons mené une étude détaillée des configurations magnétiques mises en jeu dans chaque électrode lors de leurs renversements d'aimantation. Nous avons pu ainsi déterminer les mécanismes aboutissant au couplage ou au découplage magnétique de la structure « pleine plaque » lors de la description de cycles d'aimantation majeur et mineurs. En particulier, soulignons que le découplage de la structure FePt/MgO/FePt lors d'un cycle d'hystérésis majeur n'est pas assuré dans le cas général (*ie* indépendamment de la morphologie des échantillons) : il dépend notamment des épaisseurs des deux électrodes, ces épaisseurs déterminant le champ de fuite rayonné par une couche ferromagnétique sur la seconde au moment de son renversement d'aimantation.

Un pas supplémentaire important reste à franchir, à savoir la reprise de cette étude sur des plots correspondant à des JTMs nanostructurées. En effet, dans un plot de diamètre submicronique, les phénomènes gouvernant le renversement d'aimantation de chaque électrode devraient différer sensiblement de ce qui a été décrit dans ce chapitre.

Chapitre 5

Structuration des échantillons par photolithographie - Mesures de transport

Dans ce chapitre, nous présentons dans un premier temps les techniques expérimentales utilisées pour structurer les échantillons en systèmes de tailles micrométriques. Puis nous enchaînons sur leurs caractérisations magnétiques et électriques, par des mesures de transport dépendant du spin.

5.1 Présentation générale du procédé de structuration

Une fois les échantillons élaborés, la prise de contacts électriques de part et d'autre de la barrière tunnel pour les mesures de magnéto-transport impose l'utilisation de techniques de microfabrication : les échantillons sont structurés en plots micrométriques disposés sur une piste métallique (ici la couche tampon de platine) servant de contact arrière.

Cette structuration consiste en une succession d'étapes, qui seront reprises chronologiquement dans le paragraphe 5.3 :

- il y a des étapes de lithographie à proprement parler, servant à délimiter les zones à graver ou bien à définir les surfaces où seront déposées les pistes métalliques des contacts électriques. C'est la technique de lithographie optique (lumière ultraviolette) qui est utilisée.
- des étapes de gravure structurent les échantillons.
- une couche isolante SiO_2 est déposée par pulvérisation cathodique afin d'isoler le sommet des JTM de leur base.
- des pistes d'or sont déposées pour la prise de contacts électriques au niveau des électrodes.

La réalisation de chacun de ces points demande le plus grand soin, les défauts rencontrés (défaut d'alignement, sur-développement ou sous-développement) s'accumulant d'une étape sur l'autre.

L'apprentissage de ces techniques et la mise au point de chacune de ces étapes ont demandé un investissement considérable en temps et ont constitué une part non négligeable de mon travail de thèse. Il y a eu un savoir faire à acquérir et certains problèmes technologiques à résoudre, comme par exemple le dépôt d'une couche SiO_2 adhérente qui soit vraiment isolante électriquement.

5.2 Techniques de structuration

5.2.1 Lithographie optique

Principe

La lithographie optique est un procédé qui permet de reproduire sur un échantillon un motif présent sur un support solide, appelé *masque*. Ce dernier est constitué d'une plaque de verre sur laquelle sont déposés les motifs à reproduire, en chrome. Les zones chromées sont opaques, alors que les zones libres de motifs sont transparentes à la lumière.

Le procédé consiste à recouvrir l'échantillon d'un film de résine photosensible fortement adhérent, puis à l'insoler au travers du masque sous lumière UV, aux emplacements définis par l'absence de motifs en chrome.

Ces résines sont des composés organiques (généralement des polymères thermoplastiques) dont la solubilité est affectée par le rayonnement UV : les parties non-insolées (protégées par les zones opaques du masque) restent inchangées, alors que les parties insolées subissent une modification structurale (voir figure 5.1). Il existe en fait deux types de résines, que nous utilisons spécifiquement aux différentes étapes du procédé de structuration :

- Les résines négatives pour lesquelles le rayonnement ultraviolet entraîne une polymérisation des zones exposées, leur conférant ainsi une meilleure tenue au solvant de révélation, dans lequel les parties non insolées sont dissoutes.
- Les résines positives pour lesquelles le rayonnement UV entraîne une rupture des macromolécules, d'où une solubilité accrue des zones exposées dans le solvant révélateur.

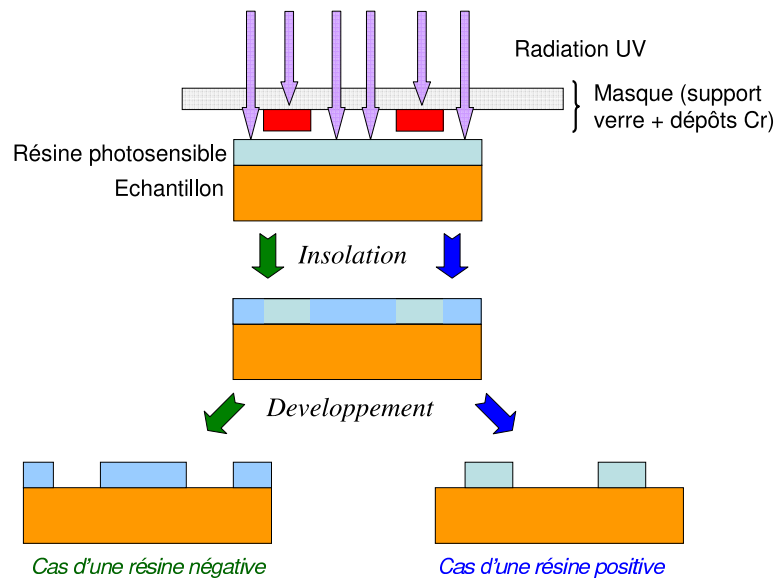


FIG. 5.1: Principe de la lithographie optique avec des résines négative et positive : on reproduit à l'aide de résines photosensibles les motifs présents sur le masque.

Etallement et insolation de la résine

L'échantillon doit tout d'abord être nettoyé avec le plus grand soin : toute poussière présente en surface (sa présence peut résulter par exemple de l'opération de clivage de l'échantillon après sa sortie du bâti d'épitaxie) est un facteur de perturbation locale pour l'ensemble du processus de structuration. Le nettoyage est réalisé en plongeant les échantillons dans des bains d'acétone et d'éthanol, en frottant très délicatement la surface avec un coton-tige. L'échantillon est ensuite séché sous flux d'azote.

Le dépôt de la résine photosensible est effectué par centrifugation au moyen d'une tournette permettant la mise en rotation à grande vitesse de l'échantillon à résiner. Ce dernier est maintenu par aspiration sur le plateau en rotation. Dans notre cas, l'épaisseur de résine est typiquement $1,3\mu\text{m}$ lorsqu'elle est déposée dans des conditions standards, avec une mise en rotation des échantillons à 4000 tours/min pendant 50s. L'échantillon est ensuite amené sur une plaque chauffante pour durcir la résine et en évaporer le solvant. Un aligneur permet d'ajuster le masque par rapport à l'échantillon, puis ce dernier est insolé sous lumière UV. La lampe UV utilisée est une lampe au mercure, de puissance $16,1\text{mW}/\text{cm}^2$ et comprenant les trois longueurs d'onde 365nm, 405nm et 436nm.

L'échantillon insolé est placé dans un bain développeur approprié (dans notre cas, le développeur utilisé va dissoudre les chaînes polymères les plus fragiles, c'est à dire au niveau des endroits exposés à la lumière (respectivement non-exposés) dans le cas d'une résine positive (respectivement négative).

La lithographie est toujours une étape d'un processus, elle ne se suffit pas en elle-même. Après insolation et développement, il y a typiquement deux techniques possibles pour l'étape suivante : les procédés

d'« amincissement » (*etch-back*) et de « soulèvement » (*lift-off*) (voir figure 5.2).

- Par *etch-back*, on enlève de la matière à l'échantillon, aux endroits non protégés par la résine. Par exemple avec une gravure par bombardement ionique (voir paragraphe 5.2.2) : la résine photosensible étant d'épaisseur bien supérieure à l'épaisseur de matériau gravé (*ie* quelques dizaines de nm), les parties de l'échantillon encore couvertes de résine à l'issue de la lithographie ne sont pas affectées. Après la gravure, l'échantillon est plongé dans un bain d'acétone afin d'enlever la résine restante.
- Par *lift-off*, on ajoute un nouveau matériau à l'échantillon au niveau des endroits non recouverts par la résine : le matériau est déposé sur toute la surface de l'échantillon. Puis ce dernier est plongé dans un bain d'acétone, ce qui a pour effet de dissoudre la résine encore présente. A l'issue de l'opération, il ne restera du métal déposé que sur les régions de l'échantillon qui n'étaient pas couvertes de résine.

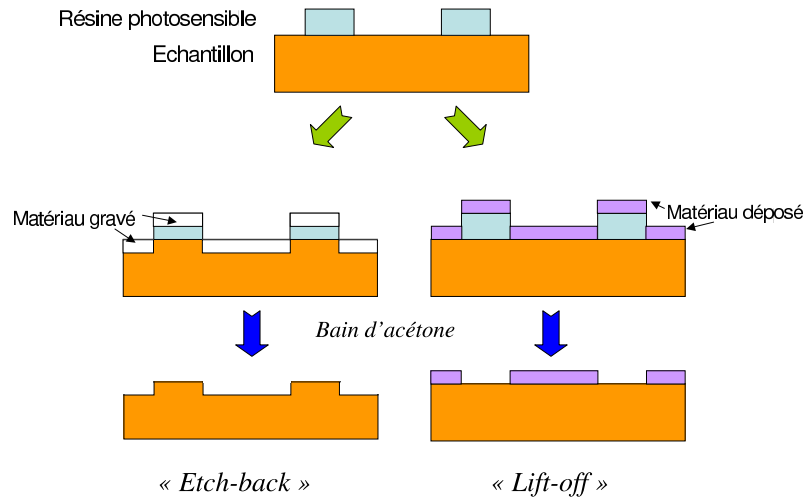


FIG. 5.2: Suites possibles d'une étape de lithographie : les techniques de « *etch-back* » et « *lift-off* ».

5.2.2 Gravure ionique

Principe

Cette technique de gravure « sèche » nous permet de structurer nos échantillons. Elle est constamment associée à une étape de lithographie (voir figure 5.2) ; à l'issue de cette dernière, seules certaines zones de l'échantillons sont encore recouvertes de résine.

L'échantillon est introduit dans un bâti dédié où il est exposé à un bombardement ionique, qui va l'éroder et l'amincir peu à peu. Toute la surface de l'échantillon est attaquée, mais l'épaisseur gravée étant généralement de l'ordre de quelques dizaines de nm, les zones recouvertes de résine ne sont pas affectées.

Gravure ionique à l'argon

Le bâti utilisé est un dispositif sous vide, maintenu à une pression d'environ 10^{-7} mbar. Le gaz utilisé pour la gravure, l'argon, est un gaz inerte, sans interactions chimiques avec l'échantillon (la pression d'argon est de $2,5 \cdot 10^{-4}$ mbar pendant la gravure).

La figure 5.3 schématise le dispositif de gravure employé : un filament chauffé émet des électrons qui vont ioniser le gaz de l'enceinte. Les électrons émis, accélérés par une différence de potentiel de décharge entre l'anode et la cathode entrent en collision avec le gaz d'argon en écoulement et conduisent à la formation d'un plasma. Des grilles chargées électriquement, situées à la sortie du canon à électrons, confinent le plasma et permettent l'extraction des ions et leur accélération vers la cible.

Un filament circulaire chauffé encerclant le faisceau d'ions permet de le neutraliser : les électrons émis par le filament vont interagir avec le faisceau d'ions positifs Ar^+ et permettre l'obtention d'un flux d'atomes neutres. Cette neutralisation du faisceau ionique permet une meilleure focalisation (un faisceau chargé diverge du fait de la répulsion coulombienne entre les particules du faisceau) et surtout limite l'apport de charges électriques à la surface de l'échantillon [GUZ71]. Ce dernier point est particulièrement

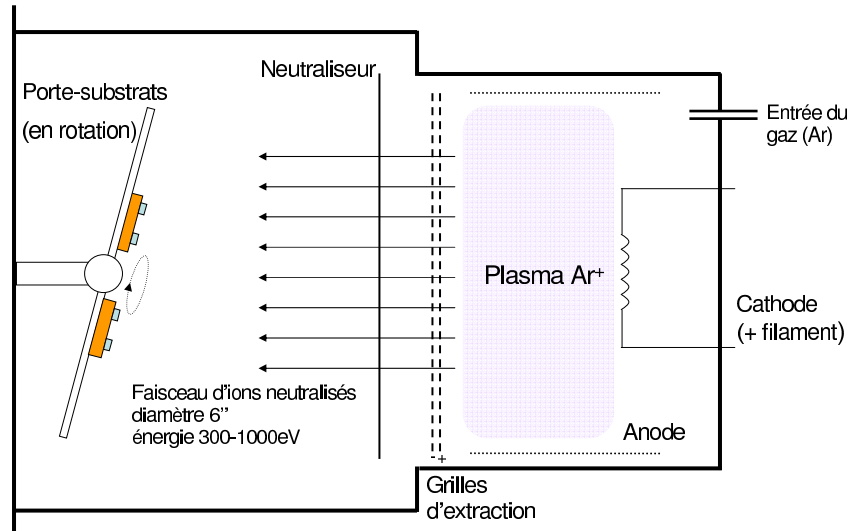


FIG. 5.3: Schéma du bâti de gravure ionique à l'argon.

important dans la structuration de jonctions tunnel, ces dernières présentant par nature une très grande fragilité électrique.

Le porte substrat est mis en rotation lors de la gravure, afin d'avoir une attaque homogène sur toute la surface de l'échantillon. Le faisceau arrive sur la cible avec une incidence de 30° par rapport à la normale, afin de minimiser les effets de redéposition : lors de la gravure, de la matière est éjectée de l'échantillon dans toutes les directions. Il est donc possible de redéposer une partie des couches gravées sur les bords des motifs de jonction tunnel [FAU04], ce qui pourrait entraîner l'apparition d'un pont métallique entre les deux électrodes ferromagnétiques susceptible de court-circuiter la barrière tunnel. Avec une gravure sous angle, on s'assure de la propreté des flancs de nos plots de jonction tunnel.

La principale difficulté rencontrée lors d'une étape de gravure est le contrôle de l'arrêt de la gravure. Dans notre cas, le temps correspondant à l'épaisseur de matériau gravé est un paramètre important mais non crucial : pour définir des plots de jonction tunnel, les échantillons doivent être gravés au minimum jusqu'à creuser complètement la barrière tunnel. Ils comportent une couche tampon de platine relativement épaisse ($\sim 60\text{nm}$) au sein de laquelle la gravure doit être stoppée. Le platine servira de piste métallique permettant de connecter les électrodes inférieures des jonctions tunnel.

La vitesse de gravure du faisceau argon dépend fortement du matériau à graver, et ce malgré l'inertie chimique du gaz employé. La gravure de la couche d'oxyde MgO est ainsi plus lente que celle des métaux. Les temps de gravure employés sont étalonnés expérimentalement. Typiquement, dans des conditions de gravure standard pour un échantillon de structure Pt(8nm)/FePt(10nm)/MgO(3nm)/FePt(5nm)/Pt(60nm)/Cr(3nm)/MgO(substrat), la partie supérieure de la structure (Pt/FePt/MgO) est totalement gravée en 2'20'' et le substrat est atteint au bout de 3'30'' environ : pour conserver une certaine marge de sécurité et pallier à des variations dans les conditions de dépôt ou de gravure, nous arrêtons la gravure de ce type d'échantillon après 2'45''.

Gravure ionique réactive

La gravure ionique réactive (*Reactive Ion Etching* en anglais) est une autre méthode de gravure « sèche », à partir d'un plasma tout comme la gravure ionique à l'argon. A la pulvérisation physique s'ajoute cependant l'activité chimique d'espèces réactives.

Le gaz employé dans un plasma radio-fréquence permet d'obtenir une gravure sélective par réaction entre le gaz et les matériaux à graver. Il y a bien sûr beaucoup de couples (gaz, matériau) possibles. Nous avons choisi d'utiliser le CHF_3 pour sa sélectivité avec le SiO_2 . Typiquement, la vitesse de gravure d'une couche isolante SiO_2 (voir paragraphe 5.3.3) est dix fois supérieure à celle de couches métalliques : c'est cet effet qui permet de creuser une couche d'oxyde épaisse ($\sim 300\text{nm}$) déposée sur les échantillons et de stopper la gravure au niveau de la couche terminale de platine (8nm), sans endommager les électrodes supérieures de nos jonctions tunnel. Le bâti utilisé, schématisé sur la figure 5.4, dispose d'un laser pointé sur l'échantillon qui va détecter la fin de la gravure de la couche d'oxyde : l'intensité de la lumière réfléchie par l'échantillon est mesurée au cours de la gravure, la différence de réflectivité entre les couches

permettant d'identifier les interfaces entre matériaux différents.

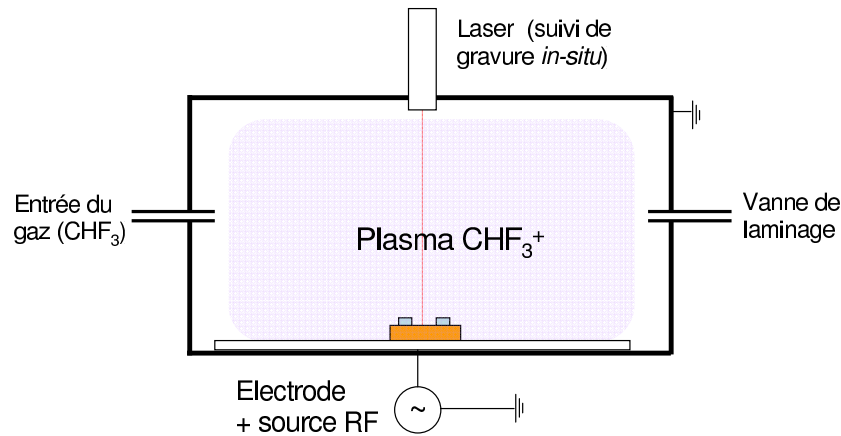


FIG. 5.4: Schéma du bâti de gravure ionique réactive au CHF_3 .

5.3 Description pas à pas du processus employé

L'objectif du processus de structuration employé est de pouvoir appliquer une différence de potentiel entre les deux électrodes des JTMs, et ce sur des jonctions de différentes tailles. Le processus développé pour la prise de contacts nécessite quatre étapes de lithographie et deux étapes de gravure.

5.3.1 Définition des plots

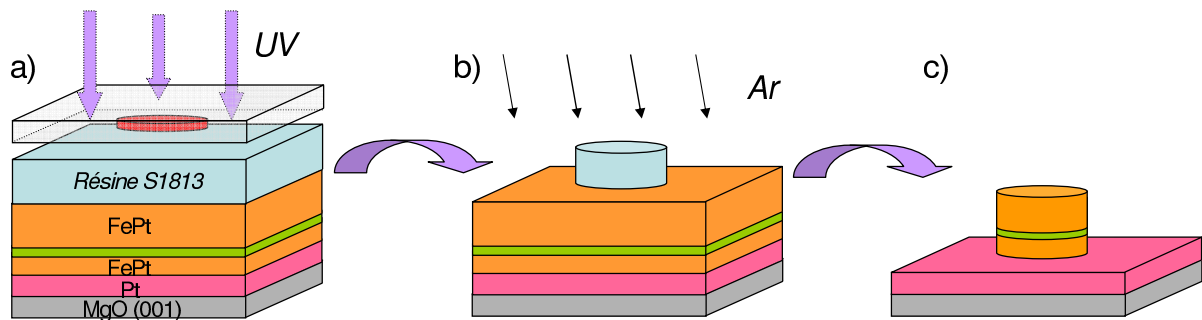


FIG. 5.5: Schéma de principe du processus de structuration des JTMs :

- La première étape de lithographie définit les motifs correspondant aux jonctions à mesurer.
- L'échantillon est gravé jusqu'à la couche tampon de platine.
- La résine restante est enlevée dans un bain d'acétone.

La première étape définit les plots qui vont constituer les jonctions tunnel. Elle nécessite l'emploi d'une résine positive (Shipley Microposit S1813). La résine est étalée pendant 50" à l'aide de la tournette, puis est recuite 90" à 100°C. Après alignement avec le premier masque, la résine est insolée sous lumière UV pendant 6". La révélation est réalisée en plongeant les échantillons dans un bain de révélateur AZ7 pendant 15 à 20". Un bain d'arrêt à l'eau déionisée est ensuite utilisé. L'échantillon n'est alors plus recouvert de résine qu'en certains endroits bien définis. La gravure ionique (argon) sous angle permet l'obtention de bords de plots très propres. L'échantillon est gravé jusqu'à la couche tampon de platine. Les zones de l'échantillon protégées par la résine photosensible vont correspondre aux plots de jonctions tunnel.

Après le passage dans le bâti de gravure, il reste à dissoudre la résine restant sur l'échantillon, ce qui est réalisé au moyen d'un bain d'acétone.

La figure 5.7 montre l'image obtenue par microscopie AFM d'un de ces plots. Son diamètre est de $17,6\mu\text{m}$, ce qui est inférieur au diamètre nominal de $20\mu\text{m}$ du fait de la gravure sous angle de l'échantillon. Sa hauteur vaut 55nm, ce qui correspond à peu près à une gravure stoppée au milieu de la couche

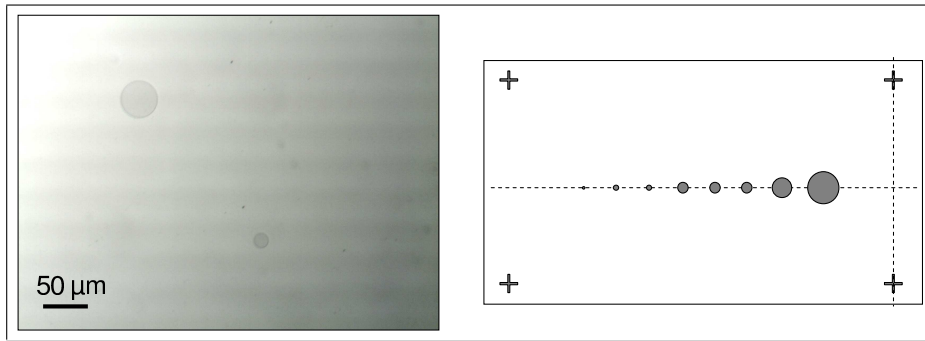


FIG. 5.6: à gauche une photographie de l'échantillon après lithographie et gravure, à droite un schéma du masque associé (masque 1). Les diamètres des plots obtenus vont de 20 à 200 μm .

tampon de platine. Les bords du plot sont très propres, exempts de défauts particuliers liés à la lithographie. Remarquons également l'absence de trace de résine à l'issue du nettoyage, ce qui est une condition indispensable à la poursuite du processus de structuration.

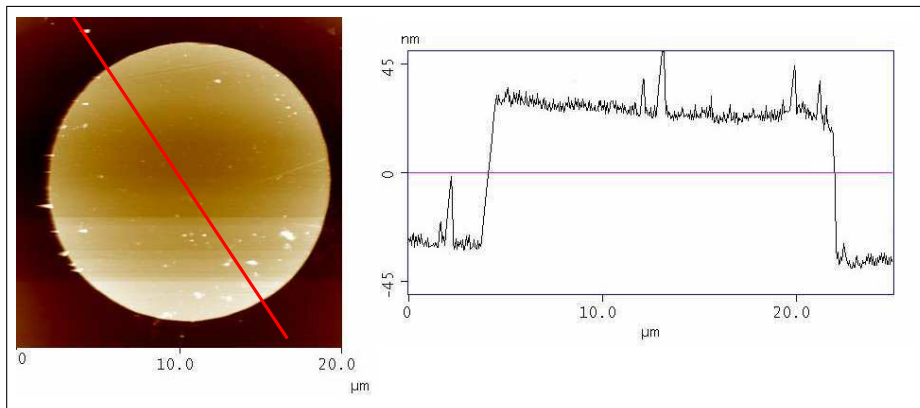


FIG. 5.7: Image par microscopie AFM d'un plot de JTM après 2'50'' de gravure (épaisseur de la barrière tunnel 3nm).

5.3.2 Gravure jusqu'au substrat

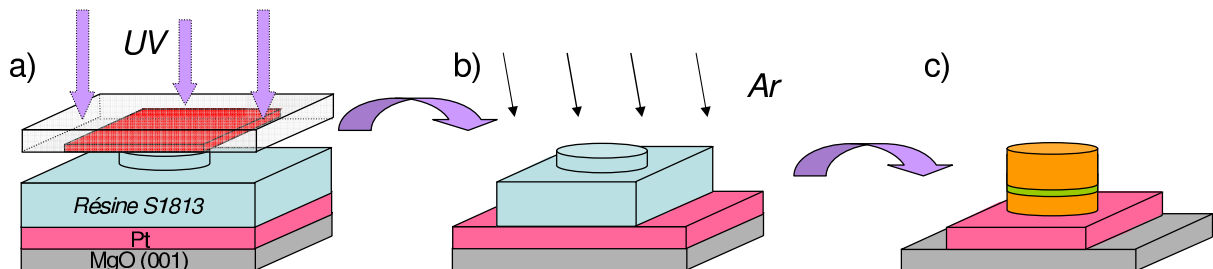


FIG. 5.8: Schéma de principe du processus de structuration des JTMs :
 a) La seconde étape de lithographie permet de réduire la largeur de la piste métallique de platine.
 b) L'échantillon est gravé jusqu'au substrat.
 c) La résine restante est enlevée dans un bain d'acétone.

La seconde étape de lithographie structure la couche tampon de platine, dont le rôle est de permettre le contactage électrique des électrodes inférieures, en une fine ligne reliant toutes les jonctions (voir figure 5.9). Les parties « inutiles » de l'échantillon sont gravées jusqu'au substrat, MgO, un isolant électrique.

Cette étape n'est pas fondamentalement indispensable au processus, mais elle sert à minimiser les risques d'un court-circuit entre la piste de platine et les pistes métalliques contactant les électrodes supérieures (voir fin du processus, paragraphe 5.3.5), par exemple si la couche isolante de SiO₂ (voir paragraphe suivant) comporte des défauts.

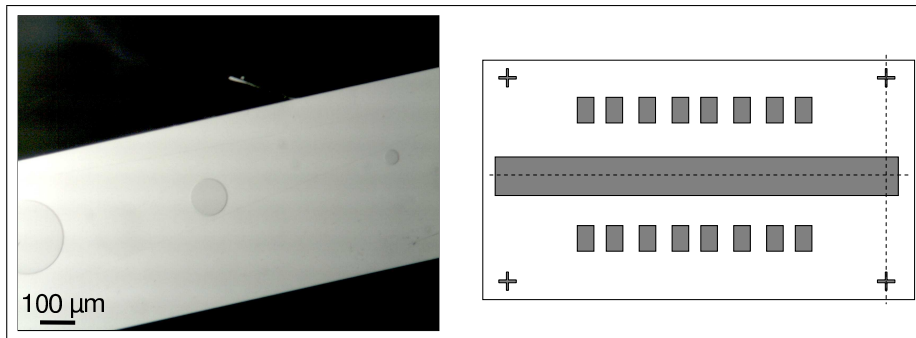


FIG. 5.9: à gauche une photo de l'échantillon après lithographie et gravure, à droite un schéma du masque associé (masque 2). La bande centrale métallique est large de 500µm.

Nous avons imagé par microscopie AFM le profil du bord de la piste de platine. Celui-ci est abrupt, propre, sans redépôt ou bourrelet de matière visible à même de perturber (en la perçant, ou en la rendant poreuse) le dépôt de la couche isolante SiO₂ (voir paragraphe suivant).

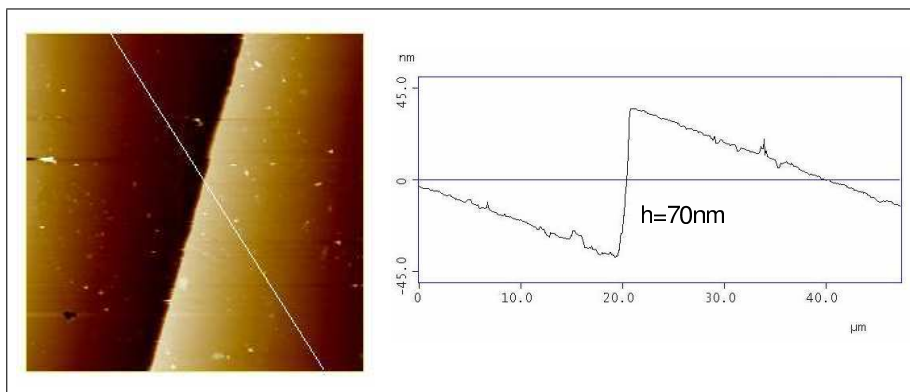


FIG. 5.10: Image par microscopie AFM de l'interface entre le substrat et la piste métallique de platine.

5.3.3 Dépôt de la couche isolante

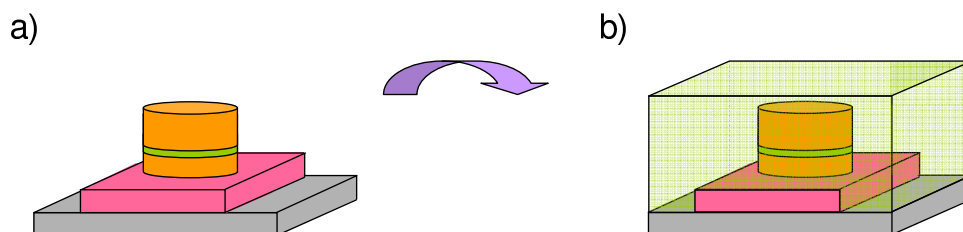


FIG. 5.11: Schéma de principe du processus de structuration des JTM : une couche isolante épaisse est déposée sur toute la surface de l'échantillon

Les électrodes métalliques de la structure, *ie* les plots et la piste de platine, sont isolées à l'aide d'un dépôt de SiO₂. La couche isolante, d'une épaisseur approximative de 300nm, est déposée par pulvérisation cathodique et recouvre toute la surface de l'échantillon, y compris les plots de JTM. La procédure de dépôt est la suivante :

- dépôt de SiO_2 pendant 24 min (environ 150 nm déposés),
- mise à l'air des échantillons pendant 1',
- dépôt de SiO_2 pendant 24 min (environ 150 nm déposés).

L'étape de mise à l'air de la couche isolante au milieu du dépôt a dû être ajoutée pour obtenir une couche parfaitement isolante. Elle a été testée électriquement sur des échantillons structurés par les deux étapes de lithographie et de gravure présentées précédemment. Les résultats sont montrés sur la figure 5.12 : dans la limite de résolution de l'appareil de mesure utilisé, l'isolation électrique est parfaite pour nos échantillons, aucun courant de fuite n'étant détecté pour des tensions appliquées de l'ordre de quelques dizaines de volts.

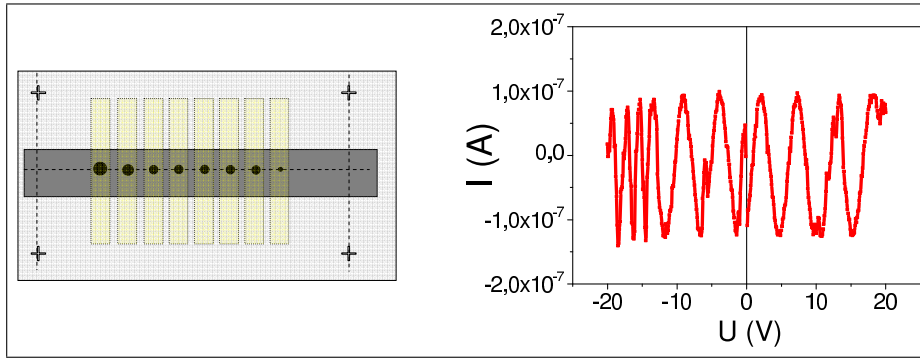


FIG. 5.12: Test électrique de la couche isolante déposée. L'appareil de mesure est sensible en courant à partir de 1.10^{-7} A environ. A gauche, une représentation schématique d'un échantillon structuré. Ce dernier est tout d'abord gravé jusqu'à la couche de platine, hormis au niveau de 8 plots circulaires alignés, d'une hauteur d'une quarantaine de nm et de diamètres allant de 200 à $20\mu\text{m}$. Puis il est creusé jusqu'au substrat, sauf au niveau d'une bande de largeur $500\mu\text{m}$ comprenant les 8 plots. L'isolant est ensuite déposé sur toute la surface de l'échantillon, puis des pistes d'or sont déposées. Les mesures électriques sont effectuées entre ces pistes métalliques.

5.3.4 Ouverture de l'isolant

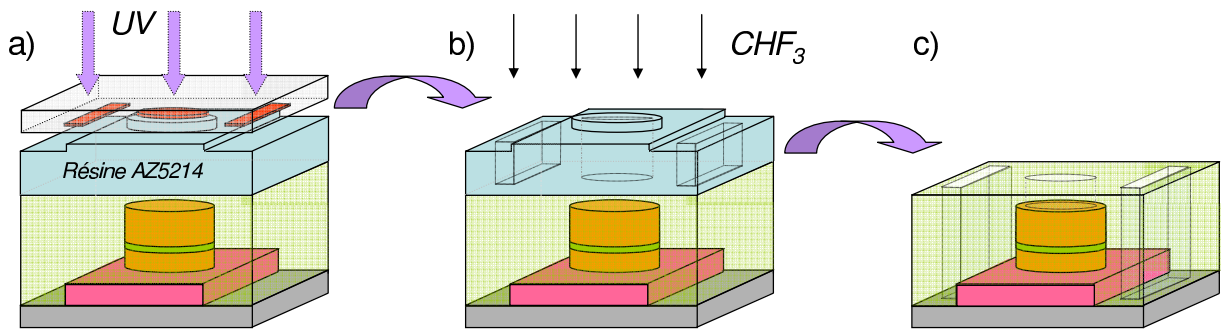


FIG. 5.13: Schéma de principe du processus de structuration des JTM :

- La troisième étape de lithographie définit les ouvertures au niveau de l'isolant.
- L'échantillon est gravé au GIR.
- La résine restante est enlevée dans un bain d'acétone.

La troisième étape permet l'ouverture de la couche isolante SiO_2 au niveau des électrodes supérieures des JTM et au niveau de la piste de platine pour les contacts arrières. Cette étape est délicate car elle produit des motifs de petite taille (jusqu'à $10\mu\text{m}$ de diamètre) et nécessite un alignement parfait du masque (voir figure 5.14) avec un échantillon déjà partiellement structuré. Un défaut créé par cette étape de lithographie à proximité d'un des plots entraîne une ouverture supplémentaire non voulue de la couche isolante, ce qui amène un court circuit de la jonction considérée.

La résine *inversible* AZ5214 est utilisée. Elle est étalée sur l'échantillon pendant 50'' à 4000 trs/min, puis recuite 2' à 90°C pour en évaporer le solvant. L'échantillon est exposé aux rayons UV pendant 4''

après alignement avec le masque 3, ce qui a pour effet de la fragiliser aux endroits insolés. Un second recuit de 3' au-delà de 115°C entraîne l'activation d'un agent dans la résine qui reréticule les parties endommagées par la première insolation : ce recuit permet de changer la nature de la résine. Une seconde insolation UV de 8" est alors effectuée, *en l'absence de masque*. Les zones reréticulées sont insensibles aux UV, alors que les zones initialement protégées vont être affectées et seront dissoutes dans le développeur.

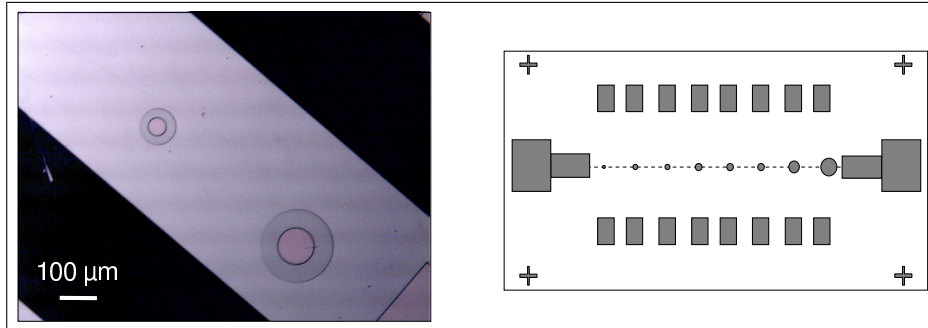


FIG. 5.14: à droite une photo de l'échantillon après lithographie, à gauche un schéma du masque associé (masque 3). Le diamètre des ouvertures circulaires au dessus des plots de JTM va de 10µm à 100µm.

La couche épaisse de SiO₂ est alors gravée par gravure ionique réactive au CHF₃. Le SiO₂ étant transparent, l'intensité du signal Laser réfléchi par l'échantillon au cours de la gravure est modulé par les interférences entre la lumière renvoyée par le haut de la couche de silice et celle renvoyée par la couche métallique.

5.3.5 Dépôt des pistes métalliques

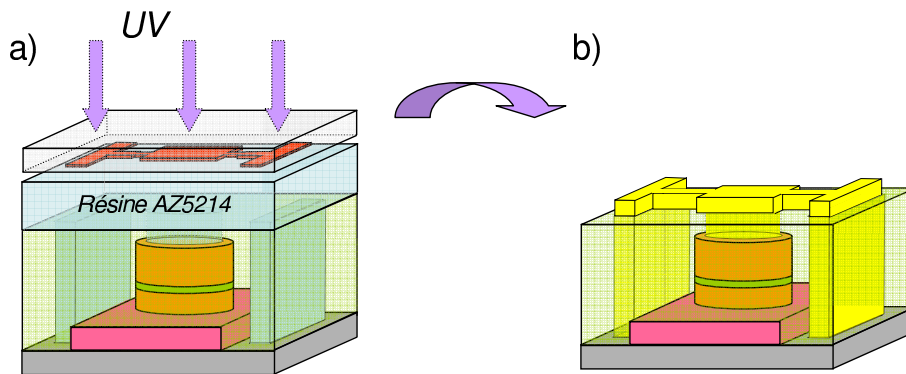


FIG. 5.15: Schéma de principe du processus de structuration des JTM :

a) La dernière étape de lithographie définit les emplacements des contacts électriques.

b) Après dépôt d'or et lift-off, les jonctions sont reliées à des pistes métalliques de grande taille qu'il est possible de contacter avec des microfils.

La dernière étape de lithographie dessine sur l'échantillon les motifs correspondant aux connexions de pistes métalliques avec les plots de JTM (voir figure 5.16). Cette étape utilise elle aussi la résine inversible AZ5214.

Au final, il y a quatre contacts électriques pour chaque jonction : deux au niveau de l'électrode supérieure, et deux contacts arrière au niveau de la couche tampon de platine. Ainsi, les mesures électriques pourront être réalisées par des mesures quatre pointes (deux contacts pour la tension, deux pour l'intensité).

Les pistes métalliques sont créées en déposant successivement sur tout l'échantillon une couche d'accrochage de titane (~5nm) puis une couche d'or (~100nm). La résine est ensuite dissoute dans un bain d'acétone, ce qui a pour effet de ne laisser de contacts d'or qu'au niveau des ouvertures définies par la lithographie (procédé de *lift-off*).

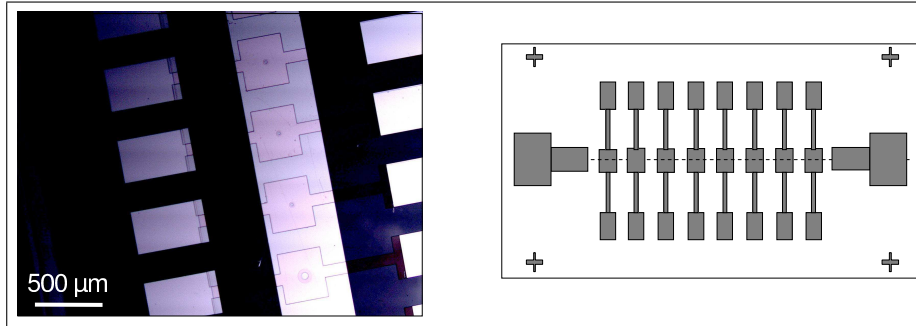


FIG. 5.16: à gauche une photo de l'échantillon après lithographie, à droite un schéma du masque associé (masque 4).

5.4 Contrôle des propriétés magnétiques d'un échantillon gravé

La conservation des propriétés magnétiques de nos échantillons à l'issue du processus de lithographie est un prérequis pour la réalisation de mesures de transport significatives.

On pourrait en effet envisager que le processus de lithographie endommage nos échantillons, ou qu'il apparaisse un couplage entre électrodes à partir du bord des plots, du fait du champ de fuite rayonné par une électrode sur l'autre à ce niveau [POR98]. Nous devons donc nous assurer que les propriétés magnétiques étudiées au niveau de l'échantillon massif (découplage des électrodes, bonne anisotropie perpendiculaire) sont bien retrouvées localement.

Du fait de la structuration du système (gravure de l'échantillon en quelques rares plots de diamètres allant de 20 à 200 μm), seules des mesures « locales », sur un plot unique, sont possibles, comme par exemple des mesures d'effet Kerr ou de microscopie à champ proche MFM.

5.4.1 Caractérisation des jonctions structurées par effet Kerr polaire

La figure 5.17 a) donne le cycle d'aimantation d'un échantillon JTM avant et après structuration par lithographie et gravure. Dans ce dernier cas, la mesure a été réalisée en ajustant le faisceau laser sur le plot à mesurer à l'aide d'un cache mécanique muni d'un trou de diamètre 500 μm environ. Ceci permet d'éviter l'obtention de signal parasite qui proviendrait de plots voisins. Notons que le rapport des amplitudes des sauts d'aimantation des deux électrodes diffère suivant la jonction présentée (voir figure c)) : cet effet peut être attribué à des différences de réglages expérimentaux¹ du banc de mesure optique.

Dans l'ensemble, les propriétés magnétiques de l'échantillon *pleine-plaque* sont conservées : la JTM a toujours des électrodes ayant des champs coercitifs bien séparés et la rémanence de l'échantillon est totale, ce qui indique que l'anisotropie perpendiculaire est toujours très forte. Ainsi, la figure b) prouve qu'il est toujours possible de stabiliser n'importe quel état de renversement partiel de l'aimantation.

Cependant, nous pouvons noter une augmentation du champ coercitif de la couche douce (voir la table 5.1). Nous avons vu dans le paragraphe 4.2.2 que le mécanisme de renversement de l'électrode douce était lié à une propagation à partir d'un unique site de nucléation : le renversement d'aimantation de tout l'échantillon est ainsi gouverné par un champ de nucléation « minimum », associé à un site où la nucléation est la plus facile, et non pas par un champ de nucléation « moyen ». Dans le cas d'un échantillon structuré, il n'est donc pas déraisonnable de supposer que la première nucléation au sein de l'électrode douce a lieu pour un champ appliqué plus important que dans le cas de l'échantillon massif, et qu'elle a lieu statistiquement pour ce « champ moyen ». La figure c) montre les cycles d'aimantation de trois jonctions structurées à partir d'un même échantillon : notons la similarité des champs de décrochage des couches douces des plots mesurés.

En revanche, le renversement d'aimantation de la couche ferromagnétique dure reste inchangé, ce que nous pouvons là encore relier au mécanisme de renversement d'aimantation mis en jeu. Celui-ci est gouverné par la nucléation de domaines magnétiques en un grand nombre de sites (une trentaine de sites de nucléation sont dénombrés sur une image de taille (10 μm *10 μm), voir paragraphe 4.2.3) et par la propagation de domaines magnétiques à partir de tous ceux-là. Il est donc raisonnable de penser que le

¹Le faisceau laser n'arrive pas parfaitement perpendiculaire à l'échantillon, aussi une fraction de la lumière incidente passant par les flancs du plot peut parvenir à l'électrode inférieure (électrode douce) sans être atténuée par l'électrode supérieure.

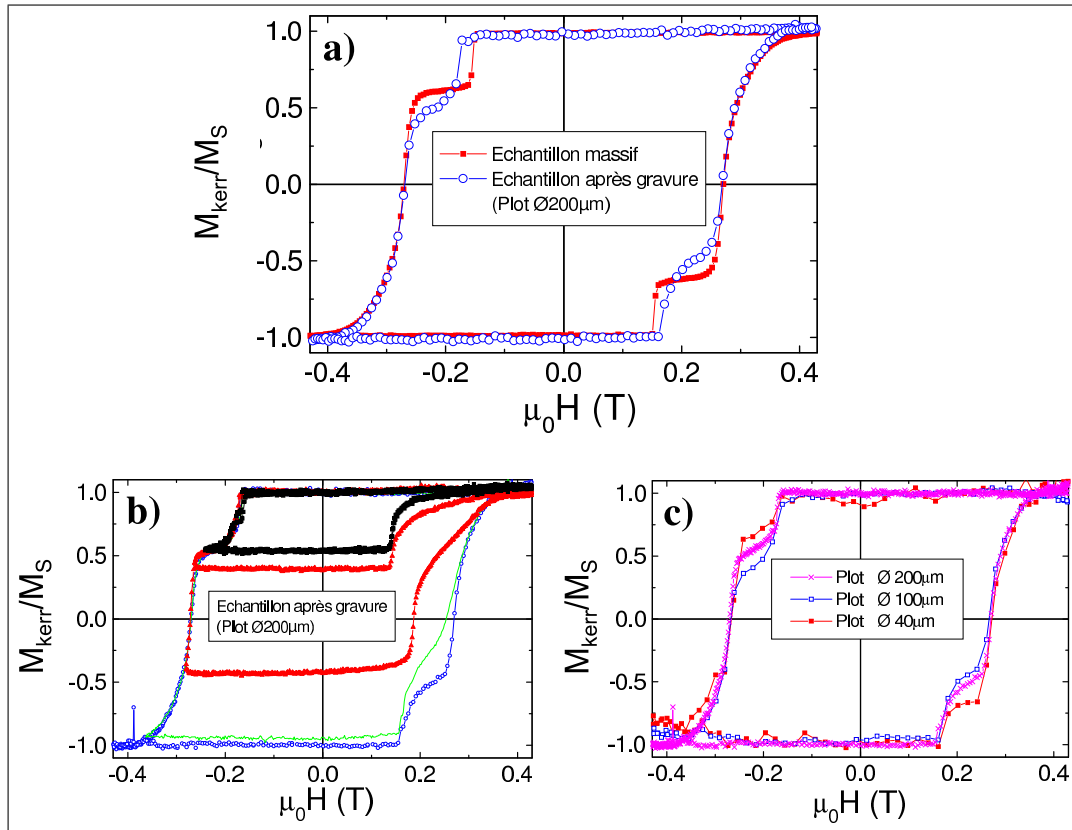


FIG. 5.17: Cycles d'aimantation réalisés par effet Kerr sur un même échantillon :
 a) avant gravure sur l'échantillon « bulk », puis après gravure en ajustant le faisceau laser sur le plot de JTM de diamètre $200\mu\text{m}$,
 b) cycles d'aimantations mineurs réalisés sur le plot de diamètre $200\mu\text{m}$,
 c) cycles majeurs réalisés sur des plots de différentes tailles

renversement d'aimantation n'est pas affecté au niveau d'un plot de taille supérieure à quelques dizaines de micromètres.

| | $\mu_0 H_{d,\text{bulk}}$ (en T) | $\mu_0 H_{c,\text{bulk}}$ (en T) | $\mu_0 H_{d,\text{plot}}$ (en T) | $\mu_0 H_{c,\text{plot}}$ (en T) |
|------------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
| SL ($\text{FePt}_{5\text{nm}}$) | 0,141 | 0,154 | 0,160 | 0,173 |
| HL ($\text{FePt}_{10\text{nm}}$) | 0,219 | 0,269 | 0,222 | 0,269 |

TAB. 5.1: Champs de renversement associés à chacune des deux électrodes, estimés à partir de la courbe $dM/dH(H)$ d'un cycle majeur dans le cas d'un échantillon massif et du même échantillon structuré en un plot de diamètre $200\mu\text{m}$.

Ce phénomène a donc pour conséquence un rapprochement des champs de retournement des deux électrodes. Ainsi, sur l'échantillon présenté sur la figure 5.17, si le découplage magnétique entre les deux électrodes semble net, il n'est toutefois pas certain à première vue que le champ de saturation de SL soit inférieur au champ de décrochage de HL sur tous les plots mesurés : un palier d'aimantation horizontal est observé entre $\mu_0 H_{\text{sat,SL}}$ et $\mu_0 H_{d,\text{HL}}$ sur la jonction de diamètre $40\mu\text{m}$, mais pas sur les autres jonctions, de diamètres 100 et $200\mu\text{m}$.

Soulignons bien qu'il ne s'agit que d'un effet lié à la faiblesse de $\mu_0 H_{d,\text{HL}}$ sur certains échantillons et non pas à l'apparition d'un couplage entre les deux électrodes. Ainsi, la figure 5.18 présente le cycle d'aimantation d'un plot de diamètre $100\mu\text{m}$ réalisé sur un autre échantillon, comportant un champ de décrochage $\mu_0 H_{d,\text{HL}}$ supérieur à la moyenne : le palier d'aimantation entre les deux sauts d'aimantation lors du renversement $(\text{SL}\uparrow/\text{HL}\uparrow) \rightarrow (\text{SL}\downarrow/\text{HL}\uparrow)$ est présent sans ambiguïté.

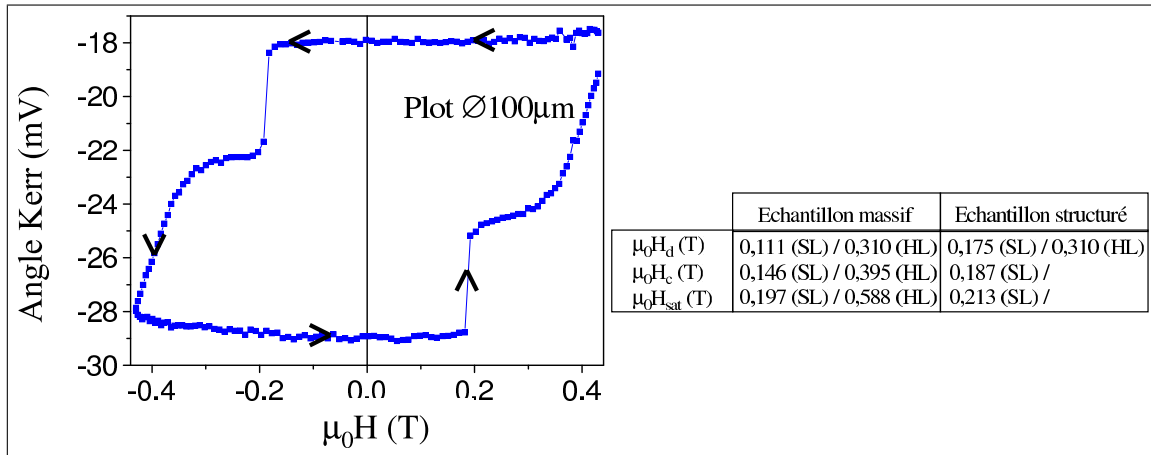


FIG. 5.18: Cycle d'aimantation (effet Kerr polaire) réalisé sur un plot de JTM de diamètre $100\mu\text{m}$. L'échantillon est saturé (SL \uparrow /HL \uparrow) puis un cycle mineur est réalisé entre $+0,43$ et $-0,43\text{T}$ (limite de champ applicable sur le banc de mesure par effet Kerr).

5.4.2 Caractérisation des jonctions structurées par imagerie magnétique MFM

La figure 5.19 présente l'image par microscopie à force magnétique d'un plot JTM (de diamètre environ 20 micromètres) obtenu à l'issue du processus de lithographie et gravure d'un échantillon.

Au niveau d'un plot désaimanté, les domaines magnétiques imagés sont semblables à ce qui est observé dans le cas d'un échantillon massif. Une seule configuration de domaines est observée, les domaines magnétiques de l'électrode dure étant répliqués dans la couche douce. Ces domaines sont de période 400nm environ. Ils sont entrelacés, ce qui est le signe d'une forte anisotropie perpendiculaire : dans le cas d'une faible anisotropie, la forte composante planaire de l'aimantation conduit plus facilement à des domaines en forme de rubans parallèles. Notons qu'il n'y a pas de changement dans l'agencement des domaines au niveau des bords du plot (les effets de pointe étant mis à part), ce qui signifie que la gravure est réalisée sans introduction de défauts significatifs.

Pour une jonction imagée dans un état saturé, l'absence de défauts de saturation, en particulier sur les bords du plot, est confirmée par l'absence de contraste d'intensité magnétique.

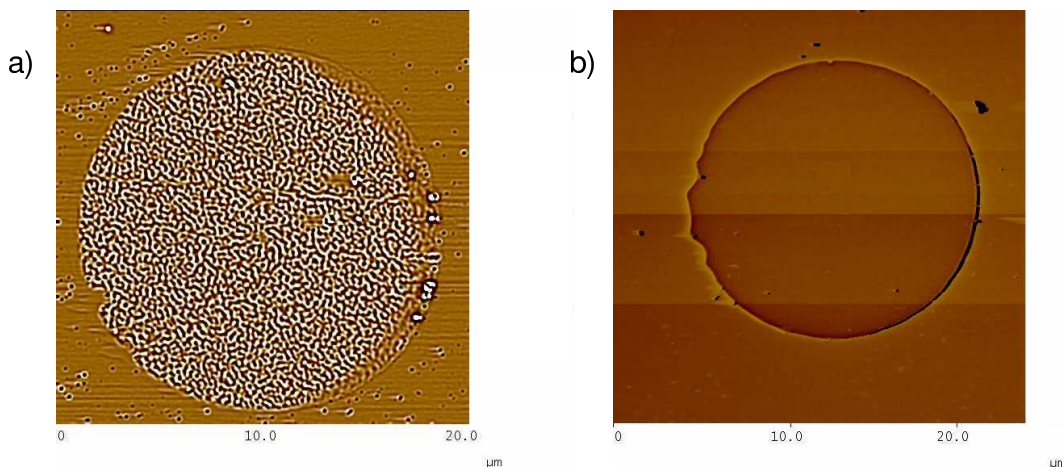
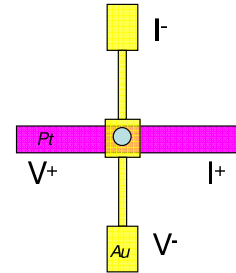


FIG. 5.19: Images obtenues par microscopie à Force Magnétique de plots de JTM de diamètre $18\mu\text{m}$, dans un état désaimanté (image a)) et dans un état saturé (image b)). Les défauts sombres observés sur l'image b) à côté du plot sont des défauts de structure, que l'on retrouve sur l'image topographique.

5.5 Contactage des échantillons et mesures de transport

5.5.1 Contactage des jonctions par microsoudure

Après cette série d'étapes de lithographie, les échantillons sont structurés en plots de diamètre nominal allant de 10 à 200 μm , isolés les uns des autres. Chaque jonction se retrouve au centre d'un croisement de pistes électriques, constitué d'une piste d'or et de la piste de platine commune à tous les plots. Cette géométrie permet d'effectuer des mesures électriques quatre pointes (voir schéma ci-contre), et par là de s'affranchir de la résistance des fils électriques reliant l'appareil de mesure à l'échantillon.



Les échantillons sont collés sur des plaquettes de Circuit Imprimé (CI) comportant plusieurs lignes de cuivre séparées les unes des autres. Les pistes d'or des échantillons sont alors reliées aux pistes de cuivre de la plaquette CI par des microfils. La microsoudure se fait en faisant fondre un fil d'aluminium de taille micrométrique par des ultra-sons. Le fil est d'abord soudé à la piste d'or puis il est amené jusqu'à la piste de cuivre où la seconde microsoudure coupe le fil. Cette étape étant susceptible d'apporter des charges électriques et de claquer les jonctions tunnel, nous employons une microsoudeuse reliée électriquement à la masse.

5.5.2 Mesures Courant-Tension

A l'issue de ce processus, les différentes jonctions d'un échantillon sont testées électriquement par des mesures courant-tension $I(V)$. Celles-ci consistent à poser deux pointes conductrices, à l'aide d'une loupe binoculaire, au niveau de la piste d'or (contact « avant ») et au niveau de la piste de platine (contact « arrière ») puis à mesurer le courant injecté en fonction de la tension appliquée. A l'issue des différentes étapes de lithographie, chaque échantillon devrait comporter huit jonctions tunnel. En pratique, nous avons un certain taux de pertes correspondant à des jonctions non-ouvertes ou court-circuitées.

Dans le premier cas, il s'agit d'échantillons ayant connu un défaut d'exposition ou un sous-développement lors de l'ouverture de la couche isolante (la troisième étape de lithographie, voir paragraphe 5.3.4). Si cette dernière n'est pas percée au niveau du plot, il n'est pas possible d'injecter un courant électrique.

Dans le deuxième cas, les jonctions sont ohmiques (la caractéristique $I(V)$ est linéaire) et de très faible résistance : la résistance mesurée est de l'ordre de la quinzaine de ohms (ce qui correspond à la résistance de la piste de platine) contre quelques $\text{k}\Omega$ dans un cas normal. Deux points peuvent expliquer ce phénomène :

- la barrière isolante MgO peut « claquer » suite à un apport de charges électriques.
- un défaut introduit au cours du processus de lithographie peut conduire à la présence d'un contact direct entre les pistes d'or et de platine, entraînant un court-circuit du plot de jonction tunnel.

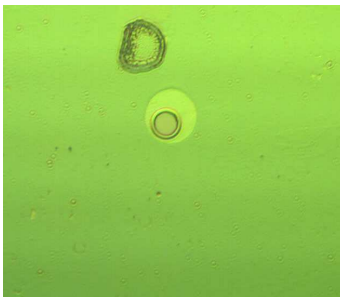


FIG. 5.20: Conséquence d'un mauvais nettoyage d'un masque : des trous non voulus apparaissent lors de l'ouverture de l'isolant.

La figure ci-contre montre ainsi la conséquence sur le processus de lithographie d'un mauvais nettoyage du masque dédié à l'étape d'ouverture de l'isolant. Les impuretés laissées sur le masque vont bloquer la lumière lors de l'insolation, et des ouvertures indésirables sont alors introduites au niveau de la couche de résine. Si l'une d'entre elles est située sur la zone où la piste d'or est déposée, elle est alors à l'origine d'un court-circuit entre les pistes d'or et de platine. Au vu des différences de résistance entre une jonction court-circuitée et une jonction non court-circuitée, le canal de conduction parasite qui est alors créé va rendre impossible la détection d'effets magnétorésistifs.

Un autre exemple de court-circuitage est présenté sur la figure 5.21, où un plot de JTM est imagé par AFM à l'issue de la première étape du processus de lithographie : le centre du disque de résine correspondant aux plots les plus petit est insolé, du fait d'une non-planéité d'un de nos masques semble-t-il (aucun défaut n'a pu être repéré au niveau des motifs du masque de lithographie). Lors de l'étape du dépôt des contacts électriques (paragraphe 5.3.5), ce trou va entraîner l'apparition d'un court-circuit entre la piste de platine et la piste d'or.

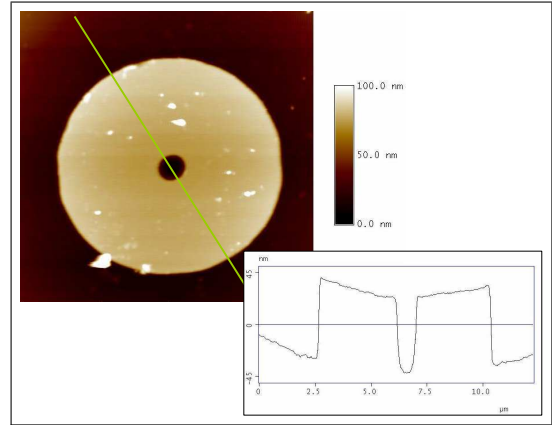


FIG. 5.21: image AFM ($10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$) d'un plot JTM défectueux (diamètre du trou $\sim 2\mu\text{m}$).

La figure 5.22 présente la caractéristique $I(V)$ d'un plot de jonction tunnel de diamètre $40\mu\text{m}$ d'un échantillon $\text{FePt}(10\text{nm})/\text{MgO}(2\text{nm})/\text{FePt}(5\text{nm})/\text{Pt}$ et la courbe dérivée associée.

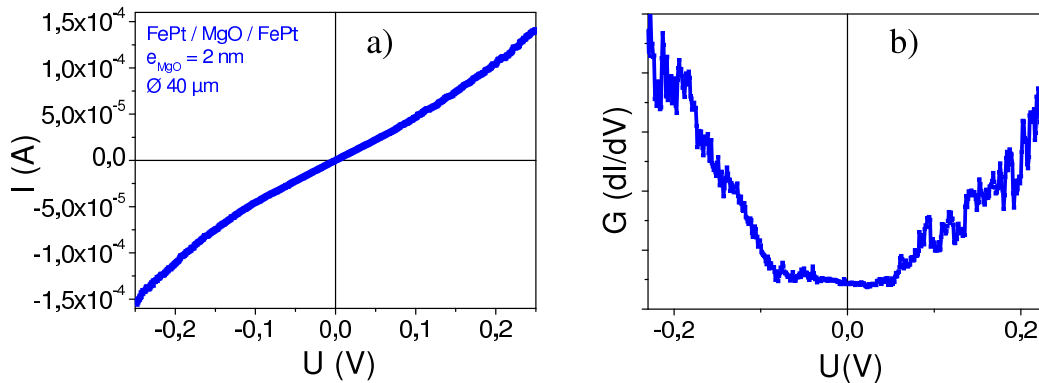


FIG. 5.22: Courbe $I(V)$ à 300K en configuration parallèle d'une jonction $\text{FePt}/\text{MgO}(2\text{nm})/\text{FePt}$ (a) et sa courbe dérivée (b).

Nous retrouvons parfaitement l'allure générale d'une courbe de transport tunnel telle que décrite par Simmons (voir paragraphe 2.1) : Pour des tensions appliquées $|U|$ comprises entre 0 et 100mV , le courant injecté varie ici linéairement avec U (la courbe dérivée présente alors un caractère constant). Puis, à mesure que la tension augmente, la relation courant-tension devient parabolique. Au niveau de la zone linéaire, la résistance de la JTM est alors qualifiée de résistance *zéro-bias*. C'est une donnée communément utilisée dans la littérature pour quantifier la résistance d'une JTM. La résistance *zéro-bias* mesurée sur la jonction présentée sur la figure 5.22 est ainsi $R=2,2\text{k}\Omega$. La valeur mesurée dépend bien entendu de la température à laquelle est réalisée la mesure, des phénomènes de transport thermiquement activés réduisant la résistance de la jonction à mesure que la température du système augmente.

Signalons le caractère non-symétrique de la courbe $I(V)$ présentée, plus visible sur la figure b) : le comportement de la jonction diffère légèrement suivant le signe de la tension appliquée, *ie* suivant le sens d'injection des électrons. Ceci traduit une dissimilarité des deux interfaces FePt/MgO et MgO/FePt mises en jeu.

En reprenant l'équation 2.2, il est possible d'ajuster la hauteur moyenne de la barrière tunnel et son épaisseur expérimentale à la formule théorique de Simmons. L'application de cette formule à la caractéristique $I(V)$ présentée sur la figure 5.22 nous permet d'obtenir une épaisseur de barrière $d=1,9\text{nm}$ (pour une épaisseur nominale déposée de 2nm) et une hauteur moyenne $\phi=1,1\text{eV}$.

L'épaisseur d mesurée est toujours inférieure à l'épaisseur nominale de la couche isolante déposée en raison d'une rugosité inévitable de la couche mince. En pratique, par épitaxie par jets moléculaires, il n'est pas possible de contrôler l'épaisseur d'une couche mince à la couche atomique près sur des distances

de plusieurs dizaines de micromètres². Le courant s'engouffre alors de façon préférentielle au niveau des points de plus faible épaisseur. Notons cependant ici une bonne correspondance entre l'épaisseur mesurée et l'épaisseur nominale, ce qui indique une bonne planéité de la barrière tunnel de MgO³.

La hauteur de barrière théorique d'une couche tunnel parfaite devrait être égale à la moitié de la largeur de bande interdite du matériau (la largeur de bande interdite du MgO est de 7,8eV [WHI73]). Cependant, toutes les valeurs de hauteur de barrière MgO relevées dans la littérature sont bien en dessous de cette valeur théorique (0,9eV pour Mitani *et al.* [MIT03], 1,1 à 1,7eV pour Parkin *et al.* [PAR04], 0,40 eV pour Yuasa *et al.* [YUA04b]). Parkin et al ont expliqué cette différence en invoquant la présence d'états localisés dans la barrière tunnel. Signalons de plus que dans notre cas, la mesure électrique a été réalisée à température ambiante ; aussi le résultat que nous avons obtenu doit prendre en compte la présence de phénomènes thermiquement activés : une utilisation satisfaisante du modèle de Simmons exigerait une mesure expérimentale à température quasi-nulle.

Cette formule est très utilisée dans la littérature pour caractériser électriquement des barrières tunnel, mais il faut cependant garder à l'esprit que la formule de Simmons est basée sur le modèle des électrons libres et ne prend donc absolument pas en compte la structure de bande du système, c'est à dire la fait que des électrons de différentes symétries participent au courant tunnel, en fonction de la configuration magnétique du système : il faudrait donc en fait considérer le transport de chaque bande d'électrons séparément pour avoir une meilleure description du système, deux états électroniques différents ne voyant pas la même barrière de potentiel.

Sur la figure suivante, les courbes I(V) de jonctions de différentes tailles sont tracées sur un même graphe. La résistance R (résistance *zéro-bias*) d'une jonction tunnel doit varier linéairement avec l'inverse de sa surface (1/A). Le produit (RA) ne dépend donc pas de la surface de la jonction mesurée. C'est la grandeur utilisée pour caractériser la résistance d'une jonction tunnel magnétique. La courbe R(A) d'une jonction tunnel magnétique comportant une barrière tunnel MgO d'épaisseur 3nm est donnée en figure 5.23. Elle ne passe pas par l'origine, ce qui peut être interprété comme l'indication d'une certaine fluctuation des propriétés de la barrière tunnel (épaisseur, hauteur) sur la longueur d'un échantillon (4mm environ entre le premier et le dernier plot). La légère différence d'allure des caractéristiques I(V) des trois jonctions de même diamètre (40 μ m) renforce cette hypothèse.

Le produit moyen (RA) mesuré - $RA=16,7M\Omega\mu m^2$ - peut sembler très élevé, mais il est à mettre en parallèle avec la forte épaisseur de la barrière tunnel de l'échantillon mesuré : Yuasa *et al.* [YUA04b] ont ainsi mesuré un produit (RA) de l'ordre de $2M\Omega\mu m^2$ sur une jonction Fe/MgO(3nm)/Fe, le produit (RA) augmentant exponentiellement avec l'épaisseur de barrière tunnel déposée. Pour des applications industrielles, des structures de très faible (RA) sont recherchées afin d'avoir un coût en énergie le plus faible possible. Parmi les meilleurs résultats publiés, nous pouvons citer l'article de Tsunekawa *et al.* [TSU05] qui rapportent un produit (RA) de seulement $2,4\Omega\mu m^2$ mesuré sur une structure CoFeB/MgO(001)/CoFeB.

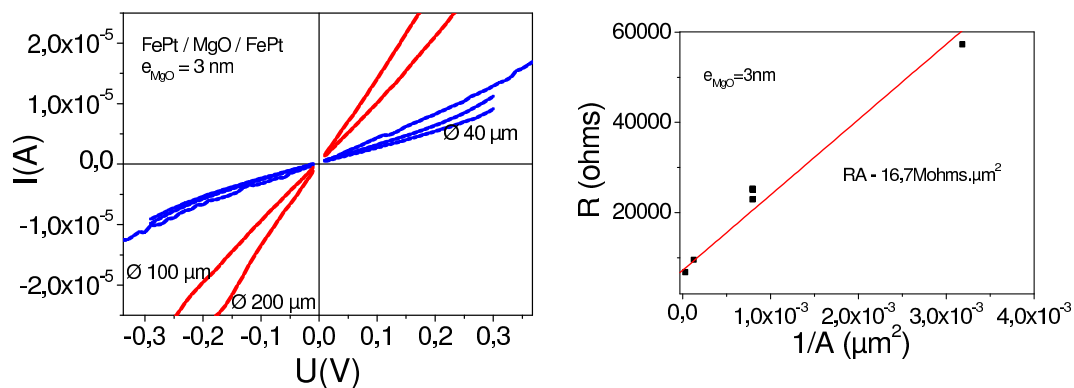


FIG. 5.23: Courbes I(V) à 300K en configuration parallèle de jonctions tunnel de différentes tailles appartenant à un même échantillon.

²Notons que par pulvérisation cathodique, le contrôle de l'épaisseur déposée est meilleur, ce qui permet une bonne homogénéité des propriétés électriques des JTM sur un échantillon.

³Précisons que nous réalisons les « fit » des courbes courant-tension avec trois paramètres : la largeur de barrière, sa hauteur et la surface de la jonction. Le dernier paramètre est fixé, les deux premiers sont « libres ».

5.5.3 Mesures de magnéto-transport

A l'heure où j'écris ce manuscrit, cette partie est malheureusement toujours « en attente », *ie* en attente d'un résultat qui soit pertinent. En effet, jusqu'à présent, il nous a été possible de réaliser des mesures courant-tension sur nos échantillons à l'aide de mesures deux-pointes, comme décrit dans le paragraphe précédent. Les résultats que nous avons pu en tirer sont prometteurs, dans le sens où les caractéristiques $I(V)$ présentées ont une allure fortement non-linéaire indiquant un mécanisme de transport par effet tunnel. En revanche, lorsqu'il s'est agi de monter les échantillons sur le nouveau banc de mesure de magnéto-transport installé au laboratoire, nous avons « claqué » la quasi-totalité des JTM lors de l'étape du montage. Ce claquage se traduit par une chute de la résistance de la jonction - de quelques $k\Omega$ ou quelques $10k\Omega$ suivant l'épaisseur de la barrière tunnel MgO à une quinzaine de Ω - et par l'obtention d'une caractéristique $I(V)$ parfaitement linéaire. Les raisons de ce claquage systématique ne sont pas encore bien comprises, mais en conséquence, les mesures de magnéto-transport présentées dans ce manuscrit sont très décevantes.

La seule mesure pertinente qu'il soit possible de présenter dans ce mémoire est donnée sur la figure 5.24 a). Elle concerne une jonction $FePt(10nm)/MgO(2nm)/FePt(5nm)$ de faible résistance, à savoir de résistance $R \sim 55\Omega$, à comparer avec une résistance $R = 6,8k\Omega$ obtenue lors d'un test électrique antérieur sur une jonction voisine (voir figure 5.24 b)), mais aussi à mettre en regard avec la résistance $R \sim 15\Omega$ mesurée habituellement sur une jonction claquée : la jonction mesurée est court-circuitée, aussi le passage du courant par effet tunnel n'est pas le mécanisme de transport dominant, un peu moins de 1% du courant utilisant ce mode de transport.

L'amplitude de la magnétorésistance est donnée par le rapport $TMR = (R_{AP} - R_P)/R_P$ où R_{AP} (respectivement R_P) est la résistance de la structure prise dans une configuration magnétique antiparallèle (respectivement parallèle). Ainsi, l'effet magnétorésistif mesuré sur la jonction présentée sur la figure 5.24 a) est de 0,4% environ : il est très faible mais reste toutefois mesurable. Notons que nous retrouvons l'effet décrit au paragraphe 5.4.1 en comparant les champs de renversements observés sur l'échantillon pleine plaque et sur la courbe $R(H)$: le renversement d'aimantation de l'électrode douce est plus tardif sur un échantillon structuré.

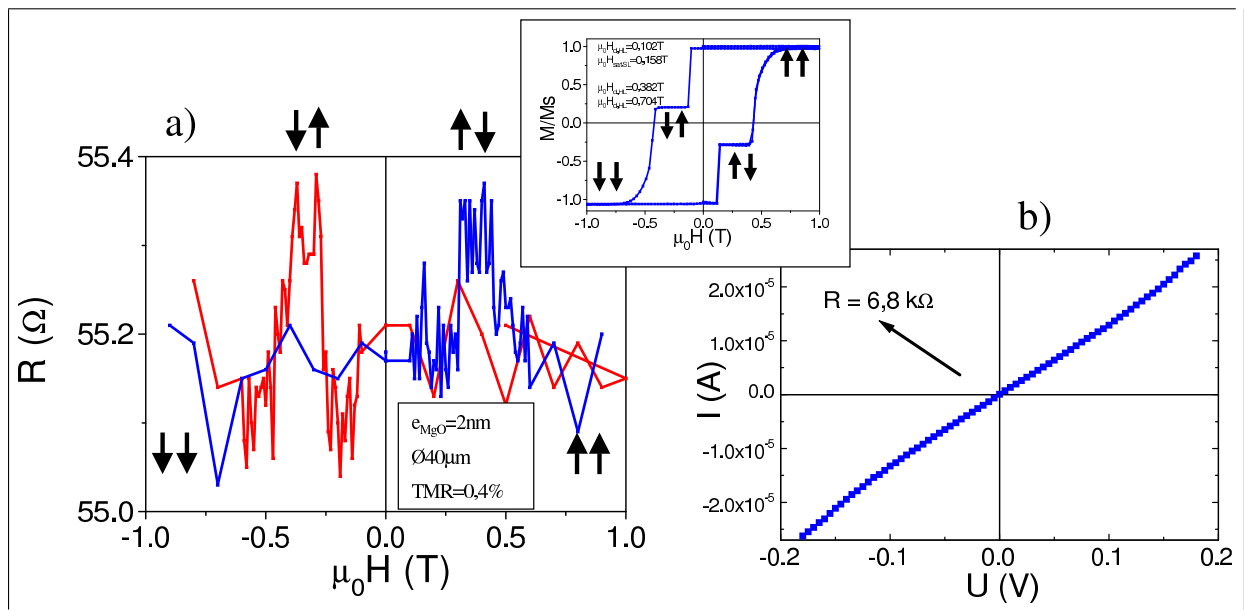


FIG. 5.24: Magnétorésistance $R(H)$ à 250K pour $U = +1mV$ d'une JTM de diamètre $40\mu m$ court-circuitée (à gauche), avec le cycle d'aimantation de l'échantillon pleine plaque (au centre). Caractéristique $I(V)$ (à 300K) d'une JTM de même diamètre du même échantillon (à droite).

Grâce à la propriété de rémanence totale des JTM FePt/MgO/FePt, nous avons également pu évaluer la magnétorésistance des échantillons à partir de caractéristiques $I(V)$ lors des tests électriques des échantillons. La figure 5.25 donne ainsi les courbes $I(V)$ de deux jonctions FePt(10nm)/MgO(3nm)/FePt(5nm) mesurées à 300K dans des configurations d'aimantation parallèle (P) et antiparallèle (AP).

Pour ce faire, nous avons déterminé par régression linéaire entre $-0,08$ et $+0,08$ V la résistance *zéro-bias* de la jonction mesurée dans une configuration donnée : nous avons pu ainsi évaluer une amplitude de TMR de l'ordre de 17% pour la jonction de diamètre $20\mu\text{m}$ et de 39% pour la jonction de diamètre $40\mu\text{m}$.

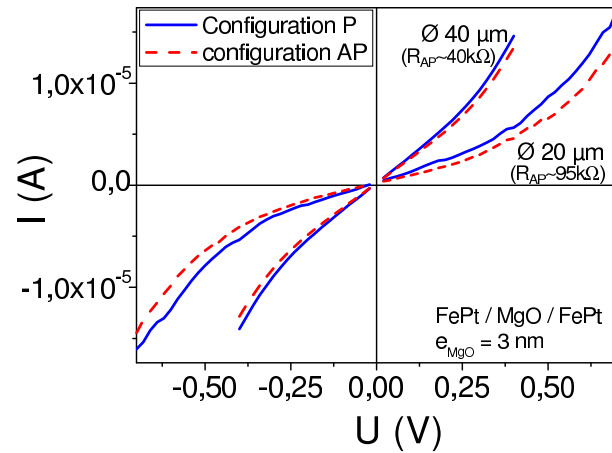


FIG. 5.25: Courbes $I(V)$ à 300K de deux jonctions tunnel amenées dans une configuration d'aimantation parallèle P ou antiparallèle AP.

Soulignons que ces mesures ne peuvent donner qu'une évaluation *très* grossière d'un effet magnétorésistif. Les échantillons sont en effet mesurés dans un état magnétique rémanent, sous champ appliqué nul, ce qui implique qu'ils sont déconnectés entre chaque mesure.

5.6 Conclusion globale sur les mesures de transport

Malgré un temps de travail important consacré à la structuration des échantillons, les mesures de transport réalisées restent décevantes car inachevées du fait de l'absence de mesure $R(H)$ qui soit propre. Nous avons pu remonter à une amplitude de magnétorésistance en utilisant une jonction court-circuitée, ou à l'aide de caractéristiques $I(V)$, mais ces résultats ne sont pas très satisfaisants.

Lorsqu'il sera possible d'obtenir des mesures $R(H)$ propres, notons qu'il serait intéressant de relier les mesures de transport à l'étude réalisée en couplage, c'est à dire de pouvoir traduire en mesure de résistance le couplage ou découplage entre les deux électrodes ferromagnétiques.

Troisième partie

Hétérostructure pour l'injection d'un courant polarisé perpendiculairement dans les semiconducteurs III-V

Chapitre 6

Le transport polarisé en spin dans les Semiconducteurs

Le principal enjeu de l'électronique de spin, ou spintronique, est la mise au point de dispositifs à base de semiconducteurs dont le fonctionnement reposerait sur le transport d'un courant polarisé en spin : dans cette optique, le spin des électrons constitue un nouveau degré de liberté. Nous étudierons dans ce chapitre les conditions nécessaires à l'obtention et la détection d'un courant polarisé en spin au sein d'un semiconducteur.

6.1 L'électronique de spin à base de semiconducteurs

Lorsqu'un courant d'électrons polarisés en spin est injecté depuis un matériau ferromagnétique¹ vers un matériau non-magnétique, *ie* ayant à l'état d'équilibre une même densité d'états de porteurs polarisés spin \uparrow et spin \downarrow au niveau de Fermi, le retour à l'équilibre se fait par un renversement du spin de certains porteurs afin d'égaliser les populations d'électrons spin \uparrow et spin \downarrow .

Ce processus de renversement du spin (*spin-flip*) est associé à un temps caractéristique τ_{sf} qui correspond à une longueur de cohérence $L_{sf} = \sqrt{D \cdot \tau_{sf}}$ (D constante de diffusion) sur laquelle le courant injecté va conserver sa polarisation en spin. En pratique, la longueur de cohérence en spin dans beaucoup de semiconducteurs dépasse largement les dimensions des composants conçus pour la microélectronique. Ainsi, dans le cas de GaAs, des longueurs $L_{sf} > 100 \mu\text{m}$ ont été mesurées à froid [KIK99].

Le premier dispositif semiconducteur dont le fonctionnement repose sur le spin des électrons a été imaginé en 1990 par Datta et Das [DAT90]. Il consiste en deux contacts ferromagnétiques de fer séparés par un matériau semiconducteur d'une distance $d < L_{sf}$ (voir figure 6.1). Les contacts ferromagnétiques agissent par analogie avec un système optique polariseur/analyseur : en l'absence de tension de grille, le courant électrique polarisé par la première électrode est injecté dans le semiconducteur. Il est alors accepté (respectivement rejeté) par la seconde électrode lorsque le système est aimanté en configuration parallèle (respectivement antiparallèle). L'application d'une tension au niveau de la grille entraîne une précession du spin des électrons par effet Rashba² : le courant collecté par le drain peut alors être modulé en fonction de la tension de grille appliquée.

Le principe de fonctionnement du transistor dit de Datta et Das repose donc sur deux principes : l'injection/collection d'un courant polarisé en spin au niveau d'une interface entre un matériau ferromagnétique et un semiconducteur d'une part, et la possibilité d'avoir un transport de spin dans un semiconducteur classique³, *ie* de conserver une population de porteurs polarisés en spin sur des distances convenables. A l'heure actuelle, personne n'a encore réussi à mettre au point un prototype fonctionnel de ce transistor, notamment du fait de la difficulté de créer une source de courant polarisé.

¹Métal ferromagnétique ou semiconducteur magnétique dilué.

²Cet effet consiste en une séparation des niveaux énergétiques spin \uparrow et spin \downarrow par couplage spin-orbite, sous l'effet du champ électrique appliqué.

³Par opposition aux semiconducteurs magnétiques dilués qui eux possèdent une asymétrie de polarisation de spin

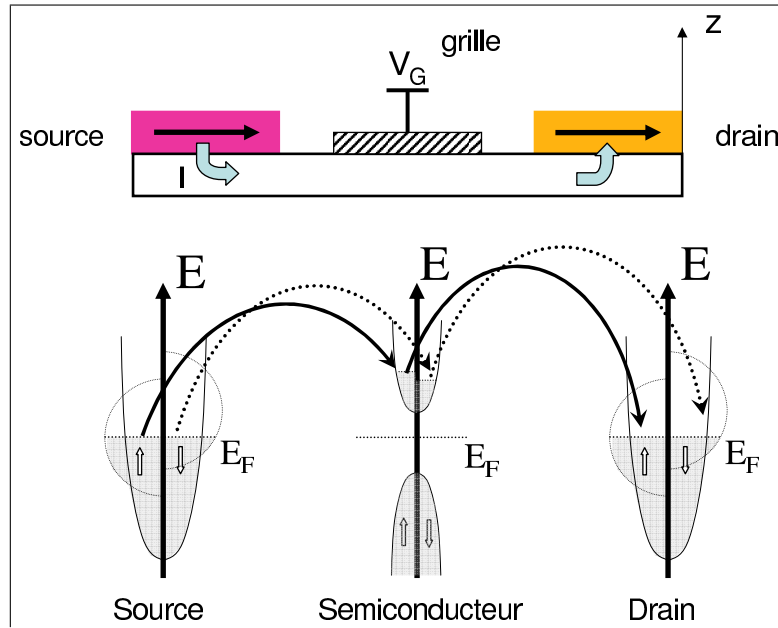


FIG. 6.1: Transistor à spin proposé par Datta et Das en 1990 [DAT90]. Les électrodes et le semiconducteur sont modélisés suivant le modèle des bandes paraboliques (le niveau de Fermi étant placé au milieu de la bande interdite du semiconducteur).

6.2 Injection de porteurs polarisés en spin dans un semiconducteur

6.2.1 Généralités

Suite à l'article de Datta et Das, de nombreux groupes se sont penchés sur la réalisation de l'injection d'un courant polarisé en spin au sein d'un semiconducteur. Différentes approches ont été envisagées :

- une injection optique des spins. Ainsi, Kikkawa et Awschalom ont publié une étude sur la relaxation de spin dans du GaAs [KIK99], où la population d'électrons polarisés en spin est créée par l'envoi d'une lumière polarisée circulairement sur le substrat de GaAs. Suivant les règles de sélection (voir paragraphe 6.3.1), les photons vont transmettre leur moment angulaire aux électrons excités.
- une injection électrique des spins à partir d'un semiconducteur magnétique dilué (DMS - *Diluted Magnetic Semiconductor*), matériau présentant des propriétés électriques voisines d'un semiconducteur conventionnel. Nous pouvons citer les travaux de Fiederling [FIE99] à ce propos. Fiederling *et al.* ont ainsi rapporté un résultat d'efficacité d'injection de l'ordre de 90%. Cependant, leur expérience a été réalisée à une température inférieure à 5K : la température de Curie généralement faible, *ie* inférieure à la température ambiante, des semiconducteurs magnétiques est un facteur rédhibitoire en vue d'applications industrielles. Actuellement, un gros effort de recherche est porté sur la mise au point de semiconducteurs magnétiques dilués présentant une température de Curie supérieure à la température ambiante.
- une injection électrique des spins à partir d'un métal ferromagnétique. C'est une voie très explorée, les métaux ferromagnétiques usuels présentant des propriétés magnétiques - une asymétrie en spin - jusqu'à des températures supérieures de quelques centaines de degrés à la température ambiante.

C'est cette dernière approche que nous avons choisi d'étudier dans ce travail. La suite de cette section va porter sur les difficultés liées à une injection électrique depuis un matériau métallique ferromagnétique vers un semiconducteur et sur les solutions développées pour y remédier.

6.2.2 Injection directe à partir d'une électrode métallique ferromagnétique

Position du problème

Pour que l'on puisse envisager un développement industriel de dispositifs semiconducteurs pour l'électronique de spin, comme un transistor « de Datta et Das », il est nécessaire que ceux-ci puissent fonction-

ner à température ambiante, *ie* que l'on puisse conserver une bonne efficacité d'injection de spins dans le semiconducteur à température ambiante.

A l'heure actuelle, cette contrainte impose l'utilisation d'un métal ferromagnétique comme injecteur. Ces matériaux possèdent une forte différence de conductivité entre les canaux de conduction $\text{spin}\uparrow$ et $\text{spin}\downarrow$. Il en résulte une polarisation en spin des électrons de conduction (voir figure 6.2 et chapitre 2.2.1) : un courant injecté depuis la couche ferromagnétique devrait être fortement polarisé, suivant l'aimantation de celle-ci.

Cependant, les premières expériences d'injection depuis un métal ferromagnétique vers un semiconducteur n'ont pas été concluantes. Hammar *et al.* [HAM99] ou Lee *et al.* [LEE99] ont ainsi réussi à injecter directement un courant polarisé en spin dans une structure semiconductrice III-V à partir d'une électrode de permalloy, mais les effets mesurés étaient inférieurs à 1% ; de plus ces résultats sont controversés, les effets observés pouvant provenir d'artefacts.

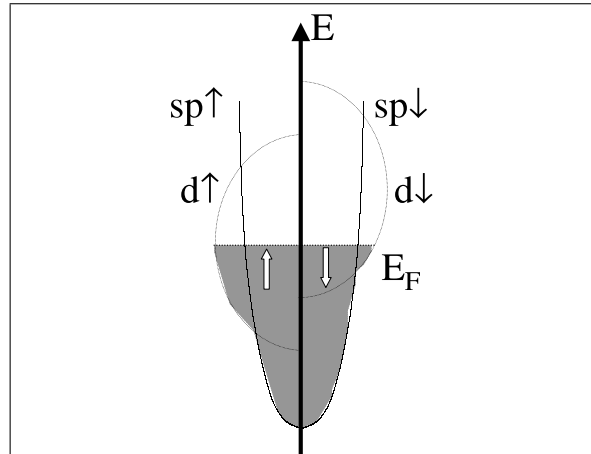


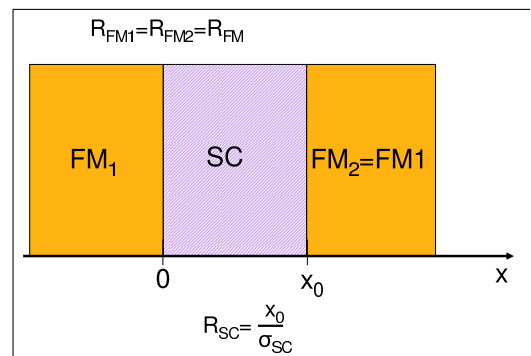
FIG. 6.2: Les densités d'états $n\uparrow(E)$ et $n\downarrow(E)$ de la bande de conduction d'un métal ferromagnétique aimanté sont schématisées par des paraboles décalées en énergie par l'échange.

L'injection directe de porteurs polarisés en spin d'un métal ferromagnétique (FM) vers un semiconducteur (SC) se heurte à deux problèmes. Le premier réside dans la difficulté pratique à élaborer une structure hybride métal/semiconducteur, du fait de la réactivité chimique des espèces (diffusion du métal dans le semiconducteur. . .). Le deuxième problème est beaucoup plus fondamental : du fait de la très forte différence de conductivité entre le ferromagnétique et le semiconducteur, l'injection de porteurs polarisés en spin d'un métal ferromagnétique vers un semiconducteur au travers d'un contact ohmique se heurte à une dépolarisation en spin du courant électrique à l'interface entre les deux matériaux, côté métal. Ce phénomène a été démontré théoriquement par Schmidt *et al.* [SCH00].

Echec de l'injection directe depuis un métal vers un semiconducteur

Considérons un courant j se propageant de façon unidirectionnelle au travers d'un système composé de deux contacts ferromagnétiques ($\text{FM}_i, i=1,2$) enserrant une piste semiconductrice de longueur x_0 , de surface unitaire et de conductivité σ_{SC} (voir figure ci-contre). Les contacts ainsi schématisés reprennent l'idée du transistor de Datta et Das [DAT90].

Les deux matériaux ferromagnétiques sont identiques ($\text{FM}_1=\text{FM}_2$), de polarisation en spin β , de conductivité σ_{FM} et de résistance R_{FM} . Au sein du semiconducteur, le courant est porté par des électrons $\text{spin}\uparrow$ et $\text{spin}\downarrow$ à parts égales ($R_{\text{SC},\uparrow}=R_{\text{SC},\downarrow}=2R_{\text{SC}}$, où $R_{\text{SC}}=x_0/\sigma_{\text{SC}}$ est la résistance globale du semiconducteur).



Considérons que la longueur de cohérence en spin du semiconducteur L_{SC} est plus grande que la taille du dispositif modélisé. Nous considérons de plus que le matériau ferromagnétique est suffisamment mince pour négliger tout phénomène de perte de cohérence en spin. Nous pouvons alors écrire qu'il y a deux canaux de conduction indépendants : un canal de $\text{spin}\uparrow$ et un de $\text{spin}\downarrow$. D'un point de vue « macroscopique », la figure 6.3 représente un schéma électrique équivalent du système simple *ferromagnétique/semiconducteur*. On considère qu'un porteur de charge polarisé en spin dans un semiconducteur conserve son spin au sein de celui-ci.

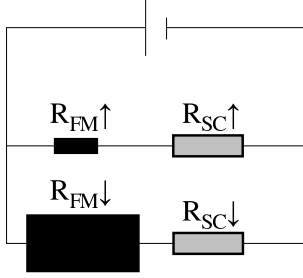


FIG. 6.3: *Modèle de résistances (modèle à deux canaux de courants) pour une interface métal ferromagnétique/semiconducteur.*

La résistance de chacun des canaux de conduction en spin du SC s'écrit : $R_{SC,\uparrow} = R_{SC,\downarrow} = 2 R_{SC}$, où R_{SC} est la résistance totale du matériau semiconducteur. En raison de la différence de densité d'états entre les porteurs spin \uparrow et spin \downarrow près du niveau de Fermi, la conductivité du matériau ferromagnétique va dépendre fortement du spin des porteurs considérés :

$$\sigma_{\uparrow,\downarrow} = \frac{\sigma(1 \pm \beta)}{2}$$

où σ est la conductivité totale du matériau ferromagnétique. Le signe + (respectivement -) correspond aux porteurs spin \uparrow (respectivement spin \downarrow). Les canaux de spin étant indépendants dans le matériau ferromagnétique, leurs résistances respectives s'écrivent :

$$R_{FM\uparrow} = \frac{2.R_{FM}}{1+\beta} \quad \text{et} \quad R_{FM\downarrow} = \frac{2.R_{FM}}{1-\beta} \quad \text{où } R_{FM} \text{ est la résistance totale du matériau ferromagnétique.}$$

Notons P_{SC} le taux de polarisation du courant électrique injecté dans le semiconducteur. j_{\uparrow} et j_{\downarrow} correspondent aux courants d'électrons de spin respectivement majoritaire et minoritaire.

$$P_{SC} = \frac{j_{\uparrow} - j_{\downarrow}}{j_{\uparrow} + j_{\downarrow}} = \frac{(R_{FM\downarrow} + R_{SC\downarrow}) - (R_{FM\uparrow} + R_{SC\uparrow})}{(R_{FM\downarrow} + R_{SC\downarrow}) + (R_{FM\uparrow} + R_{SC\uparrow})} = \frac{\frac{R_{FM}}{1-\beta} - \frac{R_{FM}}{1+\beta}}{2.R_{SC} + \frac{R_{FM}}{1-\beta} + \frac{R_{FM}}{1+\beta}}.$$

$$P_{SC} = \frac{\beta.R_{FM}}{R_{FM} + R_{SC} \cdot (1 - \beta^2)}. \quad (6.1)$$

Nous reviendrons sur cette formule 6.1 un peu plus tard. Elle décrit le comportement du système à l'aide d'un modèle macroscopique simple. Considérons maintenant ce qui se passe à plus petite échelle : d'un point de vue « microscopique », la perte de cohérence du spin aux interfaces FM/SC peut être expliquée en écrivant les potentiels électrochimique μ_{\uparrow} et μ_{\downarrow} des électrons spin \uparrow et spin \downarrow respectivement, dans chacune des régions de l'espace. Ils sont régis par les deux équations suivantes [SON87] :

$$\frac{\partial \mu_{\uparrow,\downarrow}}{\partial x} = - \frac{e j_{\uparrow,\downarrow}}{\sigma_{\uparrow,\downarrow}} \quad (6.2)$$

$$\frac{\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}}{\tau_{sf}} = - \frac{D \partial^2 (\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow})}{\partial x^2} \quad (6.3)$$

L'équation (6.2) correspond à la loi d'Ohm, (6.3) est l'équation de diffusion du spin. En supposant que les contacts FM/SC sont parfaits (sans résistance d'interface), il y a continuité de j_{\uparrow} , j_{\downarrow} , μ_{\uparrow} , μ_{\downarrow} aux interfaces. On peut démontrer [SCH00] que la polarisation du courant dans le semiconducteur a pour expression :

$$P_{SC} = \frac{j_{\uparrow} - j_{\downarrow}}{j_{\uparrow} + j_{\downarrow}} = \beta \frac{R_{FM}}{R_{SC}} \frac{2}{2 \frac{R_{FM}}{R_{SC}} + 1 - \beta^2}. \quad (6.4)$$

Les deux équations 6.1 et 6.4 amènent aux mêmes conclusions : deux cas peuvent être distingués, suivant la valeur de β :

- $\beta < 1$. C'est le cas de tous les métaux ferromagnétiques connus. Typiquement, en prenant $\beta=0,5$, $\sigma_{FM}=10^4 \sigma_{SC}$, $x_0=1\mu\text{m}$ et $L_{FM}=50\text{nm}$, la polarisation du courant injecté est de l'ordre de $7.10^{-4}\%$. L'injection de spin d'un métal ferromagnétique vers un semiconducteur est alors un échec.

- $\beta = 1$ ou du moins en est *très* proche : Dans ce cas $P_{SC} = \beta = 1$. En utilisant une électrode injectrice ayant une polarisation en spin voisine de 100%, l'injection directe dans un semiconducteur ne pose plus de problème.

Un gros effort de recherche porte actuellement sur la mise au point d'injecteurs 100% polarisés en spin à température ambiante. De Groot et son équipe [GRO83] ont ainsi formulé le concept des demi-métaux ferromagnétiques en réalisant des calculs de bande sur NiMnSb. Il s'agit d'un matériau possédant une bande de spins majoritaires métallique (coupant l'énergie de Fermi) alors que la bande de spins minoritaires est séparée du niveau de Fermi par une bande interdite : il en résulte que la bande de conduction d'un tel matériau est totalement polarisée en spin. Cependant, en pratique, aucune expérience sur un de ces matériaux demi-métalliques n'a permis d'obtenir une polarisation en spin de 100%. De plus, leur température de Curie est généralement inférieure à la température ambiante : de ces matériaux, seule la magnétite Fe_3O_4 est ferrimagnétique à l'ambiante (température de Néel 858K). Ce qui soulève la question de l'existence d'un véritable demi-métal à la mise en oeuvre réaliste et celle de ses propriétés à température ambiante.

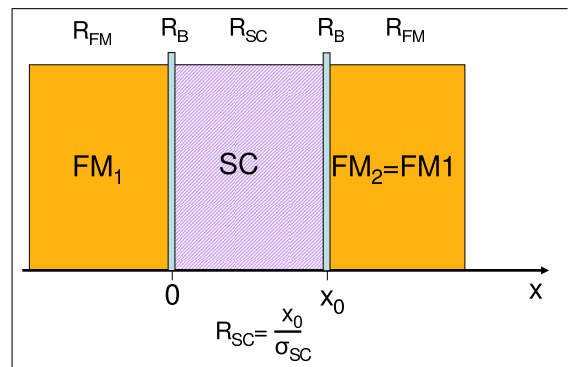
Signalons qu'un semiconducteur magnétique soumis à un champ magnétique extérieur constitue un injecteur 100% polarisé en spin. Une de ses propriétés est en effet une amplification de l'effet Zeeman. Ce dernier, découvert en 1896, consiste en une faible levée de dégénérescence des niveaux des porteurs (de l'ordre de quelques μeV) lorsqu'un matériau est soumis à un champ magnétique. Dans le cas des semiconducteurs magnétiques, le couplage fort entre les porteurs de charge et les ions Mn^{2+} entraîne une levée de dégénérescence de quelques dizaines de meV (« effet Zeeman géant »). Fiederling *et al.* [FIE99] ont ainsi obtenu leur résultat d'injection en s'appuyant sur cette propriété.

6.2.3 Injection au travers d'une résistance d'interface

Solution pour résoudre le problème de l'injection directe : introduction d'une résistance d'interface dépendant du spin

Rashba [RAS00] et Fert-Jaffrès [FER01] se sont penchés sur l'étude du problème de la dépolarisation des porteurs de charge au niveau du franchissement d'une interface ohmique métal ferromagnétique/semiconducteur et ont montré que ce problème pouvait être contourné en introduisant une résistance d'interface élevée, et dépendant du spin (*ie* ayant différentes conductivités σ_{\uparrow} et σ_{\downarrow} pour les porteurs de charge $spin\uparrow$ et $spin\downarrow$ respectivement).

Pour un transport par effet tunnel, une fine barrière isolante ou une barrière Schottky peuvent être introduits à l'interface FM/SC. Fert et Jaffrès ont repris le modèle utilisé par Schmidt, en insérant des résistances d'interfaces au niveau des contacts FM/SC (voir figure ci-contre). Par ailleurs, en plus de la polarisation en spin β de la seule électrode ferromagnétique, ils ont considéré la polarisation de l'ensemble métal ferromagnétique / résistance d'interface. L'introduction d'une résistance d'interface en $x = 0$ entraîne l'apparition d'une discontinuité des potentiels électrochimiques entre le métal ferromagnétique et le matériau non-magnétique :



$$\mu_{\uparrow(\downarrow)}(x = 0^+) - \mu_{\uparrow(\downarrow)}(x = 0^-) = R_{B\uparrow(\downarrow)} \cdot j_{\uparrow(\downarrow)}(x = 0)$$

où j est la densité de courant traversant la jonction et $R_{B\uparrow(\downarrow)}$ la résistance dépendant du spin de la barrière interfaciale. En notant γ la polarisation de l'ensemble métal ferromagnétique / résistance d'interface, on peut écrire, par analogie avec la résistance d'un canal de spin d'une électrode ferromagnétique :

$$R_{B\uparrow(\downarrow)} = 2R_B(1 - (+)\gamma)$$

(R_B est la résistance totale de la résistance d'interface). Le calcul de la polarisation en spin du courant au niveau du semiconducteur amène à l'expression suivante [FER01] :

$$P_{SC} = \frac{j_{\uparrow} - j_{\downarrow}}{j_{\uparrow} + j_{\downarrow}} = \frac{\beta R_{FM} + \gamma R_B}{R_{SC} + R_{FM} + R_B} \quad (6.5)$$

(β est la polarisation en spin des électrodes ferromagnétiques). En prenant un contact direct (ohmique) entre le métal et le semiconducteur ($R_B=0$), l'expression précédente devient

$$P_{SC} = \frac{\beta}{1 + R_{SC}/R_{FM}}.$$

Le résultat de Schmidt est retrouvé : la résistance d'un semiconducteur étant bien supérieure à celle d'un métal, il devient impossible d'injecter des porteurs polarisés en spin dans le semiconducteur. En revanche, si on insère une résistance d'interface vérifiant la condition $R_B > R_{SC}$, il devient possible d'obtenir un courant de polarisation en spin P_{SC} non négligeable. Pour $R_B \gg R_{SC}$, P_{SC} atteint sa valeur maximale $P_{SC}=\gamma$. La figure suivante, tiré de l'article de Fert et Jaffrès illustre ce résultat.

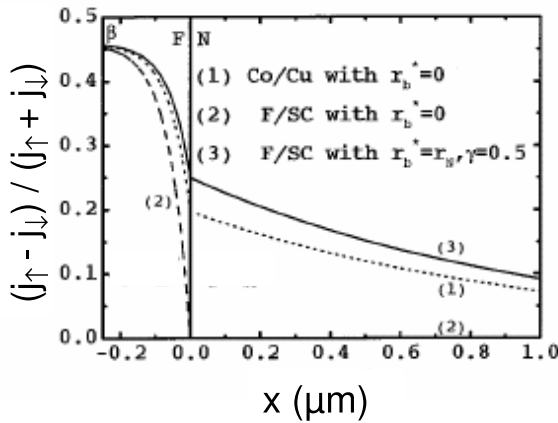


FIG. 6.4: Polarisation en spin du courant injecté au niveau d'une interface entre un métal ferromagnétique et un matériau non magnétique (tiré de [FER01]).

- La courbe 1 correspond à l'injection d'un courant polarisé en spin d'un métal ferromagnétique (du cobalt) vers un métal non-magnétique (du cuivre) : le calcul précédent reste valable tant que l'on reste dans le cas d'un transport suivant deux canaux de spin indépendants ($\tau_{sf-Cu} = 1\mu m$). La résistance des deux matériaux mis en jeu étant du même ordre de grandeur, l'injection directe ne pose pas de problème particulier.
- La courbe 2 correspond à l'injection directe d'un courant du métal ferromagnétique vers le semiconducteur. La polarisation en spin du courant dans ce dernier est négligeable
- La courbe 3 correspond à l'injection d'un courant du métal ferromagnétique vers le semiconducteur au travers d'une jonction tunnel (de résistance $R_B = R_{SC}$). Le taux de polarisation théorique obtenu (ici $P_{SC}=0,25$ à l'interface) ne dépend que des matériaux mis en jeu.

Signalons que Fert et Jaffrès ont poursuivi cette étude en calculant la magnétorésistance de la structure entière FM/SC/FM. Dans le cas d'un tel dispositif, où l'injection et la détection des spins injectés se fait électriquement, l'obtention d'une magnétorésistance significative impose une condition supplémentaire à celle calculée précédemment ($R_B > R_{SC}$). R_B doit se situer dans une gamme de résistances telle que $R_{SC} \cdot x_0/L_{SC} < R_B < R_{SC}$. L_{SC}/x_0 . Par exemple, en prenant $L_{SC}=100\mu m$ et $x_0=1\mu m$, la condition la plus drastique devient $R_B < 100.R_{SC}$.

D'après ces prédictions, l'injection de spin d'un métal ferromagnétique vers un semiconducteur aboutit à condition d'insérer un contact Schottky ou une barrière isolante à l'interface entre les deux matériaux, le transport se faisant par effet tunnel⁴. Dans les paragraphes suivants, nous allons étudier ces deux possibilités.

Introduction d'une barrière tunnel

L'insertion d'une couche isolante à l'interface entre le matériau ferromagnétique (FM) et le semiconducteur (SC) présente l'avantage de donner la possibilité de contrôler les paramètres de la barrière tunnel

⁴Dans le cas où le transport est thermiquement activé, il y a dépolariation en spin à l'interface, comme dans le cas d'un contact ohmique entre les matériaux.

(sa hauteur, son épaisseur) indépendamment des matériaux FM et SC utilisés. Le principe du transport tunnel au travers d'une barrière amorphe (Al_2O_3) ou épitaxiée (MgO) a déjà été largement traité dans le chapitre 2, aussi nous ne nous y attarderons pas : les mêmes commentaires peuvent être portés, à savoir la qualité de l'interface de part et d'autre de la barrière va déterminer la bonne conservation du spin de l'électron au cours du franchissement par effet tunnel de la couche isolante. De plus, une barrière épitaxiée va permettre de sélectionner les symétries des électrons participant au transport tunnel : Dans le cas de GaAs, la bande de conduction met en jeu des électrons de symétrie Δ_1 [MAV00].

A propos des expériences portant sur des systèmes à barrière amorphe, nous pouvons citer les travaux de Motsnyi *et al.* [MOT03] sur un système $\text{FeCo}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{AlGaAs-i}/\text{GaAs}/\text{AlGaAs-p}$. Les auteurs ont obtenu une efficacité d'injection de 21% à 80K et 16% à température ambiante.

Récemment, Jiang *et al.* [JIA05] ont montré que le MgO épitaxié constituait une barrière tunnel adaptée pour une injection efficace dans GaAs. Sur une structure $\text{FeCo}/\text{MgO}/\text{GaAs}(100)$ comprenant un puits quantique enterré de GaAs compris entre deux barrière de AlGaAs, les auteurs rapportent une polarisation en spin du courant injecté de 52% à 100K (32% à 290K). Notons que ce travail fait suite aux résultats de Parkin sur les JTM $\text{CoFe}/\text{MgO}/\text{CoFe}$ (voir paragraphe 2.3.3) : l'injecteur (FeCo/MgO) est déposé par pulvérisation cathodique sur la structure semi-conductrice à température ambiante, puis un recuit réalisé à 300°C permet de texturer la barrière tunnel $\text{MgO}(100)$.

Introduction d'une barrière Schottky

Du fait d'une grande différence de structure de bandes entre un semiconducteur et un métal, la mise en contact directe des deux matériaux - conduisant à un alignement des niveaux de Fermi - va résulter en une déformation des bandes de valence et de conduction du semiconducteur. La figure 6.5 montre ainsi la structure de bande schématisée d'une interface métal/semiconducteur dopé p ou n.

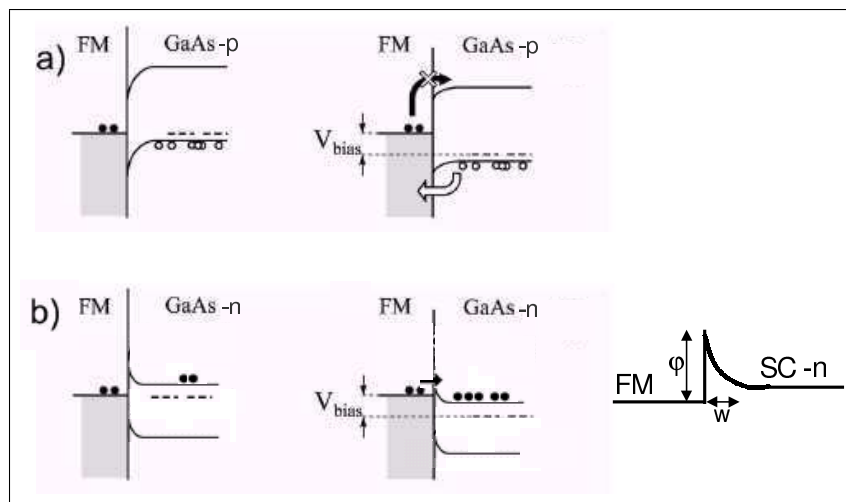


FIG. 6.5: Injection électrique d'électrons dans un semiconducteur GaAs au travers d'une barrière Schottky : (tiré de [MOT03])

a) cas d'un semiconducteur GaAs dopé p (injection défavorable),

b) cas d'un semiconducteur dopé n (Note : l'application d'une tension n'abaisse pas la hauteur de barrière).

Ainsi, dans la plupart des cas, dont celui du GaAs et des autres semiconducteurs III-V, la résistance d'interface entre le métal ferromagnétique et le semiconducteur est formée naturellement. La hauteur ϕ de la barrière et sa largeur w vont dépendre des matériaux mis en jeu, plus précisément du travail de sortie du métal, de l'affinité électronique du semiconducteur et du dopage de ce dernier (voir paragraphe 7.2.2 pour de plus amples détails à ce sujet).

Comme indiqué sur la figure 6.5 a), notons toutefois que la possibilité d'une injection d'un courant polarisé n'est pas garantie : la mise en contact d'un métal (FM) et d'un semiconducteur (SC) dopé p est défavorable à une injection de porteurs du FM vers le SC. En effet, l'application d'une tension négative (abaissant le niveau de Fermi du SC) devrait conduire à la propagation d'un courant de trous du SC vers le FM (auquel cas il n'y a pas d'injection de spins dans le SC) ; la hauteur de barrière reste trop importante pour une injection efficace d'électrons polarisés en spin. Aussi l'emploi d'un semiconducteur

dopé n est-il nécessaire (figure 6.5 b)) [MOT03].

Parmi les résultats expérimentaux d'injection au travers d'une barrière Schottky, nous pouvons citer les travaux de Zhu *et al.* [ZHU01], Hanbicki *et al.* [HAN03] ou Adelman *et al.* [ADE05].

Dès 2001, Zhu *et al.* ont réussi à démontrer l'efficacité d'une injection électrique sur une structure Fe/GaAs comportant un puits quantique d'InGaAs. Le passage du courant au travers du contact Schottky se fait par effet tunnel. Une polarisation en spin du courant injecté de 2% a pu être mesurée à température ambiante.

Hanbicki *et al.* ont fait croître par épitaxie par jets moléculaire une structure Fe/AlGaAs-n/GaAs/AlGaAs-p/GaAs-p(001) et rapportent une polarisation en spin de 32% à 4,5K pour un courant injecté électriquement. La détection de cette polarisation se fait optiquement, au moyen d'un puits quantique de GaAs compris entre deux barrières de AlGaAs (voir paragraphe 6.3.1 pour la détection optique de l'efficacité d'injection), la barrière AlGaAs supérieure étant fortement dopée n ($\sim 10^{19} \text{cm}^{-3}$) afin d'obtenir une barrière Schottky de faible épaisseur.

Sur une structure similaire Fe/AlGaAs comportant un contact Schottky, Adelman *et al.* ont réalisé une étude de la polarisation du courant détecté optiquement par un puits quantique enterré, en fonction de la température. Différents régimes sont observés suivant la température, attribués aux mécanismes de relaxation en spin. Les auteurs ont pu mesurer une efficacité d'injection de 32% à 6K et 6% à température ambiante.

Van't Erve *et al.* [VAN04] ont mené une étude comparative de la polarisation du courant injecté à partir de structures Fe/AlGaAs-n/GaAs/AlGaAs-p/GaAs-p(001) et Fe/Al₂O₃/AlGaAs-n/GaAs/AlGaAs-p/GaAs-p(001)⁵. Ils obtiennent une polarisation en spin du courant injecté de 40% dans le cas du contact tunnel contre 32% dans le cas du contact Schottky, en notant toutefois que dans ce dernier cas, le courant injecté est beaucoup plus intense à tension égale.

Enfin, pour conclure sur ce point, ajoutons que si la barrière Schottky se forme spontanément, ce qui est d'un grand intérêt pour l'élaboration industrielle de dispositifs, le contact résultant est dissymétrique en ce qui concerne le transport de courant : une électrode injectrice et une électrode collectrice de courant auront a priori des comportements différents.

6.3 Détection de la polarisation en spin d'un courant injecté

Toutes les expériences citées dans le paragraphe précédent ont utilisé un moyen optique pour détecter la polarisation du courant injecté. Il s'agit de mesures d'électroluminescence, se basant sur les bonnes propriétés optiques d'un semiconducteur III-V, au moyen d'une hétérostructure appelée Spin-LED [JON99] [JON00]. La détection optique permet en effet de n'utiliser qu'une seule interface métal ferromagnétique/semiconducteur ce qui permet de n'avoir à considérer que l'étape de l'injection dans le semiconducteur.

6.3.1 Détection optique : emploi de Spin-LEDs

Principe de fonctionnement d'une spin-LED

Le dispositif de mesure de la polarisation du courant injecté utilise une Spin-LED (*Spin Light Emitting Diode*), ie un puits quantique enterré dans une structure semi-conductrice III-V (voir figure 6.6). Ce système permet de convertir le moment angulaire des électrons en moment angulaire de la lumière émise au moment de la recombinaison des porteurs au sein du puits quantique (voir paragraphe suivant) : la présence d'un courant polarisé en spin au sein de la Spin-LED va se traduire par l'émission d'une lumière polarisée circulairement, le taux de polarisation de cette dernière dépendant du taux de polarisation du courant injecté. Ainsi, le contrôle de l'état d'aimantation de l'électrode injectrice permet de contrôler la polarisation du courant injecté qui va elle même déterminer la polarisation de la lumière émise par la structure semiconductrice.

Structure de bande d'un semiconducteur III-V « usuel »

De manière générale, la structure de bande d'un semiconducteur est caractérisée par la présence d'une bande interdite, ou gap, qui sépare les derniers états (occupés) de la bande de valence des premiers états

⁵La seule différence entre les deux structures consiste dans le type de barrière (Schottky ou tunnel) utilisé à l'interface FM/SC.

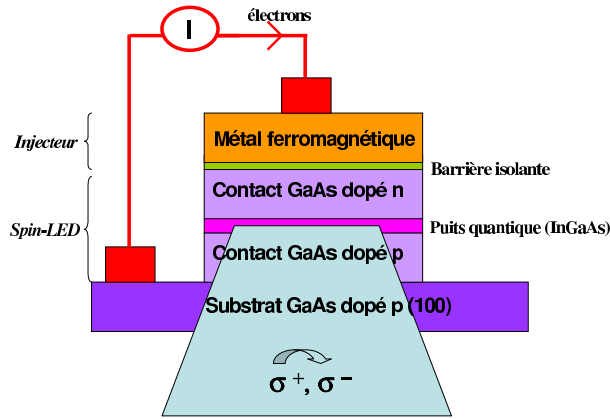


FIG. 6.6: Hétérostructure Injecteur/Spin-LED (dans l'exemple d'une Spin-LED composée d'un puits quantique de InGaAs et de barrières de GaAs), dans une configuration de mesure de l'efficacité d'injection en spin par électroluminescence.

(libres) de la bande de conduction. La position en énergie des limites de ces bandes dépend du vecteur d'onde des électrons (pour la bande de conduction) et des trous (pour la bande de valence) : les bandes mises en jeu comportent des minima ou des maxima en énergie. Lorsque le minimum de la bande de conduction et le maximum de la bande de valence correspondent au même vecteur d'onde, le gap est dit direct et le semiconducteur possède de bonnes propriétés optiques : les recombinaisons radiatives sont prédominantes. Sinon, il est indirect et les recombinaisons sont majoritairement non radiatives (émission de phonons).

Les semiconducteurs dit III-V sont des matériaux dont la matrice est constituée d'un élément de la V^e colonne du tableau périodique des éléments et d'un élément de la III^e colonne. Parmi tous les composés binaires ou ternaires possibles - ces derniers étant obtenus par substitution partielle de l'un des éléments par un autre élément de la même colonne -, tous n'ont pas les mêmes propriétés. Ainsi GaAs ou InAs sont des semiconducteurs à gap direct alors que GaP ou AlAs ne le sont pas. Dans le cas d'un alliage ternaire, comme Al_xGa_{1-x}As par exemple, la composition x va déterminer les propriétés. Ainsi, les matériaux Al_xGa_{1-x}As présentent une transition entre un gap direct et un gap indirect pour une composition en aluminium de l'ordre de x=0,35. Tous les semiconducteurs III-V utilisés dans la littérature pour constituer les systèmes Spin-LED sont choisis pour leurs bonnes qualités optiques et les alliages ternaires utilisés sont proches du composé binaire GaAs. Aussi, dans la suite de ce paragraphe, nous ne nous intéresserons qu'aux propriétés de ce dernier.

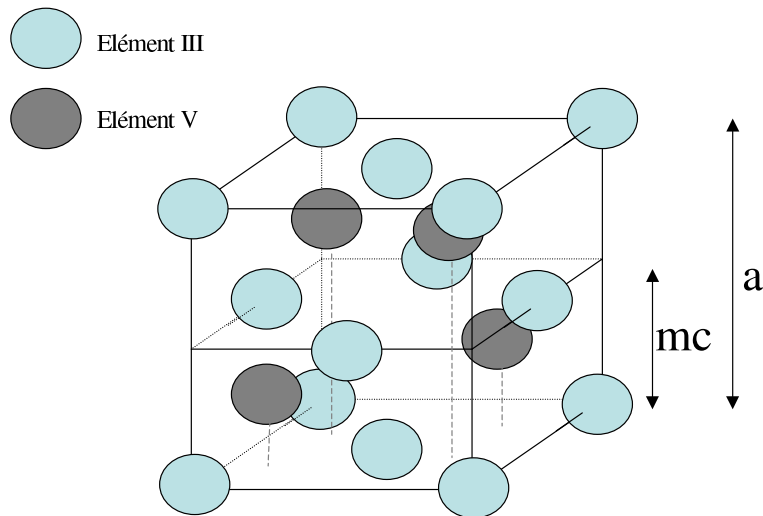


FIG. 6.7: Maille Zinc-blende. a est le paramètre de maille, mc la distance entre deux plans atomiques identiques (une monocouche).

Les composés III-V du type GaAs, InAs ou AlAs cristallisent selon la structure Zinc-blende (voir figure 6.7), appelée aussi sphalérite. Cette structure se compose de deux réseaux cubiques faces centrées. L'un est occupé par des anions (V), l'autre par des cations (III). Ces deux réseaux sont décalés l'un par rapport à l'autre du quart de la diagonale principale, c'est à dire à $\frac{\sqrt{3}}{4}$ [111], où a représente le paramètre de maille du matériau.

L'allure générale de la structure en bandes des composés III-V étudiés est la même. Un schéma simplifié de la structure de bande au centre de la zone de Brillouin est présenté sur la figure 6.8. Pour $\mathbf{k}=\mathbf{0}$, il y a un minimum d'énergie de la bande de conduction Γ_6 et un maximum de la bande de valence Γ_8 : la transition d'énergie minimale entre ces bandes a lieu à vecteur d'onde constant, ce qui permet une émission (ou une absorption) de lumière très efficace.

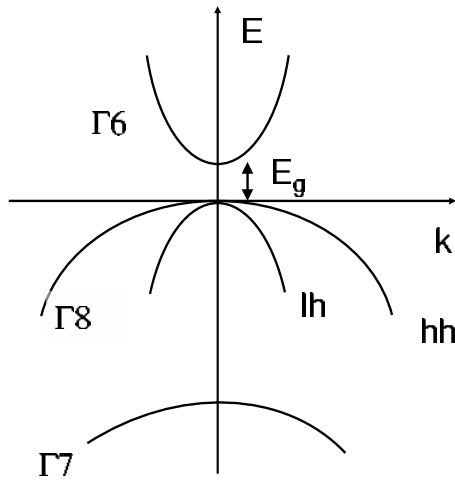


FIG. 6.8: Structure de bande de GaAs en centre de zone de Brillouin. La largeur de bande interdite E_g vaut 1,42eV à température ambiante.

Les électrons dans la bande de conduction ont un moment angulaire (S) de 1/2, de composantes $s_z=\pm 1/2$ où z est la direction de propagation des porteurs. Le couplage spin-orbite divise le haut de la bande de valence en deux sous-niveaux, Γ_7 (moment angulaire (J) valant 1/2) et Γ_8 (moment angulaire (J) 3/2). Γ_7 est décalée en énergie d'environ 340meV par rapport à Γ_8 dans le cas de GaAs [ZUT04]. Elle correspond à la bande de trous dits « splitt off ».

Le niveau supérieur Γ_8 de la bande de valence est en fait composé de deux bandes de courbures différentes, qui sont appelées *bande de trous lourds* - $j_z=\pm 3/2$ (*heavy hole* hh) - et *bande de trous légers* - $j_z=\pm 1/2$ (*light hole* lh). Elles se distinguent par des valeurs différentes de masse effective des trous. Lorsqu'une contrainte épitaxiale est exercée sur le matériau, ce qui est le cas lorsque l'on parle d'un puits quantique, il y a une levée de dégénérescence de ces bandes en $k=0$.

Règles de sélection optique

Dans le cas de semiconducteurs III-V, à gap direct, les recombinaisons entre électrons de la bande de conduction et trous de la bande de valence (trous légers ou trous lourds) sont quasi-exclusivement radiatives. Ces recombinaisons sont soumises à des règles de sélection [ZUT04] : notons z l'axe perpendiculaire au plan des couches. Lors d'une mesure d'électroluminescence, z est aussi la direction de propagation des porteurs de charge. Lorsque les électrons sont polarisés suivant z , les photons émis suivant z obéissent à des règles dites de sélection : la figure 6.9 montre les transitions optiques autorisées dans les cas où les bandes de trous sont dégénérées ou non-dégénérées, ainsi que leurs probabilités : seules les transitions optiques satisfaisant à la condition $\Delta m_j=\pm 1$ sont autorisées. Ceci correspond au moment angulaire du photon émis suivant z , prenant les valeurs +1 (polarisation $\sigma+$) ou -1 (polarisation $\sigma-$).

Par exemple, dans un matériau « massif » où les bandes de trous lourds et de trous légers sont dégénérées en $k=0$, les composantes du moment angulaires sont $j_z=\pm 3/2$ ou $\pm 1/2$ pour les trous et $s_z=\pm 1/2$ pour les électrons. Un électron de spin \uparrow $s_z=+1/2$ peut se recombiner avec un trou $j_z=+3/2$ pour donner suivant z un rayonnement polarisé $\sigma+$ ($\Delta m_j=+1$) ou avec un trou $j_z=-1/2$ pour donner un rayonnement polarisé $\sigma-$ ($\Delta m_j=-1$). Ces transitions ont différentes probabilités : ainsi, sur quatre électrons polarisés spin \uparrow dans la bande de conduction, trois photons polarisés $\sigma+$ et un photon polarisé $\sigma-$ sont créés. Le taux de polarisation du courant injecté dans le semiconducteur peut être déterminé en

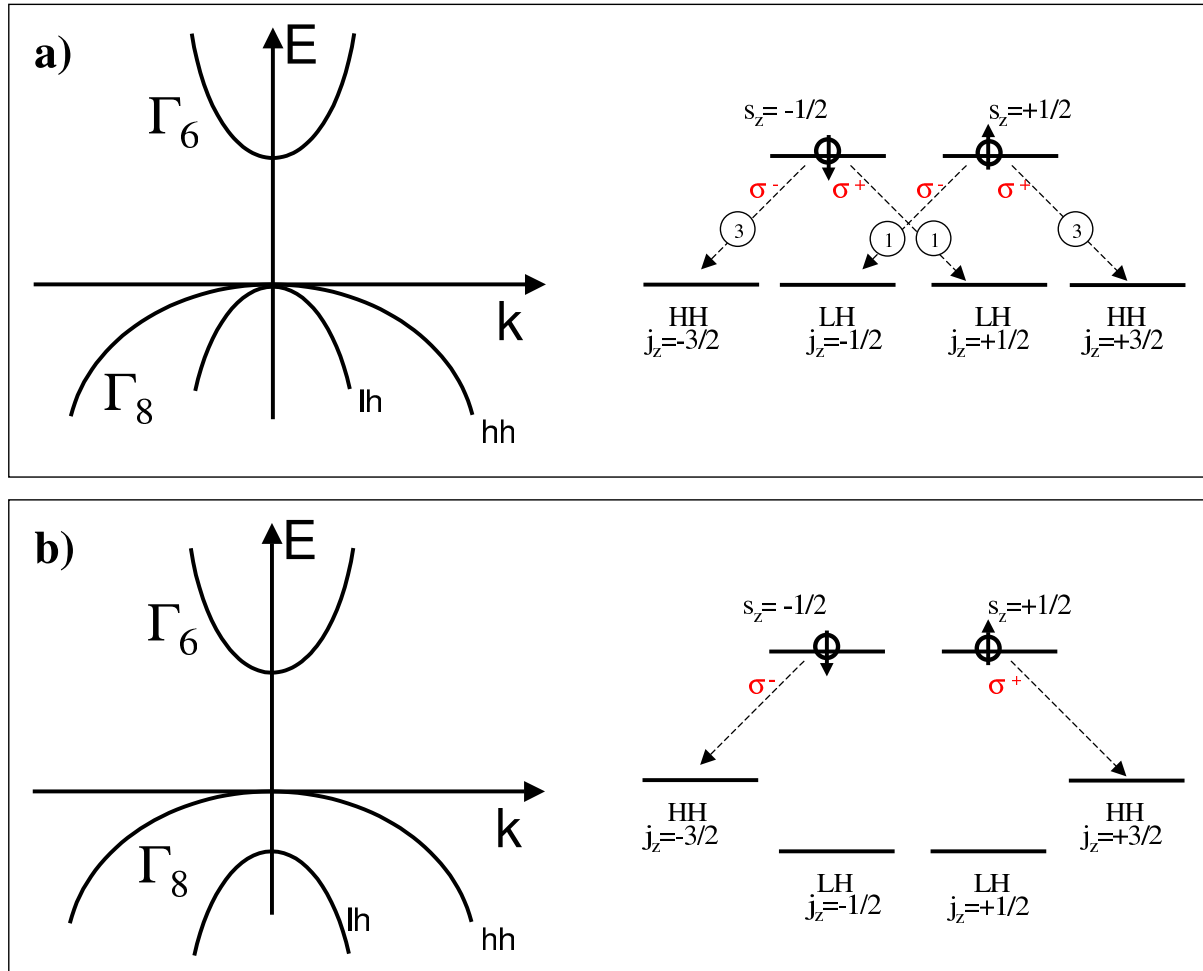


FIG. 6.9: Transitions optiques autorisées dans le cas d'un semiconducteur III-V « massif », ie où les bandes de trous sont dégénérées en $k=0$ (figure a)) et dans le cas d'un puits quantique, où la dégénérescence est levée (figure b)).

mesurant le taux de polarisation de la lumière émise suivant l'axe z :

$$P_{spin} = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}} = \frac{(\frac{3}{4}I_{+} + \frac{1}{4}I_{-}) - (\frac{3}{4}I_{-} + \frac{1}{4}I_{+})}{(\frac{3}{4}I_{+} + \frac{1}{4}I_{-}) + (\frac{3}{4}I_{-} + \frac{1}{4}I_{+})} = \frac{1}{2} \frac{I_{+} - I_{-}}{I_{+} + I_{-}} = \frac{1}{2} P_{circ}$$

où I_{+} (respectivement I_{-}) représente le taux de polarisation circulaire $\sigma+$ (respectivement $\sigma-$) des photons détectés.

En revanche, le confinement lié à un puits quantique⁶ lève cette dégénérescence (voir figure 6.9 b)). Un électron de spin \uparrow ne peut que donner une radiation polarisée $\sigma+$ par exemple. Il devient alors possible de relier directement le taux de polarisation des électrons parvenant au niveau du puits quantique au taux de polarisation de la lumière émise suivant l'axe z :

$$P_{spin} = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}} = \frac{I_{+} - I_{-}}{I_{+} + I_{-}} = P_{circ}. \quad (6.6)$$

L'utilisation de ces règles de sélection dans la mesure de la polarisation en spin des électrons injectés nécessite que la détection des photons émis se fasse selon l'axe z . Et que ce dernier corresponde aussi à

⁶Prenons le cas d'un puits quantique idéal infini. la résolution de l'équation de Schrödinger nous amène à une discrétisation des niveaux d'énergie possibles, le niveau fondamental étant situé à une énergie $E_1 = \hbar^2 \pi^2 / 2mL^2$, où m est la masse de la particule, et L la largeur du puits. Dans le cas d'un puits quantique semiconducteur ayant pour axe de quantification [001], la bande de valence se sépare en trous lourds de masse $m_{hh} = 0,34 m_0$ et en trous légers de masse $m_{lh} = 0,12 m_0$ (valeurs pour GaAs, avec le paramétrage de Luttinger), m_0 étant la masse de l'électron libre. Ces deux types de trous sont confinés dans le même puits de potentiel, mais les énergies de confinement dépendent de la masse : en considérant un puits quantique semiconducteur idéal de largeur 10nm, l'effet de confinement sépare à lui seul les niveaux fondamentaux des trous lourds et trous légers de 20meV.

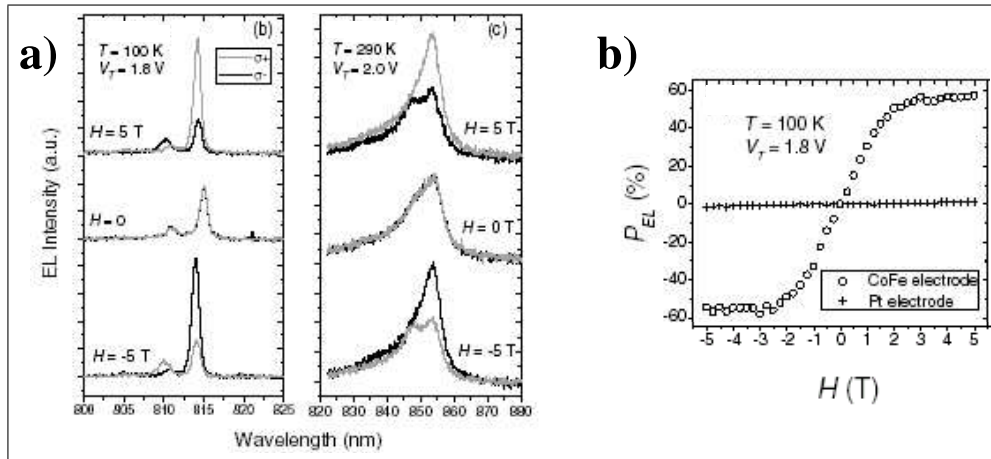


FIG. 6.10: *Figure a) : composantes σ^+ et σ^- du signal d'électroluminescence détecté sous différents champs*

Figure b) : Taux de polarisation du signal d'électroluminescence détecté en fonction du champ appliqué. Comparaison avec un échantillon témoin, où l'électrode ferromagnétique de CoFe est remplacée par une électrode de Pt, non magnétique (tiré de [JIA05]).

l'axe suivant lequel les électrons sont polarisés en spin. Dans les expériences décrites dans les paragraphes précédents, les matériaux ferromagnétiques utilisés sont à aimantation planaire. Ainsi, pour obtenir une composante en spin suivant z , les auteurs emploient généralement un champ magnétique oblique d'amplitude relativement faible (effet Hanle [MOT03]) ou un champ magnétique perpendiculaire suffisamment intense pour amener l'aimantation hors du plan des couches. Ainsi les mesures réalisées par Jiang *et al.* [JIA05] sont menées en présence d'un champ magnétique perpendiculaire de plusieurs teslas : la figure 6.10 a) donne le signal d'électroluminescence détecté suivant z par les auteurs, en présence d'un champ magnétique appliqué suivant cette même direction. Les auteurs ont constaté que le taux de polarisation de la lumière émise en fonction du champ appliqué (figure b)) suivait parfaitement la courbe d'aimantation du métal ferromagnétique.

Notons que l'application d'un champ magnétique extérieur est source d'effets indésirables, ces derniers étant loin d'être négligeables. Ainsi, Jiang *et al.* mesurent un taux de polarisation de la lumière émise de 47% à 290K sous un champ extérieur perpendiculaire de 5T : en supprimant les contributions parasites liées à l'application du champ, ils n'estiment la polarisation réelle du courant injecté qu'à 32%.

La mesure du taux de polarisation de la lumière collectée diffère donc du taux de polarisation du courant injecté dans le semiconducteur. Deux effets sont en cause principalement. Tout d'abord, l'application d'un champ magnétique extérieur entraîne une séparation des niveaux énergétiques \uparrow et \downarrow du semiconducteur par effet Zeeman. Comme le font remarquer Jiang *et al.*, cet effet n'a que peu d'influence à température ambiante où l'énergie Zeeman est faible devant l'agitation thermique. Ensuite, des effets magnétooptiques peuvent modifier le taux de polarisation de la lumière détectée. Généralement, celle-ci est collectée par la face « avant » de la structure, *ie* du côté métallique, le substrat étant trop épais pour que le signal collecté en face « arrière » soit suffisamment intense. La différence d'absorption de la lumière polarisée circulairement droite ou gauche par l'électrode ferromagnétique peut influencer sur le taux de polarisation « final » de la lumière détectée (dichroïsme magnétique). De plus, le passage de la lumière au travers d'un matériau aimanté devrait entraîner une rotation de sa polarisation par effet Faraday. La contribution des effets magnétooptiques peut être quantifiée par une simple expérience de photoluminescence⁷ ou par l'emploi d'une électrode injectrice non-magnétique (cette technique ne permet cependant pas d'estimer la contribution de l'effet Faraday).

L'absence de tout champ magnétique appliqué devrait permettre la réalisation de mesures de polarisation plus propres, conjuguées à une étude du temps de vie du spin, par la mesure de la polarisation du courant collecté en fonction de la profondeur du puits. Il est en effet bien connu que l'application

⁷Une lumière non polarisée est envoyée sur la structure. En réponse, une lumière également non polarisée est émise par le puits quantique. La polarisation de la lumière collectée à la sortie de la couche ferromagnétique permettra d'évaluer l'influence de cette dernière.

d'un champ magnétique extérieur influence de façon significative les mécanismes de relaxation en spin [BRO02] (ces mécanismes sont décrits dans le paragraphe 6.4). Aussi avons nous cherché au cours de cette thèse à élaborer une hétérostructure FePt/MgO/GaAs, en utilisant la très forte anisotropie de l'alliage ferromagnétique FePt ordonné dans la phase $L1_0$ pour réaliser une électrode injectrice à aimantation perpendiculaire, qui soit parfaitement rémanente.

Nous n'avons pas été la seule équipe à travailler sur cette idée et en 2006, Gerhardt *et al.* ont publié le premier résultat d'injection d'un courant polarisé en spin à partir d'une électrode ferromagnétique aimantée perpendiculairement en l'absence de tout champ extérieur [GER06]. Cette équipe a mis au point une structure $(\text{Fe}/\text{Tb})_{10}/\text{GaAs}/\text{InGaAs}/\text{GaAs}$, où l'injecteur, constitué de bicouches $(\text{Fe}_{2,6\text{nm}}/\text{Tb}_{1,4\text{nm}})$ est à aimantation perpendiculaire avec 70% de rémanence. Le contact injecteur/semiconducteur est un contact Schottky et le puits est enterré à 300nm sous l'électrode afin de ne pas être sous l'influence du champ de fuite rayonné par l'injecteur. Les auteurs rapportent un résultat d'injection de 0,5% à 90K sous champ appliqué nul (sous rémanence, *ie* en l'absence de champ extérieur, un courant polarisé en spin est détecté au niveau du puits jusqu'à 260K). L'effet mesuré est faible, mais il permet de valider le concept d'injection sous champ nul.

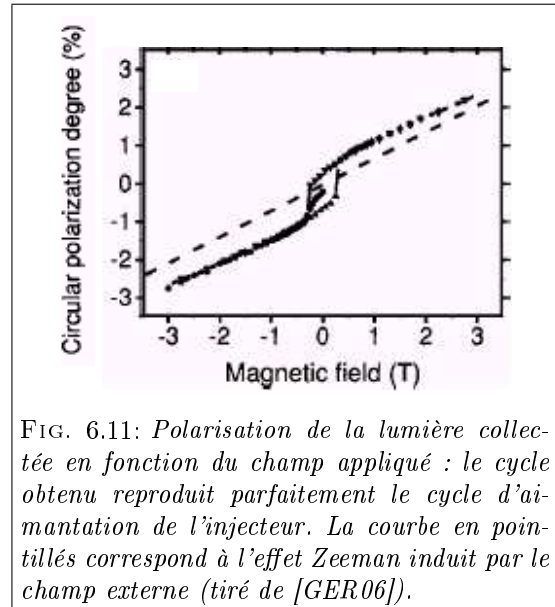


FIG. 6.11: Polarisation de la lumière collectée en fonction du champ appliqué : le cycle obtenu reproduit parfaitement le cycle d'aimantation de l'injecteur. La courbe en pointillés correspond à l'effet Zeeman induit par le champ externe (tiré de [GER06]).

Il est par ailleurs important de noter que c'est que le taux de porteurs polarisés en spin au niveau du puits quantique qui est détecté, et non pas le taux de porteurs polarisés au niveau du franchissement de l'interface métal/semiconducteur : différents mécanismes de relaxation de spin (voir paragraphe 6.4) sont à l'origine d'une dépolarisation du courant injecté. Il est donc nécessaire que le puits soit situé à proximité de l'interface pour avoir une estimation juste de l'efficacité d'injection.

6.3.2 Détection électrique de spins

De même que pour l'injection de spin dans un semiconducteur, la collecte d'un courant polarisé en spin depuis ce semiconducteur est mise en échec par la différence de conductivité entre le semiconducteur et un métal ferromagnétique. Les expériences de collecte utilisent alors une barrière tunnel ou une barrière Schottky à l'interface entre les deux matériaux.

Ainsi, Crooker *et al.* [CRO05] ont montré que l'interface Fe/GaAs était adaptée à l'injection de spins *et* à la détection de spins. Les auteurs ont réalisé un « prototype » du transistor de Datta et Das, comprenant deux électrodes de Fe de part et d'autre d'une barrette de GaAs dopé n longue de $300\mu\text{m}$ (*ie* de taille supérieure à la longueur de cohérence des spins dans GaAs). Toutes les « briques » du système imaginé par Datta et Das fonctionnent séparément (injection électrique des spins, détection électrique des spins, manipulation des spins dans le semiconducteur). Le principe des mesures de détection est le suivant : un courant d'électrons polarisés est photocréé dans le semiconducteur, suivant le même principe que celui de la détection optique, les règles de sélection permettant la transformation d'une lumière polarisée circulairement en un courant polarisé en spin. Sous l'effet d'une tension appliquée au système, le courant va alors transiter jusqu'à une électrode ferromagnétique. Lorsque l'aimantation de cette dernière bascule, l'intensité du courant collecté est modifiée (voir figure 6.12).

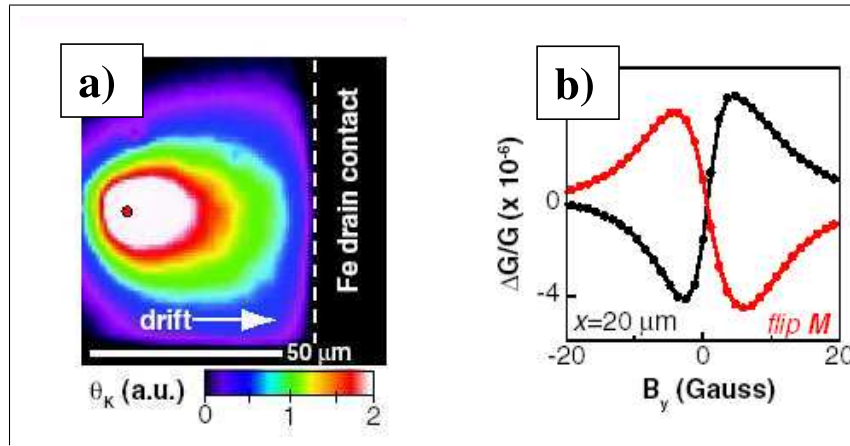


FIG. 6.12: Figure a) : Imagerie Kerr du courant polarisé photocréé dans une barrette de GaAs-n. Sous l'effet d'une différence de potentiel appliquée entre les électrodes ferromagnétiques, les électrons (polarisés) transitent vers le drain.

Figure b) : Conductance du système mesurée pour chacune des deux orientations d'aimantation du drain. Le courant polarisé est photocréé à $20\mu\text{m}$ du métal ferromagnétique ; les spins des électrons précessent autour d'un champ magnétique planaire de faible amplitude B_y . Ils arrivent ainsi au niveau du drain avec une certaine direction de polarisation. L'état de forte conductance est atteint lorsque les spins des électrons sont orientés parallèlement à la direction d'aimantation du drain (tiré de [CRO05]).

6.4 Mécanismes de relaxation de spin dans les semiconducteurs

Dans un semiconducteur non magnétique, les densités d'états au niveau de Fermi des porteurs polarisés $\text{spin}\uparrow$ ou $\text{spin}\downarrow$ sont égales. Un tel matériau pris à l'état d'équilibre ne peut pas avoir de population de porteurs de charge polarisés en spin. Autrement dit, si on injecte un courant polarisé en spin dans un métal non magnétique ou un semiconducteur, ce courant finit par se dépolariiser pour atteindre l'état d'équilibre. Le temps nécessaire à cette dépolariisation varie très fortement en fonction du matériau considéré, de son degré d'impureté, ou encore de la température de travail. Ce phénomène de dépolariisation est « lent » dans un semi-conducteur, mais il empêche de véhiculer un courant polarisé en spin sur de trop grandes distances. Il convient donc d'évoquer les principaux mécanismes conduisant à la dépolariisation d'un courant injecté.

6.4.1 Mécanisme d'Elliot-Yafet (EY)

Historiquement, Elliot [ELL54] a été le premier, en 1954, à indiquer que le spin des électrons de conduction d'un matériau pouvait se retourner suite à des collisions entre les électrons et des impuretés ou des phonons du réseau cristallin. Ce mécanisme tire son origine du couplage spin-orbite : il s'agit d'une interaction entre moments orbitaux et moments de spins individuels. L'électron en mouvement dans le solide va ressentir l'effet d'un champ électrique statique lié aux défauts du réseau (impuretés ionisées ou phonons), qui dans son référentiel va être assimilé à un champ magnétique effectif. Ce dernier va interagir avec le moment magnétique intrinsèque (spin) du même électron. Ceci entraîne l'apparition d'un potentiel d'interaction dépendant du spin, qu'il faut intégrer dans l'équation de Schrödinger de la particule :

$$[(P^2/2m) + V_{\text{total}}]\Psi = E\Psi$$

où E est l'énergie de la particule, P son impulsion, m sa masse effective, V le potentiel auquel elle est exposée, et Ψ sa fonction d'onde.

Sous l'effet du couplage spin-orbite, les états électroniques ne sont pas des états propres de spin, mais un mélange d'états $\text{spin}\uparrow$ et $\text{spin}\downarrow$, ainsi que l'a écrit Elliot :

$$\begin{aligned} \Psi_{\vec{k}_n \uparrow}(\vec{r}) &= A_{\vec{k}_n \uparrow}(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad \rightarrow \quad \Psi_{\vec{k}_n \uparrow}(\vec{r}) = (A_{\vec{k}_n \uparrow}(\vec{r}) + B_{\vec{k}_n \downarrow}(\vec{r})) \cdot e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \\ \Psi_{\vec{k}_n \downarrow}(\vec{r}) &= A_{\vec{k}_n \downarrow}(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad \rightarrow \quad \Psi_{\vec{k}_n \downarrow}(\vec{r}) = (A_{\vec{k}_n \downarrow}(\vec{r}) + B_{\vec{k}_n \uparrow}(\vec{r})) \cdot e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \end{aligned}$$

où A et B sont des fonctions complexes ayant la périodicité du réseau (avec $|A| \gg |B|$), n le numéro de la bande et \vec{k} le vecteur d'onde de la particule.

Des interactions entre les porteurs de charge et des défauts du réseau cristallin ou des phonons (à forte température) peuvent « connecter » ces états mélangés et ainsi conduire à un renversement du spin du porteur. Dans le cas où ce mécanisme est le mécanisme de relaxation dominant, la longueur de cohérence en spin est alors proportionnelle au libre parcours moyen des porteurs dans le réseau cristallin.

6.4.2 Mécanisme de D'yakonov-Perel (DP)

Ce mécanisme n'est présent que dans les matériaux cristallisant dans une structure n'ayant pas de symétrie d'inversion. C'est le cas de la plupart des semiconducteurs III-V (GaAs...) ou II-VI (ZnSe...) cristallisant selon la structure Zinc-blende. Mais ce n'est pas le cas du silicium par exemple (structure cristallographique diamant). Cette absence de symétrie va donner des solutions à l'équation de Schrödinger présentant pour \vec{k} différent de $\vec{0}$ une levée de dégénérescence de l'énergie des électrons ayant un même \vec{k} , mais se trouvant dans des états de spin différents : $E_{\vec{k}\uparrow} \neq E_{\vec{k}\downarrow}$.

Ce « splitting » est analogue à un « splitting » entraîné par la présence d'un champ magnétique extérieur (effet Zeeman), il peut donc être vu comme un champ magnétique interne dépendant de \vec{k} . Chaque électron porte avec lui son propre champ magnétique interne. Entre deux collisions, le spin précesse autour de ce champ effectif. Ce processus va donc conduire à une relaxation en spin. Lors d'une collision avec un phonon, un autre porteur ou une impureté, \vec{k} change de manière à peu près aléatoire : à la différence du mécanisme EY, ici les collisions sont bénéfiques.

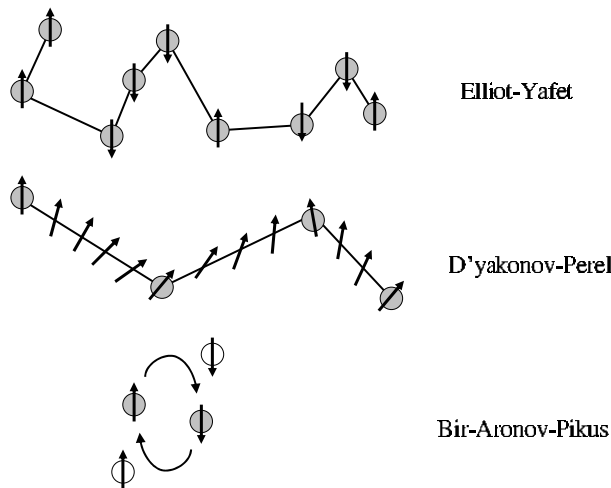


FIG. 6.13: Représentation symbolique des différents mécanismes de relaxation de spin. Le mécanisme EY est dû à des interactions entre le spin et le champ électrique des noyaux atomiques. La longueur de cohérence de spin est proportionnelle au libre parcours moyen. Le mécanisme DP est lié à la présence d'un champ effectif porté par l'électron dans certains matériaux, et sa longueur de cohérence de spin ne dépend pas du libre parcours moyen. Le mécanisme BAP provient d'une interaction d'échange entre les trous (en blanc) et les électrons (en gris).

6.4.3 Mécanisme de Bir-Aronov-Pikus (BAP)

Ce mécanisme a pour origine l'interaction d'échange électron-trou, gouvernée par l'hamiltonien $H = A \vec{S} \cdot \vec{J} \delta(\vec{r})$ [ZUT04] où A est proportionnel à l'intégrale d'échange entre les bandes de valence et de conduction, \vec{J} est l'opérateur moment orbital des trous, \vec{S} est l'opérateur de spin des électrons, et \vec{r} correspond à la position relative des électrons et des trous. L'interaction spin-orbite mélange les états de trous lourds et trous légers, ce qui peut avoir pour effet une dépolarisation du trou. Par l'intermédiaire de l'interaction d'échange, ce processus peut renverser à son tour la polarisation de l'électron.

6.4.4 Prépondérance des différents mécanismes

Les trois mécanismes précédemment décrits coexistent dans les matériaux semiconducteurs dopés p ayant un défaut de symétrie d'inversion.

Plus généralement, la tendance observée est la très forte prédominance du mécanisme EY dans les métaux. C'est aussi le mécanisme dominant dans les semiconducteurs à faible *gap* possédant un fort couplage spin-orbite (InSb est l'exemple le plus cité). Pour ce qui est des autres semiconducteurs, la détermination du mécanisme dominant dépend fortement de la concentration en dopants, de leur nature (accepteurs ou donneurs) et de la température de travail. Ainsi, BAP est généralement le mécanisme dominant dans les échantillons fortement dopés p lorsque l'on travaille à basse température. Quand la température s'élève, et ce même pour des échantillons dopés par des accepteurs, le mécanisme DP prend le pas sur BAP lorsque cela est possible (*ie* si la structure cristallographique présente un défaut de symétrie d'inversion). Dans les échantillons faiblement dopés ou dopés n, le mécanisme DP est prépondérant sur la majeure partie de la gamme de température.

Song et Kim [SON02] ont réalisé une étude théorique poussée sur l'importance relative des différents mécanismes de relaxation de spin au sein d'un semiconducteur. Ils ont étudié des semiconducteurs couramment employés (GaAs, GaSb, InAs, InSb), présentant différents taux de dopage, et ce sur une large gamme de température. Leurs résultats concernant les semiconducteurs III-V (GaAs est le substrat semiconducteur utilisé au cours de cette thèse) sont les suivants :

- Dans les semiconducteurs III-V dopés p, les deux mécanismes prépondérants sont DP et BAP, la transition en température dépendant de la concentration N_a des impuretés dopantes.
- Dans les semiconducteurs III-V dopés n, le mécanisme DP est dominant pour des températures $T > 5\text{K}$. En dessous, c'est le mécanisme EY qui est le principal responsable de la perte de polarisation en spin. Dans le cas de GaAs, Dzhioev *et al.* ont étudié le temps de relaxation du spin τ_{sf} vers 4K en fonction du dopage n du semiconducteur [DZH02]. Ainsi, pour $N_d > 2 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-3}$, c'est à dire au delà de la transition isolant-métal, les auteurs constatent une forte diminution de τ_{sf} avec N_d , diminution qu'ils attribuent au mécanisme de relaxation DP. Ainsi, pour $N_d = 2 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-3}$, $\tau_{sf} = 50\text{ns}$, mais pour $N_d = 5 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$, τ_{sf} n'est plus que de l'ordre de la nanoseconde.

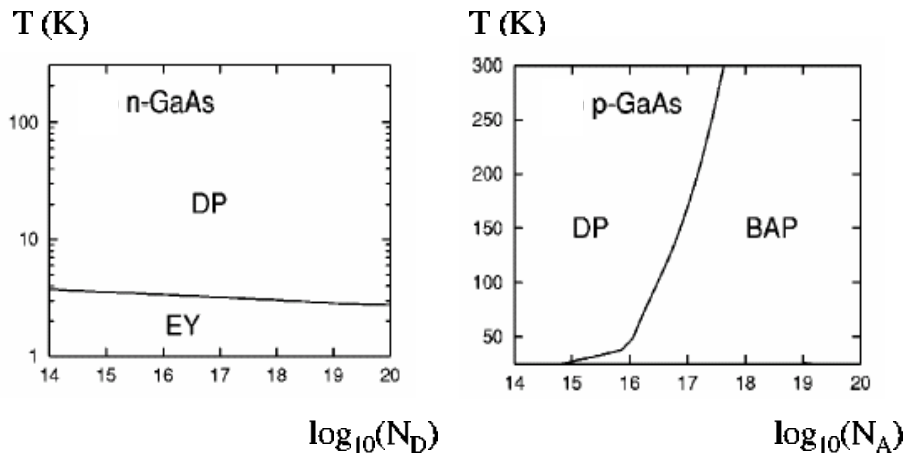


FIG. 6.14: Diagrammes de phases des mécanismes de relaxation de spin dominants dans le cas du semiconducteur GaAs (tiré de [SON02]).

6.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons essayé de passer en revue les principaux phénomènes physiques intervenant lors de l'injection et la détection optique d'un courant injecté depuis un métal ferromagnétique vers un semiconducteur. La figure 6.15 donne ainsi un schéma succinct de l'ensemble du processus considéré.

Jusqu'à récemment ([FER01]), l'injection de porteurs polarisés en spin dans un semiconducteur depuis un métal constituait un verrou technologique : depuis la reconnaissance du rôle joué par l'insertion d'une barrière isolante à l'interface entre les deux matériaux, l'injection de spin à température ambiante est sur le point d'être maîtrisée. Cependant, la détection optique de la polarisation du courant injecté oblige à réaliser les mesures en présence d'un champ magnétique extérieur. Dans ce qui suit, nous nous proposons donc d'élaborer un injecteur de spin à forte anisotropie perpendiculaire qui permette d'injecter un courant polarisé en spin en l'absence de tout champ appliqué, depuis une électrode rémanente.

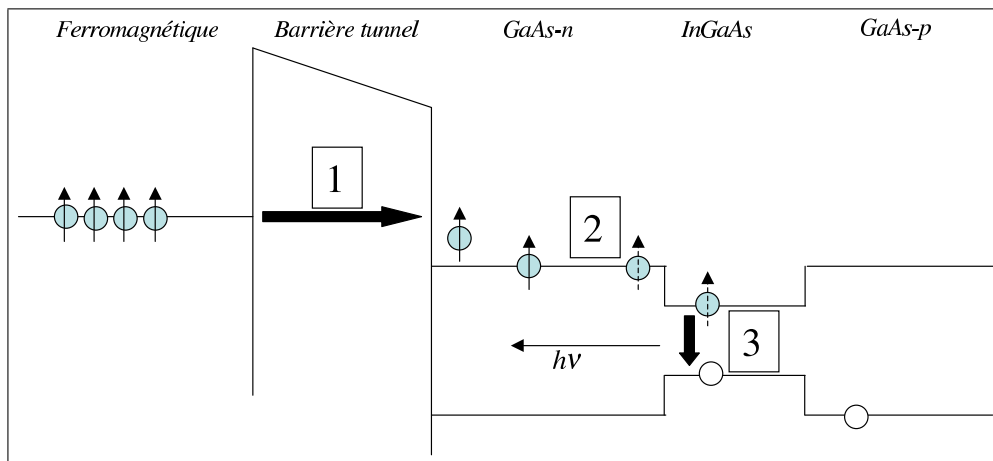


FIG. 6.15: Schéma résumant la détection optique d'un courant injecté dans une structure III-V (GaAs)InGaAs (une tension est appliquée). Trois phénomènes interviennent au cours de la mesure :

- 1- l'injection d'un courant polarisé en spin depuis le métal ferromagnétique vers le semiconducteur au travers d'une barrière tunnel,
- 2- la dépolarisation du courant au sein du semiconducteur,
- 3- la recombinaison des électrons polarisés en spin en photons polarisés circulairement.

Chapitre 7

Elaboration et caractérisation de la structure hybride Injecteur/Spin-LED

Dans ce chapitre, nous allons étudier les propriétés magnétiques et de structure de l'injecteur *FePt/MgO* déposé sur une spin-LED III-V. Les mesures de photoluminescence décrites dans cette thèse ont été réalisées en collaboration avec David Ferrand, du Laboratoire de Spectrométrie Physique (LSP) de l'Université Joseph Fourier. Les propriétés d'électroluminescence n'ont pas vraiment pu être mesurées ; elles seront l'objet d'une étude ultérieure.

7.1 Description de la structure spinLED utilisée

Les spinLEDs sont utilisées pour mesurer l'efficacité d'injection d'un courant polarisé en spin dans un semiconducteur. En effet, comme il est expliqué dans le chapitre 6, les expériences d'électroluminescence réalisées avec une spinLED donnent accès à la mesure de la polarisation en spin du courant arrivant dans le puits, par le biais de la polarisation circulaire de la lumière émise par l'hétérostructure (laquelle dépend de règles de sélection appropriées).

Les spinLEDs utilisées nous ont été fournies par Laurent Grenouillet, du laboratoire CEA/LETI/DOPT/LIR. La figure suivante (figure 7.1) décrit l'hétérostructure III-V utilisée comme détecteur de spin : la croissance est réalisée sur un substrat GaAs dopé p nettoyé par une attaque acide pour enlever en partie l'oxyde natif présent en surface. Après dégazage dans une chambre de transfert et une montée en température pour évaporer l'oxyde natif Ga_xO_y , une couche tampon de GaAs fortement dopée p ($\sim 2.10^{19}\text{cm}^{-3}$) au béryllium et d'épaisseur 700nm est déposée afin de lisser la surface. Puis 20nm de GaAs intentionnellement non dopé sont déposés de part et d'autre d'un puits quantique d' $\text{In}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{As}$ d'épaisseur 7nm. Enfin, la croissance est terminée par 20nm de GaAs fortement dopé de type n au silicium ($\sim 2.10^{17}\text{cm}^{-3}$).

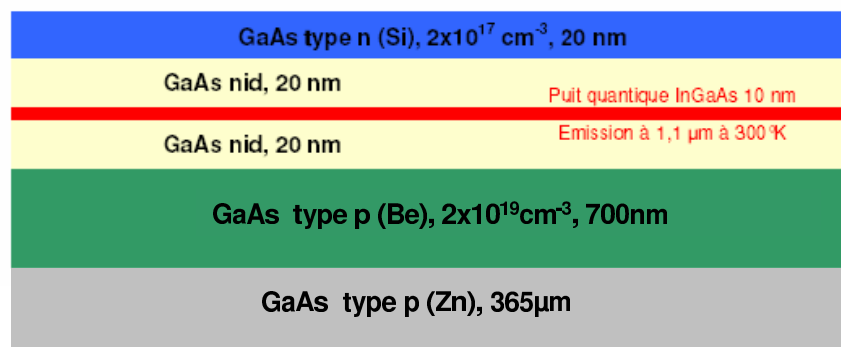


FIG. 7.1: Schéma de l'hétérostructure spinLED utilisée.

Une couche d'arsenic amorphe encapsule les échantillons et permet d'éviter la formation d'un oxyde Ga_xO_y en surface : elle doit permettre le transfert des échantillons à l'atmosphère ambiante entre le bâti

III-V et notre bâti métal/oxyde. En effet, la température de désorption de cet oxyde est de l'ordre de 600°C alors que la température de sublimation de l'arsenic présent dans une couche mince GaAs avoisine les 400°C. Comme nous n'avons pas de contre-flux d'arsenic dans notre bâti d'épitaxie métal/oxyde, nous ne pourrions pas obtenir de surface de GaAs propre et bidimensionnelle si nous laissons une couche d'oxyde se former. En pratique, nous désorbons la couche d'arsenic amorphe vers 350°C dans le bâti d'épitaxie dédié à la croissance de l'injecteur FePt/MgO.

Revenons sur la géométrie de l'hétérostructure réalisée. La couche supérieure de type n dans la structure est volontairement de faible épaisseur, pour deux raisons :

- l'idée de départ était de se garder la possibilité d'enterrer plus profondément le puits quantique, en désorbant l'arsenic amorphe dans un bâti d'épitaxie dédié aux semiconducteurs III-V et en épitaxiant de nouveau du GaAs dopé n, afin d'accroître la distance injecteur-émetteur et ainsi de pouvoir mesurer la longueur de diffusion du spin dans cette couche,
- nous avons aussi constaté que la qualité de l'arsenic amorphe déposé se dégradait avec le temps, ce qui oblige rapidement à le désorber, puis à reprendre une croissance épitaxiale de la structure afin de lisser la surface et de ré-encapsuler la spinLED avec une nouvelle couche d'arsenic amorphe.

Le puits quantique de $\text{In}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{As}$ est enterré à quelques dizaines de nm de la surface. Le matériau constituant le puits ayant une bande interdite inférieure à celle du substrat, les porteurs de charge vont être confinés par des barrières de potentiel dans une zone nanométrique (l'épaisseur du puits). Ce confinement des porteurs dans une dimension va très fortement accroître la probabilité de recombinaisons : lors d'une mesure, la quasi-totalité des recombinaisons de porteurs se fait au sein du puits quantique.

Le tableau 7.1 résume les principales propriétés physiques du substrat et du puits. Lors de la réalisation d'un alliage ternaire $\text{A}_{(1-x)}\text{B}_x\text{As}$ où A et B sont des semiconducteurs, le paramètre de maille de l'alliage et sa largeur de bande interdite peuvent être considérés comme évoluant linéairement en fonction de la composition des différents binaires, suivant la loi de Vegard :

$$a = (1 - x) \cdot a_{A-\text{As}} + x \cdot a_{B-\text{As}}.$$

$$E_g = (1 - x) \cdot E_{gA-\text{As}} + x \cdot E_{gB-\text{As}}.$$

Cette loi possède une limite d'applicabilité : il est en effet nécessaire qu'aucun des binaires impliqués ne soit en trop faible proportion (moins de 4%).

| Composé | E_g à 0K (eV) | E_g (eV) à 300K | a (Å) |
|---|-----------------|-------------------|---------|
| GaAs | 1,52 | 1,42 | 5,65 |
| InAs | 0,42 | 0,36 | 6,05 |
| $\text{In}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{As}$ | 1,14 | 1,05 | 5,79 |

TAB. 7.1: Quelques propriétés physiques de GaAs et InAs. Le gap est donné à 0K car traditionnellement les expériences de luminescence se font plutôt à basse température. L'équation de Varshni [VAR67] donne l'évolution de E_g avec la température.

7.2 Repréparation des échantillons

Cette étape de « repréparation » est rendue nécessaire par le besoin de prolonger la « durée de vie » des hétérostructures préparées au LIR et encapsulées d'arsenic amorphe.

7.2.1 MBE - dépôt par cellules d'évaporation

Description générale

La reprise d'épitaxie des spinLEDs a été réalisée dans un bâti d'épitaxie dédié à la croissance de semiconducteurs III-V. Les éléments à déposer, tels que le gallium (Ga) ou l'arsenic (As) y sont placés dans des cellules à effusion de type Knudsen : le creuset contenant la charge métallique est chauffé à l'aide d'un filament à des températures supérieures à la température d'évaporation ou de sublimation de l'élément à déposer. La température de la cellule est mesurée à l'aide d'un thermocouple relié à un régulateur, ce qui permet d'ajuster le flux d'évaporation de l'élément vers le substrat. Une calibration de

la *vitesse de dépôt en fonction de la température* est réalisée régulièrement pour chacune des cellules (voir paragraphe suivant).

Un système de caches mobiles placés devant chaque cellule permet de bloquer les flux de manière instantanée, et donc d'avoir un contrôle précis de l'épaisseur déposée.

La spinLED est collée avec une goutte d'indium sur un support « molybloc ». Ce support est introduit dans la chambre de dépôt et placé sur un four situé face aux cellules d'évaporation. Au cours du dépôt, l'échantillon est mis en rotation afin d'obtenir une croissance homogène sur toute la surface.

Contrôle de la vitesse de dépôt

Le seul paramètre permettant d'ajuster les flux de matière est la température des cellules contenant les espèces à déposer. La calibration de la vitesse se fait par diffraction RHEED : lorsque la croissance d'un matériau se fait couche par couche, il y a une variation périodique de la rugosité du cristal, qui entraîne une variation de l'intensité diffractée avec la même période. Une surface parfaitement lisse, correspondant idéalement à une monocouche complètement déposée, est associée à une intensité diffractée maximale. À l'inverse, une surface « rugueuse », correspondant à une monocouche à moitié formée, donne une intensité diffractée minimale.

Ainsi, lorsque le front de croissance avance, l'intensité du diagramme de diffraction oscille successivement entre des valeurs fortes (monocouche complète) et plus faibles (monocouche à moitié formée), la période des oscillations correspondant exactement au temps nécessaire pour faire croître une monocouche.

Un étalonnage de la vitesse de dépôt en fonction des températures des cellules est effectué de façon régulière. Une croissance est réalisée à une température donnée T_0 . Une loi semi-empirique permet alors de connaître la température de cellule permettant l'obtention du flux désiré :

$$\phi(T) = \phi(T_0) \cdot e^{\frac{T-T_0}{E_a}}$$

où $\phi(T)$ est le flux à T en monocouches/s ($\phi(T_0)$ est obtenu à l'aide d'une sonde) et E_a l'énergie d'activation, une constante empirique dépendant du matériau.

7.2.2 Reprise épitaxiale d'une couche GaAs dopé n

Position du problème

La couche d'arsenic amorphe de spinLEDs laissées exposées à l'air se dégrade en l'espace de deux semaines. L'arsenic amorphe s'oxyde et recristallise de sorte qu'il n'est plus possible de l'évaporer en conservant une surface de GaAs parfaitement lisse et reconstruite pour la reprise d'épitaxie de MgO.

Il convient donc de réparer ces substrats, en désorbant la couche d'arsenic recristallisé.

Pour cela, on chauffe l'hétérostructure à une température de 620°C pendant une vingtaine de minutes sous flux d'arsenic (la pression partielle en arsenic dans le bâti est de l'ordre de quelques 10^{-6} mbar). Le contre-flux d'arsenic permet de compenser la sublimation de l'arsenic à haute température [TSA89].

L'état de surface, *ie* l'état cristallin et la morphologie, est suivi au RHEED. La désorption de l'arsenic a pour résultat l'obtention d'une surface bidimensionnelle de bonne qualité, comme l'atteste la présence de lignes de Kikuchi, mais ne présentant pas de reconstruction de surface.

Nos tests de croissance MgO/GaAs (voir paragraphe 7.3.2) ayant montré qu'il était nécessaire d'avoir une surface de GaAs reconstruite (2x4) pour réussir la croissance de l'injecteur, nous devons reprendre la



FIG. 7.2: Cliché RHEED d'une surface de GaAs juste après désorption de la couche d'arsenic « amorphe » dégradée. L'azimut associé est [110].

croissance épitaxiale de GaAs sur une épaisseur de quelques nanomètres (typiquement 10-20nm) pour finir de lisser la surface de la spinLED et terminer en ayant la reconstruction souhaitée.

Calibration du dopage de la couche épitaxiée

Le dopage de la couche de GaAs que nous déposons doit être le même que celui de la couche supérieure GaAs-n de la spin-LED du LIR. Le dopage de nos couches est réalisé à l'aide de silicium, élément donneur dans GaAs : le niveau de dopage est ajusté par la température de la cellule de silicium.

La calibration du taux de dopage de nos échantillons implique, pour la mesure capacité-tension $C(V)$ la réalisation de contacts Schottky métal/GaAs : la région déplétée d'une barrière schottky forme en effet un condensateur plan. La mesure de cette capacité en fonction de la tension appliquée renseigne sur la nature (donneur, accepteur) et le niveau de dopage de la couche semiconductrice.

On peut se reporter à l'ouvrage de référence de Sze [SZE69] pour une approche complète de la théorie du dopage des semiconducteurs. La figure 7.3 présente schématiquement les niveaux énergétiques mis en jeu dans une jonction d'un métal avec un semiconducteur dopé n. Le travail de sortie de ce dernier pris isolément s'écrit : $q\phi_{sc} = q\chi + \Delta E_g - (E_f - E_v)$, où $q\chi$ est son affinité électronique.

Lorsque ces deux matériaux sont mis en contact, leurs niveaux de Fermi sont alignés une fois l'équilibre thermodynamique atteint.

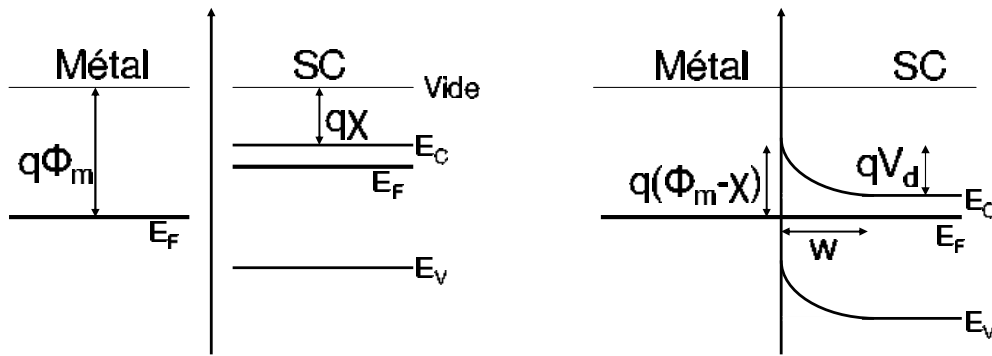


FIG. 7.3: Diagrammes de bandes d'une mise en contact métal/semiconducteur dopé n.

Soit N_d le niveau de dopage de notre couche de GaAs. N_d est le nombre d'atomes dopants (dans notre cas, il s'agit d'atomes de silicium) par unité de volume. La courbure des bandes d'énergie du semiconducteur au niveau de l'interface avec le métal va conduire à la création d'une zone de déplétion : les électrons, *ie* les porteurs majoritaires dans un semiconducteur dopé n, vont passer dans le métal. Seules les charges fixes correspondant aux atomes dopants ionisés vont subsister dans cette zone, appelée zone de charge d'espace (ZCE), qui va agir comme une capacité.

L'axe perpendiculaire au plan de la jonction est noté x , et w est la largeur de la ZCE. On considère en approximation que la densité de charge par unité de surface peut s'écrire $\rho = qN_d$ pour $x < w$ et $\rho = 0$ pour $x > w$, et que le potentiel électrostatique des porteurs est constant loin de l'interface, c'est à dire $dV/dx = 0$ pour $x > w$. La résolution de l'équation de Poisson dans le semiconducteur ($\nabla^2 V + \frac{\rho}{\epsilon_0 \epsilon_{SC}} = 0$) nous amène à écrire :

$$V(x) = \frac{qN_d}{\epsilon_0 \epsilon_{sc}} \left(wx - \frac{x^2}{2} \right) + (\phi_m - \chi). \quad (7.1)$$

ϵ_{SC} est la permittivité du semiconducteur ($\epsilon_{GaAs} = 13\epsilon_0$). La tension de diffusion V_d est définie comme étant la hauteur de la barrière Schottky de la jonction sous tension appliquée nulle :

$$V_d = V(w) - V(0) = \frac{qN_d}{\epsilon_0 \epsilon_{sc}} \frac{w^2}{2}. \quad (7.2)$$

Cette barrière de potentiel est affectée par la polarisation extérieure. Ainsi, dans le cas d'une jonction métal/semiconducteur dopé n polarisée en inverse, la hauteur de barrière est renforcée. Seul un courant très faible de porteurs minoritaires circule dans la jonction.

La grandeur à prendre en compte lorsqu'il est question d'une hauteur de barrière est donc la différence ($V_d - V$), où V est le potentiel appliqué à la jonction.

On déduit alors de l'expression 7.2 la largeur de la ZCE :

$$w = \sqrt{\frac{2\epsilon_0\epsilon_{sc}|V_d - V|}{eN_d}}$$

w dépend de la hauteur de la barrière de potentiel, et donc de la tension appliquée. En polarisant la structure, la charge de la zone de déplétion varie, ce qui donne naissance à une capacité différentielle.

$C = \partial Q/\partial V$ avec $Q = \rho w = qN_d w$ est la capacité de la jonction par unité de surface. Ce qui nous permet de relier la capacité mesurée à la quantité d'atomes dopants par la relation suivante :

$$\frac{1}{C^2} = \frac{2(V_d - V)}{\epsilon_0\epsilon_{sc}eN_d} \tag{7.3}$$

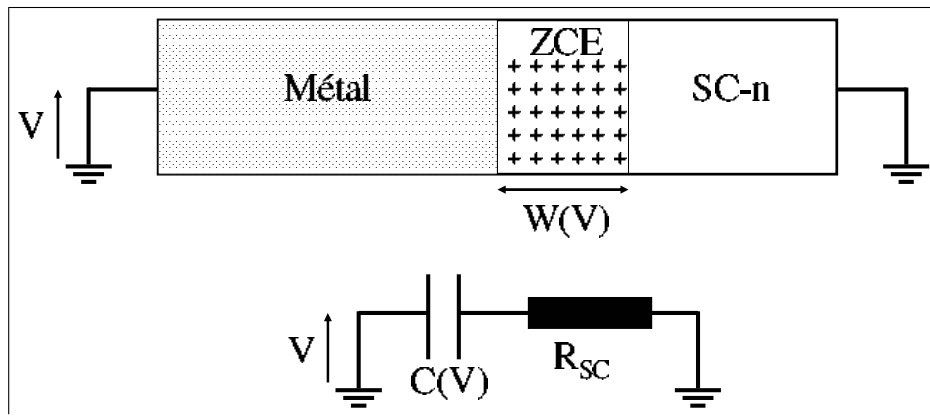


FIG. 7.4: Schéma électrique équivalent de la jonction métal/semiconducteur-n.

Le tracé de la droite $1/C^2$ en fonction de V nous donne directement accès à la densité de dopants, en supposant que la couche est dopée de façon uniforme. La largeur de la ZCE évolue avec la tension appliquée à la jonction : en faisant varier V , le dopage du semiconducteur est exploré sur une épaisseur plus ou moins grande.

Accessoirement, cette mesure permet aussi d'obtenir la hauteur de la barrière Schottky sous polarisation externe nulle V_d , en extrapolant la mesure à $1/C^2 = 0$ (voir la figure 7.5).

En pratique, nous disposons deux électrodes d'or circulaires et concentriques à l'aide d'un masque mécanique représenté sur la figure 7.6. La mesure des surfaces de chacune des électrodes est réalisée par la numérisation d'une image du dépôt prise par microscopie optique.

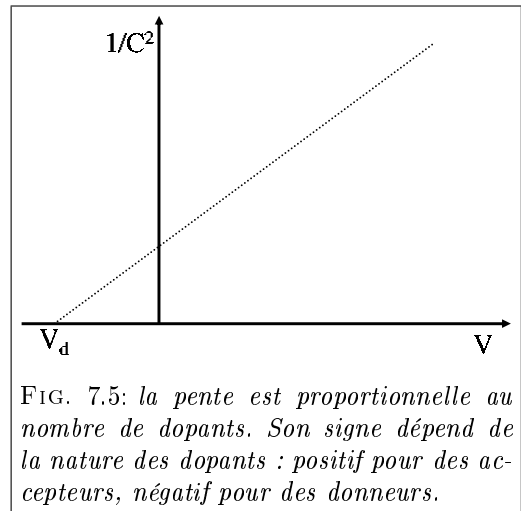


FIG. 7.5: la pente est proportionnelle au nombre de dopants. Son signe dépend de la nature des dopants : positif pour des accepteurs, négatif pour des donneurs.

Les contacts d'or sont reliés aux appareils de mesure par deux pointes micrométriques que l'on abaisse sur l'échantillon : lorsqu'une différence de potentiel est appliquée entre les deux électrodes d'or, il se crée une zone de déplétion de charges mobiles au niveau des interfaces entre le substrat et chacun des contacts métalliques.

Deux capacités, C_1 et C_2 sont créées respectivement au niveau de l'électrode centrale et au niveau de l'électrode périphérique, cette dernière ayant une surface environ 14 fois plus importante que la première. La capacité totale mesurée C est donc très proche de celle au niveau de l'électrode centrale : $C \approx 14/15.C_1$. La surface à prendre en compte pour remonter à la densité de porteurs est égale à $14/15$ fois la surface de l'électrode centrale.

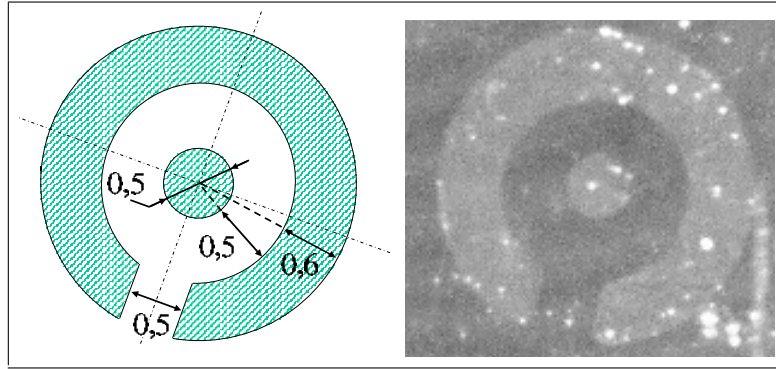


FIG. 7.6: Plan du masque à gauche (dimensions en μm). A droite, image du dépôt d'or sur une surface de GaAs. L'électrode centrale a une surface de $2,9.10^5 \mu\text{m}^2$ contre $4,0.10^6 \mu\text{m}^2$ pour l'électrode périphérique.

Signalons que la présence de pièges profonds¹ dans la zone déplétée peut altérer le résultat d'une mesure $C(V)$. Kimerling [KIM74] a étudié en détail l'influence des niveaux profonds sur la mesure de la capacité. Dans le semiconducteur, ces niveaux profonds vont piéger des charges, les empêchant de participer à la conductivité électrique.

La capacité C est donc mesurée point par point à une tension continue V_{mes} ² à laquelle est superposée une petite tension alternative ΔV_{osc} sinusoïdale de fréquence suffisamment élevée pour éviter que les pièges ainsi sollicités ne captent et n'émettent les porteurs.

Pour chaque valeur V_{mes} de la courbe de mesure, la largeur w de la ZCE reste approximativement constante et la capacité $C = \partial Q / \partial V$ est déterminée en mesurant le courant induit par la tension oscillante.

Nous avons donc déposé des couches de GaAs dédiées à ces tests de dopage. Les paramètres de croissance des échantillons testés par les mesures $C(V)$ sont semblables à ceux qui ont été utilisés pour la réparation des spinLEDs : les flux de gallium et d'arsenic sont ajustés vers $P_{\text{Ga}} = 2.10^{-7} \text{mbar}$ (température de cellule vers 980°C) et $P_{\text{As}} = 3.10^{-6} \text{mbar}$ (température de cellule vers 310°C) de façon à faire croître une couche de GaAs reconstruite (2x4) à une vitesse de 0,5 monocouches par seconde. La température de la cellule de silicium est le seul paramètre ajustable pour le dopage.

La figure ci-contre présente une courbe $C(V)$ réalisée à une fréquence de 40kHz sur une couche GaAs dopée n au silicium pour une température de cellule $T_{\text{Si}}=950^\circ\text{C}$. La hauteur de la barrière Schottky est estimée à $0,4\text{V}$ ³ et le dopage mesuré (associé sur la courbe aux tensions V_{mes} proches de 0) correspond à un dopage par des donneurs $N_{\text{d}} \sim 9,0.10^{19} \text{cm}^{-3}$.

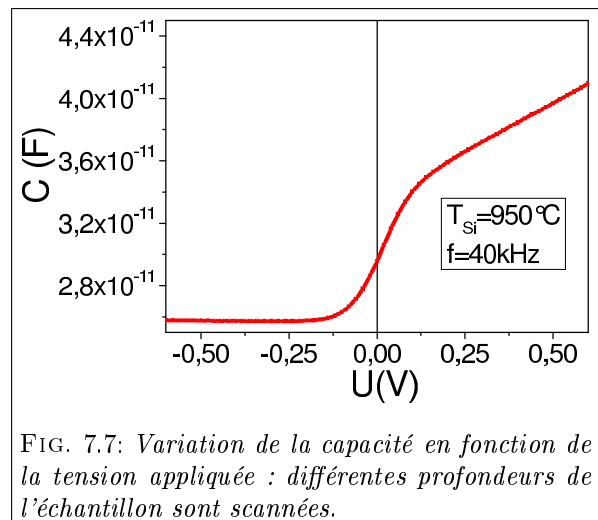


FIG. 7.7: Variation de la capacité en fonction de la tension appliquée : différentes profondeurs de l'échantillon sont scannées.

Souhaitant un dopage de l'ordre de 2.10^{19}cm^{-3} pour la couche reprise en épitaxie, nous avons étalonné une température de cellule de silicium de 885°C associée à une vitesse de croissance de la couche de GaAs de 0,5 monocouches/seconde.

¹Le niveau d'énergie de ces pièges profonds est situé au dessous du niveau de Fermi dans le cas d'un semiconducteur dopé n, au dessus dans un semiconducteur dopé p.

²C'est suivant la valeur de cette tension que le dopage de la couche semiconductrice est scanné sur une profondeur plus ou moins grande.

³Notons qu'usuellement, la hauteur d'une barrière Schottky Au/GaAs est plutôt de l'ordre de 1V

Reconstructions de surface de GaAs

La croissance de la barrière tunnel MgO dépend de manière cruciale de la surface de la couche de GaAs. Avant de détailler plus loin ce point, rappelons ici que l'arrangement des atomes en surface n'est pas identique à ce qui existe dans le volume : la rupture du cristal entraîne un réarrangement des atomes afin de minimiser l'énergie de surface et de réduire le nombre de liaisons pendantes. Ces reconstructions de surface varient selon plusieurs paramètres.

Ainsi, dans le cas d'un cristal de GaAs, nous avons déjà signalé que l'arsenic avait tendance à s'évaporer lorsque le substrat était porté à forte température, laissant une surface composée de gouttes de gallium. Suivant la température et le rapport des pressions partielles des matériaux III ou V, la surface sera plus ou moins riche en arsenic, ce qui entraîne différents réarrangements des atomes de surface. Il faut noter que les changements de reconstruction ont lieu pour des conditions expérimentales parfaitement reproductibles d'une fois sur l'autre et sont parfaitement réversibles : en jouant sur la température du substrat, il est possible de passer d'une reconstruction à une autre, puis de revenir à la première.

Une reconstruction (AxB) d'un substrat GaAs(100) correspond à un réarrangement de surface de périodicité A suivant l'azimut $[1-10]$ (direction de clivage de ces substrats) et de périodicité B suivant $[110]$. Ce réarrangement est visible au RHEED, des tiges de surstructure de différentes intensités apparaissent ou disparaissent suivant la manière dont la surface se réorganise : l'étude de la figure de diffraction RHEED permet d'identifier les reconstructions de surface et d'ajuster finement les conditions de croissance.

Däweritz a tracé le diagramme de phase des différentes reconstructions de surface de GaAs (figure 7.8).

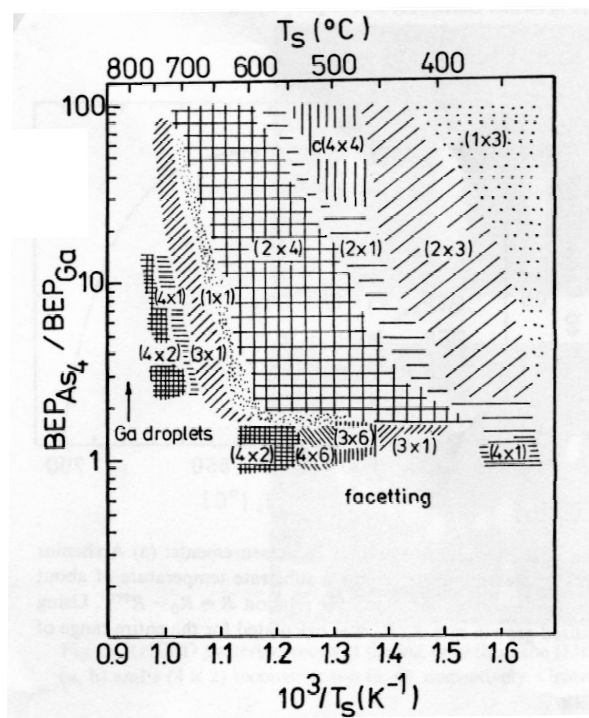


FIG. 7.8: Diagramme de phase des reconstructions d'une surface de GaAs. En abscisse, la température du substrat. En ordonnée, le rapport des pressions partielles d'arsenic et de gallium (tiré de [DAW90]).

Ainsi, classées dans l'ordre croissant de leur richesse en arsenic, nous avons par exemple les reconstructions $(4x2)$, $(3x1)$ et $(2x4)$ (voir figure 7.9). C'est sur une surface de GaAs réarrangée suivant cette dernière reconstruction que nous avons pu obtenir nos meilleurs résultats lors de la croissance de la barrière MgO sur le semiconducteur.

Cette reconstruction est très reconnaissable au niveau de l'azimut $[110]$ (celui présentant la reconstruction $(x4)$ de la $(2x4)$) par le fait que la seconde des trois tiges de surstructure présentes entre les tiges principales est quasi-complètement effacée (à la différence de la reconstruction $(4x2)$).

Dépôt d'arsenic amorphe

Dans notre cas, nous recherchons l'obtention de cette reconstruction $(2x4)$ lors de la désorption de la couche d'arsenic amorphe disposée au dessus de la spin-LED. Cette couche permet le transfert de l'échantillon du bâti III-V vers le bâti d'épitaxie métaux/oxyde.

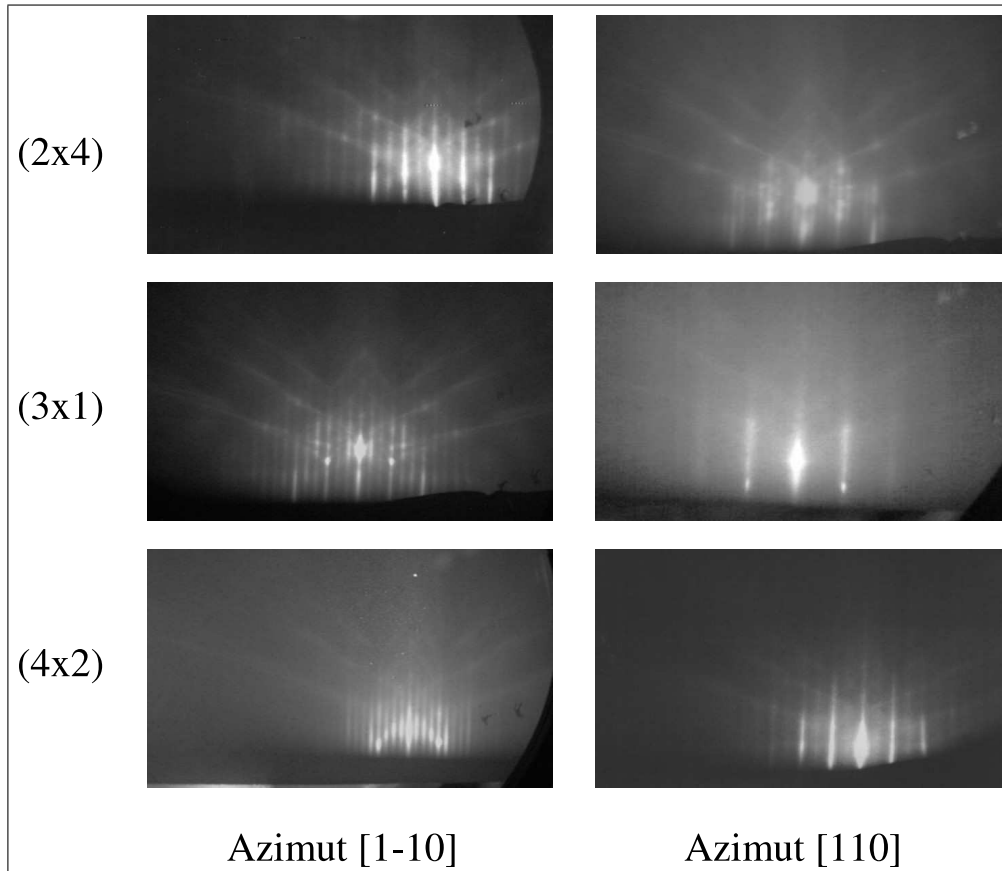


FIG. 7.9: Clichés RHEED d'une surface de GaAs présentant différentes reconstructions. De haut en bas, elles sont de moins en moins riches en arsenic.

L'arsenic se dépose sous forme amorphe si la température du substrat est suffisamment faible *ie* bien en dessous de la température ambiante : une fois que la surface de GaAs observée au RHEED est lisse et présente la reconstruction (2x4), on laisse l'échantillon refroidir, grâce au panneau froid rempli d'azote liquide, jusqu'à une température de l'ordre de -10°C . Une couche d'arsenic (amorphe) d'épaisseur de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres est déposée.

7.3 Croissance de l'injecteur

Le dépôt est réalisé dans le bâti d'épitaxie dédié à la croissance de métaux et d'oxydes. La structure du système complet est donnée sur la figure suivante.

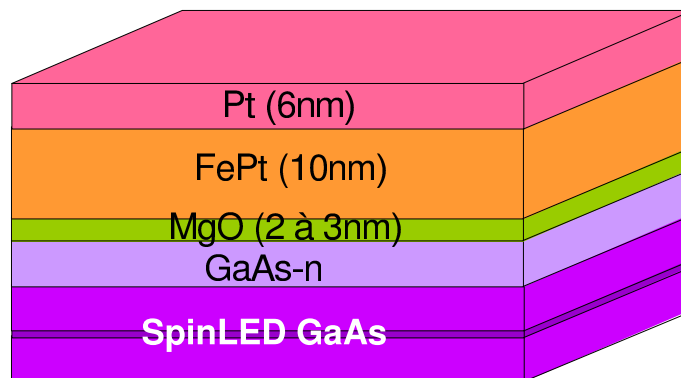


FIG. 7.10: Schéma de la structure complète SpinLED/Couche GaAs-n épitaxiée/Injecteur. La dernière couche de platine sert à protéger l'alliage d'une éventuelle oxydation.

7.3.1 Etude de la surface de GaAs après désorption de l'arsenic amorphe

Désorption de l'arsenic amorphe

A la différence de ce qui a été présenté dans le paragraphe précédent, la couche d'arsenic amorphe recouvrant la spinLED n'est exposée à l'air que pendant le temps du transfert entre les deux bâtis et n'a donc pas le temps de recristalliser : la désorption de cette couche permet de retrouver une surface de GaAs au diagramme RHEED parfaitement net. Ce résultat est obtenu sous ultra-vide ($P \sim 2.10^{-10}$ mbar), en l'absence de tout contre-flux d'arsenic : l'appauvrissement de la surface en arsenic à mesure que la température du substrat augmente est irréversible. C'est pourquoi la désorption est réalisée de façon lente, en élevant progressivement la température de l'échantillon de quelques degrés par minute.

Lors de cette étape, la reconstruction (2x4) n'est pas retrouvée immédiatement. Différentes reconstructions stables sont observées successivement au RHEED, de la plus riche à la moins riche en arsenic : (2x3), (2x4), (3x1) et (4x2). Un même nombre de tiges de surstructure pouvant indiquer plusieurs reconstructions, l'échantillon doit être régulièrement tourné de 90° afin de passer de l'azimut [110] à l'azimut [1-10] et ainsi pouvoir identifier la reconstruction observée.

C'est la reconstruction (2x4) que nous cherchons à atteindre, aussi opérons nous une descente rapide en température une fois que cette reconstruction apparaît de façon nette.

Visualisation par STM de la surface de GaAs (2x4)

Le STM (*Scanning Tunneling Microscope*, ou microscope à effet tunnel) est une technique de microscopie basée sur l'effet tunnel. Le principe repose sur l'approche d'une pointe métallique très fine à proximité d'une surface d'un matériau conducteur (ou semiconducteur) afin de faire passer un courant tunnel entre la pointe et l'échantillon. Le courant tunnel collecté est très sensible à la distance pointe/échantillon, aussi cette technique permet-elle théoriquement de détecter des aspérités de surface de hauteur bien inférieure au plan atomique. Seule l'extrémité de la pointe (le dernier atome) permet de faire l'image, aussi la résolution latérale est-elle de l'ordre de l'atome.

Du fait de son mode de fonctionnement (et à la différence d'une mesure AFM, consistant en une mesure de forces de contact), le STM sonde les propriétés électroniques d'une surface : l'image est prise à une différence de potentiel donnée entre la pointe et la surface et un courant tunnel donné, ce qui signifie qu'elle correspond à une courbe de niveau des états électroniques d'énergie accessibles à cette différence de potentiel : le courant tunnel peut être approximé par la formule suivante en fonction des densités d'états libres et occupées de la pointe et de l'échantillon et de la probabilité de transmission tunnel [DUK69] :

$$I(V) \propto \int_{E_F}^{E_F+eV} \rho_{\text{pointe}}(E+eV) \cdot \rho_{\text{échantillon}}(E) \cdot T(E, V) \cdot dE.$$

Lorsque le matériau imagé est un métal, celui-ci comporte une grande densité d'état au niveau et à proximité du niveau de Fermi, aussi pour une distance pointe/surface donnée, la densité de courant circulant par effet tunnel est relativement homogène sur la surface du matériau et le STM donne essentiellement accès à la topographie de la surface.

En revanche, lorsque le matériau imagé est un semiconducteur, il est important de considérer la structure électronique mise en jeu lorsque des différences de potentiel faibles sont appliquées entre la pointe et la surface⁴ : il peut exister des états électroniques localisés au sein de la bande interdite du semiconducteur. Pour une énergie (tension appliquée) donnée, certains états (dopants, ...) peuvent participer au courant tunnel. Il faut alors prendre en compte la possibilité d'une distribution spatiale des propriétés électroniques de la surface lors de l'analyse d'une image STM. Pour une description de la théorie du STM, on pourra se reporter à l'article de Tersoff [TER85].

Deux types de mesures sont réalisées par STM :

- des images « topographiques », où la pointe sonde la surface pour un courant tunnel et une différence de potentiel pointe/surface fixés,
- des mesures spectroscopiques, où les densités d'état sont sondées localement par la réalisation d'une caractéristique $I(V)$, la distance pointe/échantillon étant maintenue constante.

Les mesures STM présentées dans ce chapitre ont été réalisées *in-situ*, dans une chambre sous ultra-vide dédiée, connectée à la chambre d'évaporation : la surface imagée correspond donc à celle qui est

⁴Il est bien sûr possible d'imager la topographie de la surface d'un semiconducteur en appliquant une différence de potentiel supérieure à la largeur de bande interdite.

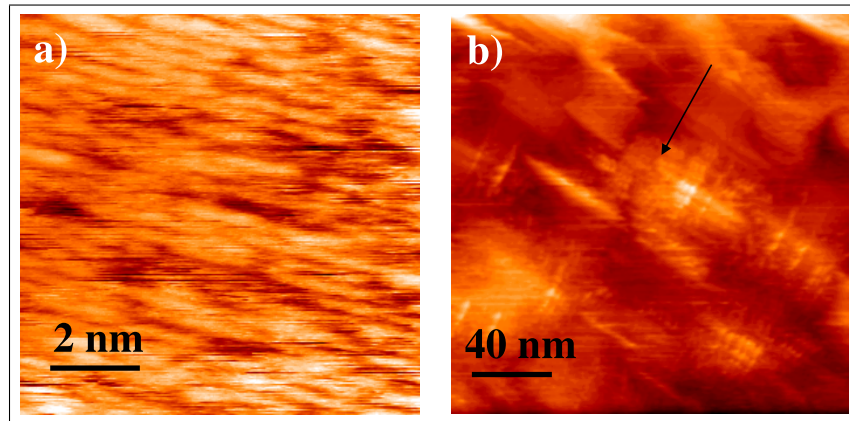


FIG. 7.11: Images STM (de tailles $10\text{nm} \times 10\text{nm}$ et $200\text{nm} \times 200\text{nm}$) d'une surface de GaAs (100) reconstruite (2x4). La flèche indique une marche atomique entre deux plans de GaAs (Note : le bord inférieur des images ne correspond pas exactement à une direction cristallographique [100]). les conditions de travail sont les suivantes : le courant tunnel est fixé à $I = 0,106\text{nA}$ et la différence de potentiel appliquée est $U = +2,23\text{V}$.

obtenue après désorption de la couche d'arsenic amorphe. La pointe est en tungstène; c'est elle qui est polarisée électriquement alors que l'échantillon est maintenu à la masse. Ce qui signifie que pour une tension appliquée positive, les états électroniques occupés (bande de valence) du semiconducteur sont scannés. Inversement, pour une tension négative, les états « vides » (bande de conduction) sont sondés.

La figure 7.11 présente deux images de la surface GaAs (100). Sur l'image a), les tranchées alignées suivant la direction [1-10] correspondent au réarrangement des atomes en surface en lignes de dimères d'arsenic, et sont caractéristiques de la reconstruction (2x4). Cette dernière a déjà été observée par STM par d'autres groupes [PAS91] : la reconstruction (2x4) résulte de la formation de dimères d'arsenic ordonnés suivant les directions [110] et [1-10]. La résolution de la pointe est insuffisante pour visualiser les atomes sur notre image. Sur la figure b), nous pouvons visualiser l'organisation de la surface en terrasses.

La figure suivante (figure 7.12a)) présente une courbe $I(V)$ typique réalisée sur cette surface : au cours du balayage, le mouvement de la pointe est stoppé en un point et la distance pointe-surface est fixée⁵.

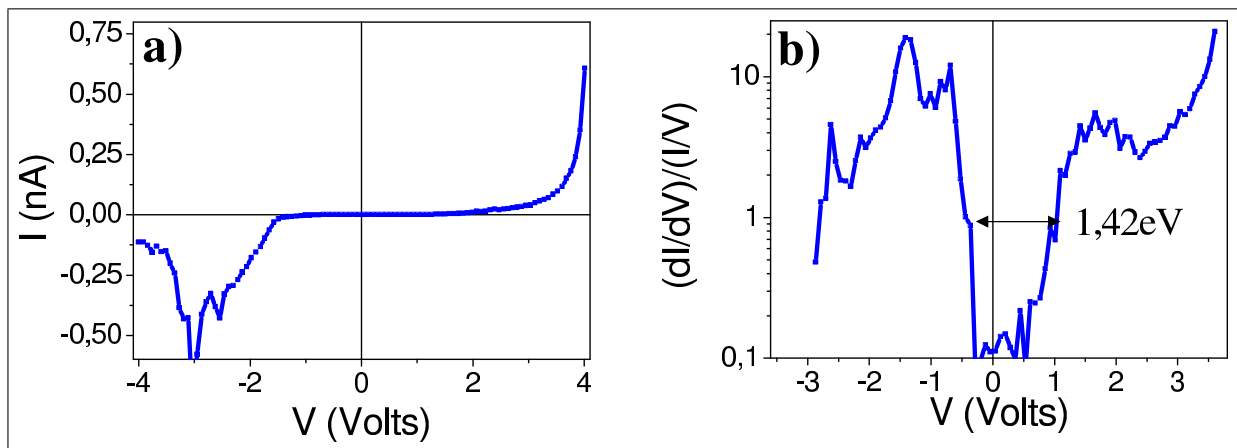


FIG. 7.12: Mesure $I(V)$ réalisée localement sur la surface GaAs (figure a)) et sa dérivée normalisée représentée en échelle logarithmique (figure b)).

⁵Cette distance correspond donc aux paramètres d'imagerie adoptés, c'est à dire qu'ici elle correspond à l'obtention locale d'un courant tunnel $I = 0,106\text{nA}$ pour une différence de potentiel $U = +2,23\text{V}$.

La figure b) représente sur une échelle logarithmique la conductivité normalisée $(dI/dV)/(I/V)$. Cette courbe est bien caractéristique d'une surface GaAs dopée n : la largeur de bande interdite est celle du GaAs (de *gap* 1,42eV à 300K) et le décalage de la bande interdite vers les tensions positives indique bien un dopage n du semiconducteur, où le niveau de Fermi est plus proche de la bande de conduction que de la bande de valence.

La normalisation de la courbe permet de s'affranchir des effets du courant et de visualiser les densités d'état mises en jeu [FEE94] : pour les tensions positives, la bande de valence est représentée ; inversement, pour les tensions négatives, c'est la bande de conduction qui apparaît. Notons que la surface imagée est propre et reconstruite : les états électroniques observés sont des états de surface, qui peuvent être sensiblement différents des états électroniques correspondant à du GaAs massif.

7.3.2 Croissance de la barrière tunnel

Etat de l'art

Le MgO (de paramètre de maille $a_{\text{MgO}}=4,21\text{\AA}$) présente un désaccord de maille avec le GaAs ($a_{\text{GaAs}}=5,65\text{\AA}$) qui est a priori trop important ($\frac{\Delta a}{a} \sim 25,5\%$) pour permettre l'épitaxie d'un matériau sur l'autre. Cependant, il existe une littérature abondante portant sur la croissance de MgO sur GaAs, le MgO donnant la possibilité de former une couche tampon chimiquement stable pour la croissance de dispositifs à base d'oxydes sur GaAs : en pratique, la croissance de MgO sur le GaAs se fait cube sur cube en positionnant quatre mailles de MgO pour trois mailles de GaAs [HUN92]. Le désaccord de maille à considérer n'est alors plus que de 0,6%.

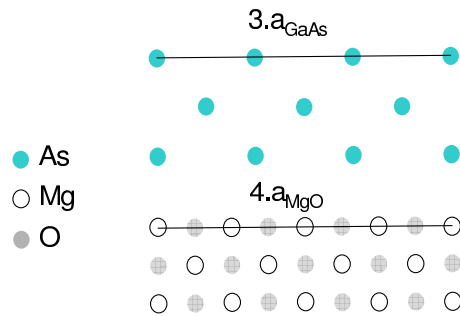


FIG. 7.13: Vue de plans GaAs(001) et MgO(001) : une super-cellule de 4 cellules de MgO est quasi-équivalente à 3 cellules de GaAs.

Parmi les articles publiés traitant de la croissance épitaxiale de MgO sur GaAs, nous pouvons citer les travaux de Hung *et al.* [HUN92], Tarsa *et al.* [TAR93] [TAR95] et Martinez-Boubeta *et al.* [MAR01].

Hung *et al.* ont utilisé des substrats GaAs(100) « désoxydés » par une attaque acide et introduits sous ultra-vide. Ils ont alors directement effectué la croissance de MgO, évaporé par un canon à électrons à un taux de dépôt compris entre 0,5 et 1,5 $\text{\AA}/\text{s}$. Suivant la température de dépôt, ils ont obtenu deux orientations cristallographiques du MgO : pour une croissance effectuée à 450°C, ils ont relevé un alignement des plans MgO(110) sur GaAs(100) alors qu'à 650°C, les plans MgO(100) sont alignés sur GaAs(100). Il faut toutefois préciser que Hung et son équipe ont effectué peu de caractérisations structurales sur leurs systèmes. Ainsi, il n'est pas possible d'évaluer la qualité cristalline de la couche MgO.

En utilisant une technique de croissance par ablation laser, Tarsa *et al.* ont réalisé une étude plus détaillée de la structure cristallographique d'une couche de MgO déposée sur des substrats de GaAs diversement préparés : lorsque la croissance est menée sur un substrat GaAs nettoyé par une attaque acide suivie d'une désorption *in-situ* par chauffage à 500°C ou 600°C, la qualité épitaxiale du film MgO déposé est mauvaise. Le MgO croît de façon polycristalline ou suivant plusieurs orientations. En revanche, en utilisant une surface GaAs initialement reconstruite et passivée par une couche d'antimoine, Tarsa *et al.* ont pu réaliser la croissance cube sur cube $\text{MgO}(001)[100]//\text{GaAs}(001)[100]$ d'un film MgO de très bonne qualité cristalline. Après désorption de l'antimoine, la croissance a pu être réalisée à 350°C sur des substrats GaAs reconstruits (1x3) ou (2x4).

En déposant eux aussi du MgO par ablation laser, Martinez-Boubeta *et al.* ont utilisé un substrat GaAs passivé par de l'arsenic amorphe qu'ils ont désorbé vers 450°C. Ils ont alors fait la croissance cube sur cube de la couche MgO à 450°C sur un substrat GaAs reconstruit (2x4).

Plus récemment, l'équipe de Lu [LU06] a publié une étude sur un système MgO/GaAs où la couche d'oxyde est déposée à partir d'une cellule d'évaporation sur un substrat GaAs reconstruit (2x4) : en plus du variant prédominant $\text{MgO}(001)[100]//\text{GaAs}(001)[100]$, la couche MgO épitaxiée comporte d'autres variants cristallographiques visibles sur leurs clichés RHEED.

Les paramètres structuraux de la couche MgO déposée dépendent donc de l'état de surface du GaAs et de la technique d'élaboration employée.

Influence de l'état de surface sur la croissance

D'après ces résultats expérimentaux, la croissance sur GaAs d'une barrière MgO de bonne qualité structurale nécessite l'obtention d'une surface de GaAs nette et parfaitement désoxydée. Ceci implique un transfert sous ultra-vide des échantillons initialement préparés du bâti de croissance des semiconducteurs vers le bâti dédié à la croissance de la barrière, ou l'emploi d'une couche de passivation pour un transfert des échantillons à l'air (technique que nous avons mis en oeuvre).

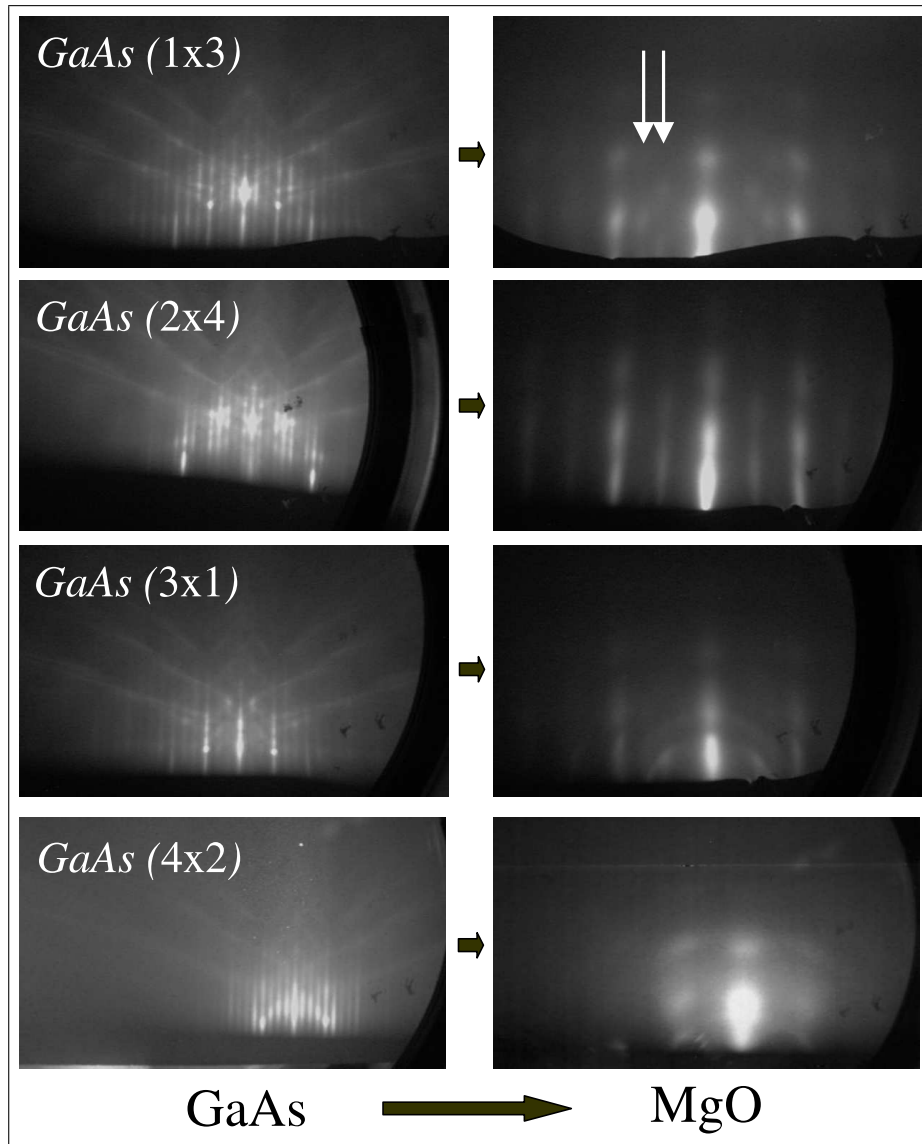


FIG. 7.14: Clichés RHEED (azimut $[110]$) d'une couche mince MgO (3nm) déposée sur des surfaces de GaAs présentant différentes reconstructions. Les flèches sur l'image MgO/GaAs(1x3) désignent deux tiges distinctes.

D'après les travaux de Tarsa *et al.*, la reconstruction de surface utilisée importe peu. Cette équipe a obtenu des résultats très satisfaisants sur des substrats GaAs reconstruits (1x3) ou (2x4). Nous avons observé un résultat différent et avons dû conclure à la nécessité de disposer d'une surface GaAs reconstruite (2x4) pour pouvoir reprendre la croissance épitaxiale d'une couche mince MgO « monocristalline ».

En effet, nos couches étant passivées par une couche d'arsenic amorphe, nous avons pu aisément appauvrir progressivement en arsenic la surface du substrat en le chauffant, et ainsi tester la croissance

d'une barrière tunnel MgO sur des surfaces de GaAs différemment reconstruites. La figure 7.14 présente les résultats de ces tests de croissance.

L'emploi d'une surface GaAs reconstruite (1x3), (3x1) ou (4x2) conduit à l'obtention d'une couche mince MgO bidimensionnelle, d'après les clichés RHEED, mais qui présente des variants cristallographiques en plus de l'orientation majoritaire $MgO(001)[100]//GaAs(001)[100]$. Ainsi, Le cliché RHEED d'une couche mince déposée sur une surface GaAs reconstruite (1x3) (reconstruction très riche en arsenic) laisse apparaître de façon claire un variant minoritaire $MgO(001)[110]//GaAs(001)[100]$ (deux jeux de tiges sont observés au final).

Processus de croissance

Le processus de croissance de la barrière tunnel MgO sur la surface GaAs reconstruite (2x4) a été optimisée en le scindant en deux étapes :

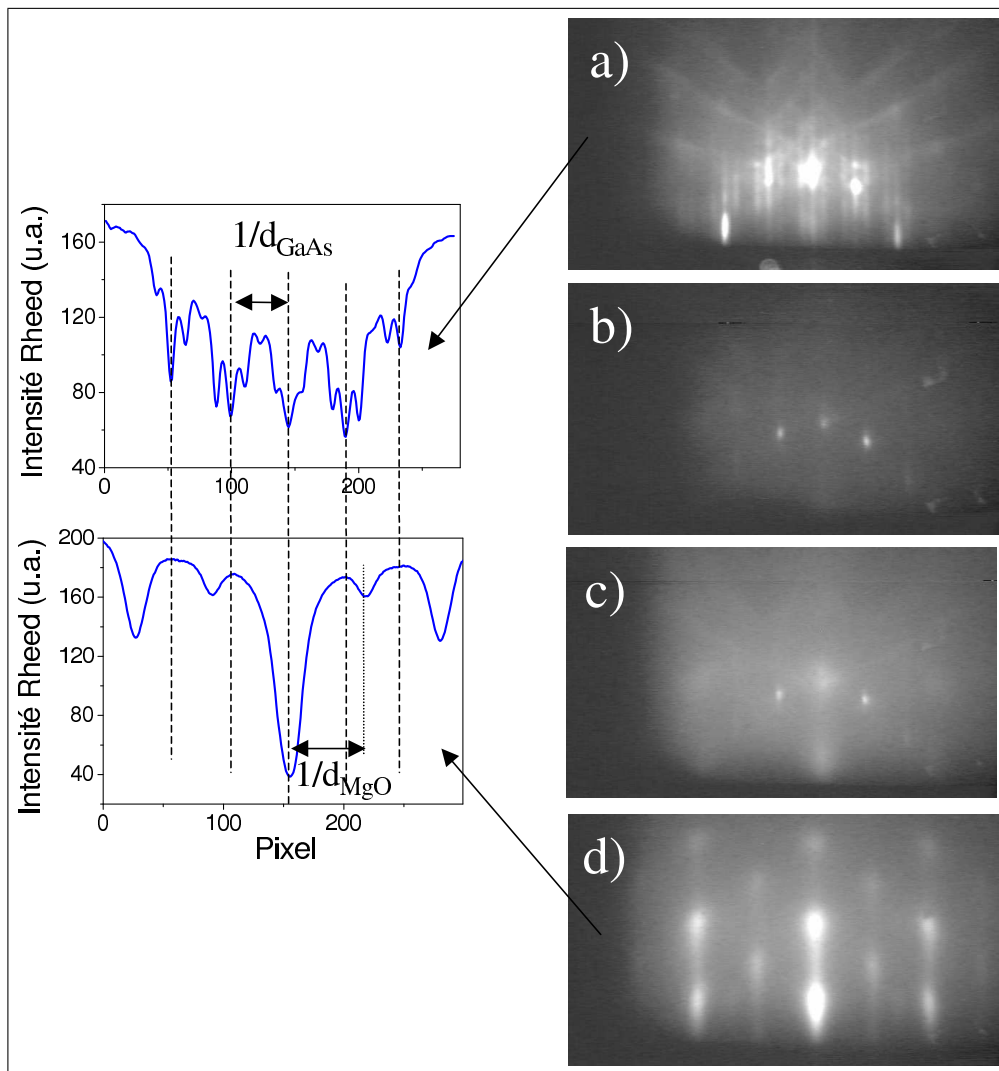


FIG. 7.15: Clichés RHEED (azimut $[110]$) obtenus au cours de la croissance de la barrière tunnel MgO sur le substrat

- Surface de GaAs reconstruite (2x4), au dessus de la structure spinLED.
- Couche MgO(6Å) déposée à température ambiante.
- Recuit de cette première couche.
- Couche MgO(3nm).

- la première étape consiste en un dépôt « rapide » de 6Å de MgO, soit trois monocouches environ, à température ambiante et à un taux de 1,5Å/s. Le cliché RHEED correspondant (cliché b) sur la figure 7.15 est très flou, en particulier comparé à ce qui est obtenu dans les mêmes conditions lors

de la croissance de la barrière MgO du système FePt/MgO/FePt (voir paragraphe 3.1), et témoigne d'une absence d'ordre cristallographique.

Un recuit d'une dizaine de minutes est effectué vers 600°C. Ce recuit assure un réarrangement structural des trois premières monocouches de MgO déposées. Sur le cliché RHEED c) de la figure 7.15, les tiges correspondant au MgO apparaissent devant les tiges du substrat. Notons que le cliché RHEED indique une relaxation complète de la couche d'oxyde sur ces trois monocouches⁶. L'intérêt du dépôt de cette tricouche de MgO est de permettre la poursuite du dépôt à forte température, tout en protégeant la surface de GaAs d'un appauvrissement en arsenic.

- le reste de la barrière tunnel, *ie* de 14Å à 24Å de MgO suivant l'échantillon, est déposé suite à ce recuit, à 600°C et 0,5Å/s. La température de l'échantillon est abaissée à l'issue du dépôt. Le cliché RHEED correspondant à une surface MgO(3nm)/GaAs est donné sur la figure 7.15. Une seule orientation cristallographique du MgO est observée, suivant la relation d'épitaxie $MgO(001)[100]//GaAs(001)[100]$. La barrière tunnel est essentiellement bidimensionnelle, même si les clichés RHEED comportent des tiges « pointées », laissant entrevoir une certaine rugosité de la couche.

Visualisation par STM de la surface MgO/GaAs

L'imagerie par STM fonctionnant par le passage d'un courant entre la pointe et la surface, cette technique nécessite normalement que l'objet imagé soit un matériau conducteur, ce qui n'est pas le cas du MgO. L'épaisseur de notre couche MgO étant faible ($e_{MgO}=2\text{nm}$ pour l'échantillon imagé par STM), le courant passe par effet tunnel dans le GaAs au travers de plusieurs barrières de potentiel mises en série : le vide (distance pointe-surface), la couche de MgO et la bande interdite du GaAs. Un courant tunnel significatif n'existe donc que si la tension appliquée entre la pointe et le substrat est suffisamment importante.

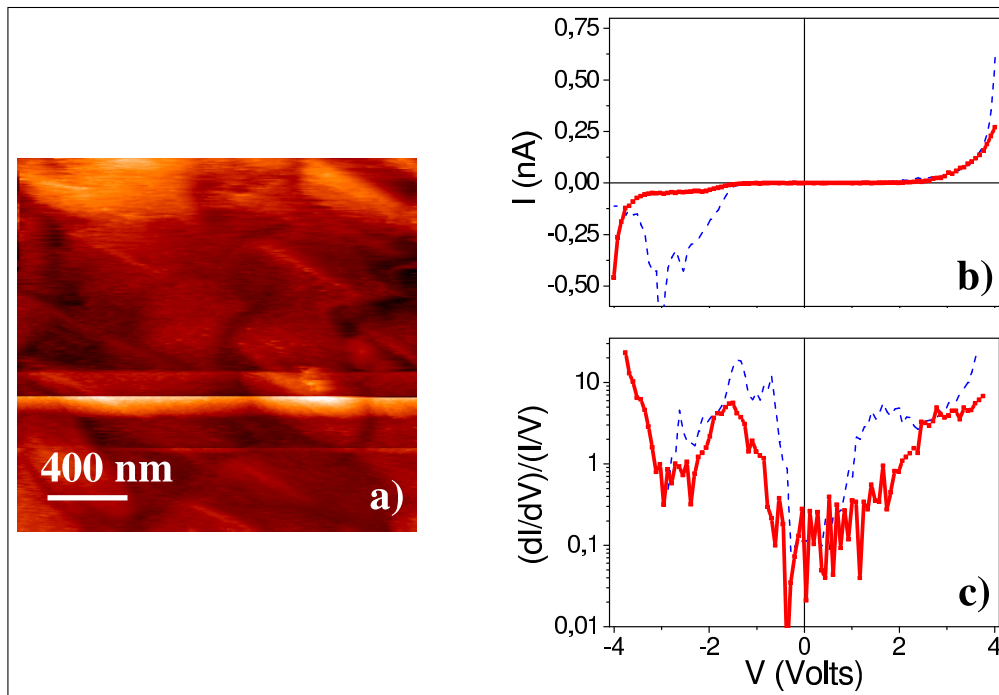


FIG. 7.16: a) Image STM (de taille $2\mu\text{m}\times 2\mu\text{m}$) d'une surface MgO(2nm)/GaAs(100) (Note : le bord inférieur des images ne correspond pas exactement à une direction cristallographique [100]). les conditions de travail adoptées sont : $I = 0,088\text{nA}$ et $U = -2,19\text{V}$.

b) Caractéristique $I(V)$ réalisée localement sur la barrière tunnel MgO épitaxiée sur GaAs.

c) Dérivée normalisée de la courbe b) représentée en échelle logarithmique.

Les courbes en pointillés reprennent les mesures réalisées sur une surface de GaAs reconstruite (2×4) (voir figure 7.12).

⁶le rapport des espacements entre les tiges correspond bien au rapport des paramètres de maille massifs des deux matériaux.

La figure 7.16a) présente une image STM réalisée à V et I fixés de la barrière tunnel MgO. L'oxyde déposé semble suivre la topographie en terrasses de la surface de GaAs. En particulier, nous retrouvons la même orientation des terrasses suivant les directions $[110]$ et $[1-10]$. La rugosité est faible, de l'ordre de une maille de MgO au niveau d'une terrasse.

Les figures b) et c) donnent le résultat d'une mesure spectroscopique locale. Là encore, le profil caractéristique des densités d'état électroniques du GaAs est retrouvé, ce qui indique que le dépôt de la barrière n'altère pas les propriétés électroniques de surface du semiconducteur.

7.3.3 Croissance de l'électrode ferromagnétique

Le processus de croissance de la couche ferromagnétique FePt sur la barrière tunnel est absolument identique à ce qui a été décrit dans le chapitre 3. Elle est réalisée en deux étapes successives, à 170°C par un dépôt couche par couche, puis à 500°C par un codépôt. Les clichés RHEED pris à cette étape (voir figure 7.17) montrent des tiges relativement fines. L'absence de tiges de surstructure entre les tiges principales, suivant l'azimut $[100]$ indique l'obtention d'une couche FePt ne comprenant que le seul variant d'axe c parallèle à (001) .

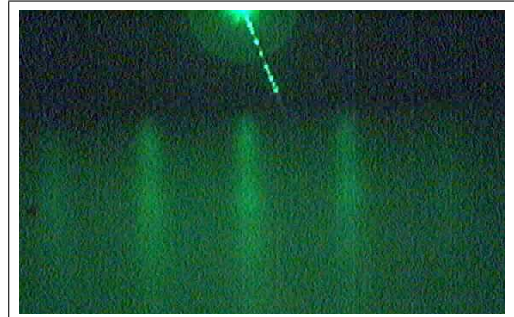


FIG. 7.17: Cliché RHEED d'une couche FePt(10nm) déposée sur MgO/GaAs (azimut $[100]$).

Une couche protectrice de platine d'épaisseur quelques nanomètres est déposée en fin de croissance, afin d'éviter une oxydation de l'injecteur au contact de l'air.

7.4 Caractérisations structurales de l'injecteur FePt/MgO par diffraction de rayons X aux grands angles (XRD)

7.4.1 Observation de la barrière tunnel MgO

On pourra se référer au chapitre 3 pour une comparaison avec les mesures réalisées sur les jonctions tunnel magnétiques FePt/MgO/FePt. Signalons qu'à la différence de ce qui a été observé sur les JTMs, le système étudié ne comporte de MgO qu'au niveau de la barrière tunnel, ce qui rend possible la détection de cette dernière (les JTMs FePt/MgO/FePt sont déposées sur substrat de MgO, aussi le signal associé à la barrière isolante MgO est-il « masqué » lors de mesures XRD). En pratique, une barrière tunnel est très fine, aussi elle ne peut être détectée par XRD que si sa structure cristalline est de très bonne qualité et que le diffractomètre est parfaitement aligné sur l'échantillon. Nous avons pu lui attribuer un pic de diffraction dans certains cas, pour des échantillons comportant une barrière isolante d'épaisseur « importante » $e_{\text{MgO}} \geq 2,5\text{nm}$. Sur la figure 7.18, nous la détectons sur l'échantillon B, vers $2\theta = 50,27^\circ$, position qui correspond au paramètre de maille du MgO massif. La forte largeur à mi-hauteur du pic de diffraction est liée à la très faible épaisseur de la couche isolante : l'application de la formule de Scherrer permet de nous donner l'épaisseur des cristallites diffractants L_{perp} - la longueur de cohérence perpendiculaire, qui correspond à l'épaisseur de la couche mince dans le cas d'une croissance épitaxiée - à la largeur à mi-hauteur FWHM du pic de diffraction (exprimée en radians) :

$$FWHM = \frac{k \cdot \lambda}{L_{\text{perp}} \cdot \cos(\theta)},$$

où λ est la longueur d'onde du faisceau de rayons X et k un facteur correctif de valeur prise à 0,9. L'application de cette formule au pic de diffraction MgO(002) de l'échantillon B nous donne une taille moyenne $L = 18\text{\AA}$, à comparer donc avec l'épaisseur nominale de la couche, ie 25\AA . La différence entre les deux valeurs peut s'expliquer par une rugosité de la barrière tunnel, et surtout par une imprécision de la formule de Scherrer (notamment due à l'imprécision du facteur correctif k). Du fait de la faiblesse du signal, c'est la seule observation que nous pouvons faire sur cette couche.

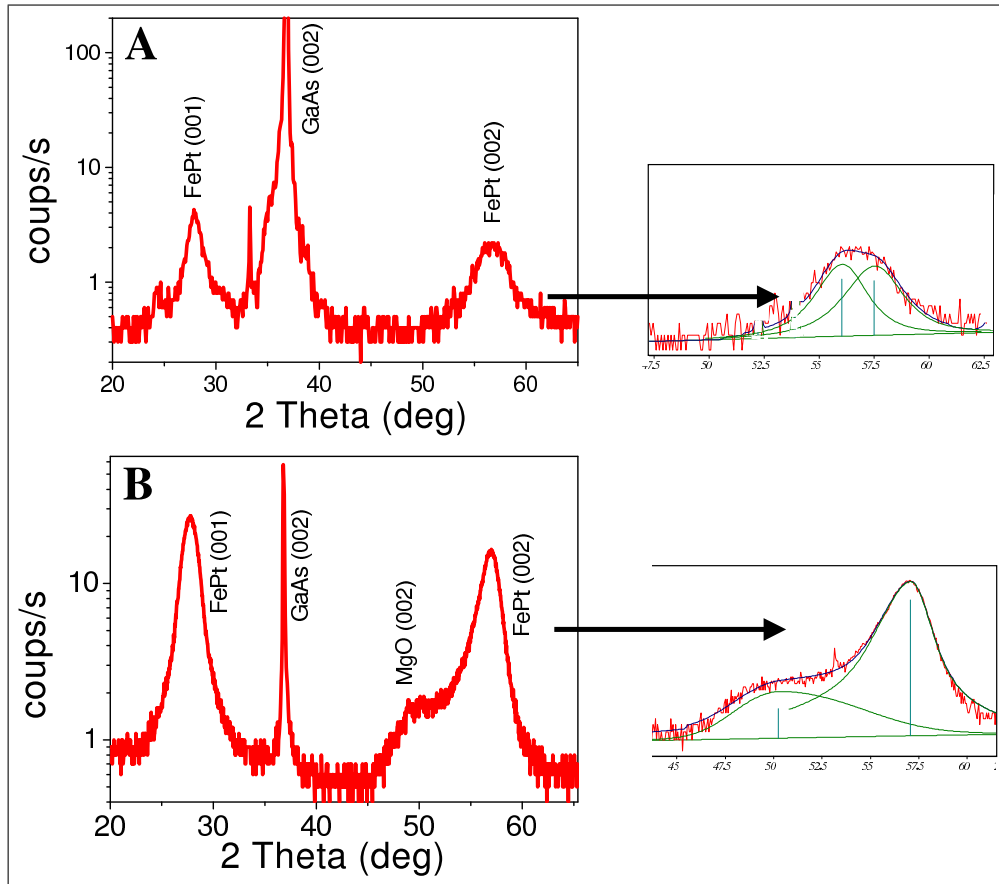


FIG. 7.18: *Diffractogrammes du système FePt(10nm)/MgO(2,5nm)/GaAs(100) (anode Co) pour deux échantillons A et B élaborés avec un dépôt de l'électrode FePt en une étape « à chaud » (A) ou en deux étapes (B), sur une surface de GaAs reconstruite (2x4). La faible intensité du pic GaAs (002) de l'échantillon B est due à un désalignement volontaire (0,1°) du diffractomètre par rapport au substrat.*

7.4.2 Etude de l'électrode ferromagnétique FePt

La quasi-totalité des caractérisations XRD présentées ici portent sur l'électrode ferromagnétique FePt. La figure 7.18 montre les scans $2\theta - \omega$ de deux échantillons, que nous appellerons A et B, élaborés respectivement en début de thèse, alors que la croissance de l'électrode supérieure n'était pas maîtrisée (codépôt des éléments Fe et Pt en une seule étape, à 500°C) et en milieu de thèse (dépôt de l'électrode FePt en deux étapes, voir paragraphe 3.1). La structure nominale des échantillons A et B est $\text{Pt}_{3\text{nm}}/\text{FePt}_{10\text{nm}}/\text{MgO}_{2,5\text{nm}}/\text{GaAs}(100)$. Un *fit* du pic de diffraction FePt(002) permet de mettre en évidence la présence (échantillon A) ou l'absence (échantillon B) de variants dans le plan (correspondant à l'axe c de la structure L1_0 renversé suivant [100] ou [010]).

Les clichés RHEED pris en cours de croissance sur l'échantillon A donnent des tiges qui sont « pointées », ce qui indique que la couche FePt déposée est tridimensionnelle. Ils comportent des tiges de surstructure suivant l'azimut [100], qui sont caractéristiques de la présence de variants dans le plan. Le pic de diffraction FePt(002) associé ne peut être ajusté que par deux contributions, pour $2\theta=56,03^\circ$ et $2\theta=57,51^\circ$. Ces valeurs d'angle correspondent à des paramètres de maille suivant la direction [001] de $c=3,82\text{\AA}$ et $c=3,71\text{\AA}$ respectivement ($\pm 0,1\text{\AA}$). Rappelons que les paramètres de maille de l'alliage tétragonal FePt massif valent $a=3,85\text{\AA}$ (suivant les directions [100] et [010]) et $c=3,71\text{\AA}$ (suivant la direction [001]). Aussi, l'épaule en $2\theta=56,03^\circ$ observé sur la figure 7.18 laisse-t-il supposer la présence de variants dans le plan. Leur présence est confirmée en sondant des raies asymétriques : le pic de diffraction FePt(013) est spécifique au variant où l'axe c est suivant [100] et le pic FePt(103) à celui où c est selon [010] (voir figure 7.19). L'importance relative des variants dans le plan peut être estimée à partir de l'aire intégrale associée aux deux pics FePt(002) du scan $2\theta-\omega$: l'échantillon A comporte 51% de mailles FePt ayant leur axe c perpendiculaire au plan des couches et 49% de variants ayant leur axe c selon [010] ou

[100].

L'échantillon B comporte un unique pic de diffraction FePt(002) pour $2\theta=57,06^\circ$, ce qui correspond à un paramètre de maille perpendiculaire au plan des couches $c=3,73\text{\AA}$, proche du paramètre de maille c du FePt massif ordonné dans la phase $L1_0$. L'absence d'épaule au niveau de la position correspondant à des paramètres de maille voisins de $3,85\text{\AA}$ devrait permettre de conclure à l'absence de variants dans le plan. Ici le pic de diffraction MgO(002) de la barrière tunnel masque la présence éventuelle d'un pic peu intense autour de $2\theta=55,4^\circ$. C'est l'absence de signal détecté lors d'un scan $2\theta - \omega$ autour de la position de la raie spécifique (103) qui permet de conclure à l'obtention d'un film FePt univariant.

Le tableau 7.2 rapporte les paramètres structuraux des différentes couches sondées de l'échantillon B : toutes celles-ci présentent un paramètre de maille hors plan correspondant à celui du matériau massif, ce qui indique que les différentes couches croissent de façon complètement relaxées.

| | (001) | | (002) | | $c(\text{\AA})$ |
|----------------------|---------------------|--------------------|---------------------|--------------------|-----------------|
| | $2\theta(^{\circ})$ | FWHM($^{\circ}$) | $2\theta(^{\circ})$ | FWHM($^{\circ}$) | |
| GaAs | | | 36,83 | 0,27 | 5,65 |
| MgO | | | 50,27 | 5,56 | 4,21 |
| FePt _{10nm} | 27,74 | 1,76 | 57,06 | 2,08 | 3,73 |

TAB. 7.2: Détermination des paramètres de maille des différentes couches de l'échantillon B sondées par XRD, avec une anode de cobalt. 2θ correspond à la position du pic de diffraction et FWHM est sa largeur à mi-hauteur. Les paramètres de maille sont donnés à $\pm 0,01\text{\AA}$.

En dehors de cette détermination des paramètres de maille, deux indications de la qualité structurale des couches minces FePt peuvent être tirées de ces mesures de diffraction X : le paramètre d'ordre à longue distance S et la mosaïcité des échantillons, estimée à partir de la largeur à mi-hauteur $\Delta\omega$ des pics de diffraction tirés de « scans ω » (voir paragraphe 3.2.5). La largeur à mi-hauteur $\Delta\omega$ est déterminée par la longueur de cohérence latérale des cristallites L_{lat} d'une part et la mosaïcité de la couche η d'autre part.

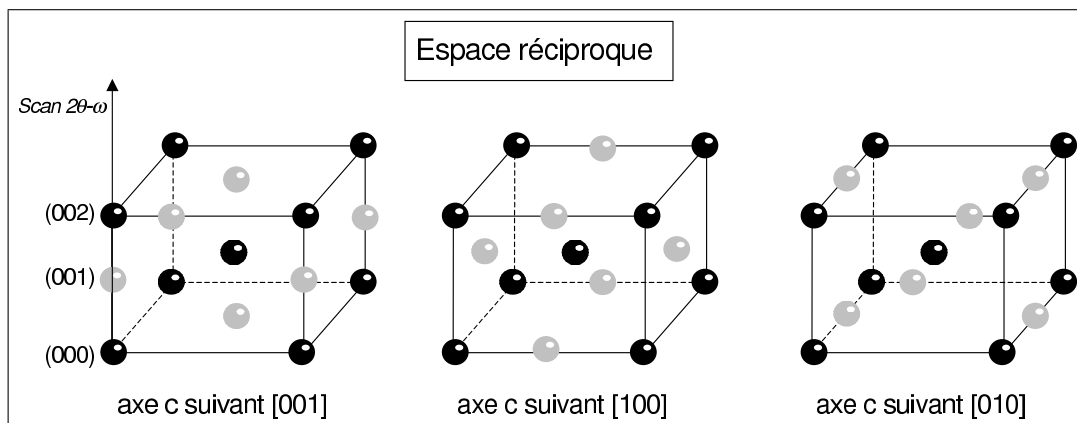


FIG. 7.19: Schémas des réseaux réciproques des différents variants de FePt ordonné dans la phase $L1_0$.

S est déduit du rapport des intensités intégrées des raies de surstructure et des raies fondamentales, corrigé de l'absorption et des facteurs de correction de polarisation et de Lorentz. Nous calculons un paramètre d'ordre $S=0,6 \pm 0,1$ pour l'électrode ferromagnétique FePt de l'échantillon B. Cette valeur est relativement élevée; notons que le paramètre d'ordre obtenu sur ce système FePt/MgO/GaAs est quasi-semblable à celui de l'électrode supérieure FePt(10nm) déposée sur la barrière tunnel MgO de nos JTM, ce qui n'est pas surprenant à première vue, les deux croissances FePt/MgO s'effectuant dans les mêmes conditions. S est plus délicat à quantifier pour l'échantillon A, du fait de la présence de variants dans le plan. Sur le diffractogramme correspondant, le pic FePt(002) peut être déconvolué en deux pics correspondant au seul variant d'axe c suivant [001] et aux deux autres variants. Le pic FePt(001) est très intense et n'est associé qu'au seul variant [001] (voir les schémas des réseaux réciproques des différents variants de FePt sur la figure 7.19), ce qui permet d'évaluer à $S=0,7 (\pm 0,1)$ l'ordre chimique à longue

distance des domaines FePt de variant perpendiculaire : il y a coexistence de domaines FePt de variant [001] très bien ordonnés et de domaines FePt de variants [010] et [100]. Dans la suite de ce chapitre, nous ne parlerons plus que des échantillons réalisés avec une croissance de l'électrode FePt en deux étapes, donnant un film FePt univariant.

Les scans ω des pics FePt(001) et FePt(002) de l'échantillon B sont donnés sur la figure 7.20. Un angle de mosaïcité $\eta = 5,4^\circ$ est calculé. Cette valeur est inhabituellement élevée pour une couche mince épitaxiée. Notons qu'elle est aussi bien supérieure à celle obtenue sur l'électrode supérieure FePt(10nm)/MgO des JTMs (nous avons calculé pour cette électrode une mosaïcité $\eta = 2,5^\circ$), pourtant élaborée dans les mêmes conditions : cette différence de mosaïcité peut donc être attribuée à une différence de qualité structurale de la barrière tunnel MgO, mieux épitaxiée sur les JTMs.

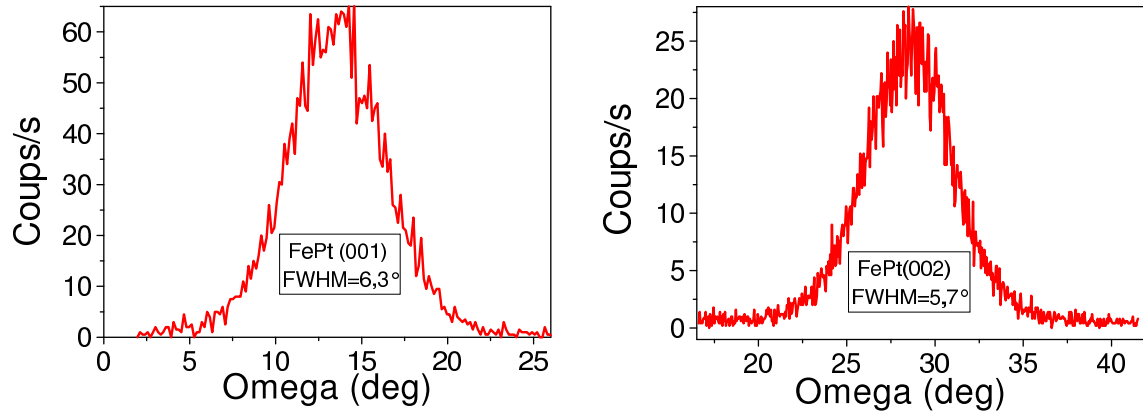


FIG. 7.20: « Scans w » réalisés sur les pics de diffraction FePt(001) et FePt(002) de l'échantillon B.

7.5 Caractérisations magnétiques de l'électrode FePt

Rappelons qu'au niveau du problème de l'injection de spins dans des semiconducteurs, l'approche retenue par le laboratoire est d'utiliser une électrode ferromagnétique à aimantation perpendiculaire rémanente, afin de pouvoir polariser les électrons en spin sans avoir à appliquer de champ magnétique. La figure 7.21 présente le cycle d'aimantation d'une structure hybride typique FePt/MgO/GaAs(Spin-LED) mesurée au VSM à 300K sous champ magnétique perpendiculaire. Notons tout de suite le résultat principal : l'électrode ferromagnétique est bien à aimantation perpendiculaire. L'aimantation à saturation mesurée ici ($M_S = 1045 \text{ kA/m}$) correspond à l'aimantation à saturation du FePt massif. La rémanence de l'échantillon est totale, ce qui constituera pour les mesures de transport un avantage non négligeable par rapport au système présenté par Gerhardt *et al.* [GER06] : un plot de FePt monodomaine d'un diamètre de l'ordre de quelques dizaines de micromètres ne rayonnera pas de champ de fuite, ce qui permet au puits quantique de la spin-LED de ne pas être affecté par ce dernier, quelle que soit la distance entre le puits et l'électrode.

| $\mu_0 H_d$ (en T) | $\mu_0 H_c$ (en T) | $\mu_0 H_{\text{sat}}$ (en T) |
|--------------------|--------------------|-------------------------------|
| 0,421 | 0,551 | 0,845 |

TAB. 7.3: Principaux champs de renversement associés à l'électrode FePt(10nm) estimés à partir de la courbe $M(H)$ de la figure 7.21.

Le renversement d'aimantation est abrupt, mais les champs de renversement mis en jeu sont supérieurs à ce qui est observé dans le cas de l'électrode supérieure FePt(10nm)/MgO d'une JTM. Ceci est en accord avec la plus forte mosaïcité des couches FePt déposées sur MgO/GaAs (voir le paragraphe précédent), ces dernières comportent un plus grand nombre de défauts.

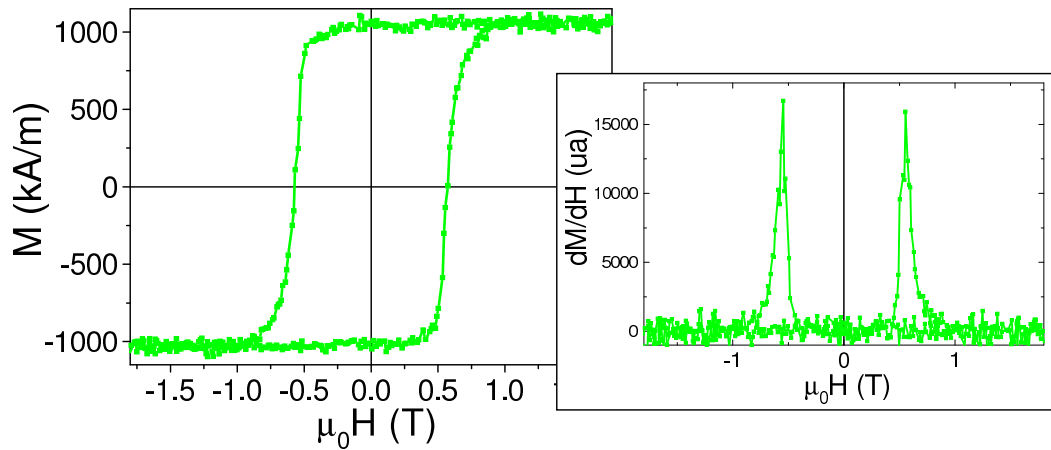


FIG. 7.21: Cycle d'aimantation d'un échantillon $FePt(10nm)/MgO(2,5nm)/GaAs(Spin-LED)$ réalisé au VSM à 300K (H perpendiculaire au plan des couches) et la courbe dérivée associée.

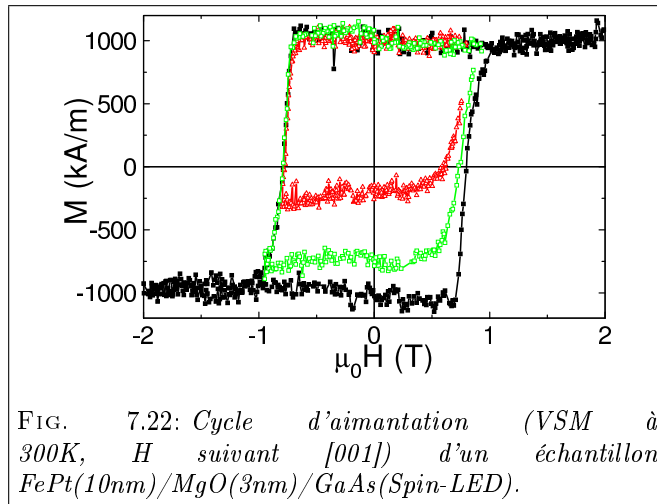


FIG. 7.22: Cycle d'aimantation (VSM à 300K, H suivant $[001]$) d'un échantillon $FePt(10nm)/MgO(3nm)/GaAs(Spin-LED)$.

Sur la figure ci-contre, nous représentons quelques cycles mineurs réalisés sur une structure hybride $FePt(10nm)/MgO(3nm)/GaAs(Spin-LED)$. La rémanence de ces cycles mineurs n'est pas parfaite, ce qui traduit une certaine « instabilité » des domaines magnétiques pour un champ appliqué relativement faible, et indique une anisotropie de ces échantillons plus faible que celle des électrodes des JTM $FePt/MgO/FePt$. L'anisotropie reste cependant très forte, comme en témoigne ici la rémanence parfaite du cycle d'aimantation majeur.

A titre indicatif, une image MFM de cet échantillon pris dans un état brut de dépôt est donnée sur la figure ci-contre. Les domaines magnétiques observés sont entrelacés et de très faible période, de l'ordre de 100nm.

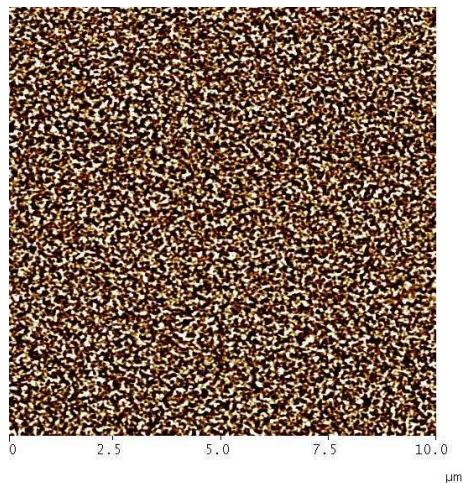


FIG. 7.23: Image MFM ($10\mu m * 10\mu m$) d'une structure hybride $FePt(10nm)/MgO(3nm)/GaAs(Spin-LED)$.

7.6 Etude optique de la spin-LED après dépôt de l'injecteur

Les spin-LEDs ont été testées optiquement par spectroscopie de photoluminescence (PL) à basse température avant (figure 7.24 a)) et après dépôt de l'injecteur (figure 7.24 b)), sur des échantillons « pleine plaque ». Le rayonnement émis par la structure est capté à l'aide d'une caméra CCD.

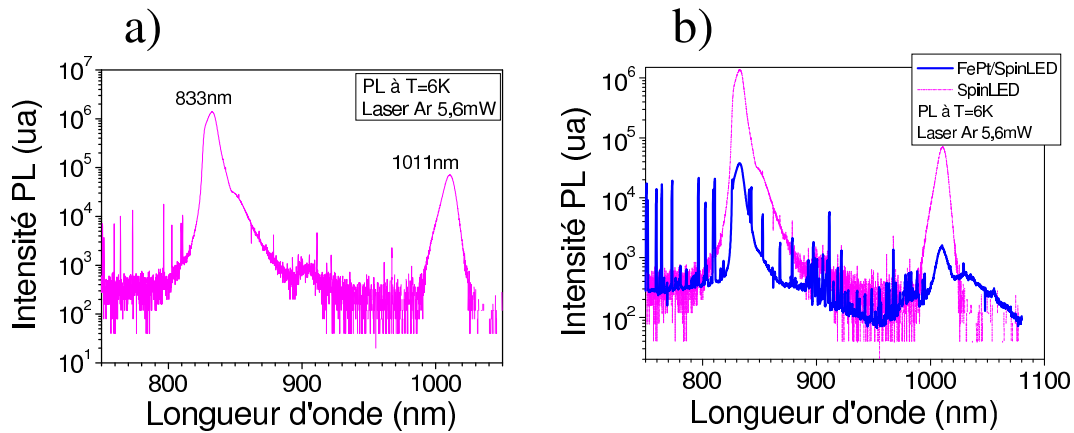


FIG. 7.24: Spectres de photoluminescence :
 a) de la structure spin-LED seule
 b) de la structure spin-LED vue au travers de l'injecteur.

Les pics de PL mesurés à 833nm et 1011nm correspondent respectivement au substrat de GaAs et au puits quantique InGaAs. Le pic associé au puits est relativement large, de largeur à mi-hauteur 7,4nm à 6K, supérieure à ce qui a été publié sur d'autres spin-LEDs (par exemple Jiang *et al.* rapportent une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 1nm sur une spin-LED de type AlGaAs/GaAs/AlGaAs [JIA05]). Notons la diminution importante du signal de PL détecté après dépôt de l'injecteur métallique : l'intensité du signal collecté est divisée par 45. Ce point sera défavorable pour une détection « face avant », *ie* au travers de l'électrode métallique, du signal d'électroluminescence : en effet, il n'est pas possible de faire passer par effet tunnel un courant trop important sans claquer une barrière tunnel, aussi devons nous être à même de détecter par électroluminescence des signaux faibles.

7.7 Mesures de transport sur le système FePt/MgO/ GaAs(Spin-LED)

7.7.1 Structuration des échantillons

La figure suivante résume les étapes de structuration d'un échantillon FePt/MgO/GaAs(Spin-LED). Toutes ces étapes sont similaires à ce qui a déjà été décrit dans le chapitre 5, aussi nous ne les reprenons pas.

Signalons seulement que la dernière étape (schéma 7.25 d)) demande le dépôt d'un contact électrique au niveau du substrat GaAs-p. Expérimentalement, nous avons constaté qu'un dépôt direct d'or sur le GaAs-p donnait lieu à une jonction Schottky (voir figure 7.26). Un contact ohmique entre le métal et le semiconducteur permet l'obtention d'un signal électrique plus propre. Aussi, le dépôt métallique sur le GaAs consiste en une couche de 5nm de titane suivie d'une couche de 100nm d'or. L'échantillon est alors recuit quinze minutes à 400°C afin de permettre une interdiffusion des deux métaux. Le contact avec le semiconducteur devient alors ohmique avec une résistance $R \sim 6\Omega$.

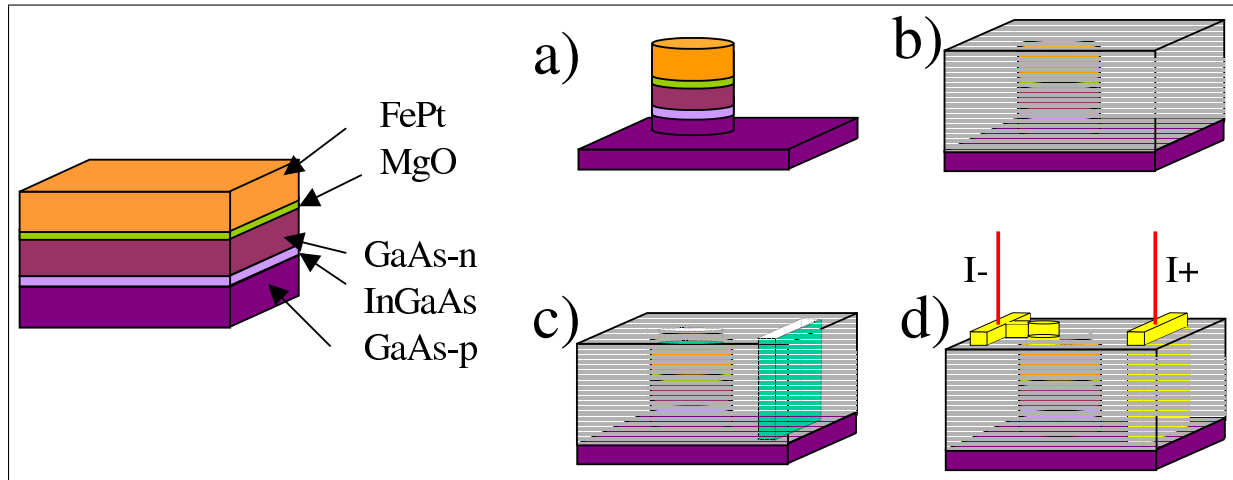


FIG. 7.25: Structuration des échantillons par les opérations suivantes :
 a) Gravure de plots de FePt/MgO/GaAs (Spin-LED) sur le substrat GaAs-p
 b) Dépôt d'une couche isolante SiO₂
 c) Ouverture de l'isolant au niveau du plot et au niveau du substrat GaAs-p
 d) Dépôt de contacts métalliques d'or au niveau d'une partie du plot et au niveau du substrat, puis microsoudure de fils au niveau de ces contacts.

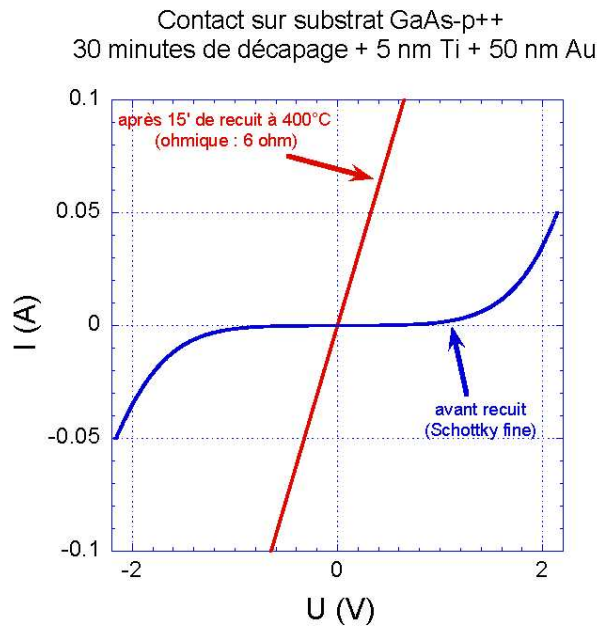


FIG. 7.26: Caractéristique courant-tension de la jonction GaAs-p/métal mesurée par effet Hall, avant et après recuit à 400°C.

7.7.2 Mesures courant-tension

La figure 7.27 présente la caractéristique courant-tension d'un des plots FePt(10nm)/MgO(3nm)/GaAs(Spin-LED). Elle correspond notamment à la mise en série d'une barrière tunnel et d'une jonction PIN, aussi son allure non-linéaire a-t-elle deux origines : il est difficile de tirer quelque résultat - comme la hauteur de la barrière ou son épaisseur - à partir de cette seule courbe. En revanche, la dissymétrie en tension est liée au sens passant/non-passant de la jonction PIN. A titre indicatif, la figure 7.27 donne la caractéristique d'un plot pour deux températures différentes.

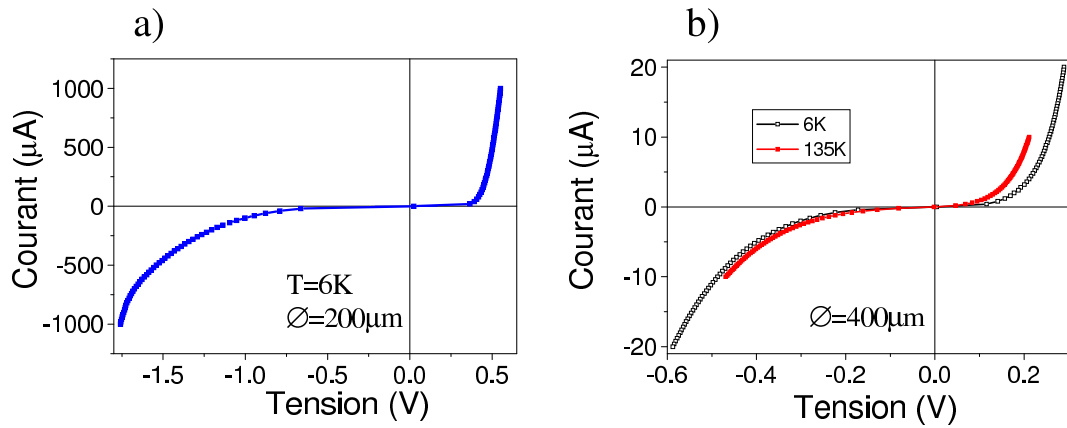


FIG. 7.27: Caractéristique courant-tension de la jonction GaAs-p/métal mesurée par effet Hall, avant et après recuit à 400°C.

A l'heure où j'écris ce manuscrit, aucune mesure d'électroluminescence n'a encore été réalisée sur ces échantillons.

7.8 Conclusion

Une injection efficace d'électrons polarisés en spin d'un métal ferromagnétique vers un semiconducteur nécessite avant tout la maîtrise de l'élaboration de la structure hybride. Cette première étape est loin d'être évidente, du fait de la difficulté à conserver des surfaces propres au cours du processus et de reprendre la croissance de structures très différentes. En effet, nous savons depuis quelques années que la qualité des interfaces pilote l'obtention d'un courant polarisé en spin. Nous nous sommes ainsi concentrés sur la partie *élaboration de la structure*, en mettant de côté l'injection de spin à proprement parler. Une première étape importante a pu être franchie lorsque nous avons réussi à déposer une barrière tunnel MgO épitaxiée et bidimensionnelle sur un substrat de GaAs. Deux bâtis d'épitaxie différents (le premier dédié aux semiconducteurs III-V, le deuxième aux métaux) ont été nécessaires à cette mise en oeuvre. Nous avons alors mis au point une structure hybride pour l'injection de spins, comportant une électrode ferromagnétique aimantée perpendiculairement et agissant comme un aimant permanent au dessus du semiconducteur.

Conclusion

Les quelques lignes qui suivent résument les résultats principaux obtenus dans le courant de ce travail de thèse, avant d'ouvrir quelques perspectives.

Nous avons ainsi pu montrer la possibilité de singulariser les propriétés structurales et magnétiques de films magnétiques a priori similaires - FePt dans les deux cas. En fonction du matériau sur lequel ces films minces sont déposés et en fonction de leur épaisseur, nous avons pu mettre en évidence des dynamiques de renversement d'aimantation très différentes. Ce résultat ne paraissait pas acquis au départ, et nous a permis d'aborder de manière détaillée les phénomènes de couplage magnétique entre électrodes à aimantation perpendiculaire. En effet, le bon fonctionnement d'une jonction tunnel magnétique (JTM) repose avant tout sur le découplage des électrodes ferromagnétiques, assurant l'accès aux configurations d'aimantation parallèle et antiparallèle. Sur ce point, nous avons montré que - dans le cas des couches continues - la faisabilité d'une JTM FePt/MgO/FePt à aimantation perpendiculaire dépend essentiellement du dimensionnement en épaisseur des électrodes. En effet, le champ de fuite rayonné par la couche ferromagnétique douce (de plus faible champ coercitif) au moment de son renversement d'aimantation est susceptible, s'il est trop intense, d'entraîner une nucléation de domaines magnétiques dans la seconde électrode, aboutissant à un renversement simultané des aimantations des deux films minces. Remarquons ici que ce point est applicable à n'importe quel système multicouches à aimantation perpendiculaire. Dans notre cas, nous avons mené cette étude en réunissant un ensemble de conditions « défavorables » à un découplage magnétique des électrodes : espaceur fin, matériaux magnétiques à forte aimantation à saturation.

Pour une utilisation pratique dans des dispositifs, il est nécessaire de pouvoir manipuler l'aimantation d'une couche sans affecter magnétiquement la deuxième. L'expérience que nous avons menée sur la stabilité en cyclage de la configuration magnétique est à notre connaissance la première réalisée sur des structures à aimantation perpendiculaire. Nous restons conscients des limites des modèles adoptés ; cette étude permet cependant de mieux comprendre les phénomènes conduisant à un couplage ou un découplage des deux électrodes sur des échantillons « pleine plaque ».

Malgré les efforts déployés, les mesures de magnéto-transport réalisées n'ont pas été vraiment concluantes sur ces systèmes, en raison de nombreux problèmes technologiques. Toutefois, des indices d'un effet magnéto-résistif à température ambiante peuvent transparaître, bien que très inférieurs aux résultats records publiés sur des structures à aimantation planaire. En particulier, les propriétés de transport de la barrière sont bonnes et se comparent favorablement aux résultats obtenus par d'autres équipes sur des jonctions à aimantation planaire. En dehors de l'obtention d'une valeur de magnéto-résistance tunnel, la réalisation de mesures concluantes de magnéto-résistance devrait compléter l'étude magnétique menée sur la structure. Notons que, comme nous avons pu accéder à un grand nombre de configurations magnétiques plus ou moins couplées lors de cycles d'aimantation mineurs, il devrait être possible - en exploitant la rémanence totale des deux électrodes - d'accéder à l'ensemble des valeurs de résistance intermédiaires de la jonction tunnel magnétique.

Pour ce qui est de l'étude des structures hybrides *métal ferromagnétique à aimantation perpendiculaire/semiconducteur III-V*, nous avons dû nous limiter à la simple élaboration du système et à sa caractérisation magnétique. Tout comme pour les jonctions tunnel magnétiques, l'efficacité d'un système hybride métal ferromagnétique /semiconducteur peut être accrue en augmentant la qualité de la barrière tunnel et des interfaces : c'est ce travail d'optimisation structural et magnétique que nous avons essayé de mener à bien. Il constitue en fait un premier pas nécessaire vers sur la réalisation de l'injection d'un courant polarisé perpendiculairement en spin en l'absence de tout champ appliqué.

Au final, l'ensemble des résultats acquis semble correspondre à de solides avancées en ce qui concerne la maîtrise de l'élaboration d'hétérostructures oxyde / métal ferromagnétique à aimantation perpendiculaire et la connaissance de la croissance et de la structure de tels systèmes (*FePt/MgO/FePt* et *FePt/MgO/GaAs*). L'étude des premiers stades de la croissance de MgO, abordée en rayonnement synchrotron à l'ESRF, mériterait cependant un effort de dépouillement affiné pour en tirer toutes les informations pertinentes. Connaître de manière détaillée la configuration atomique aux interfaces MgO/GaAs et FePt/MgO (et MgO/FePt) est en effet indispensable pour confronter des résultats expérimentaux de magnéto-transport ou d'injection de spin avec des calculs théoriques portant sur la conduction de ces barrières tunnel.

L'étude des propriétés magnétiques des jonctions tunnel magnétiques élaborées a pu être menée de

manière relativement détaillée, tant en régime quasi-statique que dynamique. Elle ouvre cependant de vraies perspectives, en particulier pour le régime dynamique, en posant quelques questions :

- quelles sont les configurations magnétiques mises en jeu lors de la désaimantation de l'électrode dure obtenue par cyclage répété de l'aimantation de l'électrode douce? Des expériences d'imagerie (MFM), réalisées à diverses étapes du processus de désaimantation devraient permettre de répondre à cette question en nous éclairant ainsi sur les mécanismes de couplage à l'oeuvre,
- quels sont les modes d'interaction entre les deux couches ferromagnétiques lors de renversements ultrarapides de l'aimantation? Des expériences ont débutées de manière parcellaire sur ce sujet, en collaboration avec une équipe de laboratoire de Physique des Solides d'Orsay (Jean-Pierre Jamet, Jacques Ferré), elles mériteraient d'être poursuivies.

Dans la perspective d'application de ces JTM à aimantation perpendiculaire, il est souhaitable d'aborder les mécanismes de renversement d'aimantation et de couplage dans des structures de dimensions réduites, allant de plots ou de pistes submicroniques jusqu'aux plus petites dimensions réalisables par lithographie électronique.

Enfin, les études de transport n'ont pu être abordées que de manière très fragmentaire, faute de temps et du fait de difficultés technologiques survenues au cours de ce travail. En ce qui concerne les jonctions tunnel FePt/MgO/FePt, ces études devraient être élargies, tant vers la mesure fine (en température) de la magnétorésistance tunnel que vers l'optimisation de la magnétorésistance obtenue. Cette optimisation pourrait en particulier reposer sur le contrôle des interfaces (richesse en fer...). Il serait également intéressant d'aborder le renversement d'aimantation par courant polarisé en spin dans ces hétérostructures (éventuellement assisté par un champ magnétique externe).

En ce qui concerne l'injection de spin dans les semiconducteurs III/V, la polarisation en spin du courant injecté peut être en principe facilement mesurée par étude de la polarisation de la lumière émise par la SpinLED, mesure qui constitue simplement une étape vers la réalisation de dispositifs « tout électrique » incluant l'étape de collection du courant polarisé en spin par une seconde électrode ferromagnétique. Ici aussi, l'obtention d'électrodes pleinement rémanentes FePt (/MgO/GaAs) ouvre un vaste champ expérimental pour des mesures d'injection, de transport électronique dans les semiconducteurs et de collection en l'absence de tout champ externe appliqué.

Bibliographie

- [ADE05] C.Adelmann, X.Lou, J.Strand, C.J.Palmstrom, P.A.Crowell, « Spin injection and relaxation in ferromagnet-semiconductor heterostructures », *Physical Review B* volume 71, p121301-1-4 (2005)
- [AGI90] B.Agius, « Surfaces, interfaces et films minces, observation et analyse », Dunod (1990)
- [ASH76] Ashcroft, Mermin, « *Solid State Physics* », International Edition (1976)
- [ATT03] Jean-Philippe Attané, « Interactions entre parois magnétiques et défauts structuraux, et mise en ordre chimique par irradiation, observées dans des couches minces d'alliages FePt(Pd) », thèse de doctorat de l'université Joseph Fourier (2003)
- [ATT04] J.P.Attane, Y.Samson, A.Marty, J.C.Toussaint, G.Dubois, A.Mougin, J.P.Jamet, « Magnetic Domain Wall Propagation unto the Percolation Threshold across a Pseudorectangular Disordered Lattice », *Physical Review Letters*, volume 93, p257203-1-4 (2004)
- [BAI88] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, « Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices », *Physical Review Letters*, volume 61, issue 21, p2472-2475 (1988)
- [BAL05] Vincent Baltz, « Effets de taille finie sur les couplages magnétostatiques et l'anisotropie d'échange dans le domaine de l'enregistrement magnétique », thèse de doctorat de l'université Joseph Fourier (2005)
- [BEL05] K.D.Belashchenko, J.Velev, E.Y.Tsymbal, « Effect of interface states on spin-dependent tunneling in Fe/MgO/Fe tunnel junctions », *Physical Review B*, volume 72, p140404-1-4 (2005)
- [BER69] A.E.Berkowitz, E.Kneller, « *Magnetism and Metallurgy*, volume 1 » (1969)
- [BIN89] G. Binasch, P. Grunberg, F. Saurenbach, W. Zinn, « Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange », *Physical Review B*, volume 39, issue 7, p4828-4830 (1989)
- [BOC95] G.Bochi, C.A.Ballentine, H.E.Inglefield, C.V.Thompson, R.C.O'Handley, H.J.Hug, B.Stiefel, A.Moser, H.J.Guntherodt, « Perpendicular magnetic anisotropy, domains, and misfit strain in epitaxial Ni/Cu_{1-x}Ni_x/Cu/Si (001) thin films », *Physical Review B*, volume 52, issue 10, p7311-7321 (1995)
- [BOW01] M.Bowen, V.Cros, F.Petroff, A.Fert, C.Martinez Boubeta, J.L.Costa-Krämer, J.V.Angueta, A.Cebollada, F.Briones, J.M. de Teresa, L.Morellon, M.R.Ibarra, F. Güell, F.Peiro, A.Cornet, « Large magnetoresistance in Fe/MgO/FeCo(001) epitaxial tunnel junctions on GaAs(001) », *Applied Physics Letters*, volume 79, number 11, p1655-1657 (2001)
- [BRI70] W.F.Brinkman, R.C.Dynes, J.M.Rowell, « Tunnel conductance of asymmetrical barriers », *Journal of Applied Physics*, volume 41, issue 5, p1915-1921 (1970)
- [BRO02] F.X.Bronold, I.Martin, A.Saxena, D.L.Smith, « Magnetic-field dependence of electron spin relaxation in n-type semiconductors », *Physical Review B*, volume 66, issue 23, p233206-1-4 (2002)
- [BUT01] W.H. Butler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess, « Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches », *Physical Review B*, volume 63, issue 5, p054416-1-12 (2001)
- [CHI64] S.Chikazumi, « *Physics of magnetism* », John Wiley and sons (1964)
- [CRE02] C.Creemers, P.Deurinck, S.Helfensteyn, J.Luyten, « Segregation and ordering at alloys surfaces : modelling and experiment confronted », *Applied Surface Science*, volume 219, p11-27 (2003)
- [CRO05] S.A.Crooker, M.Furis, X.Lou, C.Adelmann, D.L.Smith, C.J.Palmstrom, P.A.Crowell, « Imaging Spin Transport in Lateral Ferromagnet/Semiconductor Structures », *Science*, volume 309, p2191-2195 (2005)
- [DAA91] G.H.O.Daalderop, P.J.Kelly, M.F.H.Schuurmans, « Magnetocrystalline anisotropy and orbital moments in transition-metals compounds », *Physical Review B*, volume 44, number 21, p12054-12057 (1991)

- [DAT90] S.Datta, B.Das, « Electronic analog of the electrico-optic modulator », Applied Physics Letters, volume 56, issue 7, p665-667 (1990)
- [DAW90] L.Däweritz, R.Hey, « Reconstruction and defect structure of vicinal GaAs(001) and $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}(001)$ surfaces during MBE growth », Surface Science, volume 236, p15-22 (1990)
- [DET99] J.M.De Teresa, A.Barthélémy, A.Fert, J.P.Contour, F.Montaigne, P.Seneor, « Role of Metal-Oxide interface in determining the spin polarization of Magnetic Tunnel Junctions », Science, Volume 286, p507-509 (1999)
- [DIE91] B.Dieny, V.S.Speriosu, S.Metin, S.S.P.Parkin, B.A.Gurney, D.R.Wilhoit, D.Mauri « Giant magnetoresistance in soft ferromagnetic multilayers », Physical Review B, volume 43, number 1, p1297-1300 (1991)
- [DUK69] C.B.Duke, « Tunneling in solids », Academic Press (1969)
- [DZH02] R.I.Dzhioev, K.V.Kavokin, V.L.Korenev, M.V.Lazarev, B.Ya.Meltser, M.N.Stepanova, B.P.Zakharchenya, D.Gammon, D.S.Katzer, « Low-temperature spin relaxation in n-type GaAs », Physical Review B, volume 66, issue 24, p245204-1-7 (2002)
- [ELL54] R.J.Elliot, « Theory of the effect of Spin-Orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors », Physical Review, volume 96, number 2, p266-280, (1954)
- [FAR96] R.F.C. Farrow, D. Weller, R.F. Marks, M.F. Toney, A. Cebollada, G.R. Harp, « Control of the axis of chemical ordering and magnetic anisotropy in epitaxial FePt films », Journal of Applied Physics, volume 79, issue 8, p5967-5969 (1996)
- [FAU03] Jérôme Faure-Vincent, C.Tiusan, E.Jouguelet, F.Canet, M.Sajieddine, C.Bellouard, E.Popova, M.Hehn, F.Montaigne, A.Schuhl, « High tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions », Applied Physics Letters, volume 82, number 25, p4507-4509 (2003)
- [FAU04] J.Faure-Vincent, « Transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe : Interactions magnétiques et Symétries électroniques », thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (2004)
- [FEE94] R.M.Feenstra, « Tunneling spectroscopy of the (110) surface of direct-gap III-V semiconductors », Physical Review B, volume 50, issue 7, p4561-4570 (1994)
- [FER01] A.Fert, H.Jaffrès, « Conditions for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor », Physical Review B, volume 64, p184420-1-9 (2001)
- [FIE99] R.Fiederling, M.Keim, G.Reuscher, W.Ossau, G.Schmidt, A.Waag, L.W.Molenkamp, « Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode », Nature volume 402, p787-790 (1999)
- [GAR99] S.Gardelis, C.G.Smith, C.H.W.Barnes, E.H.Linfield, D.A.Ritchie, « Spin-valve effects in a semiconductor field-effect transistor : A spintronic device », Physical Review B, Volume 60, number 11, p7764-7767 (1999)
- [GEH97] Véronique Gehanno, « Anisotropie magnétique perpendiculaire des couches minces épitaxiées d'alliages ordonnés FePd », Thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Grenoble (1997)
- [GEH99] V.Gehanno, R.Hoffmann, Y.Samson, A.Marty, S.Auffret, « In plane to out of plane magnetic reorientation transition in partially ordered FePd thin films », European Physical Journal B, number 10, p457-464 (1999)
- [GER06] N.C.Gerhardt, S.Hövel, C.Brenner, M.R.Hofmann, F.Y.Lo, D.Reuter, A.D.Wieck, E.Schuster, W.Keune, S.Halm, G.Bacher, K.Westerholt, « Spin injection light-emitting diode with vertically magnetized ferromagnetic metal contacts », Journal of Applied Physics, number 99, p073907-1-6 (2006)
- [GID98] S.Gider, B.U.Runge, A.C.Marley, S.S.P.Parkin, « The magnetic stability of spin dependent tunneling devices », Science, volume 281, p 797-799 (1998)
- [GIT72] J.I.Gittleman, Y.Goldstain, S.Bozowski, « Magnetic properties of granular nickel films », Physical Review B, volume 5, number 9, p3609-3621 (1972)
- [GRO83] R.A.De Groot, F.M.Mueller, P.G.van Engen, K.H.J.Buschow, « New class of materials : half-metallic ferromagnets », Physical Review Letters, volume 50, issue 25, p2024-2027 (1983)
- [GUS01] F.Gustavsson, J-M.George, V.H.Etgens, M.Eddrief, « Structural and transport properties of epitaxial Fe/ZnSe/FeCo magnetic tunnel junctions », Physical Review B, volume 64, issue 18, p184422-1-6 (2001)

- [GUZ71] P.N.Guzdar, A.S.Sharma, S.K. Guharay, « Charging of substrates irradiated by particle beams », *Applied Physics Letters*, volume 71, number 22, p3302-3304 (1997)
- [HAL01a] David Halley, « Croissance, mise en ordre chimique et relaxation des contraintes épitaxiales dans des alliages FePd et FePt », Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier de Grenoble, (2002)
- [HAL01] D. Halley, Y. Samson, A.Marty, C.Beigné, B.Gilles, « Surface morphology and chemical ordering in FePd/Pd(001) thin layers », *Surface science*, volume 481, p25-32 (2001)
- [HAL02] D.Halley, Y.Samson, A.Marty, P.Bayle-Guillemaud, C.Beigné, B.Gilles, J.E.Mazille, « Anomaly of strain relaxation in thin ordered FePd layers », *Physical Review B*, volume 65, issue 20, p205408-1-8 (2002)
- [HAL04] D. Halley, A. Marty, P. Bayle-Guillemaud, B. Gilles, J. P. Attane, Y. Samson, « Chemical order and selection of the mechanism for strain relaxation in epitaxial FePd(Pt) thin layers », *Physical Review B*, volume 70, p174438-1-5 (2004)
- [HAM99] P.R.Hammar, B.R.Bennett, M.J.Yang, M.Johnson, « Observation of Spin Injection at a Ferromagnet-Semiconductor Interface », *Physical Review Letters*, volume 83, number 1, p203-206 (1999)
- [HAN03] A.T.Hanbicki, O.M.J.van't Erve, R.Magno, G.Kioseoglou, C.H.Li, B.T.Jonker, G.Itskos, R.Mallory, M.Yasar, A.Petrou, « Analysis of the transport process providing spin injection through an Fe/AlGaAs Schottky barrier », *Applied Physics Letters*, volume 82, number 23, p4092-4094 (2003)
- [HER73] J.A. Hertz, K.Aoi, « Spin-dependant tunneling from transition metal ferromagnets », *Physical Review B*, volume 8, number 7, p3252-3256 (1973)
- [HON98] M.H.Hong, K.Hono, « Microstructure of FePt/Pt magnetic thin films with high perpendicular coercivity », *Journal of Applied Physics*, volume 84, number 8, p1-7 (1998)
- [HUN92] L.S.Hung, L.R.Zheng, T.N.Blanton, « Epitaxial growth of MgO on (100)GaAs using ultrahigh vacuum electron-beam evaporation », *Applied Physics Letters*, volume 60, number 25, p3129-3131 (1992)
- [ICH04] T.Ichitsubo, K.Tanaka, « Single-crystal elastic constants of disordered and ordered FePd », *Journal of Applied Physics*, volume 96, number 11, p6220-6223 (2004)
- [JCP99] JCPDS-International Centre of Diffraction Data (1999)
- [JIA05] X.Jiang, R.Wang, R.M.Shelby, R.M.Macfarlane, S.R.Bank, J.S.Harris, S.S.P.Parkin, « Highly Spin-Polarized Room-Temperature Tunnel Injector for Semiconductor Spintronics using MgO(100) », *Physical Review Letters*, volume 94, p056601-1-4 (2005)
- [JON99] B.T.Jonker, US Patent number 5874749 (1999)
- [JON00] B.T.Jonker, Y.D.Park, B.R.Bennett, H.D.Cheong, G.Kioseoglou, A.Petrou, « Robust electrical spin injection into a semiconductor heterostructure », *Physical Review B*, volume 62, issue 12, p8180-8183 (2000)
- [JUL75] M.Jullière, « Tunneling between ferromagnetic films », *Physics letters A*, volume 54, issue 3, p225-226 (1975)
- [KAP93] B.Kaplan, G.A.Gehring, « The domain structure in ultrathin magnetic films », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, volume 128, p111-116 (1993)
- [KIK99] J.M.Kikkawa, D.D.Awschalom, « Lateral drag of spin coherence in gallium arsenide », *Nature*, volume 397, p139-141 (1999)
- [KIM74] L.C.Kimerling, « Influence of deep traps on the measurement of the free-carrier distributions in semiconductors by junction capacitance techniques », *Journal of Applied Physics*, volume 45, issue 4, p1839-1845 (1974)
- [LAN01] Stefan Landis, « réseaux de plots magnétiques sub-microniques réalisés à partir de substrats pré-gravés », Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier Grenoble (2001)
- [LEC00] P.LeClair, H.J.M.Swagten, J.T.Kohlhepp, R.J.M.van de Veerdonk, W.J.M.de Jonge, « Apparent spin polarization decay in Cu-Dusted Co/Al₂O₃/Co Tunnel Junctions », *Physical Review Letters*, volume 84, number 13, p2933-2936 (2000)
- [LEC02] J.T.Kohlhepp, C.H.van de Vin, H.Wieldraaijer, H.J.M.Swagten, W.J.M.de Jonge, A.H.Davis, J.M.MacLaren, J.S.Moodera, R.Jansen, « Band structure and density of states effects in Co-based Magnetic Tunnel Junctions », *Physical Review Letters*, volume 88, number 10, p107201-1-4 (2002)

- [LEE99] W.Y.Lee, S.Gardelis, B.-C.Choi, Y.B.Xu, C.G.Smith, C.H.W.Barnes, D.A.Ritchie, E.H.Linfield, J.A.C.Bland, « Magnetization reversal and magnetoresistance in a lateral spin-injection device », *Journal of Applied Physics*, volume 85, number 9, p6682-6685 (1999)
- [LEW03] W.S.Lew, S.P.Li, L.Lopez-Diaz, D.C.Hatton, J.A.C.Bland, « Mirror Domain Structures Induced by Interlayer Magnetic Wall Coupling », *Physical Review Letters*, volume 90, number 21, p217201-1-4 (2003)
- [LU06] Y.Lu, J.C.Le Breton, P.Turban, B.Lépine, P.Schieffer, G.Jézéquel, « Measurement of the valence-band offset at the epitaxial MgO-GaAs(001) heterojunction by x-ray photoelectron spectroscopy », *Applied Physics Letters*, volume 88, p042108-1-3 (2006)
- [MAC89] J.M.MacLaren, S.Crampin, D.D.Vvedensky, J.B.Pendry, « Layer Korringa-Kohn-Rostoker technique for surface and interface electronic properties », *Physical Review B*, volume 40, p12164-12175 (1989)
- [MAC99] J.M.MacLaren, X.G.Zhang, W.H.Butler, X.Wang, « Layer KKR approach to Bloch-wave transmission and reflection : Application to spin-dependent tunneling », *Physical Review B*, volume 59, issue 8, p5470-5478 (1999)
- [MAR00] M. Maret, M.Albrecht, J.Köhler, R.Poinsot, C.Ulhaq-Bouillet, J.M.Tonnerre, J.F.Berar, E.Bucher, « Magnetic anisotropy and chemical long-range order in epitaxial ferrimagnetic CrPt₃ films », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, volume 218, p151-164 (2000)
- [MAR01] C.Martinez-Boubeta, E.Navarro, A.Cebollada, F.Briones, F.Peiro, A.Cornet, « Epitaxial Fe/MgO heterostructures on GaAs(001) », *Journal of crystal growth*, volume 226, p223-230 (2001)
- [MAT01] J.Mathon, A.Umerski, « Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction », *Physical Review B*, volume 63, issue 22, p220403-1-4 (2001)
- [MAV00] P.Mavropoulos, N.Papanikolaou, P.H.Dederichs, « Complex Band Structure and Tunneling through Ferromagnet/Insulator/Ferromagnet Junctions », *Physical Review Letters*, volume 85, number 5, p1088-1091 (2000)
- [MAZ99] I.I.Mazin, « How to Define and Calculate the Degree of Spin Polarization in Ferromagnets », *Physical Review Letters*, volume 83, number 7, p1427-1430 (1999)
- [MET98] T.Metzger, R.Höpler, E.Born, O.Ambacher, M.Stutzmann, R.Stömmer, M.Schuster, H.Göbel, S.Christiansen, M.Albrecht, H.P.Strunk, « Defect structure of epitaxial GaN films determined by transmission electron microscopy and triple-axis X-ray diffractometry », *Philosophical Magazine A*, volume 77, number 4, p1013-1025 (1998)
- [MEY02] H.L.Meyerheim, R.Popescu, N.Jedrecy, M.Vedpathak, M.Sauvage-Simkin, R.Pinchaux, B.Heinrich, J.Kirschner, « Surface x-ray diffraction analysis of the MgO/Fe(001) interface : Evidence for an FeO layer », *Physical Review B*, volume 65, issue 14, p144433-1-7 (2002)
- [MIT03] S.Mitani, T.Moriyama, K.Takanashi, « Fe/MgO/FeCo(100) epitaxial magnetic tunnel junctions prepared by using in situ plasma oxidation », *Journal of Applied Physics*, volume 93, number 10, p8041-8043 (2003)
- [MIY95] T.Miyazaki, N.Tezuka, « Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al₂O₃/Fe junction », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, volume 139, p231-234 (1995)
- [MON00] D.J.Monsma, S.S.P.Parkin, « Spin polarization of tunneling current from ferromagnet Al₂O₃ interfaces using copper-doped aluminum superconducting films », *Applied Physics Letters*, volume 77, number 5, p720-722 (2000)
- [MOO95] J.S.Moodera, L.R.Kinder, T.M.Wong, R.Meservey, « Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin films tunnel junctions », *Physical Review Letters*, volume 74, number 16, p3273-3276 (1995)
- [MOR00] M.Morcrette, A.Gutierrez-Llorente, W.Seiler, J. Perrière, A. Laurent, P. Barboux, « Epitaxial growth of Pt and oxide multilayers on MgO by laser ablation », *Journal of Applied Physics*, volume 88, number 9, p5100-5106 (2000)
- [MOR04] T.Moriyama, S.Mitani, T.Seki, T.Shima, K.Takanashi, A.Sakuma, « Magnetic tunnel junctions with L1₀-ordered FePt alloy electrodes », *Journal of applied physics*, volume 95, number 11, p6789-6791 (2004)
- [MOT03] V.F.Motsnyi, P.Van Dorpe, W.Van Roy, E.Goovaerts, V.I.Safarov, G.Borghs, J.De Boeck, « Optical investigation of electrical spin injection into semiconductors », *Physical Review B*, volume 68, p245319-1-13 (2003)

- [NIS02] N.Nishimura, T.Hirai, A.Koganei, T.Ikeda, K.Okano, Y.Sekiguchi, Y.Osada, « Magnetic tunnel junction device with perpendicular magnetization films for high-density magnetic random access memory », *Journal of Applied Physics*, volume 91, number 8, p5246-5249 (2002)
- [OKA02] S.Okamoto, N.Kikuchi, O.Kitakami, T.Miyazaki, Y.Shimada, K.Fukamichi, « Chemical-order-dependent magnetic anisotropy and exchange stiffness constant of FePt (001) epitaxial films », *Physical Review B*, volume 66, p024413-1-9 (2002)
- [PAR04] S.S.P.Parkin, C.Kaiser, A.Panchula, P.M.Rice, B.Hughes, M.Amant, S.H.Yang, « Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers », *nature materials*, volume 3, p862-867 (2004)
- [PAS91] M.D.Pashley, K.W.Haberern, J.M.Gaines, « MBE growth on vicinal GaAs(001) surfaces studied by scanning tunneling microscopy », *Surface Science*, number 267, p153-160 (1991)
- [POP02] E.Popova, J.Faure-Vincent, C.Tiusan, C.Bellouard, H.Fischer, M.Hehn, F.Montaigne, M.Alnot, S.Andrieu, A.Schuhl, E.Snoeck, V. da Costa, « Epitaxial MgO layer for low-resistance and coupling-free magnetic tunnel junctions », *Applied Physics Letters*, volume 81, number 6, p1035-1037 (2002)
- [POR98] X.Portier, A.K.Petford-Long, T.C.Anthony, J.A.Brug, « Contribution of the magnetic field induced by the current passing through a spin-valve element », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, volume 187, p145-153 (1998)
- [RAS00] E.I.Rashba, « Theory of electrical spin injection : Tunnel contacts as a solution of the conductivity mismatch problem », *Physical Review B*, volume 62, number 24, p267-270 (2000)
- [RAZ97] S.S.A.Razeey, R.Prasad, R.M.Singru, « The electronic structure, and magnetic and structural properties of Fe-Cu and Fe-Ag alloys », *Journal of Physics : Condensed Matter*, volume 9, p4455-4466 (1997)
- [ROB86] I.K.Robinson, « Crystal truncation rods and surface roughness », *Physical Review B*, volume 33, issue 6, p3830-3836 (1986)
- [ROD06] B.Rodmacq, V.Baltz, B.Dieny, « Macroscopic probing of domain configurations in interacting bilayers with perpendicular magnetic anisotropy », *Physical Review B*, volume 73, p092405 1-4 (2006)
- [SAM99] Y. Samson, A. Marty, R. Hoffmann, V. Gehanno, B. Gilles, « Magnetic domains in thin films with perpendicular anisotropy : An extensive study », *Journal of Applied Physics*, volume 85, number 6, p4604-4606 (1999)
- [SHA94] M.P.Sharroock, « Time dependence of switching fields in magnetic recording media », *Journal of Applied Physics*, volume 76, issue 10, p6413-6418 (1994)
- [SAK94] A.Sakuma, « First principle calculation of the magnetocrystalline anisotropy energy of FePt and CoPt ordered alloys », *Journal of the Physical Society of Japan*, volume 63, number 8, p3053-3058 (1994)
- [SHA99] M.Sharma, S.X.Wang, J.H.Nickel, « Inversion of Spin Polarization and Tunneling Magnetoresistance in Spin-Dependent Tunneling Junctions », *Physical Review Letters*, volume 82, number 3, p616-619 (1999)
- [SCH00] G.Schmidt, D.Ferrand, L.W.Molenkamp, A.T.Filip, B.J.van Wees « Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor », *Physical Review B*, volume 62, number 8, R4790-4793 (2000)
- [SIM63] J.G. Simmons, « Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film », *Journal of Applied Physics*, volume 34, number 6, p1793-1803 (1963)
- [SIN02] P.P.Singh, « Relativity and magnetism in Ni-Pd and Ni-Pt alloys », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, volume 261, p347-352 (2003)
- [SLO89] J.C.Slonczewski, « Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier », *Physical Review B*, volume 39, number 10, p6995-7002 (1989)
- [SLO96] J.C.Slonczewski, « Current driven excitation of magnetic multilayers », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, volume 159, L1 (1996)
- [SON87] P.C.van Son, H.van Kempen, P.Wyder, « boundary resistance of the ferromagnetic-nonferromagnetic metal interface », *Physical Review Letters*, volume 58, number 21, p2271-2273 (1987)
- [SON02] P.H.Song et K.W.Kim, « Spin relaxation of conduction electrons in bulk III-V semiconductors », *Physical Review B*, volume 66, issue 3, p035207-1-8 (2002)

- [SOU99] R.C.Sousa, M.Kerekes, I.L.Prejbeanu, O.Redon, B.Dieny, J.P.Nozières, P.P.Freitas, « Crossover in heating regimes of thermally assisted memories », *Journal of Applied Physics*, volume 99, p08N904-1-3 (1999)
- [STA04] J.B.Staunton, S.Ostanin, S.S.A.Razee, B.L.Gyorffy, L.Szunyogh, B.Ginatempo, E.Bruno, « Temperature dependant magnetic anisotropy in metallic magnets from an *ab initio* electronic structure theory : L1₀-ordered FePt », *Physical Review Letters*, volume 93, p257204-1-4 (2004)
- [STRO02] R.M.Stroud, A.T.Hanbicki, Y.D.Park, G.Kioseoglou, A.G.Petukhov, B.T.Jonker, G.Itskos, A.Petrou, « Reduction of Spin Injection Efficiency by Interface Defect Spin Scattering in ZnMnSe/AlGaAs-GaAs Spin-Polarized Light-Emitting Diodes », *Physical Review Letters*, volume 89, number 16, p166602-1-4 (2002)
- [SZE69] S.M.Sze, « *Physics of semiconductor devices* », Wiley (1969)
- [TAN97] Y.Tanaka, N.Kimura, K.Hono, K.Yasuda, T.Sakurai, « Microstructures and magnetic properties of Fe-Pt permanent magnets », *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, volume 170, p289-297 (1997)
- [TAR93] E.J.Tarsa, M.De Graef, D.R.Clarke, A.C.Gossard, J.S.Speck, « Growth and characterization of (111) and (001) oriented MgO films on (001)GaAs », *Journal of Applied Physics*, volume 73, issue 7, p3276-3283 (1992)
- [TAR95] E.J.Tarsa, X.H.Wu, J.P.Ibbetson, J.S.Speck, J.J.Zinck, « Growth of epitaxial MgO films on Sb-passivated (001)GaAs : Properties of the MgO/GaAs interface », *Applied Physics Letters*, volume 66, number 26, p3588-3590 (1995)
- [TED73] P.M. Tedrow, R. Meservey, « Spin polarization of electrons tunneling from films of Fe, Co, Ni and Gd », *Physical Review B*, volume 7, issue 1, p318-326 (1973)
- [TER85] J.Tersoff, D.R.Hamann, « Theory of the scanning tunneling microscope », *Physical Review B*, volume 31, number 2, p805-813 (1985)
- [THO00] L.Thomas, M.G.Samant, S.S.P.Parkin, « Domain-Wall Induced Coupling between Ferromagnetic Layers », *Physical Review Letters*, volume 84, number 8, p1819-1819 (2000)
- [TIU04] C.Tiusan, J.Faure-Vincent, C.Bellouard, M.Hehn, E.Jougulet, A.Schuhl, « Interfacial Resonance State probed by Spin-polarized tunneling in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions », *Physical Review Letters*, volume 93, number 10, p106602-1-4 (2004)
- [TIU06] C.Tiusan, M.Sicot, J.Faure-Vincent, M.Hehn, C.Bellouard, F.Montaigne, S.Andrieu, A.Schuhl, « Static and dynamic aspects of spin tunneling in crystalline magnetic tunnel junctions », *Journal of Physics : Condensed Matter*, volume 18, p941-956 (2006)
- [TRE99] E. du Tremolet de Lachaisserie, M.Cyrot, M.Décors, B.Dieny, O.Geoffroy, D.Gignoux, C.Lacroix, J.Laforest, P.Lethuillier, P.Molho, J.C.Peuzin, J.Pierre, J.L.Porteseil, P.Rochette, M.F.Rossignol, M.Schlenker, C.Segebarth, Y.Souche, J.P.Yonnet, « *Magnetisme* », Presses Universitaires de Grenoble (1999)
- [TSA89] J.Y.Tsao, T.M.Brennan, J.F.Klem, B.E.Hammons, « Surface-stoichiometry dependence of As₂ desorption and As₄ reflection from GaAs(001) », *Journal of Vacuum Science and Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, volume 7, issue 3, p2138-2142 (1989)
- [TSU05] K.Tsunekawa, D.D.Djayaprawira, M.Nagai, H.Maehara, S.Yamagata, N.Watanabe, S.Yuasa, Y.Suzuki, K.Ando, « Giant tunneling magnetoresistance effect in low-resistance Co-FeB/MgO(001)/CoFeB magnetic tunnel junctions for read-head applications », *Applied Physics Letters*, volume 87, issue 7, p072503-1-3 (2005)
- [TSY97] E.Y. Tsymbal, D.G.Pettifor, « Modelling of spin-polarized electron tunnelling from 3d ferromagnets », *Journal of Physics : Condensed Matter*, volume 9, number 30, L411-L417 (1997)
- [TUS05] C.Tusche, H.L.Meyerheim, N.Jedrecy, G.Renaud, A.Ernst, J.Henk, P.Bruno, J.Kirschner, « Oxygen-Induced Symmetrization and Structural Coherency in Fe/MgO/Fe(001) Magnetic Tunnel Junctions », *Physical Review Letters*, volume 95, p176101-1-4 (2005)
- [VAN04] O.M.J.van't Erve, G.Kioseoglou, A.T.Hanbicki, C.H.Li, B.T.Jonker, R.Mallory, M.Yasar, A.Petrou, « Comparison of Fe/Schottky and Fe/Al₂O₃ tunnel barrier contacts for electrical spin injection into GaAs », *Applied Physics Letters*, volume 84, number 21, p4334-4336 (2004)
- [VAR67] Y.P.Varshni, « Temperature dependance of the energy gap in semiconductors », *Physica* 34, 149 (1967)

- [VAS96] J.L.Vassent, M.Dynna, A.Marty, « A study of growth and the relaxation of elastic strain in MgO on Fe(001) », *Journal of Applied Physics*, volume 80, number 10, p5727-5735 (1996)
- [VAS00] J.L.Vassent, A.Marty, B.Gilles, C.Chatillon, « Thermodynamic analysis of molecular beam epitaxy of MgO(s) I. MgO vaporization by electron bombardment », *Journal of Crystal Growth*, volume 219 p434-443 (2000)
- [WEL99] D.Weller, A.Moser, « Thermal Effect Limits in Ultrahigh-Density Magnetic Recording », *IEEE Transactions on magnetics*, volume 35, number 6, p4423-4439 (1999)
- [WHI73] R.C.Whited, C.J.Flaten, W.C.Walker, « Exciton thermorefectance of MgO and CaO », *Solid State Communications*, volume 13, p1903-1905 (1973)
- [WIE05] S.Wiebel, J.P.Jamet, N.Vernier, A.Mougin, J.Ferré, V.Baltz, B.Rodmacq, B.Dieny, « Domain decoration in dipolar coupled ferromagnetic stacks with perpendicular anisotropy », *Applied Physics Letters*, volume 86, p142502 1-3 (2005)
- [WOL01] S.A. Wolf, D.D. Awschalom, R.A. Buhrman, J.M. Daughton, S. von Molnar, M.L. Roukes, A.Y. Chitchekanova, D.M. Treger, « Spintronics : a spin based electronics vision for the future », *Science*, volume 294, p1488-1495 (2001)
- [WUN02] O.Wunnicke, N.Papanikolaou, R.Zeller, P.H.Dederichs, V.Drchal, J.Kudrnovsky, « Effects of resonant interface states on tunneling magnetoresistance », *Physical Review B*, volume 65, p064425-1-6 (2002)
- [YUA00] S.Yuasa, T.Sato, E.Tamura, Y.Suzuki, H.Yamamori, K.Ando, T.Katayama, « Magnetic tunnel junctions with single-crystal electrodes : a crystal anisotropy of tunnel magneto-resistance », *Europhysics Letters*, volume 52, number 3, p344-350 (2000)
- [YUA04a] S.Yuasa, A.Fukushima, T.Nagahama, K.Ando, Y.Suzuki, « High Tunnel Magnetoresistance at Room Temperature in Fully Epitaxial Fe/MgO/Fe Tunnel Junctions due to Coherent Spin-Polarized Tunneling », *Japanese Journal of Applied Physics*, volume 43, number 4B, pL588-L590 (2004)
- [YUA04b] S.Yuasa, T.Nagahama, A.Fukushima, Y.Suzuki, K.Ando, « Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions », *nature materials*, volume 3, p868-871 (2004)
- [YUA06] S.Yuasa, A.Fukushima, H.Kubota, Y.Suzuki, K.Ando, « Giant tunneling magnetoresistance up to 410% at room temperature in fully epitaxial Co/MgO/Co magnetic tunnel junctions with bcc Co(001) electrodes », *Applied Physics Letters*, volume 89, p042505-1-3(2006)
- [ZHA03] X.G.Zhang, W.H.Butler, A.Bandyopadhyay, « Effects of the iron-oxide layer in Fe/FeO/MgO/Fe tunneling junctions », *Physical Review B*, volume 68, p092402-1-4 (2003)
- [ZHA04] X.G.Zhang, W.H.Butler, « Large magnetoresistance in bcc Co/MgO/Co and FeCo/MgO/FeCo tunnel junctions », *Physical Review B*, volume 70, p172407-1-4 (2004)
- [ZHU01] H.J.Zhu, M.Ramsteiner, H.Kostial, M.Wassermeier, H.P.Schönherr, K.H.Ploog, « Room-Temperature Spin Injection from Fe into GaAs », *Physical Review Letters*, volume 87, issue 1, p016601-1-4 (2001)
- [ZUT04] I.Zutic, J. Fabian, S. Das Sarma, *Spintronics : fundamentals and applications*, *Reviews of Modern Physics*, volume 76, issue 2, p323-410 (2004)