HAL
open science

Étude du transport tunnel dépendant du spin dans des jonctions tunnels magnétiques épitaxiées Fe/MgO/Fe bcc

Pierre-Jean Zermatten

To cite this version:

Pierre-Jean Zermatten. Étude du transport tunnel dépendant du spin dans des jonctions tunnels magnétiques épitaxiées Fe/MgO/Fe bcc. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2008. Français. NNT : . tel-00345079

HAL Id: tel-00345079

https://theses.hal.science/tel-00345079v1

Submitted on 8 Dec 2008

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.

THESE

présentée pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Joseph Fourier
Grenoble I

Spécialité : Physique de la matière condensée

par

Pierre-Jean Zermatten

Soutenue publiquement le 25 septembre 2008

Étude du transport tunnel dépendant du spin dans des jonctions tunnels magnétiques épitaxiées Fe/MgO/Fe bcc

---

Composition du jury :	**É. Snoeck**	**Président du jury**
	A. Barthélémy	**Rapporteur**
	C. Tiusan	**Rapporteur**
	F. Bertin	**Examinateur**
	G. Gaudin	**Examinateur**
	A. Schuhl	**Directeur de thèse**

Thèse préparée au laboratoire SPINTEC (CEA/CNRS/UJF/INPG)

Table des matières

Introduction **2**

1 Dispositif expérimental **6**
1.1 Description du dispositif expérimental 7
1.2 Choix du couple pointe-électrode supérieure 8
1.2.1 Difficultés liées au contact 9
1.2.1.1 Oxydation de la pointe ou de la surface 9
1.2.1.2 Contamination du contact 10
1.2.1.3 État et tenue du revêtement conducteur de la pointe . . 12
1.2.2 Résistance des pointes et résistance de contact 12
1.2.2.1 Pointes recouvertes d'un dépôt conducteur 12
1.2.2.2 Pointes entièrement métalliques ou entièrement diamant dopé 16
1.3 Couple pointe-électrode supérieure choisi pour cette étude : 17
1.4 Méthodes générales de mesures 20
1.4.1 Protocole expérimental pour les mesures de signaux magnétorésistifs 20
1.4.1.1 Mesure R(H) 20
1.4.1.2 Mesure V(I) 21
1.4.2 Protocole expérimental pour les mesures de valeurs GMR ou TMR faibles 22
1.4.2.1 Base théorique : 22
1.4.2.2 Les paramètres d'acquisition et leurs justifications : . . . 24
1.4.2.3 Exemple : mesure Courant dans le Plan (CIP) d'un empilement GMR 25
1.5 Conclusion 26

2 Transport dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe(100) **32**
2.1 Premières théories du transport tunnel dans des JTM 33
2.1.1 Électrodes ferromagnétiques : Modèle de Jullière 33
2.1.2 Présence d'une barrière isolante : Modèle de Slonczewski 34
2.1.3 Limites de ces modèles 37
2.2 Le Fe(100), système épitaxié 37
2.2.1 Orbitales atomiques du Fe) 37
2.2.2 Groupes de symétries 37
2.2.3 Relations de dispersion 41
2.2.4 DOS des porteurs majoritaires et minoritaires 42

2.2.5 Description des états de Bloch dont $k_{\parallel} = 0$ 43
2.3 Spectroscopie 47
2.3.1 Caractéristique I(V) 48
2.3.2 Spectroscopie : étude des caractéristiques $\frac{dI}{dV}(V)$. 48
2.3.3 Conclusion 51
2.4 Transport dans le système Fe/vide/Fe 51
2.4.1 Taux d'atténuation κ_{Δ_i} 51
2.4.2 DOS dans le système Fe/vide : présence d'état de surface 52
2.5 Transport dans le système Fe/MgO/Fe 54
2.5.1 Taux d'atténuation κ_{Δ_i} 55
2.5.2 DOS proches des interfaces du système symétrique Fe/MgO/Fe : présence d'IRS 57
2.5.3 Calculs des conductances tunnel 61
2.6 « Pollution » d'interface 63
2.6.1 Présence d'un plan FeO à l'interface Fe-MgO 63
2.6.1.1 DOS système asymétrique Fe/FeO/MgO/Fe 63
2.6.1.2 Influence de la couche de FeO sur les IRS 66
2.6.2 Influence du C à l'interface 67
2.7 Conclusion 67

3 Caractérisations structurale et magnétique 72
3.1 Croissance des JTM épitaxiées 72
3.1.1 La technique d'épitaxie par Jets Moléculaires 72
3.1.2 Pollution de l'interface de croissance 73
3.1.3 Préparation des substrats 74
3.2 Caractérisation *in situ* par diffraction d'électrons (RHEED) 75
3.2.1 Principe 75
3.2.2 Compréhension théorique des clichés RHEED 75
3.2.2.1 Diffraction électronique sur une surface parfaitement plane 76
3.2.2.2 Formation d'îlots durant la croissance 77
3.2.3 Contrôle de la qualité de l'interface Fe/MgO 79
3.2.4 Oscillation RHEED 80
3.3 Croissance des jonctions Fe/MgO/Fe/Co 81
3.3.1 Empilement exact et conditions de dépôt 81
3.3.2 Qualité de la croissance 81
3.4 Propriétés magnétiques typiques des empilements Fe/MgO/Fe/Co 83
3.5 Nanofabrication des échantillons 85
3.6 Cycle magnétique d'un échantillon semi-structuré 87
3.7 Cycles R(H) 89
3.8 Obtention des états P et AP 92
3.8.1 Procédure 92
3.8.2 L'état AP réellement obtenu ? 93
3.8.3 Interprétation des premiers cycles R(H) 94
3.8.4 Convention d'écriture 94
3.8.5 Perspectives pour l'obtention d'états purs 95
3.9 Conclusion 95

4 Propriétés électroniques de transport **98**
4.1 Résultats expérimentaux du transport tunnel 98
4.1.1 Caractéristiques I(V) 98
4.1.2 Dérivées premières et secondes 99
4.1.3 Présence d'états résonnants d'interface (IRS) 101
4.1.4 Variation avec l'épaisseur 103
4.2 Symétrie des IRS 106
4.2.1 Présence d'un fond continu dans l'expression des dI/dV 106
4.2.2 Expression des dI/dV pour les états P et AP 107
4.2.3 1ère méthode : soustraction AP-P 108
4.2.4 2nd méthode : soustraction partie positive - partie négative dans la configuration AP 110
4.2.5 Critique 111
4.3 Conclusion 113

Conclusion **116**

A Justification d'une fréquence de champ multiple du temps d'acquisition **121**

B Expression analytique d'une courbe $dI/dV(V)$ dans le modèle des électrons libres **123**

C Présence d'un fond continu indépendant des symétries **128**

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Etienne Snoeck d'avoir accepté de présider ce jury de thèse ainsi que Corialan Tiusan et Agnes Barthélémy qui ont bien voulu être rapporteurs de ce manuscrit. Merci également à François Bertin d'avoir contribué à l'examen de ce travail en participant au jury.

Gilles, toi qui m'a encadré pendant ces 3 années, je te félicite de m'avoir supporté. J'ai parfois été rude avec toi, j'en ai conscience, mais c'était pour ton bien... J'admire ton regard critique sur ce qui t'est présenté, tes remarques, toujours pertinentes, et ta rapidité de compréhension. Je te remercie d'être honnête et intègre. Toutes ces qualités sont un modèle pour moi. Et puis il y a les à cotés comme par exemple nos discussions « musicale ». Moi restant fidèle à mes convictions (*Pink Floyd* ou le *Rocky Horror*) et toi essayant vainement de me convaincre que *Magma* vaut le détour. Mais Jo a toujours été là pour nous mettre d'accord. Rappel toi New York, « tu n'as jamais été aussi beau que ce matin là... »

Alain, tu as été le sauveur de ma thèse. Il y a eu avant toi, une sorte de flou artistique, agréable... quoique... mais flou quand même, et puis avec toi, l'étude du Fe/MgO/Fe, composé de dingue avec une magnétorésistance énorme ! ! mais surtout de la belle physique. Je suis, grâce à toi, (re-)devenus physicien. Merci « Patron » (t'as jamais remarqué mais j'y ai toujours mis une majuscule !). Et puis Alain, roi de la petite reine, je voulais aussi te dire que je retrouve en toi un peu de mon père, et ça, je te l'assure, cela vaut tous les compliments du monde.

Mihai, le désormais « funneu » (ça se prononce juste ça ne s'écrit pas hein !) de SPINTEC, merci pour ces 3 années. Nous pourrions presque co-signer nos thèses tellement l'un et l'autre nous nous sommes entraidés. J'aime sincèrement l'équipe que nous form(i)ons et c'est avec regret que je la vois disparaître. Et puis, nos discussions sur la vie, les femmes et nos couples (et oui mesdames nous avons parlé de vous), la voile et ta progression fulgurante, et sur Gilles (et oui Gilles on a aussi beaucoup parlé de toi) valaient bien toutes les thérapies du monde. *Noroc* le roumain (d'ailleurs on y va quand déjà ?).

Et puis il y a Nico, un modèle d'homme. Ma grand mère m'a toujours trouvé débrouillard et pouvant réparer n'importe quoi. Elle m'aime beaucoup ma grand-mère... et c'est réciproque. Je souhaite qu'elle ne te rencontre jamais car toi, c'est sûr, tu sais réparer, améliorer, concevoir et réaliser ce que tu imagines (mais t'es nul en pose de papier-peint, et ça, ça me rassure).

Merci Cori. Grâce à toi j'ai pu mesurer quelque chose ;-). Nos discussions m'ont permis de mieux comprendre l'électronique de spin et ce système Fe/MgO/Fe.

Mairbek, un grand merci à toi aussi. Tu es mon théoricien préféré, toujours prés à répondre à n'importe quelle question et ce de manière très, très pédagogique pour quelqu'un ayant appris la physique dans les Landau ...

Je tiens aussi à remercier Baptiste, Clarisse et Claire car j'aime travailler avec vous. Claire dont le bureau est d'ailleurs attenant à celui de Gilles (mais est-ce vraiment un hasard où faut-il y voir une application de l'adage « qui se ressemble s'assemble »), je tiens également à te remercier de désirer comprendre suffisamment la physique pour permettre une transmission **pédagogique** de ton savoir. Et puis t'es vraiment bien en traductrice franco-français...

Et puis il faut garder à l'esprit que cette thèse était expérimentale. Elle n'a pu se faire que grâce à la participation de nombreux techniciens et ingénieurs. Merci à Philippe Montmayeul du CEA d'avoir aidé grandement dans la conception des pièces mécaniques et de les avoir réalisées. Merci à toute l'équipe de NanoFab du CNRS, Christophe $D:\backslash Partage$ Lemonias, Bruno Fernandez, Khaled Ayadi, Thierry Crozes et Thierry Fournier.

Enfin resserrons mes amitiés et allons du cotés des plus anciennes. Damien dit aussi Leblams, qui sera à jamais pour moi Domino dans mes rêves et Blamone dans mes cauchemars. Tyril, roi du jeu en tout genre mais surtout de ceux qui se pratiquent dans les bars. Et enfin JM, le plus sein de nous trois, pas de HALO que du sport... en extérieur... Mes amis, merci d'être à mes cotés et de me rendre meilleur.

Madée et Yoan, les champions de l'organisation de rendez-vous entre amis, merci pour vos encouragements, les parties de pétanques, et j'en passe.

Je tiens à remercier mes parents et ma soeur pour leur soutien constant, évidemment, mais surtout pour tout le reste. J'ai essayé d'écrire ce que je ressens pour vous, l'admiration que je vous porte et combien je vous suis reconnaissant de m'avoir aider à me construire. Mais les phrases s'allongeaient sans que je n'en vois la fin ... Les mots les plus simples sont peut être ceux qui portent en eux le plus de signification. Je vous aime.

Enfin et non des moindres, il y a Elena. C'est un jolie dépaysement que de partager ma vie avec toi. ILD.

A mon cousin, Eric

« *Et si c'était vrai*
Eric,
Et si c'était vrai
Qu'avant de nous quitter
Du haut de tes sommets,
De ta belle énergie,
Tu nous aies allumé
Une étoile »

Introduction

La « spintronique », ou électronique de spin, a pour but de rajouter à l'électronique classique un degré de liberté supplémentaire en utilisant le spin de l'électron (son moment magnétique). Cela consiste par exemple à modifier les propriétés électroniques de transport grâce au magnétisme des matériaux utilisés. Cette approche connaît un très fort engouement depuis la découverte en 1988 de la propriété de GMR (Giant Magnetic Resistance en français magnétorésistance géante) par deux équipes indépendantes, celle de Albert Fert[4] et celle de Peter Grünberg[8], leur valant un prix Nobel en 2008. La GMR est une propriété de systèmes métalliques composés de deux couches ferromagnétiques séparées par un métal non magnétique. Elle correspond à un changement de la résistance de ces empilements en fonction de l'orientation relative des couches magnétiques. Cette approche a été complétée récemment par le processus inverse : contrôler l'aimantation d'un matériau magnétique au moyen d'un courant le parcourant. Ce phénomène, connu sous le nom de couple de transfert de spin, ou spin torque en anglais, consiste à exercer un couple sur l'aimantation locale d'un matériau par le moment magnétique des électrons de conduction. Il a été prédit théoriquement en 1996 [60, 7] avant d'être mis en évidence pour la première fois deux à trois ans plus tard [70, 48, 62].

La spintronique a rapidement généré un très fort intérêt de la communauté industrielle et plus particulièrement de celle du stockage d'information et des capteurs. C'est actuellement un domaine qui connaît des délais très courts entre la découverte d'un nouveau concept en laboratoire et sa production industrielle à grande échelle. Le domaine du stockage d'information, par exemple, est encore dominé de nos jours par l'enregistrement magnétique. L'information est codée binairement en « 1 » et « 0 » qui correspondent à deux directions d'aimantation différentes d'un substrat magnétique. La lecture de l'information consiste à mesurer dans quelle direction pointe un point d'information : les têtes de lecture sont sensibles à la variation locale de l'induction magnétique. L'électronique de spin a permis d'améliorer grandement tant la qualité (rapport signal sur bruit) que la résolution minimale du signal détecté (taille minimum d'un bit d'information) par la découverte successive de la GMR, puis de la TMR (découverte en 1995 par Moodera *et al.* [47]). La TMR (Tunneling Magneto Resistance) est l'équivalent de la GMR pour les jonctions tunnels magnétique (JTM)[1]. Les éléments TMR présentent des taux de magnétorésistance[2](MR) bien plus élevés que les éléments GMR, augmentant par conséquent la sensibilité de la détection. Il n'a fallu que quelques années après la découverte de la GMR pour que les têtes inductives soient remplacées par IBM par des têtes GMR (1997). Ce

[1]Une JTM est composée de deux couches ferromagnétiques séparées par un isolant non magnétique.

[2]La TMR ou la GMR sont définies comme étant égale à : $TMR = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}}$, où G_P est la conductance dans l'état P, et G_{AP} celle dans l'état AP.

n'est que très récemment que les premières têtes de lecture TMR sont apparues.

L'étude des systèmes TMR (typiquement des JTM) est, dans ce contexte, intéressante. Outre le fait que les JTM présentent de fort taux de magnétorésistance, elles sont de plus beaucoup moins consommatrice d'énergie que les systèmes GMR. En effet, la résistance électrique est grande due à la présence de la barrière tunnel[3]. La mesure de la variation de la résistance, réalisée en pratique par la mesure de la variation de tension ΔV aux bornes de la JTM, est alors réalisée en faisant traverser un courant bien moins important à travers le système : à ΔV constant, le courant est d'autant plus faible que la résistance est grande. Cet autre avantage des systèmes TMR par rapport aux systèmes GMR renforcent l'idée qu'ils sont la technologie de demain.

Durant cette thèse, j'ai étudié les jonctions Fe/MgO/Fe obtenues par épitaxie par jet moléculaire. Ce système cristallin est un système modèle permettant de mieux comprendre la physique du transport tunnel dépendant du spin et l'influence sur ce transport de la structure cristalline. C'est aussi un système avec un fort potentiel applicatif. Il a en effet été prédit théoriquement [16] une polarisation de 100% des électrons participant le plus au transport électronique et par conséquent des valeurs record de TMR de plus de 3000%. En comparaison, les plus grandes valeurs jamais atteintes n'ont jamais dépassées plus de 410% [78]. Comme nous le verrons dans cette thèse, ce système présente, sous certaines conditions, des états électroniques localisés aux interfaces Fe/MgO. Ces états lorsqu'ils existent participent au transport tunnel. Une modification des propriétés des interfaces influence alors de manière importante le comportement électronique du système. Cette modification peut être obtenue par l'ajout d'une monocouche atomique à l'interface ou par destruction de la structure atomique de l'interface, par implantation ionique par exemple.

Notre étude a porté sur la mesure des propriétés électroniques de ces JTM structurées en nano-piliers. Diverses techniques existent, permettant ce type de mesures à des échelles aussi petites. Nous pouvons citer par exemple, les spectroscopies UV ou X, les techniques de champ proche de type STM (Scanning Tunneling Microscopy) ou encore la technique d'encapsulation de nanostructure (brièvement décrite au paragraphe 1). Au cours de cette thèse, j'ai développé un dispositif expérimental associant une électronique d'acquisition rapide de signaux électriques avec un AFM muni d'une pointe entièrement métallique. Ce dispositif permet la reprise de contact supérieur sur une nanostructure métallique et ainsi la mesure de conductivité électrique. Il présente deux avantages majeurs. Le premier est sa très grande résolution spatiale. En effet il a été possible de mesurer électriquement des caractéristiques tunnel de piliers aussi petits que 40x60nm^2. Cette résolution, limitée par la taille de la pointe AFM, pourrait encore être améliorée jusqu'à des tailles de l'ordre de 4nm en retaillant le bout des pointes AFM par FIB (faisceau d'ions focalisé) [73]. Le second principal avantage est la grande souplesse de cette technique. Elle est rapide et est applicable à de nombreux type d'échantillons différents : nano-particules obtenues par voie chimique, nano-piliers obtenus par gravure à travers un masque dur d'un échantillon massif... Le premier chapitre de ce manuscrit de thèse est consacré à la description de cette technique expérimentale. Un état de l'art du contact électrique sous pointe AFM y est fait, permettant de définir les contraintes imposées par la réalisation de ce contact et

[3]La résistance électrique des JTM est caractérisée par le produit de la résistance par la surface traversée par le courant, noté RA pour « Resistance Area ».

de justifier les choix faits pour le dispositif développé. J'y présente de plus une méthode de mesure de très faibles signaux de MR.

Je poserai au chapitre 2 les bases fondamentales utiles à la description du transport électronique dépendant du spin dans le système cristallin Fe/MgO/Fe. Nous verrons que l'approche électrons libres ne permet pas d'expliquer certains résultats expérimentaux observés. Dans ce système, les électrons doivent être décrits comme des ondes de Bloch possédant une symétrie particulière appartenant aux symétries du réseau. La décroissance de la probabilité de présence de l'électron dans la barrière, et par la même sa probabilité de passage à travers cette barrière, sont différentes pour chaque symétrie. Ce filtrage dépendant des symétries est à l'origine des fortes valeurs de TMR obtenues. Nous verrons de plus l'importance des interfaces Fe/MgO dans le transport électronique tant au niveau de leur qualité cristallographique (rugosité de surface) qu'au niveau de la chimie de l'interface (présence de C, O, Ag, Cr...). Par exemple, des calculs *ab initio* donnent la présence d'un IRS (état résonnant d'interface) situé à +0.2eV au dessus du niveau de Fermi. Cet IRS est prédit pour modifier considérablement le transport car il autorise un canal de conduction interdit en son absence, lorsque l'énergie pour l'atteindre est suffisante.

Nous voyons par ces exemples que seule une connaissance cristallographique approfondie du système étudié peut permettre la compréhension des propriétés électroniques mesurées. La première partie du chapitre 3 sera consacrée à la présentation de la technique d'épitaxie par Jets Moléculaires, technique utilisée par l'équipe de C. Tiusan au LPM de Nancy afin d'élaborer les JTM Fe/MgO/Fe. Nous verrons comment le contrôle de la qualité du dépôt et des interfaces est effectué *in situ* par l'utilisation d'un RHEED (Reflexion High Energy Electron Diffraction). Dans la deuxième partie de ce chapitre je présenterai les résultats de caractérisation magnétique obtenus à SPINTEC, comprenant à la fois des cycles magnétiques et magnétorésistifs. Les premiers montrent la présence d'une couche dure et d'une couche douce non couplées. L'analyse des cycles magnétorésistifs reliée à des images MFM montrera la difficulté d'obtenir les états magnétiques parallèle et anti-parallèle purs de la JTM. Je discuterai des conséquences sur l'étude des mesures magnétorésistives et des modifications à apporter à l'empilement pour solutionner cette difficulté.

Enfin je présenterai les mesures de transport sur les jonctions Fe/MgO/Fe et l'analyse que j'en fais sur la base des trois premiers chapitres. Ces mesures ne peuvent s'expliquer qu'en prenant en compte la structure cristalline de l'empilement, et valident expérimentalement la description en terme de symétries vu au chapitre 2. Je présenterai un des résultats marquant de cette thèse : la mise en évidence de deux états résonants d'interface. Si le premier, à plus basse tension, avait été prédit théoriquement, aucune prédiction théorique ni résultat expérimental n'existe quand au second. Je montrerai leur importance sur le transport tunnel à travers les conductances dynamiques des états parallèle et antiparallèle. L'étude de ces états pour trois épaisseurs différentes de MgO me permettra de présenter l'autre résultat marquant sur ces IRS : leur contribution au transport est de symétrie Δ_1.

Chapitre 1

Dispositif expérimental

L'étude des propriétés électriques ou magnétiques de composés nanostructurés, ou de nano-particules, s'accompagne d'un développement d'outils expérimentaux capables de sonder, à de si faibles tailles, ces propriétés. Leur connaissance et compréhension sont essentielles à la fois d'un point de vu applicatif, par la miniaturisation constante des dispositifs électroniques modernes, mais aussi théorique car à l'échelle nanométrique les propriétés physiques observées sont décrites dans le cadre de la physique mésoscopique (entre physique classique et physique quantique).

Plus particulièrement, des JTM Fe/MgO/Fe ont été étudiées dans le cadre de cette thèse. Diverses techniques de mesures électriques existent avec leurs caractéristiques propres. Le choix d'une technique par rapport aux autres est souvent gouverné par l'empilement étudié, les techniques de fabrication à disposition et les propriétés que l'on désire sonder.

Le STM (Scanning Tunneling Microscope) est un microscope en champ proche comme l'AFM. Il est constitué d'une pointe métallique servant d'électrode supérieure. L'échantillon à analyser constitue l'électrode inférieure. La pointe est approchée jusqu'à une distance z très faible de la surface de l'échantillon. Lorsqu'une différence de potentiel est appliquée entre la pointe et l'échantillon, un courant d'électron passe par effet tunnel à travers la barrière de potentiel créée par l'espace entre la pointe et la surface. Les propriétés électroniques de l'électrode et du substrat sont ainsi sondées. Cependant dans le cas d'un empilement de type Fe/MgO/Fe l'étude électronique, c'est à dire la mesure des densités d'états de chaque électrode ainsi que de la transparence de la barrière, devient difficile. D'une part l'électrode inférieure de Fe n'est jamais directement accessible à la pointe STM. D'autre part, le système s'apparente à une double barrière. La chute de potentiel se fait à la fois au niveau de l'espacer de MgO mais aussi entre le Fe supérieur et la pointe STM. Le potentiel n'étant pas clairement fixé sur aucune des électrodes, les niveaux d'énergies participant à la conduction ne sont pas connus. Dans le cas de tels systèmes pour lesquels une barrière tunnel est présente, on peut utiliser directement la technique de spectroscopie tunnel (cf. paragraphe 2.8). Pour cela, il suffit d'étudier le transport tunnel entre les deux électrodes en fonction de la tension.

On utilise généralement une technique d'encapsulation des nanostructures. La préparation de l'échantillon se fait en plusieurs étapes. On commence par créer, dans l'empilement que l'on veut étudier, une nanostructure sur un substrat métallique servant d'élec-

trode inférieure. Ceci peut être fait au moyen d'une gravure à travers un masque dur. Cette technique sera vue plus en détail chapitre 3.5. La structure est ensuite « noyée » dans un matériaux isolant par exemple du SiO_2. Par une étape de planarisation, le haut de la nanostructure est ouvert permettant une reprise de contact supérieur par le dépôt d'un matériaux conducteur. L'électrode supérieure est de taille micrométrique à millimétrique et peut être facilement connectée aux appareils de mesure. Cependant cette technique nécessite un équipement lourd ainsi qu'une très bonne connaissance des différentes machines utilisées. En particulier la qualité de l'isolant déposé ainsi que la planarisation sont deux étapes assez critiques. Peu de groupes au monde ont accès à de tels équipements et maîtrisent cette technique.

La technique développée à SPINTEC et présentée dans les paragraphes suivants est l'association d'un dispositif électronique d'acquisition rapide avec un AFM (Atomic Force Microscope) munis d'une pointe entièrement métallique permettant la reprise de contact supérieur sur une nanostructure métallique. L'AFM est donc utilisé en mode contact.

La principale difficulté de cette technique est la réalisation d'un contact stable entre la pointe et la surface métallique (électrode supérieure) du système étudié. Une partie de ce chapitre montre des résultats obtenus par des précédentes études, qui définissent ainsi les contraintes imposées par la réalisation de ce contact et justifient les choix faits pour le dispositif développé. Nous verrons aussi une méthode de mesure de magnétorésistance (MR) développée au cours de cette thèse. Celle-ci permet des mesures fines et rapides sur des échantillons présentant un faible signal magnétorésistif comme des JTM de faibles RA (Resistance Area : le produit de la résistance par la surface en $\Omega\mu^2$). Bien que cette méthode n'ait pas été utilisée dans cette thèse à cause des forts RA et fortes TMR des empilements Fe/MgO/Fe étudiés, elle s'inscrit parfaitement dans une logique de mesure fine et rapide sous AFM de nanostructures.

Cependant cette technique présente de nombreux avantages. En particulier, la structuration est plus rapide et plus simple car elle s'arrête à la génération des nanostructures dans le matériaux voulu. L'utilisation d'une technique de champ proche pour la reprise du contact supérieur augmente notablement la résolution spatiale atteinte, la faisant passer de quelques dizaines de micrométres (taille d'un contact obtenu par microsoudure) au rayon des pointes AFM de contact conventionnelles (inférieure à 100 nm). Cette technique permettrait ainsi l'étude d'une nanoparticule unique au sein d'une matrice dense (système obtenu par voie chimique par exemple).

1.1 Description du dispositif expérimental

Le banc de mesure résulte de l'utilisation conjointe d'un AFM dans son mode contact et d'un dispositif électronique servant à générer un courant dans l'échantillon et à mesurer la différence de potentiel qui en résulte, entre ce dernier et la pointe conductrice AFM.

Le schéma figure 1.1 montre les différentes parties du dispositif électronique. Le courant est injecté à l'aide d'une source de courant pilotée par une source de tension. Une résistance est montée en série du système pointe - échantillon et permet la mesure du courant. La valeur de cette résistance est choisie proche de la valeur de la résistance du système. La résolution et le bruit de la mesure de la tension sont alors comparables à

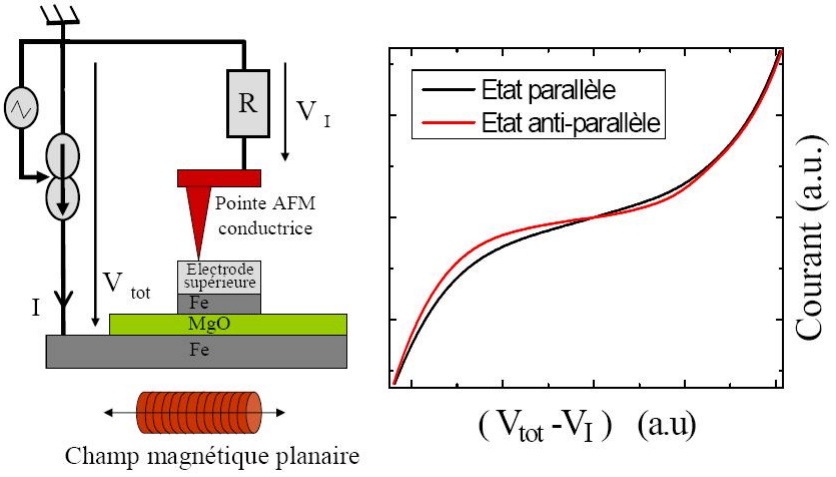

Fig. 1.1 – Gauche : schéma du dispositif expérimental. Le système étudié est ici un nanoplot de Fe sur une surface continue de Fe/MgO. Le nanoplot de Fe est surmonté d'un métal constituant l'électrode supérieure sur laquelle est contactée la pointe conductrice AFM. Le système électronique de mesure est constitué d'une source de courant pilotée en tension et d'une résistance en série du système étudié permettant la mesure du courant. Un champ planaire (ou perpendiculaire) peut être appliqué lorsque la pointe est en contact. Droite : deux caractéristiques I(V) typiques obtenues dans un tel système sont montrées pour les configuration P et AP.

ceux de la mesure de l'intensité. La génération et l'acquisition des signaux sont contrôlées par la même carte NI 4461 montée dans un pont PXI[1]. Ce dernier assure entre autre un contrôle de la température du système diminuant ainsi les dérives thermiques des cartes. La fréquence d'échantillonnage maximum de la carte est de 224 kéch/sec. La fréquence choisie pour les mesures des caractéristiques I(V) est de 32 kéch/sec et est identique pour les deux voies d'acquisitions. Cette carte permet une acquisition simultanée de l'intensité et de la tension. Afin de connaître la tension aux bornes du système à étudier, on soustrait la valeur de la tension aux bornes de la résistance à la valeur de tension aux bornes de la source de courant. Il est cependant bon de garder à l'esprit que la résistance du système ainsi mesurée reste, quand même, l'association série de la résistance de contact et de la résistance de l'échantillon étudié. Un champ magnétique planaire (ou perpendiculaire) peut être appliqué sur l'échantillon lorsque celui-ci est contacté par la pointe AFM. L'amplitude maximum du champ planaire est d'environ 400 Oe et elle est d'environ 1.2 kOe pour le champ perpendiculaire. Le champ peut être varié à une fréquence pouvant atteindre la centaine de Hertz.

1.2 Choix du couple pointe-électrode supérieure

Il existe différents types de pointes conductrices AFM. Elles peuvent être en silicium dopé, en silicium recouvert d'un dépôt diamant dopé, en silicium recouvert d'un dépôt métallique, entièrement en diamant dopé ou encore entièrement métalliques.

Les caractéristiques générales d'une pointe conductrice AFM sont :

[1]http ://zone.ni.com/devzone/cda/tut/p/id/4811

- **La valeur de la résistance du contact pointe - surface.** Dans la suite de ce chapitre, la résistance de contact prendra en compte la résistance intrinsèque de la pointe et la résistance du contact lui-même. La distinction entre ces deux contributions à la résistance mesurée impliquerait de connaître parfaitement la géométrie de la pointe ainsi que la résistivité du matériau constituant la pointe afin de déterminer la résistance intrinsèque. Plus précisément, c'est l'extrémité de la pointe qui contribue pour le plus à la résistance du fait de la constriction importante des lignes de courant à cet endroit. Or la géométrie de la pointe à son extrémité est très difficilement contrôlable.
- **Le rayon d'apex.** Plus celui-ci est petit plus la résolution spatiale de la mesure de résistance est importante, mais plus la résistance intrinsèque de la pointe est grande.
- **La conductivité du matériau conducteur constituant la pointe.** Plus celle-ci est grande plus la résistance de la pointe est faible et donc la résistance du contact pointe-surface.
- **Les caractéristiques tribologiques.** On entend par là les contraintes mécaniques que la pointe peut supporter sans être endommagée.

Dans le cadre spécifique de notre étude, nous avons cherché une résolution spatiale de pointe de la taille des plots magnétiques. Des pointes ayant un rayon d'apex d'environ 50 nm sont suffisantes. De plus la résistance à des contraintes mécaniques importantes n'est pas a priori nécessaire, l'idée étant de venir contacter la pointe en un endroit précis de la surface et non pas de scanner la surface (ce qui est plus dommageable pour la pointe et son dépôt conducteur quand il existe comme nous le verrons par la suite). En revanche, une valeur de résistance de contact faible est nécessaire afin de fausser le moins possible les mesures de résistance des échantillons. Enfin la stabilité du contact électrique est déterminante, tant au niveau de la durée durant laquelle le contact est établi qu'à celui de ses fluctuations mécaniques et donc électriques. En effet, une mesure fine de conductance (ou résistance) ne peut se faire que si le bruit de la mesure est assez faible. Nous verrons au paragraphe 1.3 les résultats obtenus pour un contact sur différents métaux et l'amélioration notable du contact électrique lorsque la pointe et l'électrode supérieure sont soudées.

1.2.1 Difficultés liées au contact

Il ressort de toutes les études menées en vue de la création d'un contact stable et reproductible trois principaux problèmes : l'oxydation de la pointe ou de l'échantillon, la contamination (ménisque d'eau, particules) et l'état du revêtement conducteur de la pointe. Le système (pointe - métal constituant l'électrode supérieur) doit être choisi judicieusement afin de s'affranchir de ces problèmes. Dans ce paragraphe sont exposés quelques résultats issus de la littérature. Ils permettent de mettre en évidence l'origine des problèmes et les solutions parfois proposées.

1.2.1.1 Oxydation de la pointe ou de la surface

L'oxydation de la pointe ou de l'échantillon peut se produire lorsque l'atmosphère n'est pas contrôlée. Une première manière de prévenir l'oxydation est de travailler dans

une atmosphère d'azote ou sous vide. Cependant c'est une solution lourde à mettre en place car il faut prévoir des sas sur chacune des machines utilisées dans la préparation des échantillons et penser à leur transport. Une manière simple et efficace de prévenir cette oxydation est l'emploi de matériaux inertes comme le Platine (Pt), l'Iridium (Ir), le diamant...

1.2.1.2 Contamination du contact

La contamination a deux principales origines. Elle peut provenir de la formation d'un ménisque d'eau entre la pointe et la surface ou de la présence de particules entre la pointe et la surface. La situation optimale pour diminuer les risques de contamination consiste à travailler sous ultra-vide. En effet, la possibilité d'être contaminé dans l'enceinte par une particule ou par la formation d'un ménisque d'eau est quasi nulle. Cependant, cette contamination ne se produit pas le plus souvent lors de l'approche dans l'enceinte de la pointe vers la surface, mais durant tout le temps que la pointe passe dans une atmosphère non contrôlée, par exemple lors de son transfert à l'intérieur de l'enceinte. Ainsi travailler sous ultravide ne signifie pas pour autant travailler avec des échantillons et des pointes propres. Sous ultravide [37], une différence de comportement a été observée suivant que la pointe avait ou non été nettoyée par une pulvérisation d'ions argon (figure 1.2). Les recherches ont été effectuées avec des pointes en Si recouvertes d'un dépôt diamant conducteur (nous verrons dans la suite que ces pointes résistent bien mieux à des contraintes latérales et sont donc plus robustes). La courbe de force[2] et la valeur de l'intensité qui la traverse ont été simultanément mesurées. On peut voir que le contact lors de l'expérience figure 1.2-b est de bien meilleure qualité que celui lors de l'expérience figure 1.2-a. Pour une même force appliquée (par exemple 10 nN), le courant injecté est environ 300 fois plus important. Or il existe un rapport 5 entre les tensions appliquées lors des deux expériences. Par extrapolation, à même tension, le courant injecté est alors environ 1500 fois plus important lorsque la pointe a subi l'étape de pulvérisation argon. Cette étape a donc bien nettoyé sa surface. Cette différence de comportement montre clairement l'importance de la contamination de surface. La contamination du contact par la formation d'un ménisque d'eau entre la pointe et la surface a toujours lieu sous atmosphère non contrôlée, à l'air typiquement. Celle-ci peut être observée en effectuant une courbe de force. La figure 1.3 montre le résultat d'une mesure simultanée du courant en fonction de l'augmentation relative en z de la distance pointe-surface et d'une courbe de force (déflection du laser en fonction de cette même diminution). On voit nettement deux sauts distincts sur la courbe de force. Le plus important correspond à la séparation

[2]Une courbe de force donne la déformation du levier en fonction de la distance levier - surface lorsqu'elle est diminuée ou augmentée. Une courbe de force est aussi appelée courbe d'approche - retrait. Prenons l'exemple de l'approche d'une pointe vers la surface, c'est à dire une courbe de force pour laquelle la distance levier - surface est diminuée. Lorsque la pointe ne touche pas la surface, ou plus généralement n'est pas en interaction avec la surface, la diminution de la distance entre le levier et la surface amène à mettre en contact la pointe et la surface. Le levier ne se déforme cependant pas, la force appliquée sur la surface ne varie pas avec le déplacement de l'échantillon (partie droite des courbe figure 1.2). Si l'on continue à diminuer cette distance lorsque la pointe est en contact, on applique alors plus de force sur la surface via la pointe. Suivant que la surface est plus ou moins dure, la déformation du levier, et donc la force appliquée sur la surface à travers la raideur du levier, sera différente en fonction du déplacement. L'acquisition de ces courbes permet d'obtenir des renseignements précieux sur les propriétés mécaniques de la surface.

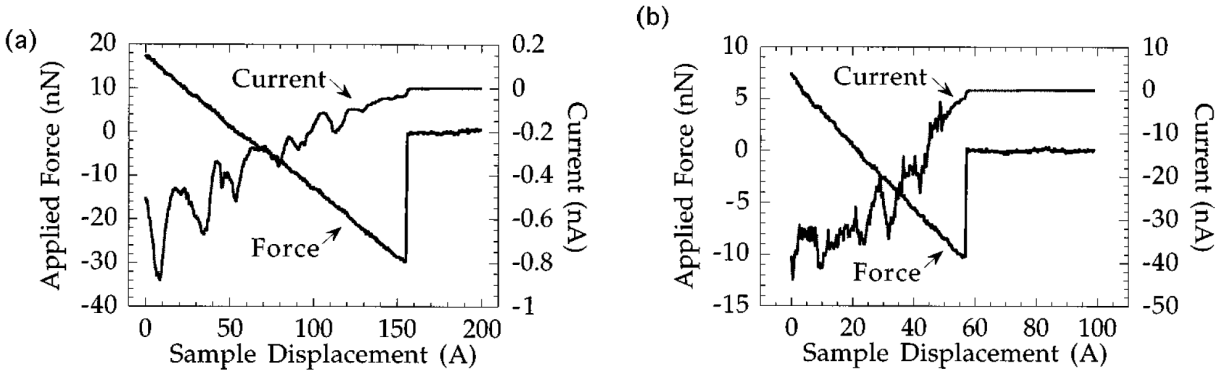

Fig. 1.2 – Expériences réalisées en utilisant une pointe diamant dopé bore et un substrat de HOPG (highly oriented pyrolitic graphite). Figure a) la pointe n'a pas été nettoyée. La tension appliquée sur l'échantillon est de 500mV. Figure b) la pointe a été nettoyée par pulvérisation d'ion argon. La tension appliquée sur l'échantillon est de 100 mV. [37]

de la pointe d'avec la surface solide et le moins important à la séparation entre la pointe et le ménisque d'eau. Les auteurs notent que lors du saut le plus important il n'y a pas de saut d'intensité injectée et que lors de la séparation de la pointe et du ménisque d'eau, il n'y a plus de courant injecté. Ils en concluent que l'intensité est essentiellement conduite par l'eau près de la séparation entre la pointe et la surface solide. Il est à noter que la présence de ce ménisque d'eau est mise à profit lors des expériences de nano-oxydation sous pointe AFM[3, 17].

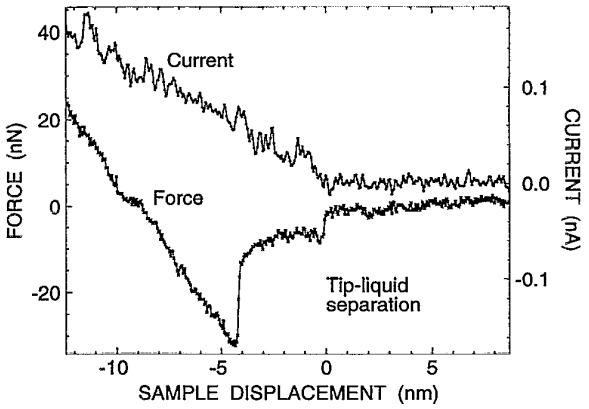

Fig. 1.3 – Acquisition simultanée de la courbe de force et de la mesure de conductivité réalisée en utilisant une pointe diamant dopé de constante de raideur 7.7 N/m et un substrat de HOPG. Une résistance de 10 MΩ est montée en série afin de limiter les valeurs du courant injecté. La tension appliquée est de 7 mV. [51]

Enfin, l'ensemble des études à l'air s'accordent sur le fait que l'obtention d'un contact stable et reproductible passe nécessairement par l'application de forces sur la pointe de l'ordre du μN. Sous ultravide, de tels contacts ont été obtenus avec l'application de forces de l'ordre du nN. Ceci prouve que la zone de contact entre la pointe et le substrat est bien mieux définie, avec très peu de pollution extérieure.

1.2.1.3 État et tenue du revêtement conducteur de la pointe

Ce dernier point est commun à toutes les études quelque soit l'atmosphère dans laquelle celles-ci sont effectuées (sous ultravide, dans une atmosphère contrôlée d'azote ou à l'air). Il dépend essentiellement du type des pointes utilisées. Néanmoins il est noté sous ultravide [37] que la tenue du revêtement est amoindrie du fait de l'absence de ménisque d'eau qui rend le contact plus doux pour la pointe.

Conserver un état du revêtement conducteur de bonne qualité est une tâche difficile. Dans le cas des pointes recouvertes d'un dépôt métallique, il est montré [37] (figure 1.4 gauche), et largement confirmé par d'autres études[51, 54, 52], que ce dernier résiste mal à des contraintes mécaniques dans le plan de l'échantillon (forces latérales). De même l'injection d'un courant de densité trop importante (suivant la qualité du dépôt métallique) peut faire fondre le dépôt conducteur (figure 1.4 droite).

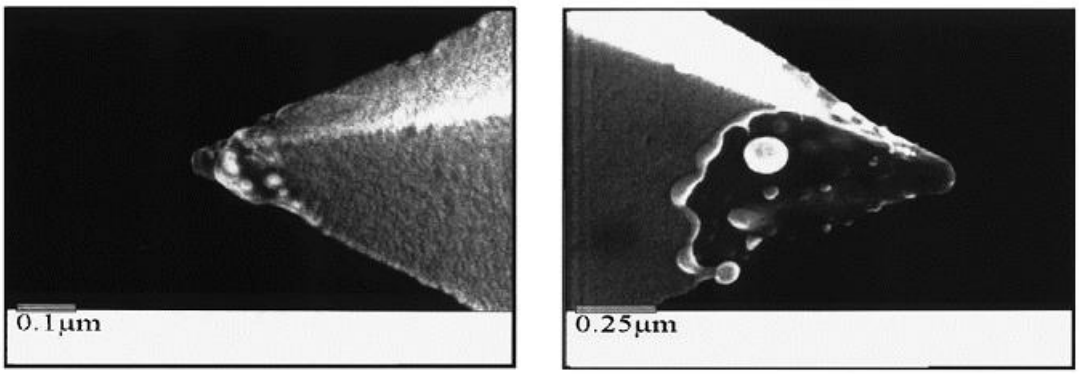

Fig. 1.4 – Images par Microscopie Électronique à Balayage (MEB) de pointes conductrices AFM. Image de gauche : pointe dont le dépôt métallique en bout de pointe a disparu après quelques balayages en mode contact. Image de droite : pointe dont le dépôt métallique en bout de pointe a disparu lorsqu'un courant de forte amplitude l'a traversé. [37]

Sur ce dernier point, il a été remarqué qu'utiliser une pointe nettoyée au préalable par la pulvérisation d'ions argon (3 min, tension d'accélération de 5 kV, courant de 0.5 μA) diminue considérablement le risque de faire fondre le dépôt métallique. En effet, si la pointe a en surface une couche d'oxyde, la tension à appliquer est assez importante pour obtenir la valeur de courant désirée. Si cette couche vient lors de l'expérimentation à disparaître, alors la résistance de contact chute brutalement entraînant l'augmentation rapide du courant à des valeurs importantes. Malheureusement, aucun ordre de grandeur n'apparaît dans cette publication.

1.2.2 Résistance des pointes et résistance de contact

1.2.2.1 Pointes recouvertes d'un dépôt conducteur

1. **Pointes recouvertes d'un dépôt métallique**
   En 1995 R.E. Thomson et John Moreland [65] ont effectué des mesures de résistances de contact entre des pointes recouvertes d'un dépôt métallique et une surface d'Au (Tableau 1.1). La faible résistivité des matériaux utilisés pour le dépôt métallique confère à ces pointes des résistances de contact minimales. Ils obtiennent des valeurs

Tip No.	Treatment	Distance tip had to be lowered to establish stable contact (nm)	Resulting force on tip (μN)	Contact resistance
1	None	1500	75	5 MΩ
2	None	1800	90	4 MΩ
3	Doped	150	7.5	3 MΩ
4	Doped	1200	60	4 MΩ
5	50 nm Au	100	5	120 Ω
6	50 nm Au	250	13	448 Ω
7	2 nm Cr, 48 nm Au	200	10	60 Ω
8	2 nm Cr, 48 nm Au	500	25	130 Ω
9	80 nm Ag (1 day old)	300	15	30 Ω
10	80 nm Ag (30 days old)	600	30	8 kΩ
11	45 nm Pt	250	13	310 Ω
12	45 nm Pt	300	15	350 Ω

TAB. 1.1 – Valeurs de résistance de contact entre une pointe AFM et une couche d'Au de 50nm d'épaisseur. Les 12 pointes AFM sont chacune recouvertes d'un dépôt différent. [65]

de résistance allant de 30 Ω pour un dépôt de 80 nm d'Ag (avec une force sur le levier de 15 μN) à 448 Ω pour un dépôt de 50 nm d'Au (avec une force de 13 μN sur le levier). Ils ont également observé avec une des deux pointes recouvertes d'Au une valeur de résistance de 12 Ω ayant des variations inférieures à 1 Ω. Fait remarquable, le contact n'était pas brisé lors du soulèvement de plusieurs centaines de nanomètres du piézoélectrique supportant le levier. En revanche un déplacement latéral inférieur à 10 nm rompait le contact. Ils ont supposé, pour ces raisons, la création d'une soudure froide entre l'Au recouvrant la pointe et l'Au de la surface. De tels résultats n'ont pas été reproduits avec les pointes recouvertes de Pt ce qui tendrait à confirmer cette supposition.

En conclusion, les valeurs typiques de résistance de contact entre des pointes recouvertes d'un dépôt métallique et une surface d'Au sont de l'ordre de la centaine d'Ohms.

2. **Pointes recouvertes d'un dépôt de diamant dopé**

   La principale raison pour laquelle sont utilisées les pointes recouvertes d'un dépôt de diamant dopé est leurs très bonnes caractéristiques tribologiques. Malheureusement la résistivité du dépôt étant plus grande que celle d'un métal, la résistance de ces pointes est supérieure à celle des pointes recouvertes d'un dépôt métallique. Les valeurs typiques de résistance varient de 5 à 100 kΩ. Le tableau 1.2 donne différents résultats obtenus avec des pointes en Si recouvertes d'un dépôt de diamant dopé contactées sur un substrat de Pt [69]. La résistance minimale a été obtenue pour une pointe dont le levier est une barre, ayant une constante de raideur inférieure à 0.77 Nm^{-1}, mais dont il semble que la surface de contact soit grande. Aucune conclusion sur l'importance ou non de la valeur des constantes de raideur n'est malheureusement dégagée dans cet article. Il peut être surprenant d'observer un écart nettement moins important entre les pointes 9 et 12 (respectivement de constante de force 0.77 Nm^{-1} et 48 Nm^{-1}) qu'entre les pointes 12 et 11 (42 Nm^{-1}). Ce point montre à mon sens encore une fois la difficulté à isoler les paramètres per-

Prototype No.	Nominal force constants (N/m)	Tip shape and material (A–D)[a]	Cantilever shape	Cantilever material	Reflectivity	Tapping mode	R on Pt (kΩ)	R on Si (kΩ)
Indirect probes (Si coated with conductive diamond)								
5	3	C	bar	Si	+	−		>1000
6	7	C	bar	Si	+	−	18–28	50
7	18	C	bar	Si	+	−		
8	73	C	bar	Si	+	−		
9	≤0.77	D	bar	Si	+	−	6.9–10.9	>1000
10	2.8	D	bar	Si	+	+	150	>1000
11	42	D	bar	Si	+	+	100	>1000
12	48	D	bar	Si	±	+	16–20	400
13	13, 17	D	V	Si	±	−	10.6,12.6	>1000

[a]A: pyramidal metal; B: pyramidal diamond; C: low-aspect-ratio Si; D: high-aspect ratio Si.
[b]+suitable; ±sufficient; −not suitable.

TAB. 1.2 – Tableau récapitulatif des valeurs mesurées de résistance pour différentes pointes en Si recouvertes d'un dépôt de diamant dopé, de forme, de constante de raideur, réflectivité... différentes. Les expériences ont été menées sur un substrat de Pt. [69]

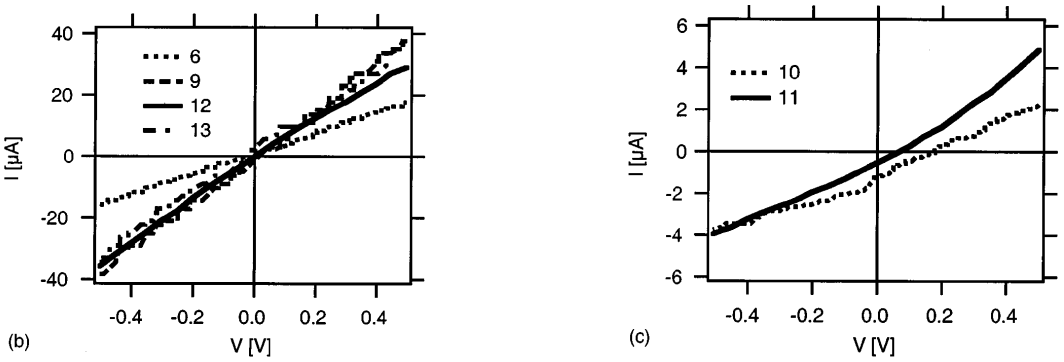

Fig. 1.5 – Caractéristiques I-V mesurées sur une couche de Pt avec les différentes pointes présentées dans le tableau 1.2. Les pointes 6, 9, 12 et 13 sont des pointes de Si recouvertes d'un dépôt de diamant fortement conducteur. Les pointes 10 et 11 sont des pointes de Si recouvertes d'un dépôt de diamant faiblement conducteur. [69]

tinents permettant l'obtention d'un bon contact. Les deux graphiques de la figure 1.5 donnent les courbes I-V des pointes numérotées du tableau. Pour les pointes 6, 9, 12, 13 (pointes en Si recouvertes d'un dépôt de diamant fortement conducteur) les caractéristiques sont linéaires et, a priori, faiblement bruitées. Pour les pointes 10 et 11 (pointes en Si recouverte d'un dépôt de diamant faiblement conducteur) la résistance n'est pas constante et est approximativement 10 fois plus grande.

3. **Comportements électriques de pointes recouvertes d'un dépôt conducteur**

   Pour ce type de pointe, trois comportements électriques sont observés. Les résultats présentés ici ont été obtenus avec une pointe recouverte d'un dépôt de diamant dopé contactée sur un substrat de HOPG [51]. Les résultats dégagés lors de cette étude sont néanmoins transférables aux pointes recouvertes d'un dépôt métallique.

   Une résistance de 10 MΩ a été mise en série du système pointe-substrat par les auteurs afin de diminuer le courant circulant à travers le système. Ils ont donc mesuré l'association série de la résistance de la pointe, de celle de contact et de celle de 10 MΩ. Différentes caractéristiques I(V) ont été obtenues, toutes dépendantes de la distance entre la pointe et la surface. Il est donc important de mettre en regard les courbes I(V) avec les courbes I(Force) afin de saisir l'origine de ces différents comportements.

   – **Comportement de type ohmique** La courbe I(V) de la figure 1.6 montre un comportement de type ohmique avec une résistance de 10 MΩ (10 mV pour 1 nA). On retrouve bien ici la valeur de la résistance série. La conclusion est que la résistance de contact est nettement inférieure à 10 MΩ. Cela laisse malheureusement encore beaucoup de valeurs possibles. La courbe I(Force) montre un contact bon et ce, à des distances très faibles de la surface de contact (peu de force appliquée sur le levier).

     La figure 1.7 montre elle aussi un comportement ohmique. Cependant le contact est de nettement moins bonne qualité. La valeur de la résistance de contact est d'environ 16 MΩ (26 MΩ moins 10 MΩ). Sa valeur est très fluctuante et peut prendre au maximum la valeur de 20 MΩ (droite en pointillés rouges) et au minimum celle de 10 MΩ (droite en tirets verts). La courbe de force mesurée pour ce type de comportement montre une diminution de la conductance lorsque la distance pointe - surface augmente. Une telle caractéristique peut s'obtenir soit parce que le courant passe à travers un isolant fin (une couche d'oxyde), soit par la présence de résistances parasites en parallèle entre les deux surfaces (résistance due à un ménisque d'eau entre les deux surfaces par exemple).

   – **Comportement de type capacitif**

     La figure 1.8 montre un comportement capacitif. Le bout de la pointe est isolant. Pour les auteurs, ceci est dû soit à la disparition du dépôt conducteur en bout de pointe, soit à la présence d'une couche isolante épaisse comme une couche épaisse d'oxyde, une particule ou une couche de liquide contaminant sur la surface (figure 1.9). La courbe de force montre la présence d'une valeur critique de distance pour laquelle le contact se rompt. En supposant que le comportement est le même lorsque l'on retire ou lorsque l'on engage la pointe, l'interprétation de cette distance minimum est facilitée. Elle correspond à la distance que doit parcourir la pointe afin de passer à travers la couche isolante. Dans le cas où le

dépôt du bout de pointe est arraché, la pointe s'enfoncera alors dans l'échantillon jusqu'à mettre en contact ses bords encore recouverts de dépôt conducteur avec la surface.

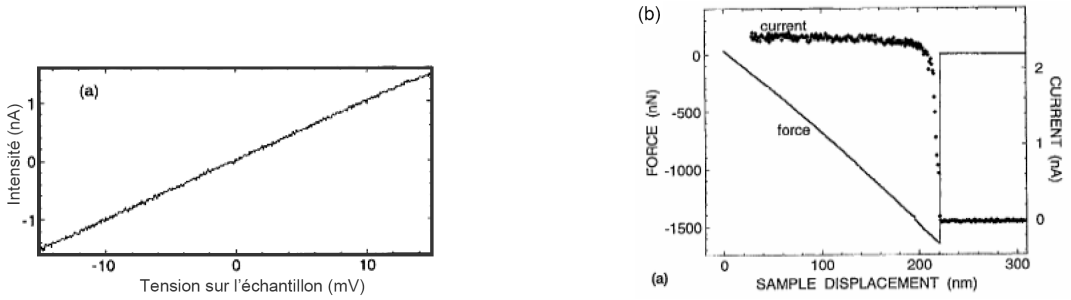

Fig. 1.6 – Courbes obtenues avec une pointe recouverte d'un dépôt de diamant dopé contactée sur une surface de HOPG. Les deux expériences n'ont pas été réalisées en même temps et sans doute avec des pointes différentes. [51]

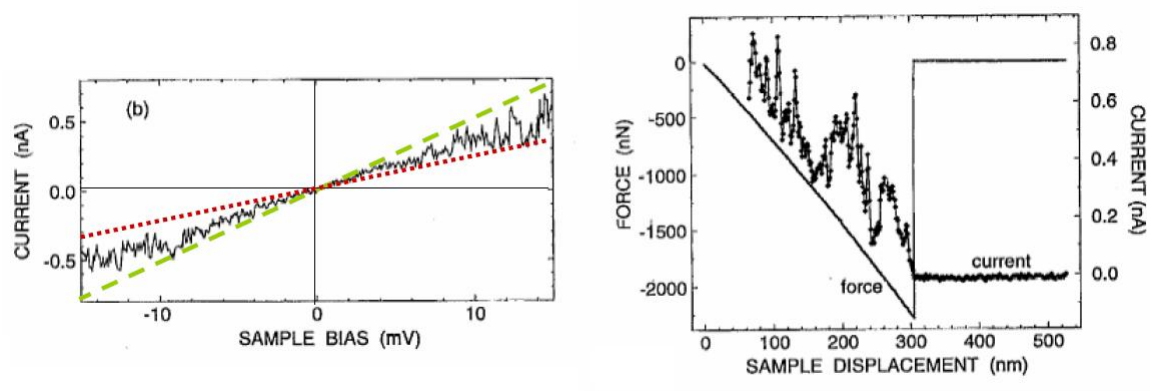

Fig. 1.7 – Courbes obtenues avec une pointe recouverte d'un dépôt de diamant dopé contactée sur une surface de HOPG. Les deux expériences n'ont pas été réalisées en même temps et peut être avec des pointes différentes. Figure de gauche : Courbe I-V montrant un comportement de conductance linéaire. Les droites en tirets verts et en pointillés rouges sont les droites passant respectivement par les valeurs minimums et maximums obtenues. Figure de droite : Courbe I-Force obtenue en retirant progressivement la pointe de la surface et en appliquant une tension de 22mV. La conductance est très fluctuante au court du temps. [51].

1.2.2.2 Pointes entièrement métalliques ou entièrement diamant dopé

Ces systèmes sont constituées d'un levier en Si recouvert d'un dépôt métallique qui assure la réflexion du laser et sur lequel on vient attacher une pointe entièrement métallique ou entièrement diamant dopé. Par abus de langage, on désignera par pointe le système levier-pointe. Le principal avantage de ce type de pointe est le fait que même si le bout de la pointe vient à être « arraché », la conduction restera possible et de bonne qualité. Ce type de pointe n'est commercialisé que depuis peu. Les résultats présentés ici ont été obtenus avec des pointes développées en interne par les laboratoires. Le tableau 1.3 donne les valeurs obtenues par l'équipe de l'IMEC en 1999. Ils trouvent pour une pointe entièrement métallique, dont ils ne donnent pas la composition, une valeur de résistance de contact de 51 Ω [69].

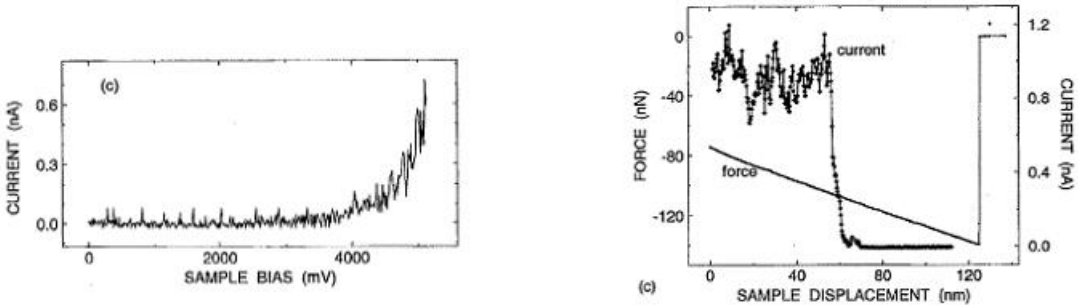

Fig. 1.8 – Courbes obtenues avec une pointe recouverte d'un dépôt de diamant dopé contactée sur une surface de HOPG à l'air. Les deux expériences n'ont pas été réalisées en même temps et peut être avec des pointes différentes. Figure de gauche : courbe I(V) caractéristique d'un comportement type barrière tunnel. Figure de droite : courbes I-Force obtenues en retirant progressivement la pointe de la surface. La perte de contact électrique se fait bien avant la perte de contact physique, suggérant une contamination en bout de pointe. [51]

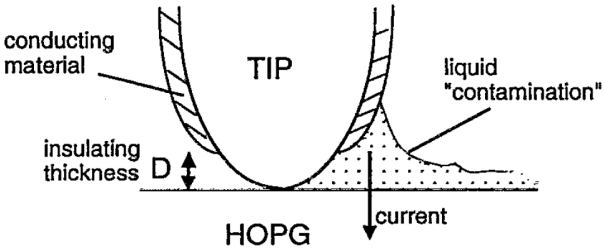

Fig. 1.9 – Schéma montrant l'apparition d'un espace isolant entre la pointe et la surface. Celui-ci peut apparaître si le dépôt conducteur de la pointe a été arraché ou par la présence d'un polluant isolant : par exemple un ménisque d'eau entre la pointe et la surface. [51]

Les deux années suivantes, la même équipe a publié ses résultats sur la fabrication de pointes entièrement diamant dopé [25, 26]. Le dopage est de 1 ou 3 ppm de Bore donnant respectivement une conductivité de 0.02 Ωcm et 0.005 Ωcm. Les leviers ont une constante de raideur allant de 10 à 100 N.m^{-1}. Le rayon d'apex a été évalué à environ 20 nm.

Une force d'environ 130 μN a été appliquée. Les résultats obtenus ne donnent pas précisément une valeur de résistance de contact pas plus que les variations ou non de celle-ci. Les mesures réalisées permettent seulement d'avoir un ordre de grandeur de la résistance de contact de 10^3 à 10^4 Ω.

1.3 Couple pointe-électrode supérieure choisi pour cette étude :

Au vu de l'ensemble de ces résultats et des études préliminaires réalisées avec des pointes Si recouvertes d'un dépôt de Ir/Pt ou de diamant dopé Bore, il nous a semblé que les pointes entièrement métalliques sont les meilleurs candidates pour notre étude. Des pointes entièrement tungstène distribuées par la société MultiProbe ont été testées sur différents substrats métalliques. Leur rayon d'apex est donné inférieur à 100nm. Nous

Prototype No.	Nominal force constants (N/m)	Tip shape and material (A–D)[a]	Cantilever shape	Cantilever material	Reflectivity	Tapping mode	R on Pt (kΩ)	R on Si (kΩ)
Direct probes made by the mould technique								
1	200–500	A	bar	Si	+[b]	+	0.051	>1000
2	0.2–40	B	bar	diamond	−	±	1.5	>1000
3	1, 3.1	B	V	diamond	−	−		
4	1, 3.1	B	V	diamond	±	−	1	>1000

TAB. 1.3 – Tableau récapitulatif des valeurs mesurées de résistance pour différentes pointes. Celles-ci ont toutes un levier en Si et une pointe soit entièrement métallique pour la pointe 1 soit entièrement diamant dopé pour les pointe 2, 3, 4. Les expériences ont été menées sur un substrat de Pt. [69]

avons vérifié expérimentalement ce point en imageant une pointe par imagerie MEB avant son utilisation (figure 1.10).

J'ai contacté avec ces pointes des substrats de Ti, Au, Pt et Ru. Le Ru donne un contact non ohmique probablement dû au fait qu'il s'oxyde en surface. Le Pt permet un contact d'une centaine d'Ohm (de 100 à 500 Ω). Plus la valeur de la résistance de contact est grande, plus les fluctuations de celle-ci sont importantes. Lorsque le contact est d'environ 500 Ω et plus, le contact peut être considéré comme mauvais voir très mauvais, dans le sens où ses fluctuations ne permettent plus des mesures assez fines de la conductance d'un échantillon. Un contact électrique d'environ 100 Ω n'est pas possible en tout point de la surface. Il existe des zones préférentielles où le contact électrique s'établit plus facilement. Ces zones peuvent être facilement repérées en imageant en mode contact la surface tout en regardant l'évolution de la tension aux bornes du système lorsqu'un courant de très faible intensité est injecté ($\ll \mu$A). Lorsque le contact électrique s'établit, la tension et le bruit en tension chutent. Il suffit alors de venir se mettre en contact sur une telle zone pour effectuer des mesures de transport. Cependant à cause des dérives thermiques des piézoélectriques mais aussi de l'ensemble des parties métalliques soutenant et constituant la tête AFM, le contact n'est stable que sur des périodes de temps courtes (10 secondes en moyenne). Ceci rend difficile les mesures qui doivent alors être réalisées rapidement.

Le contact sur de l'Au donne de très bons résultats. En effet une soudure peut être réalisée entre la pointe et l'Au. La résistance de contact est alors d'environ 3 Ω avec un bruit en tension de l'ordre de 10^{-7} V/$\sqrt{Hz}$. Il semble que cette soudure est réalisée lorsqu'un courant suffisant (de l'ordre de 3 μA) est injecté dans le système pointe-électrode d'Au. L'utilisation d'une source de courant est alors justifiée dans le cas de la mesure d'un empilement comprenant une jonction tunnel. En effet, avant que le contact ne s'établisse, la tension aux bornes du système est de plusieurs volts (généralement la compliance de la source). La chute de potentiel se situe quasiment entièrement au niveau de la pointe. Dès que le contact s'établit, la chute de potentiel se situe au niveau de la barrière tunnel. Dans le cas où l'on travaille avec une source de tension, la tension de plusieurs Volts se reporte entièrement sur la jonction, la faisant ainsi claquer. Le système, contacté électriquement, ne peut malheureusement plus être mesuré. Dans le cas de l'utilisation d'une source

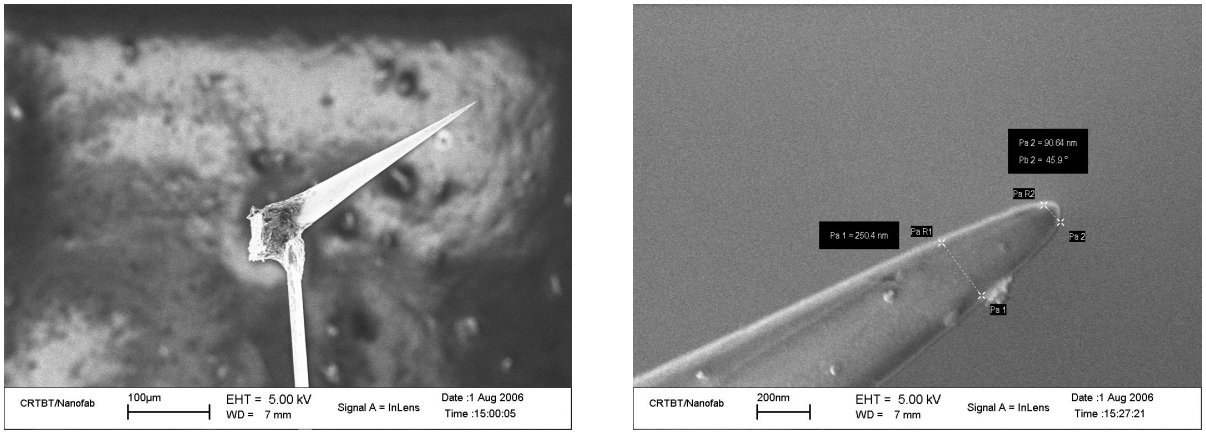

Fig. 1.10 – Gauche : Image MEB d'une pointe entièrement tungstène de la société Multiprobe avant utilisation. On peut voir le levier de profil ainsi que la pointe qui, semble-t-il, y est soudée. Droite : Image du bout de la pointe permettant d'évaluer le rayon d'apex de celle-ci. Il est estimé inférieur à 100 nm. En revanche il semble que pour un contact très léger sur une surface, la zone qui serait alors en contact soit bien inférieure (de l'ordre d'une vingtaine de nanomètre de diamètre).

de courant, la tension est régulée afin de garder le courant constant. Si le produit de l'intensité nécessaire à la soudure par la résistance de la jonction ne dépasse pas la tension de claquage, le système peut être électriquement contacté sans pour autant être détruit.

Le dernier substrat testé est le Ti. Celui-ci s'oxyde en surface. Son oxyde n'est pas conducteur. Cependant il semble qu'il puisse être transpercé par la pointe lorsqu'une force suffisante est appliquée sur le levier. Cette force est de 10 à 100 fois plus importante que celle nécessaire à l'établissement d'un contact électrique sur l'Au. De telles forces déforment la pointe comme montré figure 1.11, et modifient ainsi la taille du contact sur une surface continue. Cette déformation du bout de la pointe n'a cependant que peu d'effet pour un contact sur un nano-objet car c'est alors lui qui impose la surface du contact électrique. En revanche, en présence de Ti, seule une soudure permet d'obtenir une résistance de contact assez faible. Les caractéristiques de cette résistance de contact sont similaires au cas avec de l'Au. Il semble que cette soudure soit réalisée lorsque de l'Au se trouve au bout de la pointe. Sous l'application d'un courant d'amplitude identique au cas précédent, l'Au est soudé à la fois au W et au Ti. La méthode qui permet d'obtenir de l'Au au bout de la pointe est assez simple. Il suffit de venir imager en mode contact une surface d'Au (de l'ordre de 5x5 μm^2) tout en faisant circuler un courant d'intensité importante ($\approx$100 μA). Le contact s'établit par intermittence sous la forme de soudures. Les soudures sont arrachées sous l'action des forces régissant le déplacement en (x,y), laissant ainsi de l'Au en bout de pointe.

Deux preuves montrent la présence d'une soudure. D'une part, lorsque la soudure est établie, le bout de la pointe ne se déplace pas pour des déplacements du levier inférieurs à 1 μm. Un tel comportement ne peut s'expliquer que par la présence d'une soudure en bout de pointe. Dans ce cas, la pointe est assez souple pour se déformer (ce qui est observé à l'optique du microscope) et la soudure est assez forte pour supporter de telles contraintes mécaniques. D'autre part, l'image 1.12, montre le dépôt d'Au résiduel d'une soudure sur une surface de Ti ainsi que le trou dans cette surface réalisée par l'application d'une force

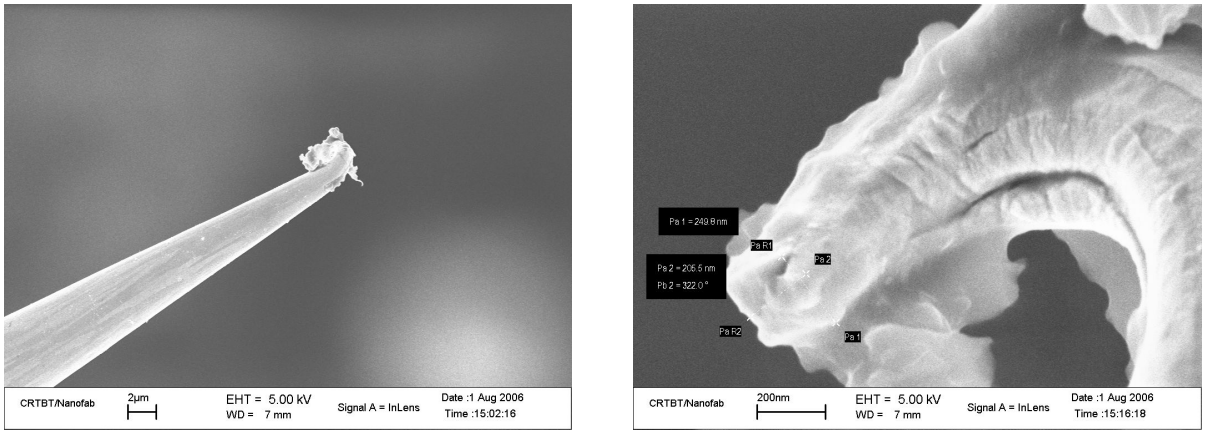

Fig. 1.11 – Gauche : Image MEB d'une pointe entièrement tungstène après utilisation. Sous l'application de forces de contact importantes, la pointe s'est déformée. On peut également voir en bout de pointe la présence d'impuretés. La pointe est polluée en surface. Droite : Image du bout de la pointe. Il semble d'après la taille du bout de la pointe et par comparaison avec celle obtenue image 1.10 que celui a d'abord été cassé puis déformé. En effet le bout semble plat d'une taille d'environ 200x200 nm^2. On peut de plus voir la fracture du tungstene lors de la déformation (tranchée sombre).

importante sur la pointe afin d'établir le contact.

En conclusion, l'Au apparaît comme le métal le plus adapté pour réaliser un contact électrique. Il est noble donc ne s'oxyde pas et il peut être soudé. Cependant le métal déposé lors de la fabrication sert à la fois d'électrode supérieure mais aussi de masque dur. Il doit alors résister à la gravure. La vitesse de gravure de l'Au est parmi les plus élevées qui existent. Des matériaux comme le Ti ou le Ta sont généralement utilisés comme masque de gravure. Notre choix s'est alors porté sur le dépôt d'un masque Au^{bas}/Ti^{haut} dont les épaisseurs de chaque couche sont déterminées afin que tout le Ti soit gravé en fin de gravure et que l'Au seul reste en surface. Un défaut connu de l'Au est sa capacité à diffuser dans d'autres matériaux ce qui en proscrit l'usage dans le domaine des semi-conducteurs par exemple. Nous n'avons eu aucun problème de ce coté là.

1.4 Méthodes générales de mesures

1.4.1 Protocole expérimental pour les mesures de signaux magnétorésistifs

1.4.1.1 Mesure R(H)

La mesure d'un cycle magnétorésistif se fait à l'aide d'un courant constant et d'un champ variable. Lorsque le champ appliqué est supérieur au champ coercitif de la couche douce et est orienté dans le sens contraire de son aimantation, celle-ci se retourne faisant passer le système de l'état parallèle à anti-parallèle (ou inversement). L'application d'un courant constant et la mesure de la tension correspondante permet la détection de cette variation de résistance. Cependant le circuit électrique baignant dans le champ appliqué, une force électromotrice d'induction apparaît dans le circuit électrique. Elle est

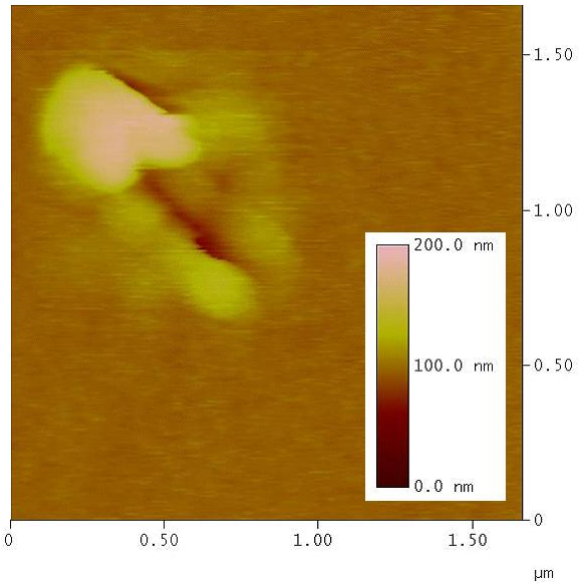

Fig. 1.12 – Dépôt d'Au résiduel d'une soudure sur une surface de Ti.

due à la variation du flux du champ magnétique à travers le circuit électrique. Afin de s'en affranchir il est nécessaire de la mesurer sans courant appliqué. Ainsi, la tension magnétorésistive est nulle et seule reste la tension d'induction.

De manière pratique on cherche, sans appliquer de champ magnétique, un contact stable en appliquant un courant faible et constant. En mesurant la tension aux bornes de la source de courant, on en déduit la résistance de contact. Lorsque celle-ci atteint la valeur typiquement obtenue pour le système « pointe AFM - électrode supérieure » considéré, le contact est établit. On acquière alors, sans appliquer de courant mais sous champ magnétique variable, le signal d'induction. Ce signal est soustrait de toutes les mesures suivantes obtenues en appliquant le même champ magnétique variable et un courant constant. Si la forme du champ magnétique est triangulaire, la vitesse de balayage du champ est constante. Ceci donne néanmoins un signal d'induction carré, similaire au signal de magnétorésistance. S'affranchir de l'induction par cette méthode de soustraction est donc très important. L'acquisition se fait à une fréquence de 200 kéch/s, pour une fréquence de variation du champ magnétique de 2Hz. Cette dynamique permet d'observer si le retournement d'une couche est abrupte ou si il se fait par sauts successifs (piégeages de domaines dans la couche).

1.4.1.2 Mesure V(I)

Les mesures V(I) sont obtenues en injectant un courant de forme triangulaire à la fréquence de 20 Hz et en faisant l'acquisition des tensions aux bornes du système et de la résistance de mesure (figure 1.1) pendant 1 à 5 secondes suivant la stabilité du contact. En fixant la fréquence de génération - acquisition des cartes à 32 kéch/s, on obtient un nombre entier de points par période de signal généré - acquis, égal à 1600. Ceci permet d'acquérir à chaque période les « mêmes » tensions, c'est à dire celles correspondantes à une même valeur d'intensité. Elles ne diffèrent entre elles qu'à cause du bruit de mesure. Une moyenne pour chacune des valeurs de courant est alors facilement

réalisable et diminue ainsi le bruit de la mesure. J'insiste sur le fait que cette moyenne est une moyenne de mesure qui ne dénature pas l'information. Elle n'est absolument pas comparable à une moyenne glissante, qui elle déforme l'information contenue dans un signal. La fréquence importante de variation du courant (20 Hz) permet, si on le souhaite, de faire varier lentement le champ magnétique (0.5 Hz). On perd cependant la possibilité de faire une moyenne en champ des signaux acquis. En revanche on peut connaître l'évolution des courbes I(V) en fonction du champ magnétique appliqué.

1.4.2 Protocole expérimental pour les mesures de valeurs GMR ou TMR faibles

Cette partie a pour but d'expliquer le protocole expérimental servant à mesurer de faibles signaux magnétorésistif tels des signaux TMR ou GMR. Des mesures CIP (courant dans le plan) ont été réalisées sur une vanne de spin métallique. La méthode proposée consiste à détecter dans la Transformée de Fourier (TF) du signal de tension les pics caractéristiques du signal de MR supposé carré en fonction du temps. La mesure des amplitudes du fondamental et des deux premières harmoniques permet de connaître la valeur de la MR et du champ de décalage.

1.4.2.1 Base théorique :

La seule hypothèse de cette technique est que le passage de l'état parallèle à l'état anti-parallèle est abrupt. Le signal de tension mesuré lorsqu'un courant constant traverse le système soumis à un champ magnétique sinusoïdal de fréquence f_1 est, dans ce cadre théorique, de type créneau. La fréquence de ce signal est f_1. Le rapport cyclique est donné par la position relative des champ de retournements $H_{h\to b}$ et $H_{b\to h}$ ("b" = bas, "h" = haut) par rapport à la valeur moyenne du champ appliqué. Ceci est représenté schématiquement figure 1.13. Dans cet exemple, les champs coercitifs sont pris égaux à : $\mathrm{H}_{h\to b}$ = 100 Oe et $\mathrm{H}_{b\to h}$ = -100 Oe. Bien que la position des champs coercitifs ne soit pas modifiée par le changement de l'offset de champ, le signal de résistance au cours du temps $R(t)$ est différent. La valeur d'offset de la sinusoïde de champ modifie le rapport cyclique du signal $R(t)$.

La transformée de Fourrier d'un signal carré $s(t)$ de rapport cyclique d et d'amplitude A s'écrit :

$$s(t) = \sum_n A_n sin(nwt) \tag{1.1}$$

$$A_n = \frac{2A}{n\pi}\sin(n\pi d) \tag{1.2}$$

Les évolutions du fondamental et des deux premières harmoniques en fonction du rapport cyclique[3] d sont représentées figure 1.14 à gauche. Les amplitudes des harmoniques dépendent fortement du rapport cyclique. Elles sont égales pour des valeurs de

[3]Le rapport cyclique désigne, pour un phénomène périodique, le ratio entre la durée du phénomène sur une période et la durée de cette même période. Dans le cas d'un signal créneau, on peut définir le rapport cyclique comme le rapport entre le temps à l'état haut du signal pendant une période et la période du signal.

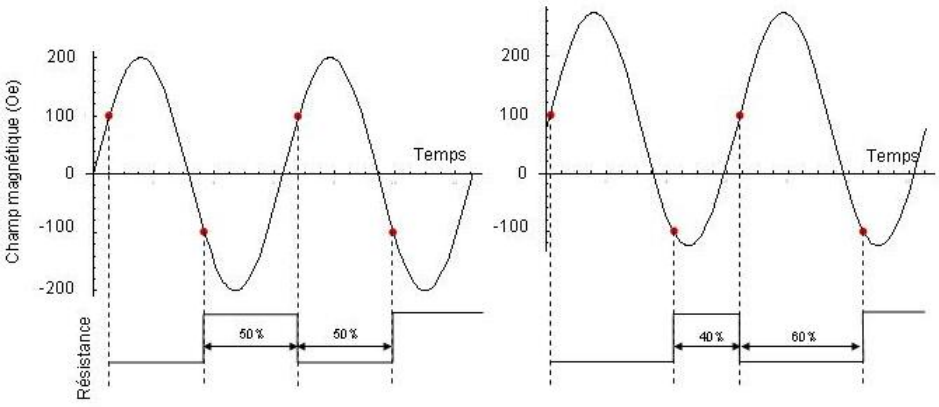

Fig. 1.13 – Représentation schématique de l'influence d'un offset de champ sur le rapport cyclique du signal $R(t)$.

d symétriques par rapport à $d = 0.5$. En d'autres termes, deux signaux carré de rapports cycliques respectivement $d = 0.7$ et $d = 0.3$ ont le même spectre d'amplitude en fréquence. Afin de déterminer si d est supérieur ou inférieur à 0.5, il est nécessaire de connaître l'orientation de la couche dure et le sens du champ magnétique appliqué. Dans ce cas on peut connaître a priori quel état magnétique est obtenu pour tel ou tel sens de champ et ainsi connaître où se situe d par rapport à 0.5. Malgré tout, la détermination du champ de décalage et de l'amplitude du saut de MR présentée dans la suite de ce paragraphe ne nécessite pas de savoir si d est supérieur ou inférieur à 0.5. On se limitera donc dans la suite à des valeurs de d comprises entre 0 et 0.5.

Seules les amplitudes du fondamental et de la première harmonique sont nécessaires afin de décrire complètement le système. Ceci est justifié au regard de la figure 1.14 de droite. Elles représente l'évolution du rapport A_2/A_1 en fonction de d. On remarque qu'à une valeur de rapport donnée comprise entre 0 et 0.5, il n'existe bien qu'une seule solution pour d (1.3). A est alors calculé connaissant d et A_1 (1.4).

$$d = \frac{1}{\pi}\arccos(\frac{A_2}{A_1}) \tag{1.3}$$

$$A = \frac{\pi A_1}{2\sin(\pi d)} \tag{1.4}$$

Cependant quand d se situe autour de 0.5, l'amplitude de A_2 est faible (le rapport A_2/A_1 théorique tend vers 0) et peut passer en dessous du bruit de mesure. Ce bruit de mesure définit la limite haute de résolution. Utiliser l'amplitude de la seconde harmonique A_3 peut alors être intéressant car pour d proche de 0.5, son amplitude se situe autour d'un maximum (figure 1.14 de gauche). La figure 1.14 de droite représente l'évolution du rapport A_3/A_1 en fonction de d. Il existe toujours deux solutions pour d lorsque le rapport A_3/A_1 est inférieur à 1/3. Cependant, en cherchant d proche de 0.5 une des deux

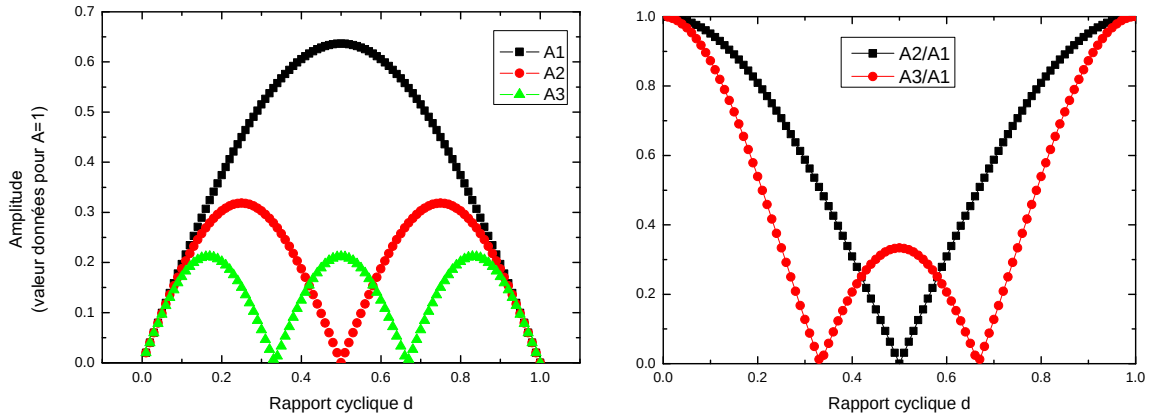

Fig. 1.14 – Gauche : Évolution des amplitudes du fondamental et des deux premières harmoniques d'un signal carré en fonction du rapport cyclique d. Les amplitudes sont données pour une amplitude du signal carré A=1. Droite : Évolution des amplitudes des deux premières harmoniques normées par l'amplitude du fondamental.

solutions peut être éliminée. d est alors donné par le système (1.5).

$$\begin{cases} d = \dfrac{1}{2\pi} \arccos[\dfrac{1}{2}(\dfrac{3A_3}{4A_1} - 1)] \\ d \in [0.33; 0.5] \end{cases} \tag{1.5}$$

L'amplitude du signal carré A se déduit comme précédemment de A_1 connaissant d (1.4).

En résumé, le saut en résistance et la valeur du champ de décalage d'un signal R(H) peuvent être obtenus par l'étude des amplitudes des pics présents dans la TF du signal R(t) mesuré sous champ sinusoïdal, en se limitant au fondamental et aux deux premières harmoniques. Cette méthode repose sur l'hypothèse d'un retournement rapide de l'aimantation qui se traduit par un saut abrupt de la résistance (cycles carrés). A la question « est il possible de vérifier a posteriori cette hypothèse par l'observation des harmoniques supérieures ? », la réponse est non, me semble-t-il. En effet cette technique est proposée pour la mesure de faible signaux, comme nous le verrons par la suite, où seules les premières harmoniques (1er et 2ème typiquement) ressortent du bruit. Il me semble dans ces conditions impossible de vérifier si le cycle est carré sachant que ce sont les harmoniques supérieures qui décrivent les variations rapides du signal.

1.4.2.2 Les paramètres d'acquisition et leurs justifications :

Les paramètres d'acquisition du signal de résistance (plus précisément l'acquisition des signaux de tension et d'intensité en fonction du temps) doivent permettre le calcul correct de la transformée de Fourier.

La fréquence d'échantillonnage définit la gamme de fréquences étudiée (critère de Shannon). Par exemple pour une fréquence d'échantillonnage de 100 kéch/s, le spectre

fréquentiel obtenu par TF va de 0 à 50 kHz.

Le temps d'acquisition τ_{acq} donne la résolution fréquentielle : $\Delta f = \frac{1}{\tau_{aqc}}$. Nous nous intéressons ici à l'amplitude des pics de fréquence et non à leur forme. Une résolution fréquentielle de l'ordre du Hz est, dans notre cas, suffisante. Cette valeur est compatible avec les temps parfois courts durant lesquels le contact entre la pointe et la surface ne varie pas. Le temps d'acquisition a donc été choisi égal à une seconde. La fréquence du champ magnétique appliqué, et par conséquent celle du signal de résistance R(t), est choisie égale à 8 Hz. Ceci permet d'une part d'avoir un nombre entier de périodes de signal acquis, une condition nécessaire pour ne pas générer dans la transformée de Fourier un "bruit" purement numérique (cf. annexe 1). D'autre part, cette valeur de fréquence est suffisamment élevée pour que le pic correspondant dans le spectre de fréquence soit distinct du large pic dû à la composante continue ou très lentement variable du signal R(t). De plus, des fréquences trop élevées du champ magnétique génèrent un signal d'induction important (son amplitude est proportionnelle à la fréquence). Enfin une fréquence de 8 Hz permet d'obtenir les 5 premières harmoniques du signal avant que le spectre ne soit pollué par le bruit à 50Hz du secteur.

1.4.2.3 Exemple : mesure Courant dans le Plan (CIP) d'un empilement GMR

Les mesures présentées ci-après ont été obtenues sur une vanne de spin à aimantation planaire, en soudant deux contacts à sa surface (dont un entre la pointe AFM et la surface). Ce sont donc des mesures CIP en deux points. La figure 1.16 donne les signaux R(t) obtenus pour un courant de 300 μA et un champ planaire sinusoïdale de fréquence 8 Hz d'amplitude 200 Oe et d'offset variable. Comme nous l'avons vu dans la partie 2 l'offset de champ modifie le rapport cyclique du signal créneau périodique. On remarque tout d'abord un décalage vertical entre les deux premières mesures (signaux noir et rouge) et la dernière mesure (signal vert). Ce décalage est simplement dû à une variation de la résistance de contact qui n'a aucune influence sur l'amplitude du saut en résistance. Celui-ci est d'environ 0.35 Ω. La figure 1.15 donne les cycles magnétorésistifs R(H) pour chaque offset de champ appliqué. On retrouve pour chacune des trois valeurs d'offset le même cycle de champ (champ de décalage, amplitude du saut), ainsi que le décalage vertical de la résistance pour la troisième mesure. Seules les gammes de champ balayé diffèrent.

Ces mêmes mesures effectuées avec un courant de 3 μA (figure 1.17) ne sont pas exploitables en l'état. En effet le signal obtenu est très bruité et aucun saut net de résistance n'est visible. Cependant l'information de la transition magnétique est bien contenue dans les signaux. Pour l'obtenir, il faut passer dans l'espace des fréquences en utilisant la technique décrite précédemment.

Les graphes figure 1.18 montrent les TF des signaux obtenus avec des courants de 3 μA et 300 μA. Le bruit de ces deux acquisitions est pratiquement le même : 60 nV/$\sqrt{Hz}$ pour un courant de 3 μA et 120 nV/$\sqrt{Hz}$ pour un courant de 300 μA. La différence provient du fait que la gamme de courant utilisée n'est pas la même. L'amplitude des pics en tension est, elle, différente. En effet pour le fondamental, elle est de l'ordre (car dépendant du rapport cyclique donc de l'offset de champ) du produit du saut de résistance (0.3 Ω d'après la figure 1.15) par le courant injecté (cf. équation 1.2). Pour un courant 100 fois plus faible, l'amplitude du fondamental sera 100 fois plus petite. Pour 300 μA, l'amplitude du fondamental à détecter est de l'ordre de 90 μV = 300 μA x 0.3 Ω et elle

Champ	A_1 $\pm 5.10^{-3}$	A_2 $\pm 5.10^{-3}$	A_3 $\pm 5.10^{-3}$	d	A
+14 Oe	0.230	/	0.075	$0.48 \in [0.45; 0.50]$	$0.36 \in [0.35; 0.37]$
+33 Oe	0.190	0.090	0.015	$0.66 \in [0.65; 0.67]$	$0.34 \in [0.32; 0.36]$
-20 Oe	0.130	0.100	0.070	$0.22 \in [0.19; 0.25]$	$0.32 \in [0.27; 0.37]$

TAB. 1.4 – Amplitude A_n des composantes en fréquence des signaux de la figure 1.17, en fonction de l'offset de champ magnétique appliqué. Les valeurs de d et de A sont calculées à partir des rapports des amplitudes mesurées A_2/A_1 (d$\neq$0.5) et A_3/A_1 (d$\approx$0.5).

est 100 fois plus faible pour 3 μA. Plus le courant est faible plus le signal de tension à détecter est proche du niveau de bruit. Une normalisation des signaux de tension par le courant donne alors un bruit en résistance plus important pour 3 μA (fig1.18). Cette normalisation est cependant nécessaire. C'est elle qui permet de comparer les résultats obtenus avec les deux courants et de remonter à la valeur du saut en résistance.

Comme attendu les TF des signaux R(t) obtenus avec les deux courants différents (R(t)=V(t)/I) sont équivalentes (figure 1.18) pour un même offset de champ. Les amplitudes du fondamental et des premières harmoniques sont reportées tableau 1.4. Un saut en résistance de 0.35 Ω, équivalent à celui trouvé figure 1.15, est mesuré par cette méthode. Le champ de décalage est obtenu lorsqu'en balayant l'offset de champ, l'amplitude de la première harmonique devient inférieure au niveau de bruit. Dans ce cas, le rapport cycle est proche de 0.5 ce qui correspond à un cycle R(H) symétrique centré autour du champ de décalage. Le champ mesuré est, pour cet échantillon, d'environ 14 Oe. On retrouve le champ de décalage de la figure 1.15.

Un gain d'un facteur 100 sur la sensibilité a donc été obtenu par rapport à une mesure classique R(H). Ceci est utile lorsque les signaux de MR sont très faibles ou que l'application d'un courant important est impossible car il modifie le système étudié. Par cette méthode, la variation en résistance détectable normée par le courant utilisé est d'environ 10^{-6} $\Omega.A$. Cette valeur correspond à 10 fois le bruit en tension de notre mesure. Nous n'avons pas eu besoin de cette technique pour les mesures sur les empilements Fe/MgO/Fe présentées dans la suite car les valeurs de MR et de RA sont très élevées. Cette technique sera néanmoins utile dans ce contexte lorsque les épaisseurs de MgO seront diminuées (MR et RA faibles).

1.5 Conclusion

Au cours de cette thèse expérimentale, j'ai développé un dispositif de mesure de conductivité sous pointe AFM. Il permet de caractériser électriquement des échantillons de taille nanométrique. La possibilité d'appliquer un champ magnétique lorsque le contact électrique est établi, permet une caractérisation électrique d'empilement magnétique comme les JTM Fe/MgO/Fe étudiés dans cette thèse.

Nous avons vu au cours de ce chapitre les difficultés relatives à un contact électrique de bonne qualité entre la pointe AFM et une surface métallique. Un couple pointe AFM - métal constituant la surface a été dégagé, permettant d'obtenir des résistances de contact faibles de l'ordre de 3 Ω et peu fluctuantes. Il s'agit du couple pointe entièrement tungstène - Au. Nous avons, de plus, proposé une méthode permettant de mesurer les sauts

de résistance ainsi que les champs de décalages d'empilements magnétorésistifs dont le RA est faible. Cette méthode, combinée avec les caractéristiques de l'instrumentation développée, permet de mesurer des sauts de résistance normés par le courant injecté de l'ordre de 10^{-6} $\Omega.A$. Pour fixer les idées, cette méthode permet de détecter en 1 seconde un saut de magnétorésistance de 10^{-3} Ω en appliquant 1mA à travers le système.

D'une manière plus générale, ce dispositif expérimental peut être utilisé afin de caractériser électriquement des nano-objets ou nano-particules. Il est de plus, plus souple que les techniques conventionnelles utilisées telle la technique d'encapsulation. Les nano-piliers qui ont été étudiés et qui seront présentés dans les paragraphes suivants sont de tailles importantes (3x20 μm^2), bien que trop petits pour être directement contactés par micro soudure. L'instrumentation développée n'a donc pour l'instant pas été pleinement exploitée. Néanmoins les caractéristiques I(V) de nano-piliers de Fe/MgO/Fe, de taille aussi petite que 40x60 nm^2, ont été mesurés[4]. Les possibilités offertes par ce dispositif expérimental sont donc importantes. Il peut être utilisé pour mesurer des systèmes bien différents du système Fe/MgO/Fe, comme par exemple une nano-particule unique au sein d'une matrice dense.

Dans ce sens, des échantillons obtenus par voie chimique et constitués par une assemblée de nano-bâtonnets de Co sont en cours de fabrication et de caractérisation magnétique (LPCNO-CEMES). Le dispositif expérimental développé durant cette thèse ainsi que la méthode proposée pour détecter des faibles MR seront particulièrement intéressants pour mesurer les propriétés électroniques dépendant de spin d'un nano-bâtonnet unique. Leur taille est en effet inférieure à 10 nm avec un espacement entre bâtonnet inférieur à 20 nm. Le bout d'une pointe AFM peut être retaillé par FIB, donnant un rayon en bout de pointe allant de 4 nm, avant utilisation [73], à 25 nm, après des dizaines d'heures d'utilisation [75]. Il serait alors possible de contacter la pointe sur un nano-bâtonnet unique sans toucher ses voisins.

[4]La non-linéaires de ces caractéristiques, typique des JTM, a été obtenue. Ces mesures ne sont pas montrées dans cette thèse car les échantillons ne présentaient pas de magnétorésistance.

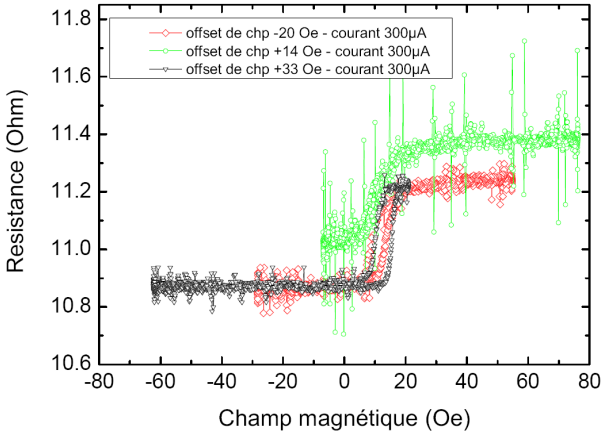

Fig. 1.15 – Cycles R(H) obtenus pour différentes valeurs d'offset de champ, pour un courant de 300 μA. L'empilement est $Ta_{50}/Py_{30}/IrMn_{70}/Co_{30}/Cu_{25}/Co_{10}/Py_{40}/Pt_{20}/Au$ où les épaisseurs sont exprimées en Å. Le champ de décalage est d'environ 15 Oe et le saut de résistance de 0.35 Ω.

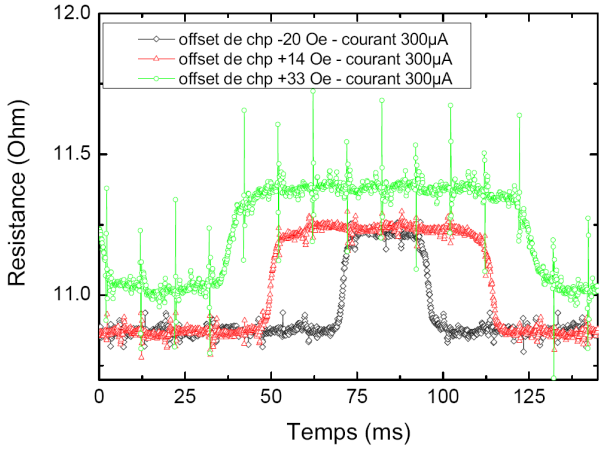

Fig. 1.16 – Signaux R(t) donnant les cycles magnétiques de la figure 1.15. Le courant appliqué est donc égal à 300 μA. Le rapport cyclique des signaux carré obtenus est différent car l'offset de champ n'est pas le même.

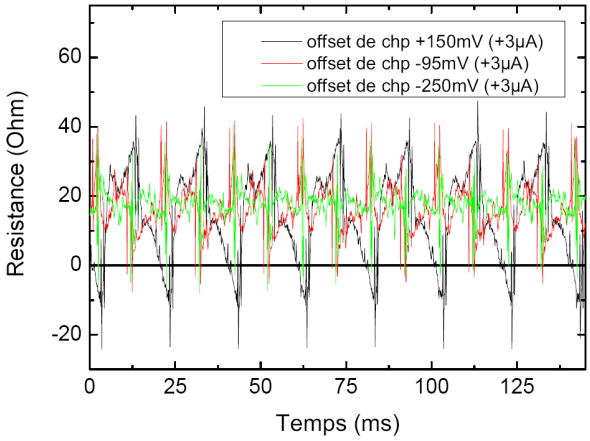

Fig. 1.17 – Signaux R(t) mesurés pour les mêmes offset de champ que ceux de la figure 1.16 avec un courant de 3 μA. Le temps d'acquisition est le même qu'à la figure 1.16. Les variations observées sont dues au bruit 50Hz. Les signaux sont inexploitables en l'état.

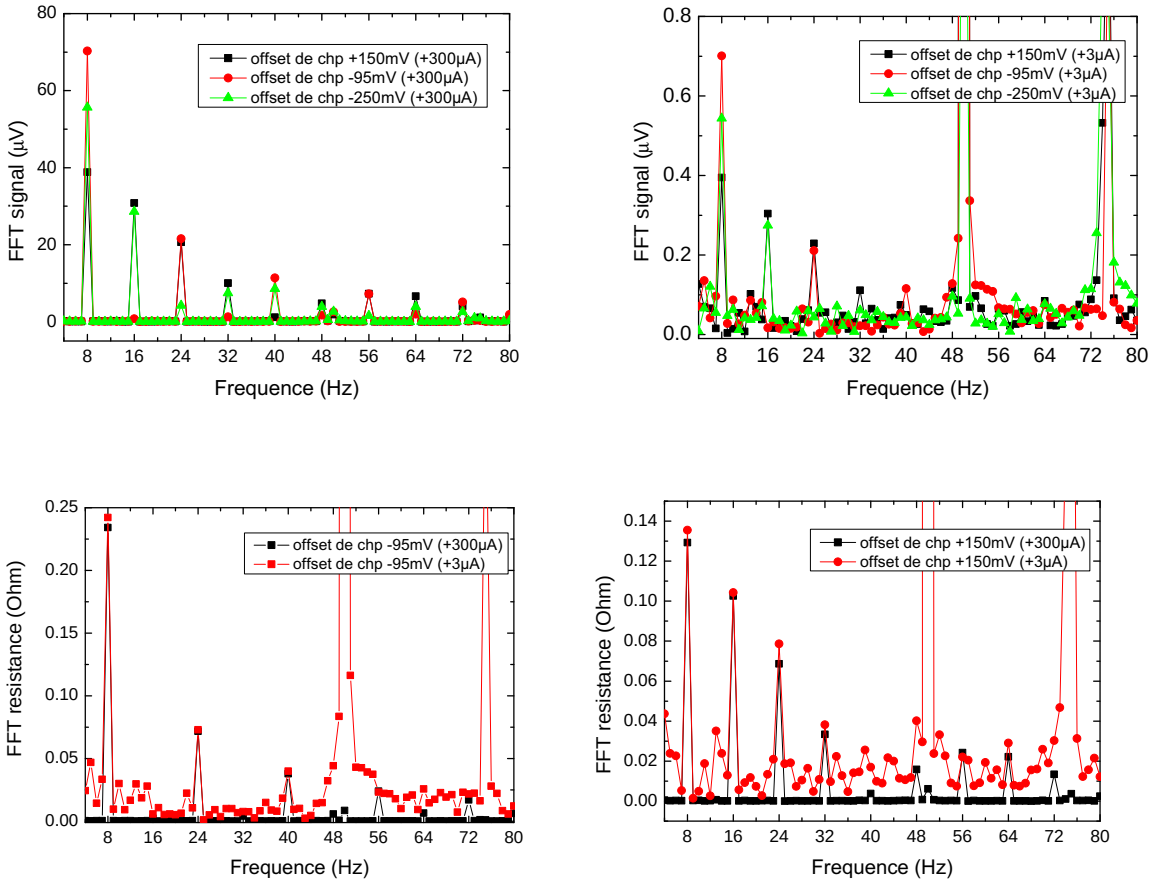

Fig. 1.18 – Comparaison des TF des signaux obtenus avec des courants de 300 μA et 3 μA. Figures du haut : TF des signaux de tension. Figures du bas : comparaison des spectres après normalisation par le courant injecté pour un offset de champ de 14 Oe (gauche) et -20 Oe (droite).

Chapitre 2

Transport dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe(100)

Le transport dépendant du spin est gouverné par la compétition entre la transmission des électrons majoritaires et celle des électrons minoritaires, d'une électrode ferromagnétique vers un isolant. Les premières expériences étudiant ce transport sont celles réalisées par Tedrow et Meservey sur un système Ferro/Isolant/Supra [63, 64]. Ils ont mesuré la polarisation de spin d'un courant tunnel, polarisé par l'électrode ferromagnétique et se propageant à travers une barrière d'alumine amorphe jusque dans le matériaux supraconducteur.

Le phénomène de magnétorésistance tunnel (TMR) a été pour la première fois observé expérimentalement par Jullière en 1975 [30]. Il est la manifestation du transport dépendant de spin dans les jonctions tunnel magnétiques (JTM). Jullière a expliqué la relation entre la polarisation en spin du courant et la TMR à l'aide d'un modèle simple, en supposant que cette polarisation est essentiellement déterminée par la polarisation en spin des densités d'états des électrodes ferromagnétiques au niveau de Fermi.

Bien que ce modèle explique de nombreux résultats expérimentaux, il est trop simple pour pouvoir les décrire tous. Par exemple, il ne peut expliquer la forte dépendance des propriétés de transport des JTM (épitaxiées ou obtenues par pulvérisation suivie d'un recuit) à la qualité structurale des interfaces. Monsma et Parkin ont, par exemple, montré l'augmentation de la polarisation de spin avec l'amélioration de la qualité structurale d'une barrière d'alumine et de son interface avec l'électrode ferromagnétique [46]. De plus, les expériences menées par LeClair *et al.* ont montré le rôle important joué par la structure électronique aux interfaces métal/barrière dans le transport dépendant du spin [39, 38]. Enfin, De Teresa *et al.* ont montré que la polarisation de spin dépend de la barrière isolante choisie. Ils ont en effet observé une polarisation en spin négative du Co pour une barrière de $SrTiO_3$ [18] alors que celle-ci est positive pour une barrière d'Al_2O_3. La polarisation en spin est donc une propriété de la JTM totale et non pas seulement des électrodes ferromagnétiques. Elle dépend de la qualité structurale et des propriétés électroniques des électrodes, des interfaces et de la barrière.

De récents travaux montrent que le transport tunnel dépendant du spin dans les systèmes épitaxiés peut être décrit par les symétries des états de Bloch dans les électrodes ferromagnétiques ainsi que par les bandes complexes associées à ces symétries dans la barrière [41, 42].

En prenant comme système les JTM Fe/MgO/Fe (100), je me propose dans ce chapitre d'expliquer brièvement les bases de cette description en états de Bloch et ses conséquences. Nous verrons ainsi les résultats sur le transport électronique prédis dans le système Fe/vide/Fe puis dans le système Fe/MgO/Fe. Ils permettent de mieux comprendre à la fois le rôle des électrodes mais aussi de la barrière isolante. Enfin nous verrons les changements dans le transport électronique induits par la modification structurale et chimique des interfaces.

2.1 Premières théories du transport tunnel dans des JTM

2.1.1 Électrodes ferromagnétiques : Modèle de Jullière

Le modèle de Jullière est basé sur deux hypothèses. La première est qu'il suppose que le spin des électrons est conservé à la traversée de la barrière tunnel. Cela implique que le transport par effet tunnel s'effectue selon deux canaux distincts : un courant d'électrons de spin majoritaire et un courant d'électrons de spin minoritaire[1]. D'après cette hypothèse, un électron de l'électrode de gauche est accepté dans un état vide ayant la même orientation de spin dans l'électrode de droite. Si les deux aimantations sont parallèles, on considère alors les canaux [$\uparrow$ vers $\uparrow$] et [$\downarrow$ vers $\downarrow$] La dénomination $\uparrow$ désigne les électrons majoritaires dans une électrode. Ils ont leur spin dans la même direction que l'aimantation de l'électrode. La dénomination $\downarrow$ désigne les électrons minoritaires (spin de sens opposé à l'aimantation). Dans la configuration anti-parallèle, ce sont les canaux [$\uparrow$ vers $\downarrow$] et [$\downarrow$ vers $\uparrow$] qui sont à considérer.

La seconde hypothèse de Jullière consiste à considérer que la conductance pour un état magnétique donné est proportionnelle au produit des densités d'états électroniques (DOS[2]) de chaque électrode ferromagnétique. Jullière ne prend donc pas en compte dans son modèle l'influence de la barrière tunnel. Ainsi les conductances pour les états magnétiques P (parallèle) et AP (anti-parallèle) s'écrivent :

$$\begin{aligned} G_p &\propto n_1^{\uparrow} n_2^{\uparrow} + n_1^{\downarrow} n_2^{\downarrow} \\ G_{ap} &\propto n_1^{\uparrow} n_2^{\downarrow} + n_1^{\downarrow} n_2^{\uparrow} \end{aligned} \tag{2.1}$$

Les DOS sont notées n_j^i, où i désigne l'orientation de spin ($\uparrow$ ou $\downarrow$) et j l'électrode considérée (1 pour l'électrode à gauche de la barrière et 2 pour celle à droite). La différence entre ces deux conductances est à l'origine, dans ce modèle, des valeurs non nulles de TMR. La magnétorésistance (MR) et par extension dans le cas d'une JTM, la TMR, s'exprime comme :

$$TMR = \frac{G_p - G_{ap}}{G_{ap}} = \frac{(n_1^{\uparrow} n_2^{\uparrow} + n_1^{\downarrow} n_2^{\downarrow}) - (n_1^{\uparrow} n_2^{\downarrow} + n_1^{\downarrow} n_2^{\uparrow})}{n_1^{\uparrow} n_2^{\downarrow} + n_1^{\downarrow} n_2^{\uparrow}} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \tag{2.2}$$

P_j est la polarisation du courant dans chacune des électrodes au niveau de Fermi. Elle est donnée par la différence entre les DOS des électrons majoritaire et minoritaires normalisée

[1] Un tel modèle à deux courants a déjà été employé pour décrire le phénomène de GMR.
[2] La notation DOS provient de l'anglais Density Of States.

par la somme de ces deux DOS :

$$P_j = \frac{n_j^{\uparrow} - n_j^{\downarrow}}{n_j^{\uparrow} + n_j^{\downarrow}} \tag{2.3}$$

Ce modèle proposé par Jullière montre le lien qui peut exister entre la polarisation du courant et la TMR. Il est à noter que ces expressions de la TMR et de la polarisation sont en fait bien plus générales. En effet à partir du moment où les conductances peuvent être exprimées comme le produit de deux quantités caractéristiques de chacune des deux électrodes, les expressions 2.2 et 2.3 sont obtenues.

Dans le modèle des électrons libres à 1D[3], la densité d'état d'une bande pour une énergie donnée est proportionnelle au vecteur d'onde associé à cette énergie. Ainsi la polarisation utilisée par Jullière se ré-écrit sous la forme :

$$P_i = \frac{k_i^{\uparrow} - k_i^{\downarrow}}{k_i^{\uparrow} + k_i^{\downarrow}} \tag{2.4}$$

Cette nouvelle expression pour la polarisation dans le milieu i ne modifie en rien l'expression trouvée pour la TMR. Il est cependant bon de faire remarquer que toutes les expressions trouvées dans ce paragraphe ne sont valables que pour le système en équilibre c'est à dire sans tension appliquée. En effet lorsqu'une tension est appliquée, les deux niveaux de Fermi se décalent. Les électrons participant aux transports tunnels sont donc l'ensemble des électrons de l'électrode 1, dont l'énergie est comprise entre celle des deux niveaux de Fermi. Une intégration est nécessaire sur tous les électrons participant. Ce n'est que lorsque le système est à l'équilibre que seuls les électrons (et les états vides) au niveau de Fermi traversent la barrière tunnel donnant les résultats trouvés précédemment.

Jullière ne prend pas en compte l'influence de la barrière tunnel sur le transport. La première approche théorique de la magnétorésistance tunnel considérant un rôle joué par la barrière fut faite par Slonczewski en 1989 [59].

2.1.2 Présence d'une barrière isolante : Modèle de Slonczewski

Considérons le système constitué de deux matériaux métalliques magnétiques séparés par un isolant non magnétique. La barrière de potentiel ressentie par les électrons circulant du milieu (1) vers le milieu (2) est supposée de profil rectangulaire. En supposant les électrons comme étant libres, la bande de conduction est de forme parabolique. Les matériaux étant magnétiques, il existe une bande de conduction pour chacune des deux orientations de spin notée σ ($\uparrow$ ou $\downarrow$). Elles sont décalées d'une valeur ($V^{\uparrow}$-$V^{\downarrow}$) appelée l'échange. $V^{\uparrow(\downarrow)}$ représente le potentiel ressenti par les électrons de spin $\uparrow$ ($\downarrow$).

Un électron de spin σ se propageant du milieu 1 vers le milieu 2, passe par effet tunnel à travers la barrière et ressent successivement les potentiels V_1^{σ}, V_B, V_2^{σ}, où V_B est le potentiel dans la barrière. Un électron en incidence quelconque sur la barrière a son

[3]Pour des barrières de JTM épaisses, les principaux électrons participant au transport tunnel sont ceux dont le $\vec{k}$ est orienté selon l'axe perpendiculaire aux interfaces. Considérer le système comme unidimensionnel est dans ce cas une approximation raisonnable.

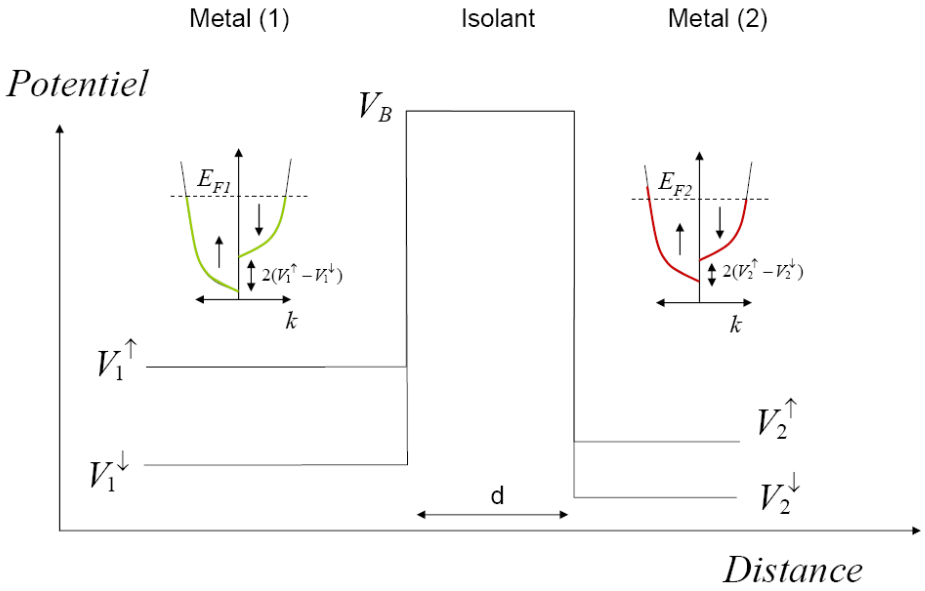

Fig. 2.1 – Potentiel ressenti par un électron dans un système de deux électrodes métalliques ferromagnétiques séparées par un isolant non magnétique.

vecteur d'onde qui se décompose comme $\vec{k} = \vec{k}_z + \vec{k}_{||}$ où $\vec{k}_z$ et le vecteur d'onde projeté sur l'axe perpendiculaire à l'interface et $\vec{k}_{||}$ est la projection sur le plan tangent à l'interface.

En l'absence de désexcitation dans l'électrode d'arrivée, l'énergie totale E d'un électron est conservée (absence de chocs inélastiques) ainsi que $\vec{k}_{||}$ (absence de choc élastique ou inélastique) . Pour E et $k_{||}$ fixés, le vecteur d'onde k_z s'écrit dans le milieu (1)

$$k_1^{\sigma} = \sqrt{(2m/\hbar^2)(E - V_1^{\sigma}) - k_{||}^2} \tag{2.5}$$

et à l'interface dans le milieu (2) avant sa désexcitation

$$k_2^{\sigma} = \sqrt{(2m/\hbar^2)(E - V_2^{\sigma}) - k_{||}^2} \tag{2.6}$$

Dans la barrière, l'onde associée à l'électron est évanescente de vecteur d'onde complexe de norme :

$$\kappa = \sqrt{(2m/\hbar^2)(V_B - E) + k_{||}^2} \tag{2.7}$$

En notant d l'épaisseur de la barrière, la probabilité de transmission de (1) vers (2) en fonction de $k_{||}$ s'écrit alors [59, 40] :

$$T_{12}^{\sigma\sigma'}(k_{||}) = \frac{16\ k_1^{\sigma} k_2^{\sigma'} \kappa^2\ e^{2d\kappa}}{\kappa^2(k_1^{\sigma} + k_2^{\sigma'})^2(1 + e^{2d\kappa})^2 + (\kappa^2 - k_1^{\sigma} k_2^{\sigma'})^2(1 - e^{2d\kappa})^2} \tag{2.8}$$

On remarque tout d'abord que le coefficient de transmission dans la barrière dépend de la composante perpendiculaire aux interfaces des vecteurs d'onde, notée k_z, c'est à dire de la différence entre l'énergie cinétique suivant z d'un électron incident et le potentiel de barrière. Ainsi pour une énergie totale donnée, la transmission est plus ou moins

importante suivant l'orientation de $\vec{k}$ (donc de la valeur de $k_{||}$). Les électrons dont $k_{||}$=0 ont la plus grande probabilité de traverser la barrière.

En supposant la barrière comme épaisse ($e^{(2\kappa d)} >> 1$) la transmission à travers la barrière tunnel peut se ré-écrire sous la forme :

$$T_{12}^{\sigma\sigma'}(k_{||}) = \frac{16\ k_1^{\sigma} k_2^{\sigma'} \kappa^2\ e^{-2d\kappa}}{\kappa^2(k_1^{\sigma} + k_2^{\sigma'})^2 + (\kappa^2 - k_1^{\sigma} k_2^{\sigma'})^2} \tag{2.9}$$

On utilise la formule de Landauer-Büttiker qui exprime la conductance comme une somme sur tous les canaux en parallèle [14, 34] :

$$G = \frac{e^2}{(2\pi)^3\hbar} \int T_{12}^{\sigma\sigma'}(k_{||}) d\vec{k}_{||} \tag{2.10}$$

Par intégration de 2.10 sur $k_{||}$ et en ne gardant que les termes dominants en $1/d$, Slonczewski obtient une expression pour la conductance tunnel dynamique égale, selon nos notations, à [59] :

$$G = \frac{e^2}{8\pi^2\hbar} \frac{\kappa_0}{d} T_{12}(0) \tag{2.11}$$

κ_0 est le vecteur d'onde κ, dans la barrière, d'un électron dont $k_{||}$=0. Cette expression de G est obtenue pour une énergie donnée. La conductance totale est calculée en considérant l'ensemble des électrons participant au transport. C'est à dire les électrons de l'électrode (1) dont l'énergie est supérieure à l'énergie de Fermi de l'électrode (2). En supposant les niveaux de Fermi des deux électrodes différents, la conductance tunnel est donnée par l'intégrale de 2.11 sur l'énergie E (E$\in [E_{F2},\ E_{F1}]$).

Lorsqu'aucune tension n'est appliquée sur le système, et en considérant les deux électrodes comme identiques, $V_1^{\uparrow(\downarrow)} = V_2^{\uparrow(\downarrow)}$, pour une même énergie E et un même $k_{||}$ on a $k_1^{\uparrow(\downarrow)} = k_2^{\uparrow(\downarrow)}$. Pour T=0, seuls les électrons au niveau de Fermi participent à la conduction. L'expression 2.11 donne alors la conductance tunnel totale. En gardant les hypothèses du paragraphe précédent, notamment celle d'une transport dans deux canaux, la conductance tunnel pour le canal $\uparrow$ vers $\uparrow$ est égale à :

$$G_{\uparrow\uparrow} = \frac{e^2}{8\pi^2\hbar} \frac{\kappa_0}{d} T_{\uparrow\uparrow}(0) = \frac{e^2}{8\pi^2\hbar}\ \frac{\kappa_0}{d}\ \frac{16 k_{\uparrow}^2 \kappa_0^2}{(k_{\uparrow}^2 + \kappa_0^2)^2}\ e^{(-2\kappa_0 d)} \tag{2.12}$$

En procédant de même pour tous les autres canaux en parallèle on obtient les expressions de G_{ap} et G_p suivantes :

$$\begin{aligned} G_{ap} &= \frac{e^2}{8\pi^2\hbar}\ \frac{\kappa_0}{d}\ (T_{\uparrow\downarrow} + T_{\downarrow\uparrow}) \\ &= \frac{e^2}{8\pi^2\hbar}\ \frac{\kappa_0}{d}\ \left[\frac{32 k_{\uparrow} k_{\downarrow} \kappa_0^2}{\kappa_0^2(k_{\uparrow} + k_{\downarrow})^2 + (\kappa_0^2 - k_{\uparrow} k_{\downarrow})^2}\right]\ e^{(-2\kappa_0 d)} \end{aligned} \tag{2.13}$$

$$\begin{aligned} G_p &= \frac{e^2}{8\pi^2\hbar}\ \frac{\kappa_0}{d}\ (T_{\uparrow\uparrow} + T_{\downarrow\downarrow}) \\ &= \frac{e^2}{8\pi^2\hbar}\ \frac{\kappa_0}{d}\ \left[\frac{16 k_{\uparrow}^2 \kappa_0^2}{(k_{\uparrow}^2 + \kappa_0^2)^2} + \frac{16 k_{\downarrow}^2 \kappa_0^2}{(k_{\downarrow}^2 + \kappa_0^2)^2}\right]\ e^{(-2\kappa_0 d)} \end{aligned} \tag{2.14}$$

La TMR s'écrit :

$$TMR = \frac{G_p - G_{ap}}{G_{ap}} = \frac{2P_{eff}^2}{1 - P_{eff}^2} \qquad avec \qquad P_{eff} = \frac{k_\uparrow - k_\downarrow}{k_\uparrow + k_\downarrow} \frac{\kappa_0^2 - k_\uparrow k_\downarrow}{\kappa_0^2 + k_\uparrow k_\downarrow} \tag{2.15}$$

On retrouve une expression de la TMR similaire à celle proposée par Jullière, là encore dans l'hypothèse qu'aucune tension n'est appliquée aux bornes de la barrière.

Cependant à la différence du modèle de Jullière, la magnetorésistance dépend ici du type de la jonction tunnel. Slonczewski fut le premier à considérer que la polarisation tunnel n'est pas une propriété intrinsèque des métaux mais bien du couple (métal-barrière). Elle dépend à la fois des DOS (caractéristique du métal) mais aussi de la valeur de κ (caractéristique de la barrière).

2.1.3 Limites de ces modèles

Les modèles décrits ci-dessus permettent de comprendre les bases des phénomènes du transport tunnel polarisé en spin. D'un point de vue expérimental, le modèle des électrons libres est suffisant pour expliquer les résultats magnétorésistifs obtenus sur des jonctions tunnel magnétiques constituées d'électrodes polycristallines et d'une barrière amorphe. Il est également à la base des formules permettant de simuler les caractéristiques I(V) et d'en extraire les données relatives à la hauteur de la barrière de potentiel de l'isolant et à son épaisseur [57, 10].

Cependant, ces modèles ne permettent pas de décrire les résultats obtenus sur des systèmes épitaxiés. L'épitaxie impose un ordre cristallographique. Les électrons ne sont plus libres mais interagissent avec le réseau. Ils sont décrits par des ondes de Bloch. Les paragraphes suivants explicitent ce modèle ainsi que les prédictions théoriques qui en résultent.

2.2 Le Fe(100), système épitaxié

2.2.1 Orbitales atomiques du Fe)

Le Fe a pour numéro atomique Z=26. Sa structure électronique est [Ar] $3d^6$ $4s^2$. Les orbitales atomiques du Fe sont de type s, p et d représentées figure 2.2. Le recouvrement de ces orbitales donne lieu à des liaisons interatomiques. Dans le cas d'un système épitaxié, ces recouvrements se font suivant certains axes créant ainsi une périodicité dans l'agencement des atomes de Fe. Le réseau atomique est périodique. Un système épitaxié est donc un cristal.

2.2.2 Groupes de symétries

Dans le cas d'un monocristal de Fe bcc (cubique centré), les axes x, y et z sont des axes de symétrie du cristal. Dans l'espace réciproque, ils correspondent à l'axe Δ : direction $\Gamma - H$ (figure 2.4 (b)). Un axe Δ particulier, la direction (100), est particulièrement intéressant pour cette étude car il correspond à l'axe selon lequel la tension est appliquée.

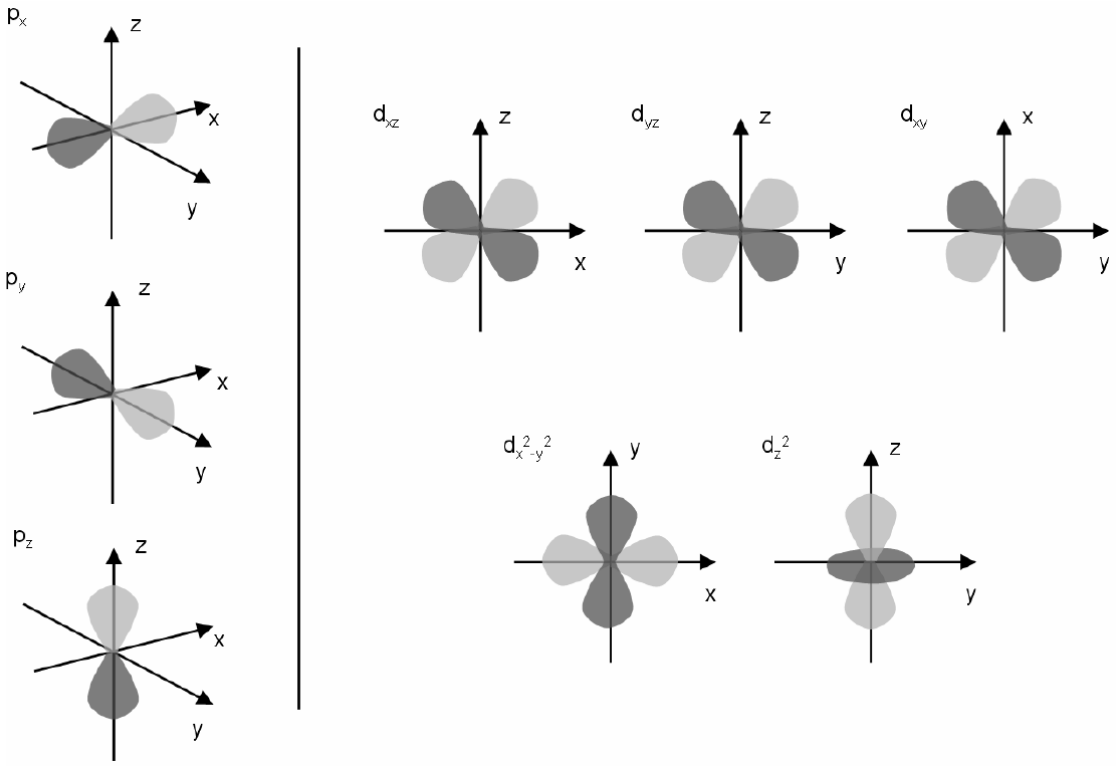

Fig. 2.2 – Orbitales p et d. Les zones foncées (resp. claires) correspondent à des valeurs négatives (resp. positives) de la fonction d'onde.

C'est, autrement dit, la direction privilégiée de propagation des électrons. De plus, le filtrage de la barrière dépend de l'épaisseur que doit traverser un électron. Ce dernier a donc une probabilité plus grande de traverser la barrière tunnel quand sa direction est perpendiculaire au plan de la barrière (correspondant à $k_{||} = 0$), donc suivant l'axe Δ de l'espace réciproque.

Voyons dans un premier temps comment, d'une description du transport par les bandes de conduction s, p et d, nous en arrivons à décrire le transport dans le système épitaxié bcc (100) par les bandes Δ_i.

Un système amorphe est un arrangement aléatoire des atomes. Chaque atome apporte un certain nombre d'électrons au système. Pris individuellement, un atome est décrit par ses orbitales atomiques, s, p et d. Dans le système amorphe, l'arrangement aléatoire amène à considérer que les interactions entre des orbitales différentes d'atomes voisins sont nulles. Seules les interactions entre mêmes orbitales sont considérées. Un électron d'une orbitale donnée n'est plus considéré comme lié à un atome mais est délocalisé sur tout l'espace. Par exemple, pour N atomes, il existe 2N électrons sur l'orbital s_1 et donc 2^{2N-1} états disponibles d'énergies différentes. On parle alors de bandes de conduction s, p et d car elles sont décrites par le recouvrement des fonctions d'ondes de ces orbitales entre atomes voisins. Dans un système épitaxié, le raisonnement est similaire. La différence réside dans l'organisation du réseau. En effet les interactions entre orbitales ne peuvent plus être réduites seulement à celles entre mêmes orbitales. Dans un cristal les orbitales électroniques de chaque atome sont orientées selon certains des axes cristallographiques du cristal. Prenons l'exemple simple de deux atomes de Fe voisins dans un cristal bcc.

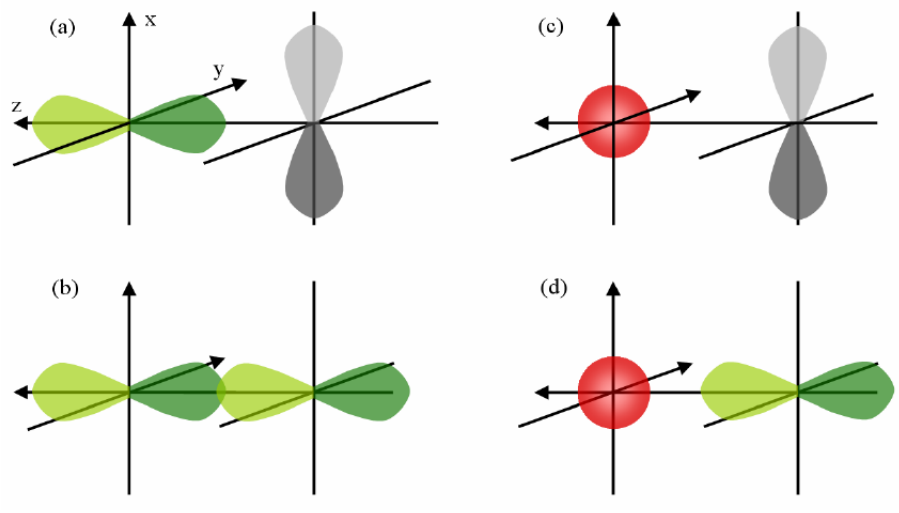

Fig. 2.3 – Schémas montrant le recouvrement possible entre certaines orbitales de deux atomes. La différence de contraste d'une même couleur indique la polarité. Figure (a) : le recouvrement des orbitales p_z et p_x est considéré comme étant nul. Figure (b) : recouvrement des orbitales p_z et p_z. Figure (c) : le recouvrement des orbitales s et p_x est considéré comme étant nul. Figure (d) : possibilité de recouvrement des orbitales s et p_z.

L'aspect cristallin se traduit par la description des orbitales des deux atomes suivants les mêmes axes x, y et z. Isolons ces deux atomes du reste du cristal. Le système est alors constitué des 9 orbitales du premier atome de Fe (Fe_1) et des 9 orbitales du deuxième atome de Fe (Fe_2). L'énergie du système selon l'axe z se représentent sous forme d'une matrice :

$$\begin{vmatrix} H_{11} & H_{12} \\ H_{21} & H_{22} \end{vmatrix}$$

où H_{11} et H_{22} (H_{ii}) sont les matrices donnant l'énergie propre des orbitales d'un même atome. Les orbitales atomiques étant perpendiculaire entre elles, ces matrices sont diagonales et s'expriment comme :

$$H_{ii} = \begin{array}{cc} & \text{Base des orbitales de l'atome i} \\ \text{Base des orbitales de l'atome i} & \begin{array}{c|ccccccccc|} & s & p_x & p_y & p_z & d_{xz} & d_{yz} & d_{xy} & d_{x^2-y^2} & d_{z^2} \\ s & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ p_x & 0 & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ p_y & 0 & 0 & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ p_z & 0 & 0 & 0 & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ d_{xz} & 0 & 0 & 0 & 0 & X & 0 & 0 & 0 & 0 \\ d_{yz} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X & 0 & 0 & 0 \\ d_{xy} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X & 0 & 0 \\ d_{x^2-y^2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X & 0 \\ d_{z^2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X \end{array} \end{array}$$

H_{12} et H_{21} sont les matrices représentant les interactions entre les orbitales de l'atome 1 et celles de l'atome 2 (toujours selon l'axe z). Graphiquement, il apparaît un recouvrement important entre certaines orbitales (figure 2.3), tandis que d'autres ne se recouvrent pas

ou peu. Un non recouvrement se traduit dans les matrices par un 0. La matrice H_{ij} $(i \neq j)$ s'exprime alors comme :

$$H_{ij} = \begin{array}{cc} & \text{Base des orbitales de l'atome j} \\ & \begin{array}{ccccccccc} s & p_x & p_y & p_z & d_{xz} & d_{yz} & d_{xy} & d_{x^2-y^2} & d_{z^2} \end{array} \\ \begin{array}{c} \text{Base des orbitales} \\ \text{de l'atome i} \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \end{array} & \begin{array}{c} s \\ p_x \\ p_y \\ p_z \\ d_{xz} \\ d_{yz} \\ d_{xy} \\ d_{x^2-y^2} \\ d_{z^2} \end{array} \left| \begin{array}{ccccccccc} X & 0 & 0 & X & 0 & 0 & 0 & 0 & X \\ 0 & X & X & 0 & X & X & 0 & 0 & 0 \\ 0 & X & X & 0 & X & X & 0 & 0 & 0 \\ X & 0 & 0 & X & 0 & 0 & 0 & 0 & X \\ 0 & X & X & 0 & X & X & 0 & 0 & 0 \\ 0 & X & X & 0 & X & X & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X & 0 \\ X & 0 & 0 & X & 0 & 0 & 0 & 0 & X \end{array} \right| \end{array}$$

Elle peut être facilement diagonalisée par bloc. Des ensembles d'orbitales apparaissent : (s, p_z et d_{z^2}), (p_x, p_y, d_{xz} et d_{yz}), ($d_{x^2-y^2}$) et (d_{xy}). Chaque ensemble (ou sous matrice) peut être traité séparément. Le système à résoudre n'est plus de 9x9 orbitales mais de 4 systèmes distincts de dimensions moins grandes.

$$H_{ij} = \begin{array}{cc} & \text{Base des orbitales de l'atome j} \\ & \begin{array}{ccccccccc} s & p_z & d_{z^2} & p_x & p_y & d_{xz} & d_{yz} & d_{x^2-y^2} & d_{xy} \end{array} \\ \begin{array}{c} \text{Base des orbitales} \\ \text{de l'atome i} \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \end{array} & \begin{array}{c} s \\ p_z \\ d_{z^2} \\ p_x \\ p_y \\ d_{xz} \\ d_{yz} \\ d_{x^2-y^2} \\ d_{xy} \end{array} \left| \begin{array}{ccccccccc} X & X & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ X & X & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ X & X & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & X & X & X & X & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & X & X & X & X & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & X & X & X & X & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & X & X & X & X & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X \end{array} \right| \end{array}$$

Si on considère le système constitué d'une infinité d'atome, la matrice des interactions devient une matrice de dimension infinie :

$$\left| \begin{array}{ccccc} H_{11} & & H_{1N} & & \\ & \ddots & & \ddots & \\ H_{N1} & & H_{NN} & & \\ & \ddots & & \ddots & \end{array} \right|$$

Il faut alors passer dans l'espace de Fourier aussi appelé espace réciproque. La matrice des interactions redevient alors une matrice 9x9. Cette fois ci la base considérée est la base des fonctions des orbitales atomiques exprimées dans l'espace réciproque. La matrice des interactions s'écrit de nouveau :

C_{4v} / Etats de Bloch	Symétries	Orbitales correspondantes
Δ_1	1 ; z ; $2z^2$-x^2-y^2	s ; p_z ; d_{z^2}
Δ_2	x^2-y^2	$d_{x^2-y^2}$
$\Delta_{2'}$	xy	d_{xy}
Δ_5	(R_x, R_y) ; (xy,yz) ; (x,y)	p_x ; p_y ; d_{xz} ; d_{yz}

TAB. 2.1 – Tableau donnant la correspondance entre les symétries du groupe ponctuel C_{4v} et les 9 orbitales s, p et d.

$$H = \begin{array}{c|ccccccccc|} & s & p_z & d_{z^2} & p_x & p_y & d_{xz} & d_{yz} & d_{x^2-y^2} & d_{xy} \\ s & X & X & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ p_z & X & X & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ d_{z^2} & X & X & X & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ p_x & 0 & 0 & 0 & X & X & X & X & 0 & 0 \\ p_y & 0 & 0 & 0 & X & X & X & X & 0 & 0 \\ d_{xz} & 0 & 0 & 0 & X & X & X & X & 0 & 0 \\ d_{yz} & 0 & 0 & 0 & X & X & X & X & 0 & 0 \\ d_{x^2-y^2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X & 0 \\ d_{xy} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & X \end{array}$$

Base des fonction des orbitales atomiques exprimées dans l'espace réciproque

Base des fonctions des orbitales atomiques exprimées dans l'espace réciproque

Chaque sous-matrice décrit une bande de conduction, nommés Δ_i. Cette dénomination Δ_i provient de celle utilisée par la théorie des groupes de symétries[4]. Un ensemble de symétries communes peut être trouvé pour les orbitales d'un cristal. Ces symétries font parties de l'ensemble de toutes les symétries du cristal : le groupe d'espace du cristal [31]. Pour les Fe bcc, ce groupe est le groupe $Im\bar{3}m$ (notation de Hermann-Mauguin). Les axes x y et z sont équivalents dans l'espace réciproque et correspondent à l'axe Δ. Le groupe correspondant à la direction Δ est le groupe ponctuel C_{4v} (notation de Schoenflies)[5] dont les représentations irréductibles, notées Δ_i sont données dans le tableau 2.1. A chaque ensemble d'orbitale défini précédemment, est associé une représentation irréductible. Ainsi la représentation irréductible Δ_1 est associée à l'ensemble (s, p_z et d_{z^2}) d'orbitales. Les autres correspondances sont données dans le tableau 2.1. Par abus de langage les symboles Δ_i représentent désormais à la fois les états de Bloch et la symétrie correspondante.

2.2.3 Relations de dispersion

La relation de dispersion de chacune des bandes Δ_i est calculée par des codes de calcul de structures électroniques, tel que Wien2k [6]. Ce code repose sur la théorie de la fonctionnel de la densité. Les fonctions d'ondes solutions de l'équation de Kohn-Sham [32] sont cherchées suivant différentes méthodes telle la méthode FLAPW (Full-Potential Linearized Augmented Plane Wave) [58, 1].

[4]La théorie des groupes de symétries permet, étant donné un cristal, de connaître toutes ses symétries.

[5]Le site web du Docteur Jonathan Goss de l'université de Exeter traite des groupes ponctuels de symétrie. http ://newton.ex.ac.uk/research/qsystems/people/goss/symmetry/C4v.html

[6]http ://www.wien2k.at/

La figure 2.4 donne la relation de dispersion des différents états de Bloch, suivant l'axe Δ, pour les électrons de spin majoritaire et minoritaire. Ces relations de dispersion sont obtenues en considérant le cristal comme infini et ayant pour groupe d'espace le groupe $Im\bar{3}m$ (cristal cubique centré).

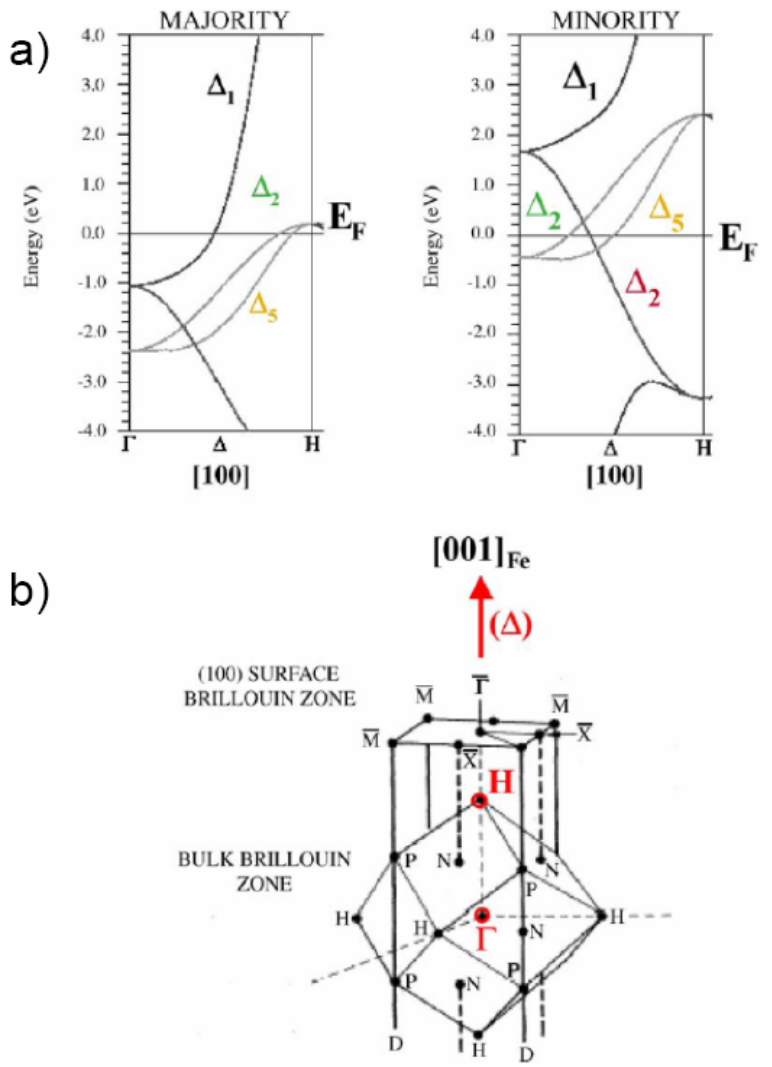

Fig. 2.4 – a) Relations de dispersion pour les porteurs majoritaires et minoritaires dans le Fe bcc suivant la direction Δ (100), correspondant dans l'espace réel aux axes x, y et z [43, 23]. Première zone de Brillouin du Fe bcc et sa projection sur un plan perpendiculaire à l'axe z (plan des interfaces Fe/vide ou Fe/MgO vu dans la suite de ce chapitre).

2.2.4 DOS des porteurs majoritaires et minoritaires

Les densités d'états (DOS) sont déduites des relations de dispersion trouvées pour toutes les directions possibles de l'espace réciproque. La figure 2.5 donne les relations de dispersion selon les axes cristallographiques principaux. La fonction DOS(E) donne le nombre d'états disponibles pour une énergie E fixée. Elle est calculée par l'intégration des vecteurs d'ondes $\vec{k}$ selon toutes les directions possibles et pour une énergie fixée. Ainsi la

DOS ne renseigne que sur la quantité totale d'états disponibles et non sur les directions $\vec{k}$ des vecteurs d'onde rattachés à chacun de ces états. L'intégration a fait perdre une information. J'insiste sur ce point car la direction privilégiée du transport est la direction Δ (cf. 2.2.2). On cherche donc à connaître le nombre d'états disponibles selon cette direction. Or, une densité d'états pour une énergie donnée ne signifie pas forcément qu'il existe un état réellement disponible dont le $\vec{k}$ est porté par l'axe Δ ($k_{\|}$=0). A cause de

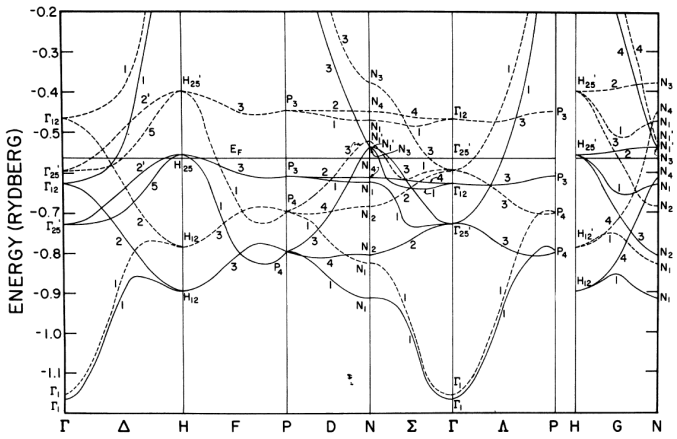

Fig. 2.5 – Bandes de conduction selon les axes cristalographiques du Fe bcc. Les bandes des électrons majoritaires sont en traits pleins, ceux des minoritaires en traits pointillés. Tiré de [16].

cette perte d'information lors de l'intégration, il me semble que les DOS sont à manier avec prudence. Certes elles permettent de savoir rapidement pour quelles valeurs d'énergies le nombre d'états disponibles est important (figure 2.6). Ces bosses dans la DOS sont une condition nécessaire pour avoir un transport peu résistif, mais cependant pas suffisante. Il faut regarder plus en détail de quels états sont composées ces bosses, en particulier le nombre d'états dont le $k_{\|}$ est proche de zéro.

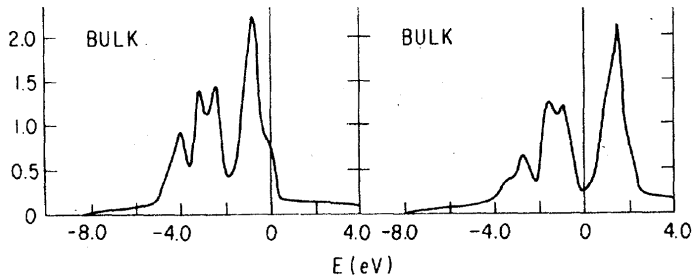

Fig. 2.6 – Densités d'états du Fe bcc en volume pour les porteurs majoritaires à gauche et minoritaires à droite en eV^{-1}. Calcul *ab initio* auto-consitant effectué par Wang, Callaway et Freeman [16, 74].

2.2.5 Description des états de Bloch dont $k_{\|} = 0$

Le système final que nous souhaitons étudier est une JTM de Fe/MgO/Fe (100). L'axe z perpendiculaire aux interfaces correspond dans l'espace réciproque à l'axe Δ.

Lorsqu'une tension est appliquée entre les deux électrodes de Fe, les électrons se déplacent et traversent la barrière isolante de MgO par effet tunnel. La décroissance rapide de la probabilité de transmission à travers cette barrière, avec l'épaisseur traversée, impose, dans le cas de barrières épaisses, que seuls les électrons dont $k_{\|} = 0$, au niveau de l'interface, participent au transport.

Décrivons la fonction d'un tel électron. Pour cela, considérons comme système le dernier plan atomique uniquement, mais conservons la description du transport selon les bandes Δ_i trouvées précédemment. D'après le théorème de Bloch, la fonction d'onde recherchée doit témoigner de la symétrie du système. Elle s'écrit sous la forme $\varphi(x, y)e^{iz.k_z}$. La fonction φ module l'amplitude de probabilité de la fonction d'onde et rend compte des périodicités de cette fonction dans le plan atomique. La fonction $e^{iz.k_z}$ est propagative et monochromatique selon l'axe z. Il est important de souligner que la périodicité du réseau selon l'axe z est bien pris en compte dans cette écriture. Elle apparaît dans les relations de dispersions des bandes Δ_i, relations liant k_z et l'énergie.

L'énergie associée à la fonction $\varphi(x, y)$ est donnée par la relation :

$$E_\varphi = -\frac{\hbar^2}{2m}\frac{\langle\varphi|\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}|\varphi\rangle}{\langle\varphi|\varphi\rangle} = \frac{\hbar^2 g^2}{2m} \tag{2.16}$$

Le coefficient g a la dimension d'un vecteur d'onde, et sera appelé par la suite vecteur modulant. Son emploi permet d'écrire plus simplement le bilan d'énergie du système. En effet, un électron de vecteur d'onde $\vec{k}_z$ et d'énergie totale E se déplaçant dans un matériaux magnétique ressent selon son spin un potentiel $V_{\uparrow(\downarrow)}$. En prenant en compte la modulation dans le plan (x, y) de la fonction d'onde associée à l'électron, le bilan d'énergie dans le matériau s'écrit :

$$E = \frac{\hbar^2\left(k_z^2 + g^2\right)}{2m} + V_{\uparrow(\downarrow)} \tag{2.17}$$

A cause de la continuité de la fonction d'onde au passage métal - isolant, cette fonction d'onde s'écrit sous la forme $\varphi(x, y)e^{-2\kappa.z}$. Le coefficient κ est le coefficient d'atténuation de l'onde évanescente dans la barrière. Il est donné, dans le cas d'une barrière rectangulaire, par la hauteur de barrière, c'est à dire la différence d'énergie entre le potentiel de barrière V_B et l'énergie cinétique de l'électron incident selon z, notée E_{cz}. Ainsi l'expression de κ est :

$$\kappa^2 = \frac{2m}{\hbar^2}\left(V_B - E_{cz}\right) \tag{2.18}$$

$$= \frac{2m}{\hbar^2}\left(V_B - (E - E_\varphi)\right) \tag{2.19}$$

$$= \frac{2m}{\hbar^2}\left(V_B - E + \frac{\hbar^2 g^2}{2m}\right) \tag{2.20}$$

On remarque ainsi que la modulation d'amplitude de la fonction d'onde dans le plan (x, y) modifie le taux de décroissance. Ce résultat n'était a priori pas si évident. Il signifie que la décroissance de l'onde propagative lorsqu'elle passe à travers la barrière tunnel, dépend fortement de sa partie non propagative. Il est alors essentiel de connaître le vecteur modulant g.

La modulation de la fonction φ est supposée correspondre à un passage de son amplitude de valeurs positives à négatives. Nous cherchons φ sous la forme $\varphi(x,y) \propto cos(k_x x).cos(k_y y)$. La figure 2.7 donne une vision graphique des résultats trouvés par Zhang et Butler[79]. Celle-ci représente de façon schématique l'arrangement dans le plan (x, y) des orbitales s (Δ_1), d_{xy} ($\Delta_{2'}$) et $d_{x^2-y^2}$ (Δ_2). Par souci de simplification, on assimilera chaque symétrie Δ_i à une de ses orbitales [7]. Afin de trouver la modulation dans les directions x et y, j'ai assimilé le recouvrement des orbitales à un damier ou à une superposition de damiers. En effet les fréquences spatiales fondamentales d'un damier sont simples. Elles correspondent à la répétition des cases dans la direction x et la direction y. Sur les figures décrivant le comportement des symétries $\Delta_{2'}$ et Δ_2, les sinusoïdes correspondantes à ces deux fréquences sont représentées. Les points blancs et noirs représentent leurs nœuds.

Il n'existe pas de nœuds dans le plan pour l'orbitale s, donc aucune modulation (de même pour les autres orbitales de la symétrie Δ_1). La fonction φ_{Δ_1} est une constante de l'espace. Le vecteur modulant g est nul. Pour l'orbitale d_{xy}, le recouvrement correspond à un damier dont les fréquences spatiales suivants les deux axes sont égales à $2\pi/a$. Le vecteur modulant est alors déduit de l'équation 2.16, en utilisant la forme de $\varphi_{\Delta'_2}$ trouvée et est égal à $g_2 = \sqrt{2}(2\pi/a)$. Pour l'orbital $d_{x^2-y^2}$, le recouvrement correspond à la superposition de deux damiers dont les fréquences spatiales sont égales à π/a. La fonction φ_{Δ_2} est la somme des deux fonctions décrivant la modulation pour chaque damier. Son expression est donnée sur la figure. Le vecteur modulant associé à la symétrie Δ_2 est alors $g_1 = 2\pi/a$. Une même valeur est trouvée pour la symétrie Δ_5. Je laisse le soin au lecteur de le vérifier en utilisant le recouvrement des orbitales p_x par exemple.

Ainsi, chaque symétrie correspond à un vecteur modulant différent. L'atténuation dans la barrière d'un électron est donc dépendante de sa symétrie Δ_i(cf. paragraphes 2.4.1 et 2.5.1). Je tiens ici à faire remarquer aux lecteurs que la manière dont ces vecteurs modulant ont été trouvés par Zhang et Butler n'est pas celle présentée ici. Ils ont calculé numériquement la décroissance dans la barrière pour les différentes symétries et sont remontés, *a posteriori*, à la valeur des vecteurs modulants. Si ma description géométrique est exacte, il me semble que la méthode employée par Zhang et Butler mérite un commentaire.

Reprenons l'exemple du recouvrement des orbitales d_{xy}. La fonction $\varphi_{\Delta'_2}$ n'est pas purement proportionnelle à $cos(\frac{2\pi}{a}x).cos(\frac{2\pi}{a}y)$. La décomposition est vraisemblablement composée d'harmoniques supérieures, c'est à dire de termes en $p\frac{2\pi}{a}$. Pour fixer les idées supposons que l'on puisse écrire $\varphi_{\Delta'_2}$ sous la forme :

$$\varphi_{\Delta'_2}(x,y) = \sum_{pq} A_{pq} cos\left(p\frac{2\pi}{a}x\right) cos\left(q\frac{2\pi}{a}y\right) \tag{2.21}$$

Dans ce cas l'énergie associée à $\varphi_{\Delta'_2}$ se décompose comme la somme des énergies E_p de

[7] En toute rigueur, une symétrie Δ_i correspond à un ensemble d'orbitales.

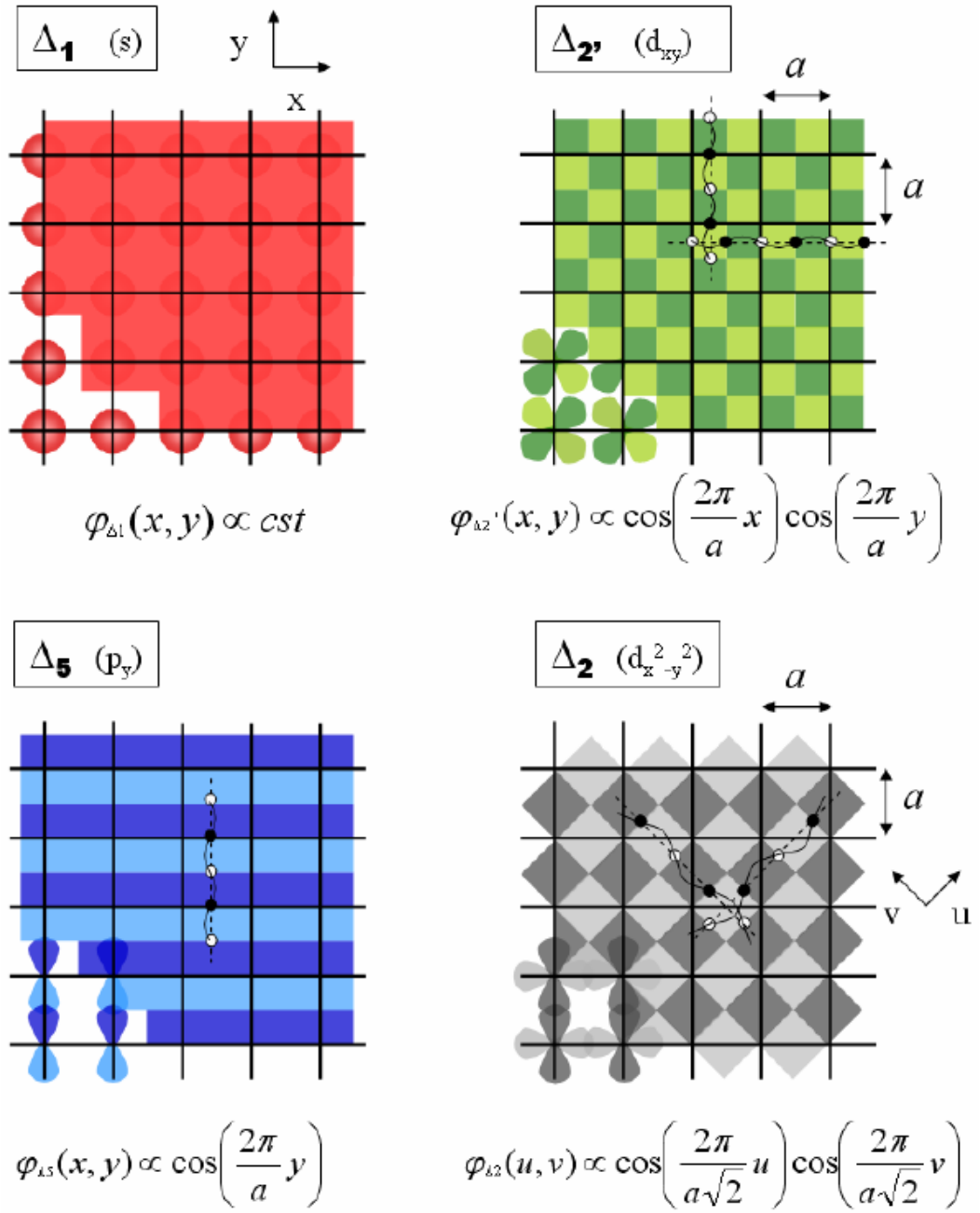

Fig. 2.7 – Vues simplifiées de la modulation d'amplitude dans le plan de la fonction d'onde d'un électron de symétrie Δ_2', Δ_2, Δ_1 et Δ_5. Chaque symétrie Δ_i est assimilée à une des orbitales la composant (s pour Δ_1, d_{xy} pour $\Delta_{2'}$, $d_{x^2-y^2}$ pour Δ_2 et p_y pour Δ_5). Pour chaque schéma, le contraste correspond à un changement de signe de l'orbitale. Sur les figures décrivant le comportement pour Δ_2', Δ_2 et Δ_5 sont représentées les sinusoïdes de fréquences spatiales fondamentales, décrivant le damier, suivant les directions x et y. Pour chaque figure la fonction φ_{Δ_i} trouvée est donnée.

chacune de ses composantes :

$$E_{\varphi_{\Delta_2'}} = 2\sum_p \frac{\hbar^2}{m}\left(p\frac{2\pi}{a}\right)^2 \tag{2.22}$$

$$= \sum_p E_p \qquad avec \quad E_p = \frac{2\hbar^2}{m}\left(p\frac{2\pi}{a}\right)^2 \tag{2.23}$$

Or plus p est grand, plus le taux d'atténuation κ est grand. Les harmoniques supérieures sont plus filtrées à travers la barrière, que le fondamental. Dans le cas de barrières épaisses, seule la contribution du fondamental de la fonction $\varphi_{\Delta_2'}$ est transmise. Ceci explique, à mon sens, pourquoi Zhang et Butler trouve le coefficient $g_2 = \sqrt{2}(2\pi/a)$. Dans ma description, la forme de l'amplitude de la fonction φ est modifiée lors de son passage à travers la barrière. Ceci implique que la fonction d'onde, elle même, est modifiée.

Une autre conséquence est que, en supposant une fonction d'onde décrite par plusieurs symétries Δ_i comme c'est le cas lorsque $k_\parallel \neq 0$ [79], alors les poids relatifs de chaque symétrie dans la description de cette fonction d'onde sont modifiés lors de la traversée de la barrière. Le filtrage différent de la barrière suivant la symétrie Δ_i est donc un élément majeur du transport dépendant de spin dans les JTM Fe/MgO/Fe. Les paragraphes suivants montrent le moyen expérimental choisi durant cette thèse pour étudier ces propriétés, ainsi que les résultats théoriques aidant à l'analyse et la compréhension des résultats obtenus.

2.3 Spectroscopie

Après avoir décrit le système Fe bcc d'un point de vue structurale et électronique, il me semble important de décrire brièvement la technique de mesure choisie afin d'étudier les propriétés de transport du système Fe/MgO/Fe. Elle consiste à étudier la dérivée première par rapport à la tension appliquée du courant circulant dans la JTM : étude des caractéristiques dI/dV. J'exposerai dans cette partie les grandeurs physiques mesurables que nous pouvons tirer de ces courbes. Cela permettra de comprendre les informations importantes à extraire des résultats théoriques prédits qui seront exposés par la suite.

Lorsque l'on veut faire une étude spectroscopique, on cherche à étudier les propriétés, dans notre cas de transport, en fonction de l'énergie. Les courbes I(V) mesurées sur un système métal/isolant/métal, ne peuvent pas nous fournir les renseignements voulus. En effet, pour une tension V donnée, l'intensité mesurée est la somme des contributions de tous les canaux dont l'énergie est comprise entre les deux niveaux de Fermi. Seule, la dérivée première de la caractéristique I(V) peut nous permettre une étude spectroscopique.

A l'équilibre, c'est à dire sans tension appliquée, les niveaux de Fermi de chacune des électrodes s'égalent. Aucun courant net ne circule. L'application d'une tension V entre les deux électrodes déséquilibre le système. Les niveaux de Fermi ne sont plus égaux. Par convention celui de gauche, noté E_{Fg}, est supérieur à celui de droite, noté E_{Fd}. Cette différence d'énergie est égale à eV. Les électrons de gauche, dont l'énergie est comprise entre E_{Fg} et E_{Fd}, traversent la barrière vers un état disponible à la même énergie de l'électrode de droite. Un courant circule donc de l'électrode de gauche vers celle de droite.

Cependant pour une énergie E fixée, chaque électron participant au courant total n'a qu'une probabilité de passer à travers la barrière tunnel notée $T_{g\to d}(E)$[8].

$T_{g\to d}(E)$ contient l'information sur la hauteur de barrière, les densités d'états et les relations de dispersion de chaque bande de conduction dans les deux électrodes. Ainsi, connaître les propriétés de transport du système étudié revient à connaître la fonction $T_{g\to d}(E)$. C'est donc cette valeur que nous cherchons à mesurer.

2.3.1 Caractéristique I(V)

Expérimentalement, le courant est mesuré en fonction de la tension. Dans le formalisme de Landauer[34, 14], l'expression du courant est donnée par :

$$I(V) = \frac{e}{h}\int_{E_{Fg}}^{E_{Fd}=E_{Fg}+eV} d\epsilon \sum_{k_\parallel} T_{g\to d}(\epsilon, k_\parallel) \tag{2.24}$$

Où $k_\parallel$ représente la projection du vecteur d'onde sur le plan des interfaces métal/isolant. L'intégration en énergie permet de prendre la contribution de chaque électron compris entre E_{Fg} et E_{Fd}, c'est à dire l'ensemble des électrons pouvant potentiellement traverser la barrière. Cependant pour une même énergie des électrons incidents, différentes directions de $\vec{k}$ sont possibles. A chaque direction est associée une probabilité différente[9]. La sommation sur $\vec{k}_\parallel$ permet alors de distinguer les électrons suivant leur énergie, non pas totale, mais permettant de franchir la barrière tunnel[10].

Comme il a été dit au début de ce paragraphe, la mesure du courant en fonction de la tension ne donne qu'un renseignement global sur le système. Afin de remonter aux caractéristiques électroniques du systèmes pour chaque valeur d'énergie, c'est à dire de réaliser une spectroscopie du système, il faut avoir accès à la fonction $T_{g\to d}(E)$. Montrons que la dérivée du courant par rapport à la tension (à l'énergie) permet de remonter, sous certaines conditions, à cette dernière.

2.3.2 Spectroscopie : étude des caractéristiques $\frac{dI}{dV}(V)$.

L'utilisation des caractéristiques dI/dV comme spectroscopie des propriétés électroniques de matériaux, trouve son origine dans les études sous STM. Dans ce cas, la pointe STM est considérée comme une électrode émettrice et réceptrice d'électrons « parfaite » : quelque soit la tension appliquée, les caractéristiques électroniques de la pointe sont identiques (on considère typiquement ses bandes de conductions plates en énergie). Dans ces conditions, les propriétés électroniques du matériaux sondé sont effectivement mesurées.

Dans le cas du système Fe/MgO/Fe le problème est non trivial car aucune des deux électrodes de Fe, servant d'électrode émettrice ou réceptrice suivant le signe de la tension

[8]Dans le cadre des électrons libres, en supposant la barrière rectangulaire, épaisse et de hauteur V_B, le système parfaitement symétrique et étudié à 0°K, $T_{g\to d}(E)$ s'exprime comme $T_{g\to d}(E) = 16\frac{\kappa^2 k^2}{(\kappa^2+k^2)^2}e^{(-2\kappa d)}$, où k est le vecteur d'onde incident et κ le vecteur d'onde évanescent dans la barrière. [15]

[9]Plus l'angle formé par les électrons incidents avec la normale à la surface est important, plus l'épaisseur de barrière à franchir est importante et donc plus faible est la probabilité de transition tunnel.

[10]Dans le cas des électrons libres, cette énergie s'écrit $E_{cz} = \sqrt{E^2 - \frac{\hbar^2 k_\parallel^2}{2m}}$.

appliquée, ne peut être assimilée à une électrode « parfaite » selon la définition donnée plus haut. Il n'existe pas, à ma connaissance, d'expression analytique permettant de montrer une relation simple entre dI/dV et $T_{g\to d}(E)$[11]. En effet, à chaque variation de tension, le système est modifié dans son ensemble : décalage des bandes de conduction, modification de la hauteur et de la forme de barrière.... Sous certaines hypothèses et pour les cas où une variation brusque de la caractéristique dI/dV apparaît avec la tension, il est possible de relier cette variation à $T_{g\to d}(E)$. C'est ce que je me propose de faire ici.

Plaçons nous directement dans le cas qui nous intéresse, à savoir le système Fe/MgO/Fe (100). Le transport dans chaque électrode est décrit par les bandes Δ. La figure 2.8 donne les relations de dispersion de chacune de ces bandes suivant la direction perpendiculaire aux interfaces. Lorsqu'une tension V_0 est appliquée entre les deux électrodes, le courant est

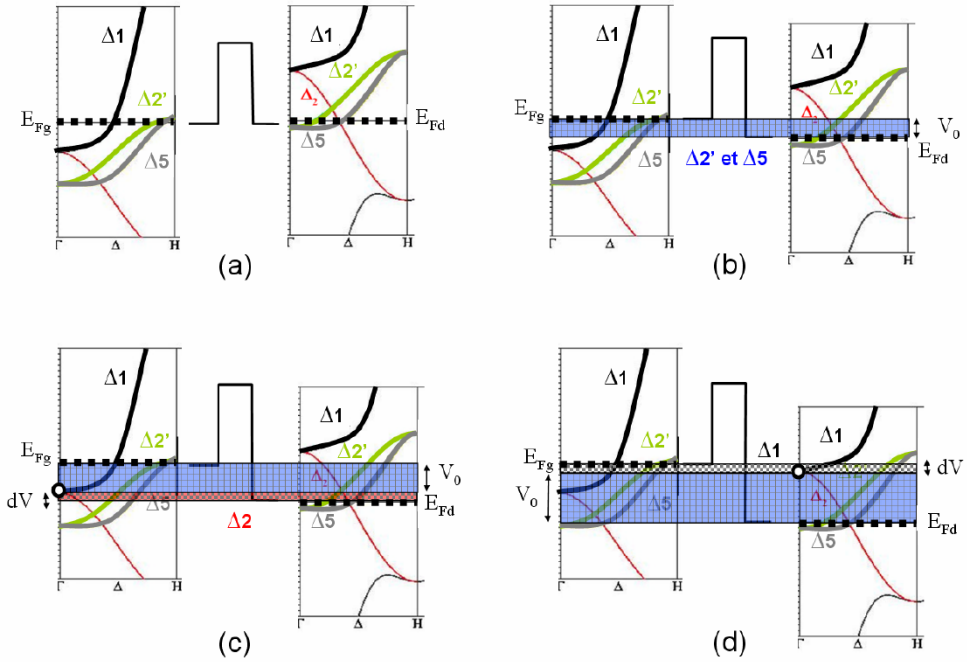

Fig. 2.8 – Schématisation du transport tunnel dans le Fe/MgO/Fe (100) dans la configuration anti-parallèle, pour les électrons majoritaires de l'électrode de gauche. Figure (a) : le système est à l'équilibre. Les niveaux de Fermi sont égaux. Figure (b) : une différence de potentiel V_0 est appliquée entre les deux électrodes. L'ensemble des électrons de la partie hachurée participent au transport. Figure (c) : l'augmentation dV du potentiel V_0 permet aux électrons Δ_2 situés au voisinage de E_{Fd} de participer au transport. Un canal de conduction est ouvert, pouvant entraîner des variations notables du courant dI. Figure (d) : l'augmentation dV du potentiel permet aux électrons Δ_1 situés au voisinage de E_{Fg} de participer au transport.

donné par l'intégrale en énergie de $T_{g\to d}(E)$ entre les deux niveaux de Fermi de chaque électrode. Schématiquement cela revient à considérer les états compris dans la partie hachurée de la figure 2.8a. Sous l'action d'une faible variation de tension dV, les deux niveaux se décalent légèrement. On cherche alors à connaître la variation dI qui existe

[11]Dans le cas des électrons libres et lorsque la barrière peut être décrite de manière analytique, des expression analytiques existent. Cependant ce modèle est loin de pouvoir expliquer les phénomènes que nous avons observés et qui seront décrits par la suite.

entre le courant obtenu pour le système sous une tension de V_0 et celui obtenu pour le système sous une tension de $V_0 + dV$.

En première approximation, la partie hachurée n'est que peu modifiée. En effet chaque état de droite anciennement sondé, est sondé par un état quasiment identique au précédent (ayant par exemple la même mobilité). Seuls des changements notables autour des deux niveaux de Fermi modifient considérablement la conduction. Quand on rajoute dV, deux cas de figure sont possibles :

- Le niveau de Fermi E_{Fg} se retrouve à la même énergie qu'une apparition ou une disparition de bande dans l'électrode de droite (figure 2.8 (d)). Dans ce cas, le courant est fortement modifié par l'apparition ou la disparition d'un canal de conduction. On peut alors écrire le courant comme égale à :

$$\frac{dI}{dV}(V_0) = \frac{e^2}{h}\sum_{k_\parallel} T_{g\to d}(E_{Fd} + eV_0, k_\parallel) \tag{2.25}$$

- Les états disponibles dans l'électrode de droite à E_{Fd} voient l'apparition ou la disparition d'une bande de conduction dans l'électrode de gauche au même niveau d'énergie, aussi égale à $E_{Fg} - V_0$ (figure 2.8 (c)). Là encore le courant est fortement modifié par l'apparition ou la disparition d'un canal de conduction. L'expression du courant 2.25 devient :

$$\frac{dI}{dV}(V_0) = \frac{e^2}{h}\sum_{k_\parallel} T_{g\to d}(E_{Fg} - eV_0, k_\parallel) \tag{2.26}$$

Il faut cependant faire attention avec ces deux formules. Celle-ci ne sont vrais que dans le cas où les changement aux niveaux de Fermi sont plus importants que les variations dans la bande d'énergie intégrée. En d'autre termes il faut pouvoir écrire I(V_0+dV) comme un développement de I(V_0) à l'ordre 1. Or ce n'est pas toujours le cas. En effet, sous l'action d'une tension, les bandes de conduction sont décalées. Les systèmes étudiés à V_0 et $V_0 + dV$ sont strictement différents (cf. annexe B.1).

Ainsi dans les caractéristiques dI/dV, seuls les variations notables renseignent sur ce qui se passe à l'énergie sondée.

Dans le cas où seul un changement notable apparaît prés du niveau E_{Fg}, comme l'apparition d'une bande de conduction (figure 2.8 (d)) ou un changement important de mobilité (courbure de la bande), et que la barrière est considérée comme épaisse (seuls les électrons dont $k_\parallel = 0$ participent au transport tunnel), l'équation 2.25 se récrit :

$$\frac{dI}{dV}(V_0) = \frac{e^2}{h}T_{g\to d}(E_{Fg} + eV, k_\parallel = 0) \tag{2.27}$$

Considérer la barrière épaisse, amène à une autre simplification. Dans ce cas, le système peut être décrit comme la réunion de deux systèmes métal/isolant, chacun ne « voyant » pas l'autre. La probabilité de transmission de l'électrode de gauche vers celle de droite est donc proportionnelle à la probabilité de transmission de l'électrode de gauche dans l'isolant ($T_{m\to i}(E)$) multipliée par la probabilité de transmission de l'isolant vers l'électrode de droite ($T_{i\to m}(E)$). Dans l'isolant la probabilité de présence de l'onde

décroit exponentiellement. Cette décroissance doit apparaître dans la formule. Ainsi $T_{g\to d}$ s'écrit dans le cas d'une barrière épaisse d'épaisseur d [79] :

$$T_{g\to d}(E) = T^{g}_{m\to i}(E)e^{(-2\kappa d)}T^{d}_{i\to m}(E) \tag{2.28}$$

Finalement si l'on considère le cas d'une barrière épaisse, pour un système décrit par les bandes de conduction Δ, l'expression de la dérivée du courant par rapport à la tension, lorsque des variations importantes avec la tension sont observées (et sont dues à un changement des bandes prés de E_{Fg}), s'écrit comme :

$$\frac{dI}{dV}(V_0) = \frac{e^2}{h}\sum_{\Delta} \; T^{g}_{m\to i}(E_{Fd}+eV_0)e^{(-2\kappa_{\Delta}d)}T^{d}_{i\to m}(E_{Fd}+eV_0) \tag{2.29}$$

Le facteur κ_{Δ} est le vecteur d'onde évanescent dans la barrière. Sa valeur dépend de la symétrie considérée [79].

2.3.3 Conclusion

Nous venons de voir que, dans le cas de barrières épaisses, le transport est gouverné par les taux de décroissance des fonctions d'ondes électroniques à travers la barrière ainsi que des coefficients $T_{m\to i}$ et $T_{i\to m}$. Ces derniers, dans le modèle des électrons libres, dépendent du vecteur d'onde de l'onde incidente. Par extension, dans la description du transport électronique dans le système Fe/MgO/Fe (100), ils dépendent des relations de dispersion des bandes Δ_i. Dans une certaine mesure (cf. remarque paragraphe 2.2.4), la connaissance des densités d'états électroniques en fonction de l'énergie, renseigne sur la participation éventuelle d'états occupés ou disponibles au transport tunnel.

Nous présentons, dans le cadre théorique définit au paragraphe 2.2, la dépendance des taux d'atténuation en fonction des symétries Δ_i considérées, ainsi que la modification des densités d'états suivant l'éloignement des interfaces.

2.4 Transport dans le système Fe/vide/Fe

2.4.1 Taux d'atténuation κ_{Δ_i}

La figure 2.9 donne les différents taux d'atténuation dans la barrière constituée par du vide en fonction de la symétrie et de l'orientation du spin (majoritaire ou minoritaire) considérées. Les directions d'aimantation des deux électrodes de Fe sont parallèles. On retrouve le résultat du paragraphe 2.2.5 : pour une même énergie et un même vecteur $\vec{k} = \vec{k}_z$ incident ($k_{\|} = 0$), un électron de symétrie Δ_1 est moins atténué qu'un électron de symétrie Δ_5 ou Δ_2, qui eux mêmes sont moins atténués qu'un électron de symétrie $\Delta_{2'}$.

En toute rigueur, ce n'est pas le taux d'atténuation qui est représenté sur la figure 2.9 mais la probabilité de transmission. Celle-ci a cependant été normalisée à l'unité pour toutes les symétries. Elle peut donc être assimilé en première approximation, au taux de décroissance.

Cependant, on observe à l'intérieur de la première électrode de Fe une décroissance de la transmission pour la symétrie $\Delta_{2'}$ avant même que l'électron n'entre dans la barrière. Cette décroissance est due à une réflexion importante de ces électrons sur l'interface

métal-vide. Cette caractéristique n'est pas gouvernée par le taux de décroissance mais par le coefficient de transmission $T_{m\rightarrow i}$ défini dans l'équation 2.28.

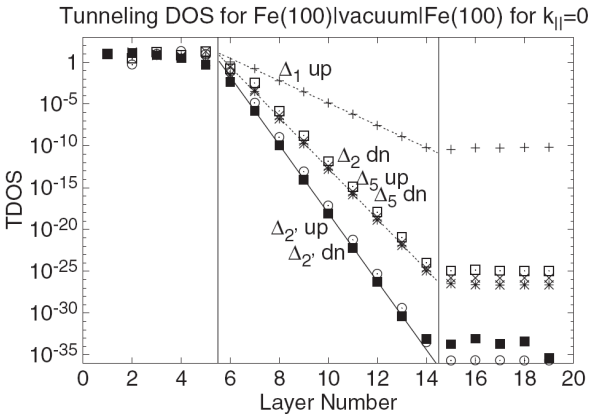

Fig. 2.9 – Évolution de la probabilité de transmission en fonction de la position selon l'axe z pour des ondes de Bloch de symétrie Δ_i différentes et pour un vecteur d'onde incident porté par z uniquement ($k_{\|} = 0$). Le système Fe/vide/Fe est pris dans l'état parallèle. La dénomination up (dn) désigne les électrons majoritaires (minoritaires).[12]

Lorsque $k_{\|} \neq 0$, les fonctions d'ondes **de volume** ne sont pas décrites par une symétrie pure mais par un mélange des symétries Δ_i [12] A cause des décroissances différentes de ces symétries, les fonctions d'onde sont modifiées lors du passage à travers la barrière. Toutes présentes alors en sortie un caractère Δ_1 important. C'est la proportion de ce caractère dans la description de la fonction d'onde initiale, qui détermine la décroissance totale de celle-ci dans la barrière, pour des épaisseurs de barrières épaisses.

2.4.2 DOS dans le système Fe/vide : présence d'état de surface

La figure 2.10, donne l'évolution des DOS des électrons majoritaires et minoritaires suivants leur éloignement à l'interface : s représente la surface, $s - i$ est le i^{ème} plan atomique loin de la surface et c le plan au centre du système. En effet, pour des raisons numériques (temps nécessaire à la résolution des calculs), le système considéré n'est pas un volume semi-infini de Fe mais un ensemble de quelques plan atomiques. Il est alors nécessaire de vérifier que ce système, utilisé pour représenter un volume semi-infini, est bien adapté, c'est à dire que les propriétés *bulk* (du volume) sont bien retrouvées. C'est le cas ici comme montré par la comparaison des DOS c et *bulk* (résultat présenté au paragraphe 2.2.4). La densité d'état au niveau de la surface est nettement différente de celle du volume. Un pic apparaît dans la DOS des porteurs minoritaires autour de 0.2eV au dessus du niveau de Fermi. A cause de cette localisation à la surface, ces états sont appelés états de surface. Ce sont des états potentiellement disponible pour le transport.

Les états de surface du système Fe(100)/vide ont été observés au dessus du niveau de

[12]Pour les états de surface (cf. paragraphe 2.5.2), parler de symétrie Δ_i n'est pas rigoureusement correct. En effet, les orbitales de l'interface se déforment à cause de la brisure de symétrie. La notation Δ_i étant une notation de volume, elle ne peut donc pas décrire parfaitement les symétries de l'interface.

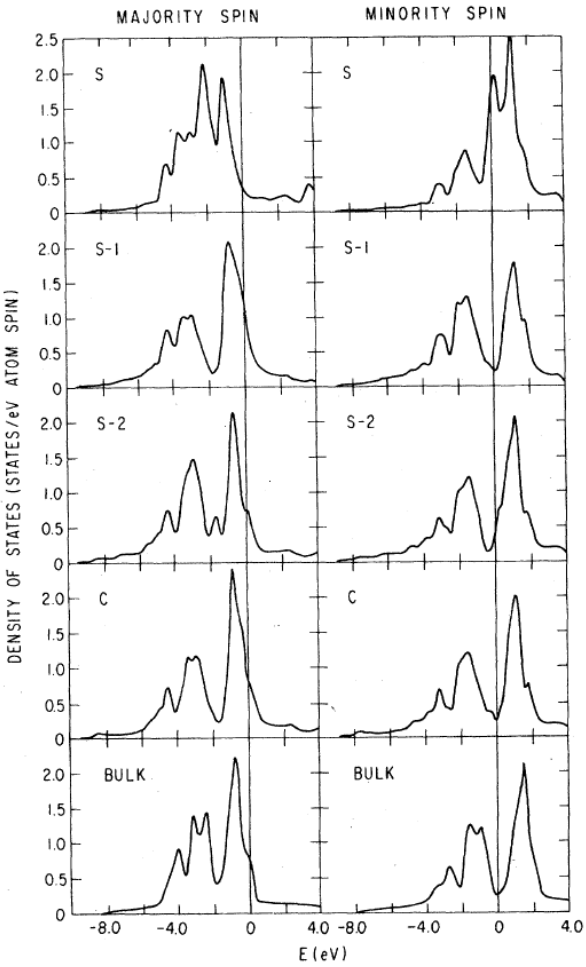

Fig. 2.10 – Évolution des DOS d'un système Fe(100)/vide calculée pour différents plans atomiques plus ou moins éloignés de l'interface et pour les électrons de spins majoritaires et minoritaires. s représente la surface, $s-i$ est le i^{ème} plan atomique loin de la surface et c est le plan au centre du système.[74]

Fermi par microscopie à effet tunnel [61] (STM : Scanning Tunneling Microscopy[13]) et en dessous par des expériences de photoemission [72].

La technique de photoemission consiste à exciter au moyen d'un photon UV un électron d'un état occupé vers un état vide. L'énergie du photon incident est connue et celle de l'électron excité est mesurée. En considérant un processus à énergie conservée, l'énergie du niveau électronique excité ainsi que son taux d'occupation proportionnel au nombre d'électrons excités peuvent être mesurés. Cependant, cette technique ne renseigne pas sur les propriétés de transport du matériaux étudié. Elle permet de sonder l'existence d'états occupés et vides, mais ne renseigne pas sur leur aspect propagatif ou non. La technique STM, elle, permet de sonder uniquement les états vides au dessus du niveau de Fermi et seulement ceux participant au transport. Dans ce sens elle peut être considérée comme plus restrictive. Cependant, cette restriction et dans notre cas un avantage car elle permet

[13]Une description théorique du STM peut être trouvée à cette référence http ://en.wikipedia.org/wiki/Scanning_tunneling_microscope.

de différencier les états propagatifs des autres.

La figure 2.11, montre quelques caractéristiques $dI/dV(V)$ obtenues pour différentes distances pointe-surface. Une tension positive correspond à un déplacement d'électrons de la pointe vers le Fe. Dans ce cas, les états pleins de la pointe STM de W(111) viennent sonder les états disponibles à la même énergie du Fe(100). Des calculs de structure de bandes par la méthode FLAPW (Full Linearized Augmented Plane Waves [14]), sont représentés sur la figure 2.11 et permettent de comprendre l'origine du pic observé à +0.2 V. La direction $\overline{\Gamma} - \overline{X}$ correspond à la direction selon les axes x ou y dans le plan. Les électrons dont $k_{\parallel} = 0$ sont donc situés au point $\overline{\Gamma}$. En ce point et à +0.2 V au dessus du niveau de Fermi, se trouve un état de surface dans les bandes des porteurs minoritaires. Ce résultat est en accord avec celui présenté figure 2.10 qui prévoit l'existence d'un état électronique à 0.2 eV au dessus du niveau de Fermi [74]. Ici les auteurs prouvent de plus qu'il existe, à la surface du Fe (100), un état de surface des électrons minoritaires qui peut participer au transport. Cet état de surface propagatif est encore appelé état de surface résonnant (IRS = Interfacial Resonnant State).

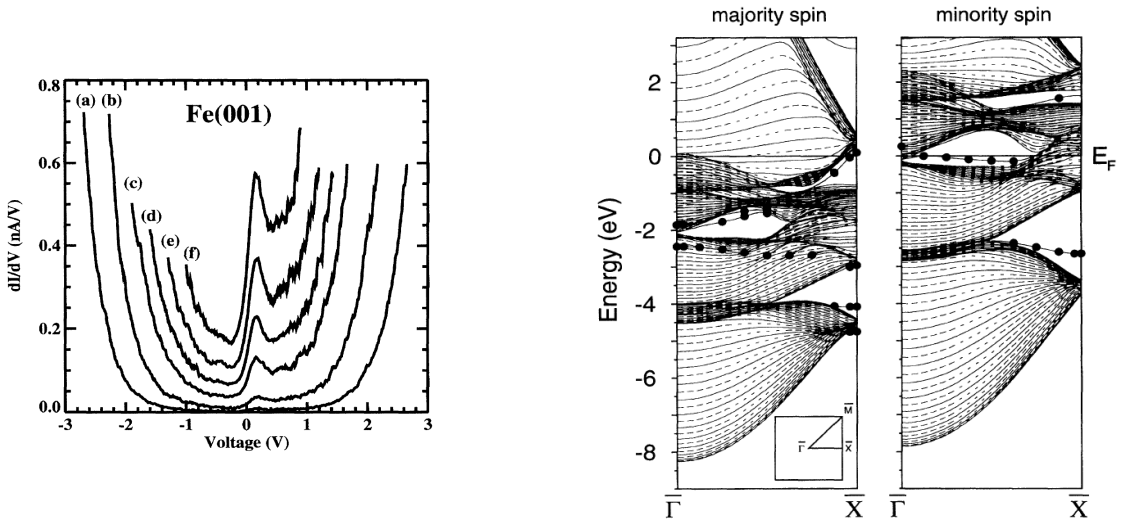

Fig. 2.11 – Gauche : Conductance tunnel en fonction de la tension entre la pointe et l'échantillon de Fe(100), pour différentes distances pointe-échantillon. De (a) à (f), cette distance est réduite. Les valeurs de conductance sont obtenues par différentiation des caractéristiques I(V). Droite : Structures de bandes pour les électrons majoritaires et minoritaires calculées par la méthode FLAPW. Les états fortement localisés à la surface sont marqués par un cercles.[61]

2.5 Transport dans le système Fe/MgO/Fe

Nous nous intéressons toujours à un système Fe/I/Fe, mais la barrière isolante I est maintenant constituée par du MgO cristallin fcc. Nous allons voir comment sont modifiés les taux d'atténuation de la fonction d'onde dans la barrière, ainsi que les DOS.

[14]Méthode numérique de calcul de structure électronique basée sur les travaux de [58, 1]. Une présentation de quelque unes des méthodes numériques les plus employées, dont la méthode FLAPW, peut être trouvée dans la thèse suivante [53]. Les idées principales qui fondent ces calculs sont discuter dans le livre suivant [49].

2.5.1 Taux d'atténuation κ_{Δ_i}

D'une manière similaire à ce qui a été vu dans le cas du système Fe/vide/Fe, il existe quatre taux de décroissance dans la barrière associés aux quatre symétries des états de Bloch Δ_i. La figure 2.12 donne l'évolution des probabilités de transmission en fonction de l'épaisseur de MgO pour les différentes symétries Δ_i et selon que le système est dans l'état P (canaux (↑ vers ↑) et (↓ vers ↓)) ou AP (canaux (↑ vers ↓) et (↓ vers ↑)). Le système est pris à l'équilibre (sans tension appliquée).

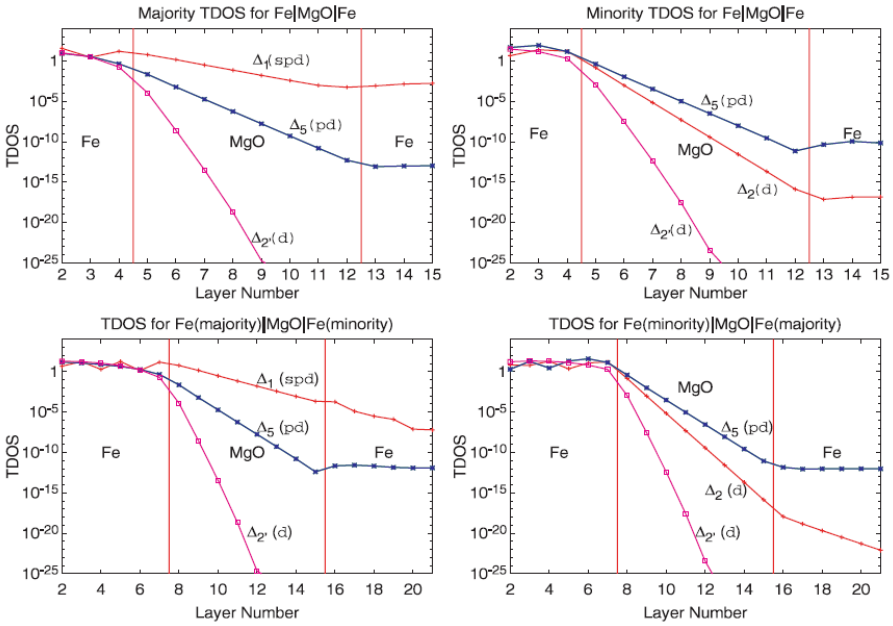

Fig. 2.12 – *TDOS* pour $k_{\|} = 0$ en fonction du nombre de couches atomiques. Les deux traits verticaux délimitent l'isolant de MgO des électrodes de Fe. Le système étudié est Fe(100)/MgO_8/Fe(100) où l'épaisseur du MgO est donnée en nombre de monocouches. Les deux graphes du haut donnent l'évolution des TDOS dans la configuration parallèle pour les canaux majoritaire et minoritaire, ceux du bas pour la configuration anti-parallèle ((↑ vers ↓) à gauche et (↓ vers ↑) à droite). [79]

Les états de symétrie Δ_1 sont peu atténués à travers la barrière. On retrouve de plus un résultat connu des relation de dispersion à savoir qu'il n'existe pas d'états minoritaires Δ_1 au niveau de Fermi. Sur le graphe en haut à droite (↓ vers ↓) il n'existe pas d'états Δ_1 dans l'électrode de gauche donc pas de courbe associée à cette symétrie. Sur le graphe en bas à gauche (↑ vers ↓), il n'existe pas d'états accepteur Δ_1. Le Fe de droite est vue comme un isolant pour cette symétrie. L'état Δ_1 n'est pas propagatif dans cette électrode mais évanescent avec une probabilité de présence qui continue à chuter. L'absence d'état Δ_1 accepteur dans la configuration AP fait que la conductance de cet état magnétique est beaucoup moins grande que celle de l'état P. En effet, dans le cas de barrières épaisses, la conductance de l'état AP n'est plus assurée que par les électrons de symétries Δ_5, Δ_2 et $\Delta_{2'}$ qui sont très fortement atténués : le filtrage est quasi-parfait. Ainsi, alors que depuis quelques années la recherche d'un matériau qui soit un demi-métal à température ambiante suscite de nombreuses recherches sans encore avoir le succès escompté [56, 9], le système Fe/MgO/Fe épitaxié (ou obtenu par pulvérisation suivie d'un recuit) permet de

se rapprocher de ce cas idéal. C'est ce caractère demi-métallique pour la symétrie Δ_1 qui à permis d'expliquer les très grandes valeurs de TMR observées dans le cas de barrières épaisses [77, 76].

Les états de symétrie Δ_5 sont plus atténués que les états Δ_1 mais moins que les états Δ_2 ou $\Delta_{2'}$. On peut remarquer de plus que les coefficients de transmission à l'interface[15] de toutes ces symétries sont plus faibles que celui des Δ_1. Les réflexions présentes à l'interface se caractérisent par une diminution de la TDOS dans le Fe de gauche.

Enfin les états Δ_2 sont moins atténués dans la barrière que les états $\Delta_{2'}$. On retrouve un résultat équivalent à celui obtenu dans le système Fe/vide/Fe. Cependant, au contraire du système Fe/vide/Fe, la décroissance moins importante des états Δ_2 dans la barrière n'est que relative. En effet, le Fe et le MgO, bien qu'ayant le même ordre cristallin (100), ont un angle de $\pi/4$ entre leur maille. Ceci impose aux électrons ayant une symétrie Δ_2 (respectivement $\Delta_{2'}$) dans le Fe d'être décrit par une symétrie $\Delta_{2'}$ (respectivement Δ_2) dans le MgO. En effet, une orbitale d_{xy} ($\Delta_{2'}$) subissant une rotation de $\pi/4$ devient une orbitale $d_{x^2-y^2}$ (Δ_2). Ainsi la décroissance la moins rapide dans le MgO, en prenant comme référence les symétries du MgO, est celle des états $\Delta_{2'}$. Ces décroissances sont données par le vecteur d'onde complexe purement imaginaire. Plus l'amplitude de celui-ci (ou, ce qui est équivalent, l'amplitude de sa partie complexe) est important, plus la décroissance de l'onde dans la barrière est importante. La figure 2.13 donne l'évolution de $(k\Delta z)^2$ en fonction de l'énergie, où k est la partie imaginaire du vecteur d'onde et Δ_z est la distance entre deux plans atomiques dans la direction z (direction perpendiculaire aux interfaces). Les traits verticaux représentent respectivement, de la gauche vers la droite, l'énergie du haut de la bande de valence, l'énergie de Fermi et l'énergie du bas de la bande de conduction. On retrouve bien l'aspect isolant du MgO : un niveau de Fermi dans le gap d'énergie entre la bande de valence et la bande de conduction. Au niveau de Fermi, on retrouve les résultats obtenus graphe 2.14 : l'amplitude du vecteur d'onde complexe de la symétrie Δ_1 est la plus petite obtenue ce qui a pour conséquence le taux de décroissance le plus faible dans la barrière. Vient ensuite la symétrie Δ_5, puis la symétrie Δ_2' (symétrie dans le MgO) et enfin la symétrie Δ_2. La courbe de cette symétrie n'est pas visible sur le graphe car elle est bien inférieure à toute les autres : elle coupe le niveau de Fermi pour une valeur de $(k\Delta z)^2$ de -31.5.

Concernant la rotation de $\pi/4$ entre les plans de Fe et ceux de MgO, une précision me semble nécessaire : les symétries Δ_1 et Δ_5 ne sont pas affectées par cette rotation. Cela semble clair pour Δ_1 mais est, à mon sens, moins évident pour Δ_5. Pour s'en convaincre, restons dans l'exemple des orbitales d. Les orbitales d_{xzMgO} et d_{yzMgO} du MgO se décrivent par les orbitales d_{xzFe} et d_{yzFe} du Fe (2.30). La base (d_{xz}, d_{yz}), représentative de la symétrie Δ_5, est donc commune pour le Fe et le MgO.

$$\begin{aligned} d_{xzMgO} &= \frac{1}{2}(d_{xzFe} + d_{yzFe}) \\ d_{yzMgO} &= \frac{1}{2}(d_{yzFe} + d_{xzFe}) \end{aligned} \tag{2.30}$$

En conclusion, dans le système Fe/MgO/Fe (100), les taux de décroissance dépendent de la symétrie considérée. Lorsque $k_{\parallel} \neq 0$, l'onde est décrite par plusieurs symétries.

[15] Dans le cas de barrières épaisses nous les avons notés $T_{m\to i}$ (cf. paragraphe 2.3.2).

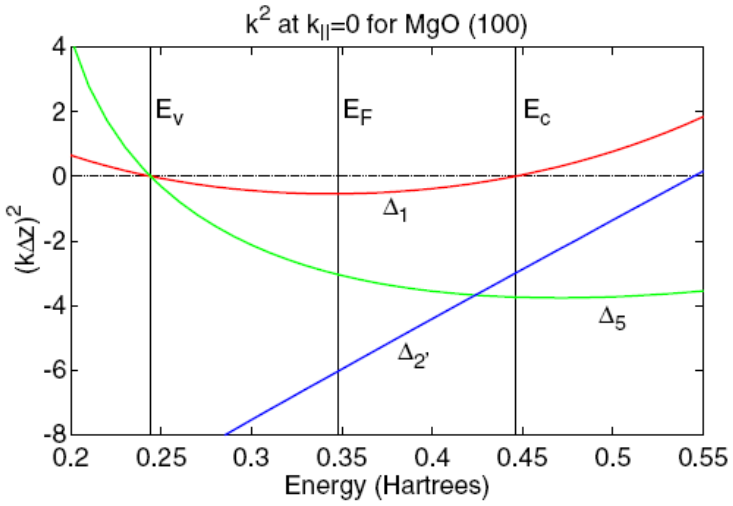

Fig. 2.13 – Relation de dispersion du vecteur d'onde dans le MgO suivant l'axe z perpendiculaire aux interfaces. Le vecteur d'onde complexe est normalisé par la distance entre deux plans atomiques notée Δz. Les valeurs négatives détermine le taux de décroissance dans la barrière. Les traits verticaux représentent respectivement, de la gauche vers la droite, l'énergie du haut de la bande de valence, l'énergie de Fermi et l'énergie du bas de la bande de conduction.[79]

Cette décomposition est modifiées lors de la traversée de la barrière. Pour des épaisseurs importantes de barrières, le caractère dominant de l'onde en sortie est le caractère Δ_1.

2.5.2 DOS proches des interfaces du système symétrique Fe/MgO/Fe : présence d'IRS

La DOS du système symétrique Fe/MgO/Fe (100) a été calculée par la méthode FLAPW pour les trois couches de Fe proches de l'interface (figure 2.14). Des différences existent suivant l'orientation du spin et la position plus ou moins proche de l'interface.

Un pic important apparaît au dessus du niveau de Fermi pour les électrons minoritaires autour de 0.2 eV. Ce pic est attribué à la présence d'un état de surface car il est fortement localisé au niveau du plan de Fe interfaciale.

Il est tentant d'attribuer ces états d'interface à la présence de liaisons entre les atomes de Fe et les atomes d'oxygène de l'interface. En effet les liaisons anti-liantes ainsi formées sont des états vides localisés à l'interface. Cependant, comme il a été vu au paragraphe 2.4.2, la présence autour de 0.2 eV d'un tel pic a également été observé numériquement et expérimentalement dans le système Fe/vide [61, 74].

La figure 2.15 de gauche montre la projection de la sphère de Fermi du Fe interfacial sur la première zone de Brillouin de surface (figure 2.4), pour les électrons minoritaires. Elle représente donc la densité d'états au niveau de Fermi en fonction du vecteur $\vec{k_{\|}}$. La figure de droite donne la transmission de ces états à travers la barrière. La transmission donne uniquement les états participant au transport : à l'inverse de la DOS qui donne l'ensemble des états électroniques (occupés et inoccupés), la transmission, elle, donne les états électroniques propagatifs dans le Fe et pouvant traverser la barrière tunnel de

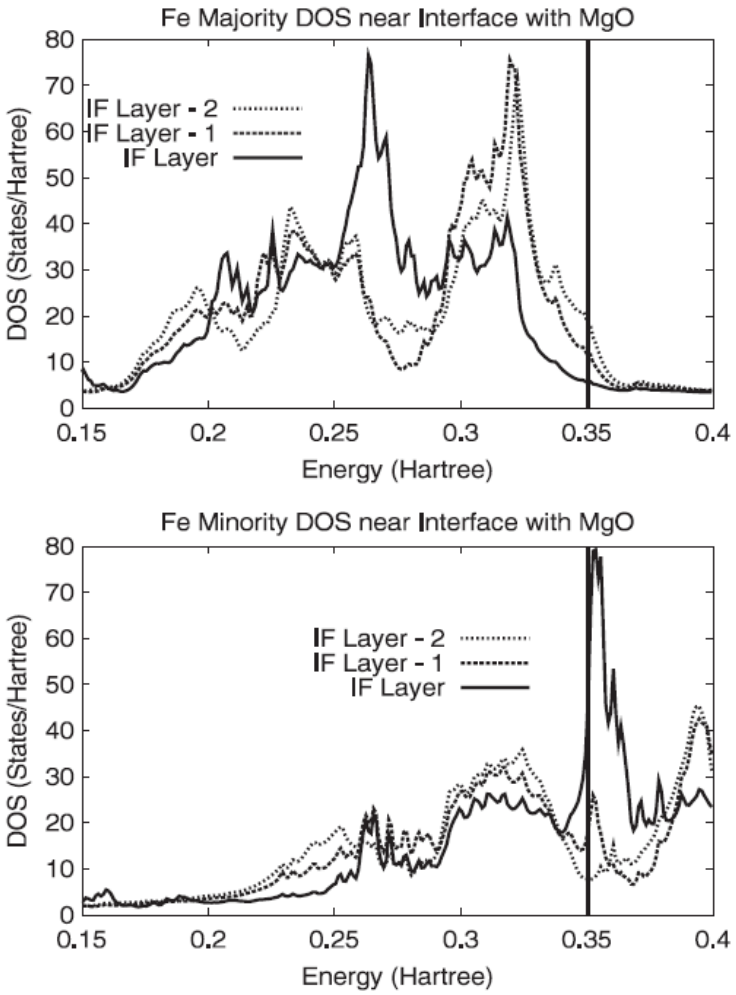

Fig. 2.14 – Densité d'états au niveau des deux derniers plans atomique du Fe (IF Layer -1 et IF Layer -2) et du plan interfacial (IF Layer) du système symétrique Fe/MgO/Fe (100). L'épaisseur du MgO est de 4 monocouches atomiques [13]. 1 Hartree correspond à 27.2 eV.

MgO[16].

On remarque que des pics existent dans la DOS le long des directions $k_x = 0$ et $k_y = 0$. Ces pics correspondent à des états fortement localisés à l'interface Fe/MgO. Ce sont eux qui participent au transport tunnel. Il est remarquable que ce sont ces états, situés loin du centre de zone, qui sont les mieux transmis à travers la barrière. En effet la décroissance dans la barrière devrait augmenter avec la valeur de $\vec{k_{\|}}$. Les états du centre de zone ($k_{\|} = 0$) sont de symétries Δ_5, Δ_2, et $\Delta_{2'}$. Ils sont fortement atténués à travers la barrière. La symétrie des états correspondant aux pics dans la transmission doit donc être majoritairement Δ_1.

La position des pics de DOS, par exemple ($k_x = 0.299, k_y = 0.000$) noté P_{DOS}, est légèrement différente de celle des pics de transmission, comme la position ($k_x = 0.308, k_y = 0.018$) noté P_T. Ceci provient de la différence de décroissance dans la barrière des fonc-

[16]Tsymbal *et al.* ont eux aussi calculé la transmission dans le système Fe/MgO/Fe pour trois monocouches de MgO. Des résultats similaires à ceux présentés ici peuvent être trouvés à la référence [6].

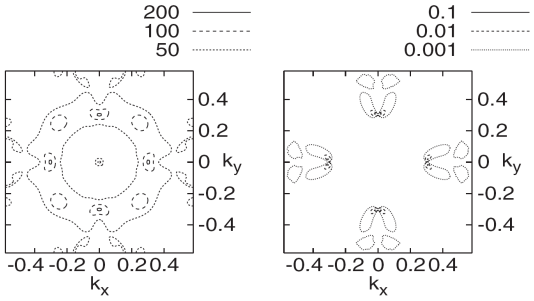

Fig. 2.15 – Gauche : DOS des électrons minoritaires au niveau de la monocouche de Fe de l'interface Fe/MgO, exprimée en états/hartree. Droite : Transmission à travers la barrière composée de 4 monocouches de MgO pour le canal minoritaire. L'échelle est à lire comme des lignes de niveaux. Tiré de [13].

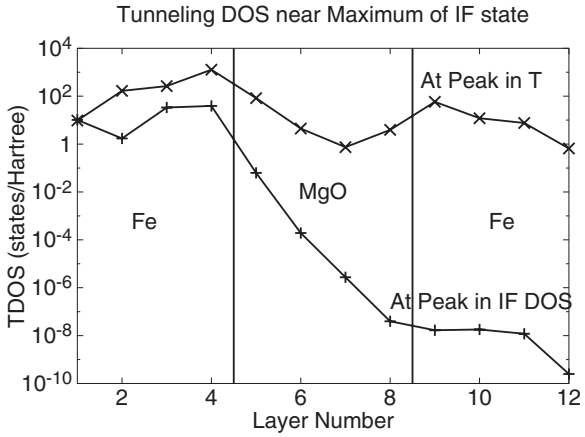

Fig. 2.16 – Probabilité de transmission (aussi appelée Transmission DOS) calculée pour deux points voisins de la zone de Brillouin 2D. Un au point P_{DOS} $((k_x = 0.299, k_y = 0.000))$ correspondant à un des pics dans la DOS minoritaire figure 2.15 de gauche et l'autre P_T $((k_x = 0.308, k_y = 0.018))$ correspondant à un des pics dans la transmission du canal minoritaire figure 2.15 de droite. Tiré de [13]

tions d'ondes associées (figure 2.16) c'est à dire de la symétrie prépondérante constituant chaque état électronique. La fonction d'onde de l'état P_{DOS} a peu de caractère Δ_1. Elle est donc fortement atténuée dans la barrière. La fonction d'onde de l'état P_T, majoritairement Δ_1, peut se coupler avec un état évanescent peu atténué dans la barrière.

Les IRS minoritaires du système Fe/MgO/Fe existent pour des valeurs de $\vec{k_{\parallel}} \neq 0$. Parmi ces états, seuls ceux dont la symétrie est fortement Δ_1, traversent la barrière tunnel. Il est communément dit que ces IRS se développent dans le gap Δ_1 des spins minoritaires. Cet usage verbal manque cependant de clarté car la symétrie des IRS n'est pas purement Δ_1. D'une part, les orbitales sont déformées au niveau de l'interface par la brisure de symétrie du système : l'environnement électronique ressenti par chaque atome de la surface est différent et est asymétrique suivant l'axe z. La description des IRS, localisés à l'interface, est donc fortement affectée par cette déformation. Il n'est en toute rigueur plus possible de parler de symétrie Δ_i [17]. Zhang et Butler parlent d'ailleurs de

[17]La notation Δ_i est d'ailleurs seulement une notation du volume (100) due à ses symétries (cf. para-

caractère s ou d plus ou moins prononcé des IRS [79]. D'autre part, pour $\vec{k_{\|}} \neq 0$, les états ne sont pas purs mais sont toujours un mélange de différentes orbitales. C'est d'ailleurs vraisemblablement ce mélange qui est à l'origine du couplage des états de surface avec les états du volume. Comment comprendre sinon qu'un IRS minoritaire purement Δ_1 puisse participer au transport (c'est à dire se propager dans le Fe volumique) alors qu'aucun état Δ_1 n'est permis dans le volume ?

Tiusan *et al.* ont montré que l'IRS participant principalement au transport a majoritairement un caractère d_{z^2} [67]. Pour cela ils ont étudié le système Pd/Fe/MgO/Fe, où la couche inférieure de Fe est très fine (2 nm). Sans Pd, la conductance de l'état anti-parallèle est fortement augmentée par la présence de l'IRS jusqu'à devenir supérieure pour une certaine tension à la conductance de l'état parallèle (figure 2.17 a). En revanche dans le système avec Pd, le comportement « classique », où la conductance de l'état parallèle est supérieure à celle de l'état anti-parallèle, est observé (figure 2.17 b). Ils ont attribué cette différence au caractère d_{z^2} de l'IRS. En effet le Pd, ayant sensiblement la même cristallographie que le Fe, il ne modifie pas la croissance de l'empilement. En revanche aucun caractère d_{z^2} n'existe dans le Pd. L'état de surface ne peut donc plus se coupler avec les états électroniques de volume du Pd. Ne participant plus à la conduction, une différence notable apparaît dans la conductance de l'état anti-parallèle suivant le système considéré (avec ou sans Pd).

Il est important de noter que 2 nm de Fe, correspondant à 14 couches atomiques, est une épaisseur déjà très grande devant l'extension spatiale de l'IRS dans le volume : l'IRS reste par définition un état confiné à l'interface. Ainsi, j'ai du mal à comprendre comment le Pd peut « écranter » l'IRS. De plus, le système sans Pd est constitué d'une couche de Fe directement déposée sur le substrat de MgO puis recuite à 450°, sur laquelle l'empilement MgO/Fe est déposé. Comme nous le verrons au paragraphe 2.6.2, du C diffuse du substrat vers l'interface inférieure Fe/MgO lors du recuit (les résultats obtenus avec l'échantillon sans Pd de l'article [67] sont identiques à ceux obtenus avec l'échantillon sans pré-couche de MgO de l'article [68] et présentés figure 2.25). Pour le système avec Pd, la couche de Fe de 2nm n'est pas recuite. Il n'y a donc pas de diffusion du C à l'interface inférieure Fe/MgO. Cette seule différence (notable), un échantillon avec C à l'interface et un autre sans, peut à mon sens expliquer la différence de comportement électrique observée. Je ne pense pas que les mesures présentées dans l'article [67] permettent de conclure sur la symétrie dominante de l'IRS.

Enfin, il n'existe pas à ma connaissance de calcul de la relation de dispersion de ces IRS pour le système Fe/MgO/Fe. Nous pouvons néanmoins faire l'hypothèse que celle-ci est peu différente de celle calculée par Stroscio dans le cas du système Fe/vide (figure 2.11 de droite). En effet, dans les deux cas, les IRS sont obtenus pour une valeur de $k_{\|} \neq 0$ au niveau de Fermi (comparaison de la figure 2.11 et 2.15) et, pour $k_{\|} = 0$ pour une énergie de 0.2 eV au dessus du niveau de Fermi (comparaison de la figure 2.11 et 2.14).

graphe 2.2.2)

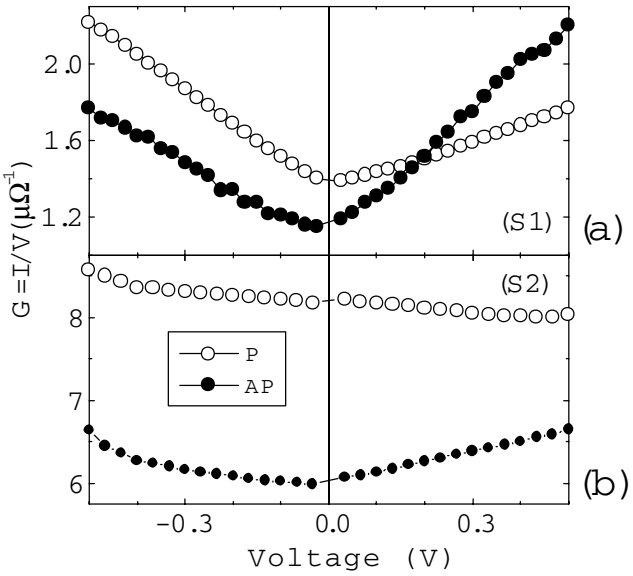

Fig. 2.17 – Courbes de conductance en fonction de la tension pour les états magnétiques P et AP. Sur la figure a, le système étudié est l'empilement Fe/MgO/Fe. Sur la figure b, le système étudié est l'empilement Pd/Fe/MgO/Fe. Tiré de [67].

2.5.3 Calculs des conductances tunnel

Les calculs des conductances tunnel résolues en $\vec{k}_{\parallel}$ renseignent sur les électrons participant au transport tunnel. Les figure 2.18, 2.19 et 2.20 donnent respectivement ces conductances calculées, sans tension appliquée, pour les canaux majoritaire (↑ vers ↑) et minoritaire (↓ vers ↓) et pour la configuration anti-parallèle (↑ vers ↓ et ↓ vers ↑). L'intégration sur $\vec{k}_{\parallel}$, donne la conductance tunnel totale, permettant de remonter à la TMR obtenue à tension nulle.

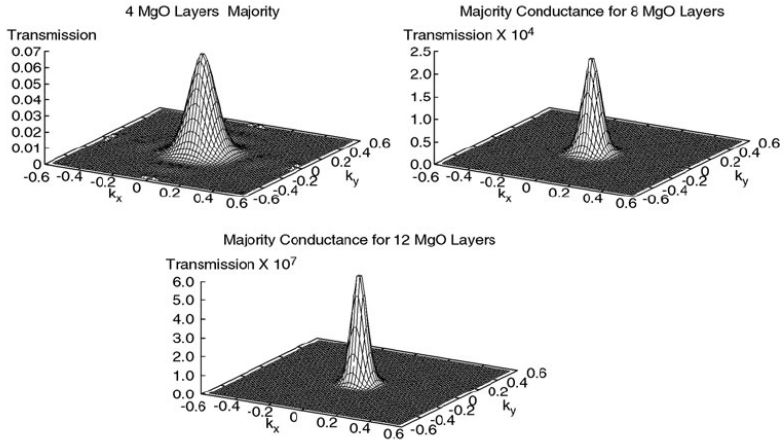

Fig. 2.18 – Conductance calculée pour le canal majoritaire, ↑ vers ↑, du système Fe/MgO$_d$/Fe bcc, pour différentes épaisseurs d. Tiré de [79].

Pour le canal majoritaire, les électrons participant au transport sont les électrons situés au centre de zone. Il sont majoritairement de symétrie Δ_1. Ils sont donc pour ces

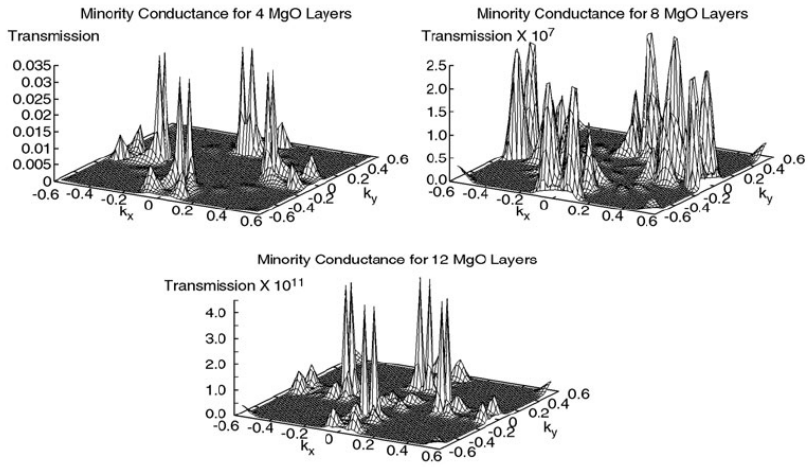

Fig. 2.19 – Conductance calculée pour le canal minoritaire, ↓ vers ↓, du système Fe/MgO$_d$/Fe bcc, pour différentes épaisseurs d. Tiré de [79].

deux raisons peu atténués lors de la traversée de la barrière. A mesure que l'épaisseur de MgO augmente, la transmission diminue et le pic central s'affine. Ceci est la conséquence de la décroissance exponentielle de l'amplitude de l'onde évanescente avec l'épaisseur de MgO : épaisseur absolue ($k_{\|} = 0$) et relative (dépendant de l'épaisseur traversée par un électron arrivant avec un $k_{\|} \neq 0$).

Pour le canal minoritaire, on retrouve le résultat obtenu au paragraphe 2.5.2, à savoir que la conduction se fait principalement par les IRS (par exemple $k_x = 0.308$ et $k_y = 0.018$). Il est cependant intéressant de remarquer que pour une épaisseur de 8 monocouches de MgO, les positions des pics principaux changent, alors qu'elles sont inchangées entre le graphe pour 4 et 12 monocouches. Il me semble donc que la description d'une onde de Bloch (proportion des différentes symétries Δ_i constituant cette onde) avant que celle-ci ne pénètre dans la barrière[18], dépend l'épaisseur de barrière. Cela renforce l'idée de considérer le système Fe/MgO/Fe dans son entier et non pas comme la superposition de trois systèmes pris indépendamment (les deux Fe et le MgO) afin de décrire les propriétés fines du système.

Il est bien évident, au regard des valeurs de transmission, que la conductance dans l'état parallèle peut être assimilée à la conductance du canal majoritaire pour des épaisseurs de MgO importantes.

Enfin sur le graphe 2.20 est représenté la conductance calculée pour la configuration anti-parallèle. Pour une épaisseur de 4 monocouches de MgO, ce sont les IRS qui participent le plus au transport, c'est à dire des états minoritaires qui sont transmis à travers la barrière vers des états disponibles majoritaires. A mesure que l'épaisseur de MgO est augmentée, la contribution des IRS au transport tunnel, relativement aux états du centre de zone, est diminuée. Ces derniers sont sans doute principalement des états Δ_5 (cf. les relations de dispersion dans le Fe volumique figure 2.4). En effet la conduction des électrons de symétrie Δ_1 est impossible si l'on considère que l'orientation du spin est conservée. De

[18]Il ne faut pas confondre cette remarque avec la modification de la description de l'onde lors de la traversée de la barrière. Dans ce cas, ce sont les décroissances différentes selon les symétries qui en sont la cause.

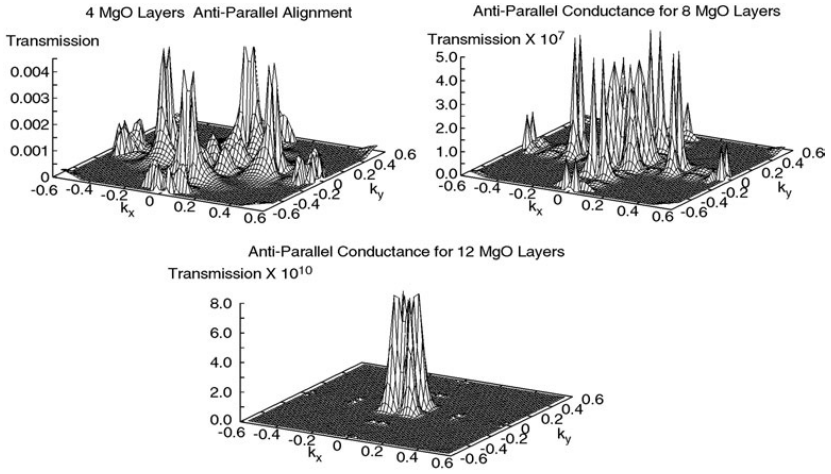

Fig. 2.20 – Conductance calculée pour la configuration anti-parallèle du système Fe/MgO$_d$/Fe bcc, pour différentes épaisseurs d. Tiré de [79].

plus les électrons de symétrie Δ_2 et $\Delta_{2'}$ sont fortement atténués dans la barrière. Pour une épaisseur de 8 monocouches de MgO, la contribution des IRS reste importante et égale à celle des états du centre de zone. Pour une épaisseur de 12 monocouches de MgO en revanche, seuls les états du centre de zone participent au transport. L'épaisseur est, dans ce cas, tellement importante que bien que les IRS soient principalement de caractère s, l'épaisseur relative de barrière à traverser ($k_{\parallel} \neq 0$) est nettement plus importante que l'épaisseur absolue. L'atténuation dans la barrière des fonctions d'onde associées à ces IRS est beaucoup plus importante que celle des électrons Δ_5 du centre de zone.

Pour une tension appliquée de 0.2 eV, les IRS sont présents au centre de zone et leur caractère s est vraisemblablement conservé (cf. paragraphe 2.5.2). Ce sont alors eux qui gouvernent le transport tunnel et ceci même pour des épaisseurs importantes de MgO. Nous verrons que ces IRS ont été observés expérimentalement par des mesures de conductance tunnel (caractéristique $dI/dV(V)$) sur des jonctions d'épaisseurs aussi importantes que 2.6 nm.

2.6 « Pollution » d'interface

2.6.1 Présence d'un plan FeO à l'interface Fe-MgO

2.6.1.1 DOS système asymétrique Fe/FeO/MgO/Fe

Dans la suite on désignera par O$_{MgO}$ un atome d'oxygène appartenant à un plan de MgO et par O$_{FeO}$ un atome d'oxygène dans un site intersticiel entre le dernier plan de Fe et le premier plan de MgO (cf. figure 2.22). Les atomes O$_{FeO}$ constituent avec le dernier plan atomique de Fe ce que l'on notera par la suite le plan FeO bien qu'ils ne soient pas rigoureusement dans le plan de Fe.

Les TMR calculées pour les jonctions symétriques sont nettement plus importantes que celles mesurées. L'équipe de Kirschner a mise en évidence expérimentalement la présence d'une couche de FeO entre l'électrode inférieure de Fe et la barrière MgO. Cette couche provient de l'ordre dans lequel les couches sont déposées ([45, 44]). Le système réel est alors généralement asymétrique et doit se décrire par l'empilement Fe/FeO/MgO/Fe. L'équipe de Butler s'est intéressée aux conséquences sur le transport électroniques d'une telle couche [19]. Cependant le code utilisé n'ayant pas été développé pour ce genre de calcul, il leur a fallut l'adapter. Dans leur code, l'empilement atomique du cristal étudié (ici bcc) doit être défini. Les atomes de Fe, de Mg et de O ont une place bien définie : il n'existe donc aucune lacune. Cependant des preuves expérimentales [44] donnent un pourcentage d'atome d'O_{FeO} de l'ordre de 60% par rapport à un remplissage total des sites intersticiels. Les auteurs ont donc dû définir deux types d'atome sur les sites intersticiels entre le Fe et les atomes d'O_{MgO} : le premier étant O_{FeO} et le second un atome de vide. Ceci permet de faire varier le pourcentage d'O_{FeO} de 0 à 100%. Cependant aucun réarrangement atomique en surface n'a pu être réalisé. Ce réarrangement est normalement nécessaire car il permet de travailler avec la structure atomique la plus stable et par conséquent le système le plus proche de la réalité. De plus aucun désordre atomique n'a pu être introduit dans la répartition des atomes d'O_{FeO}, désordre existant naturellement dans un système réel.

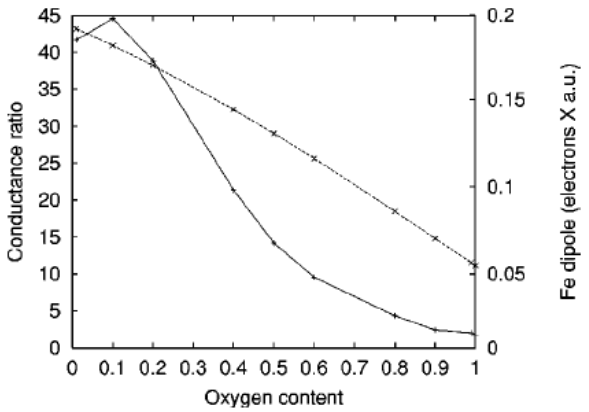

Fig. 2.21 – Rapport de conductance(G_{AP}/G_P) en trait plein et moment dipolaire en traits pointillés, en fonction du pourcentage d'O à l'interface Fe/MgO. d'une jonction tunnel Fe/MgO/Fe. Tiré de [80].

La figure 2.21 représente l'évolution du rapport de conductance en fonction du pourcentage d'O_{FeO}. Ce rapport, qui peut être assimilé à la TMR, diminue fortement à mesure que la proportion d'O_{FeO} dans la couche de FeO augmente. Ainsi la présence d'une couche de FeO entre l'électrode inférieure de Fe et le MgO peut expliquer les plus faibles valeurs de TMR obtenues expérimentalement par rapport à celles prédites théoriquement pour un empilement Fe/MgO/Fe. On peut, à ce stade faire la remarque que les forts taux de TMR

[19] Tsymbal *et al.* n'ont pas, à ma connaissance, travaillé sur ce système. Ils ont cependant étudié l'influence des liaisons inter-atomiques d'une couche de Co oxydé sur le transport dépendant de spin[5] ainsi que le système Fe/Ag/MgO/Ag/Fe [6]. Ils ont de plus obtenus de bons résultats sur l'influence théorique de l'oxydation du MgO sur les propriétés électroniques de transport en enlevant des O_{MgO} (lacunes dans l'isolant). Cette étude n'est pas présentée ici car elle ne concerne pas directement la pollution d'interface.

sont prédites pour des cristaux parfaits. Lors de la croissance épitaxiale, des relaxations de contraintes peuvent induire des défauts à la cristallinité comme des dislocations. Ces défauts peuvent alors amener des mélanges entre orbitales et une diminution de la TMR. Le fait que les fortes TMR mesurées jusqu'à présent l'aient été sur des jonctions obtenues par pulvérisation suivie d'un recuit [19],peut alors s'expliquer par les deux effets : une cristallinité très bonne de l'interface obtenue grâce au recuit et un faible taux d'oxygène à l'interface.

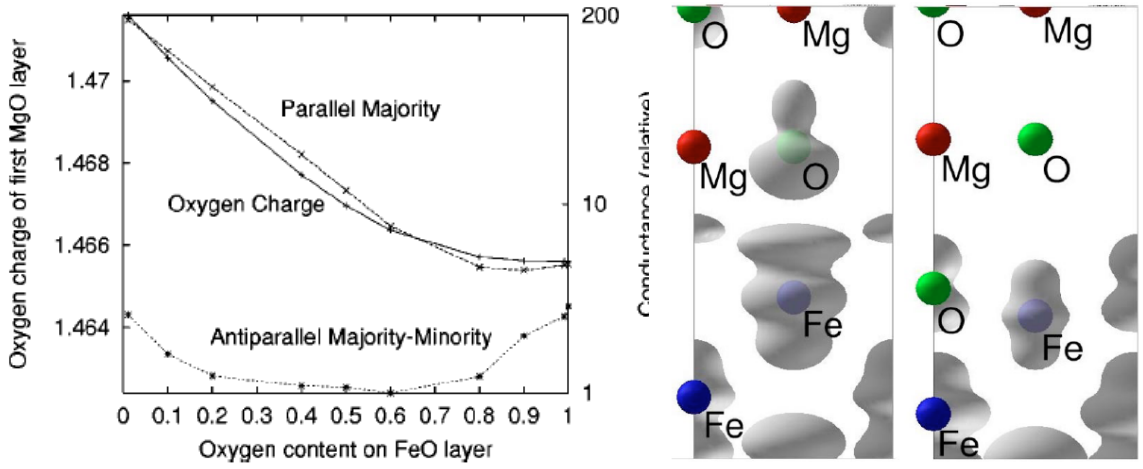

Fig. 2.22 – Gauche : Charge portée par les atomes d'O_{MgO} (trait plein) et conductances dans les états P et AP (traits pointillés) en fonction du pourcentage d'O_{FeO}. Les conductances ont été normalisées afin d'obtenir une valeur de 1 au minimum de la conductance AP. Droite : La DOS partielle au niveau de Fermi correspondant à la symétrie Δ_1. A gauche sans couche de FeO et à droite avec une couche de FeO. Tiré de [80].

La figure 2.22 montre l'évolution de la conductance des canaux maj → maj et maj → min en fonction de la proportion d'O_{FeO}. Elle permet de connaitre quel canal (majoritaires → majoritaires (maj → maj) ou majoritaires → minoritaires (maj → min)) est modifié par la présence de cette couche. L'évolution de la conductance du canal maj → maj et celle de la charge portée par les atomes O_{MgO} est sensiblement la même. Le canal le plus affecté par la présence d'O_{FeO} est donc le canal majoritaire (essentiellement formé par les électrons Δ_1). De plus cette décroissance similaire, permet de conclure que la conduction pour le canal maj → maj se fait principalement à travers la densité d'état du Fe et celle de O_{MgO}. Ceci est confirmé par la comparaison des DOS partielles au niveau de Fermi des états Δ_1 en l'absence ou en présence d'une couche de FeO (figure 2.22 à droite). L'introduction d'O_{FeO} entraîne une importante diminution de la densité d'état Δ_1 sur les atomes de Fe mais aussi et surtout sur les atomes d'O_{MgO} de la première couche atomique. La forte hybridation entre le Fe du dernier plan atomique et l'O_{FeO} modifie la répartition des charges dans tout le volume de MgO. Les liaisons formées sont de type sp. Les électrons Δ_5 (canal maj → min) ont essentiellement un caractère "d" et sont donc faiblement affectés par cette hybridation. En revanche les électrons Δ_1 sont formés par les orbitales "s", "p" et "d". Ce sont donc principalement eux qui sont modifiés par la création de ces liaisons entre Fe et O_{FeO}.

Plus précisément, les auteurs trouvent numériquement que la fonction d'onde sur

l'atome d'O_{FeO} et celle sur l'atome de O_{MgO} n'ont pas la même symétrie bien que formées par les mêmes orbitales. Sur O_{MgO} les coefficients des orbitales s et p décrivant un électron Δ_1 sont sensiblement identiques. Sur O_{FeO} le coefficient de l'orbitale "p" est plus grand que le coefficient de l'orbitale "s", d'au moins un ordre de grandeur. Le raccordement des fonctions d'ondes impose alors qu'une fraction bien moins importante de l'amplitude de l'onde peut être transmise dans la barrière. Bien que la transparence de la barrière de MgO en fonction des différentes symétries reste inchangée (même taux de décroissance), la TDOS et donc la TMR sont diminuées d'un ordre de grandeur.

2.6.1.2 Influence de la couche de FeO sur les IRS

La question posée ici est de savoir si les IRS participant principalement au transport sont sensibles aux liaisons entre les atomes de Fe du dernier plan atomique et les atomes de O_{FeO}.

L'équipe de C.Tiusan [67] a calculé les densité d'états pour les électrons majoritaires et minoritaires pour les systèmes Fe/MgO/Fe et Fe/FeO/MgO/Fe afin de vérifier l'influence de la couche de FeO sur l'IRS. La structure électronique a été calculée avec la méthode FLAPW et le code WIEN2k en utilisant une supercellule de 10 couches de Fe de part et d'autre de 6 couches de MgO.

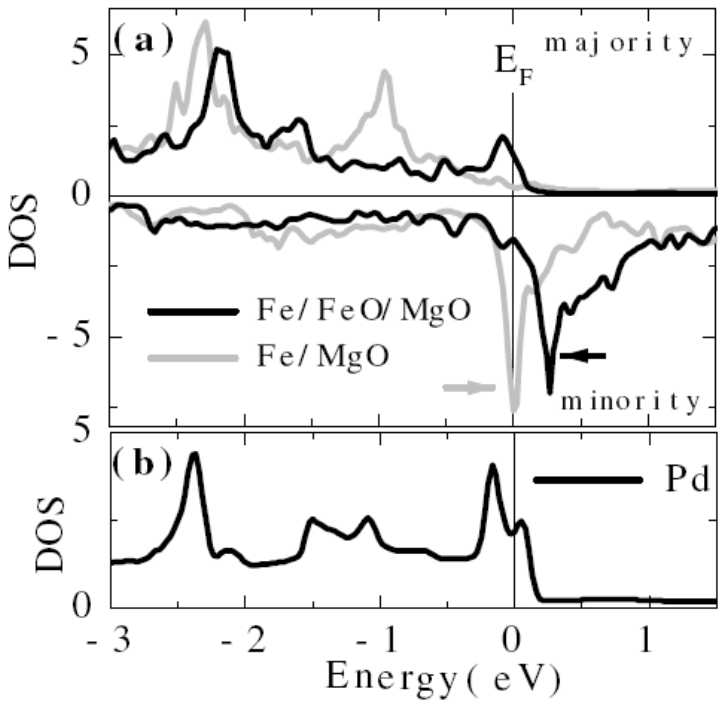

Fig. 2.23 – (a) DOS au niveau de la couche de Fe interfaciale pour le système Fe/MgO/Fe et Fe/FeO/MgO/Fe. Les flèches indiquent les IRS minoritaires. (b) DOS total du Pd en volume. Tiré de [67].

On peut remarquer figure 2.23 que la présence d'une couche de FeO ne provoque qu'un simple décalage vers les plus hautes énergies du pic relatif à l'IRS[20]. Ce dernier ne

[20]Un résultat équivalent a été trouvé par Zhang et Bulter à la référence [79].

disparait donc pas. Tiusan *et al.* ont calculé que l'IRS est majoritairement de caractère d_{z^2} (cf. à ce sujet le paragraphe 2.14). Les liaisons Fe-O_{FeO} sont de type "sp" (cf. 2.6.1.1). L'IRS n'est donc que peu sensible à ces liaisons (simple décalage).

2.6.2 Influence du C à l'interface

L'équipe de Coriolan Tiusan du LPM de Nancy a étudié l'influence de la présence d'atomes de C à l'interface Fe/MgO inférieure [68]. Pour cela ils ont comparé les propriétés de magnéto-transport de deux empilements différents : le type A, $Fe_{50}/MgO_3/Fe_{10}$, et le type B, $MgO_{10}/Fe_{50}/MgO_3/Fe_{10}$ (les épaisseurs sont exprimées en nanomètre). La différence réside donc uniquement dans le dépôt ou non d'une couche de MgO avant le dépôt de la JTM. Cette couche de MgO permet d'éviter la diffusion du C restant dans le substrat de MgO [21] jusqu'à la surface du Fe lors de son recuit à 450°C (paragraphe 3.3.1). La présence de C, dans l'échantillon de type A, à la surface supérieure de la couche inférieure de Fe après son recuit est mise en évidence par les clichés RHEED (figure 2.24). Des pics supplémentaires apparaissent dans les clichés du type A en comparaison à ceux du type B. Ces pics sont caractéristiques d'une reconstruction 2x2 à l'interface (deux fois plus d'atomes à la surface). La couche de MgO agit donc comme une barrière à la diffusion du C : si elle est déposée la surface supérieure de la couche inférieure de Fe n'est constitué que d'atome de Fe, sinon un élément polluant (supposé être ici le C) diffuse du substrat de saphir (MgO cristallin) vers cette surface.

Les résultats de magnéto-transport sont représentés sur la figure 2.25 pour le type A et sur la figure 2.26 pour le type B. Les courbes $G(V) = I(V)/V$ et $TMR(V)$ obtenues pour les empilements avec ou sans C sont très différentes. Sans C (type B), ces courbes sont symétriques en tension. On remarque sur l'agrandissement de la courbe de conductance à faible tension deux minimums locaux à $\pm$ 0.2 V. Ceux-ci ont été attribués par les auteurs à la perte du canal de conduction $\downarrow$ vers $\uparrow$ des électrons Δ_5 (fin de la bande de conduction des électrons Δ_5[22]).

Pour le type A (avec C), les caractéristiques $G(V)$ et $TMR(V)$ sont asymétriques. En tension négative, la TMR diminue faiblement comparativement à la TMR obtenue sur l'empilement sans C, alors qu'en tension positive, la TMR diminue rapidement avec la tension. Elle devient même négative pour des tensions supérieures à +0.3 V. Ce changement de signe est dû à la très rapide augmentation de la conductance dans l'état AP comparée à celle dans l'état P pour des tensions positives.

Cette étude montre combien le transport tunnel dépendant de spin dans un système épitaxié comme le Fe/MgO/Fe (100) est dépendant de la qualité des interfaces.

2.7 Conclusion

Ce chapitre théorique a permis de mettre en place les outils fondamentaux utiles à la description du transport électronique dépendant du spin dans le système Fe/MgO/Fe

[21] Malgré un recuit du substrat de MgO à 600°C, permettant de désorber des espèces polluantes (cf. paragraphe 3.1.3), du C peut rester en surface.

[22] voir sur le sujet paragraphe 4.1.3

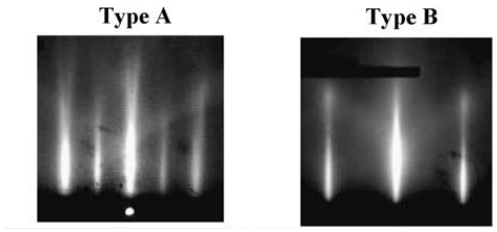

Fig. 2.24 – Clichés RHEED selon la direction [100] de la surface supérieure de la couche inférieure de Fe après recuit à 450°C et avant dépôt de MgO. L'échantillon de type A présente des pics supplémentaires caractéristiques d'une reconstruction 2x2 à l'interface.

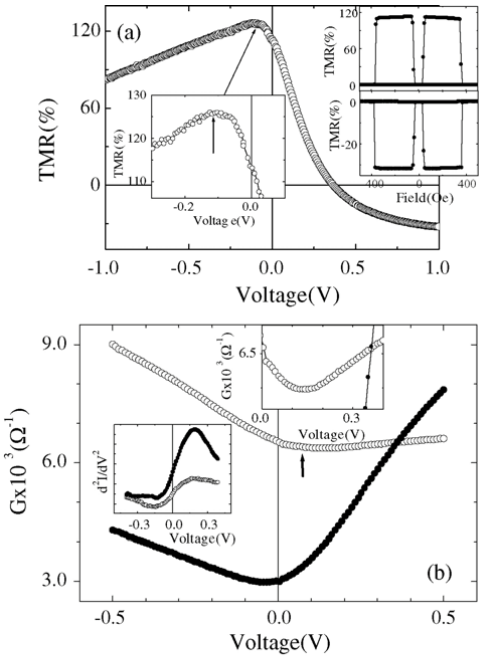

Fig. 2.25 – Mesures de magnéto-transport sur l'échantillon de type A (avec C à l'interface Fe/MgO). A courant positif les électrons circulent de l'électrode de Fe supérieure vers l'électrode inférieure. La figure (a) donne la variation de la TMR en fonction de la tension. La figure (b) donne la conductance $G = V/I$ en fonction de la tension dans les états P (∘) et AP (•).

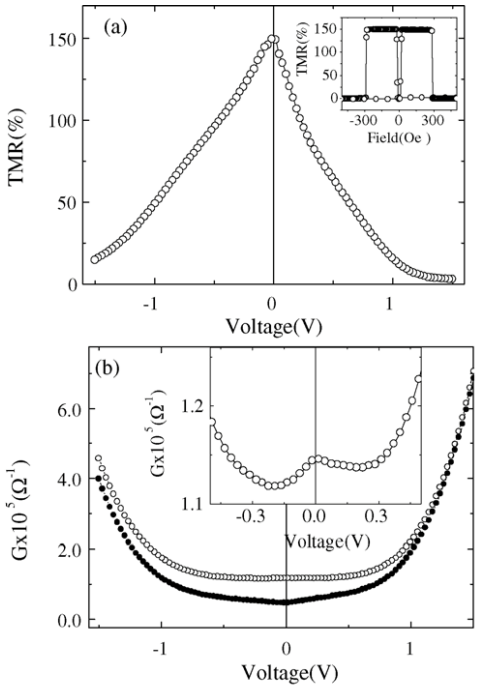

Fig. 2.26 – Mesures de magnéto-transport sur l'échantillon de type B (sans C à l'interface Fe/MgO). A courant positif les électrons circulent de l'électrode de Fe supérieure vers l'électrode inférieure. La figure (a) donne la variation de la TMR en fonction de la tension. La figure (b) donne la conductance $G = V/I$ en fonction de la tension dans l'état P (∘) et AP (•). L'insert est un zoom autour des valeurs proches de la tension nulle, dans l'état P.

(100). Les électrons y sont décrits comme des ondes de Bloch possédant une symétrie particulière appartenant aux symétries du réseau bcc. La décroissance de la probabilité

de présence de l'électron dans la barrière, et par la même sa probabilité de passage à travers cette barrière, sont différentes pour chaque symétrie. Ce filtrage dépendant des symétries est à l'origine des fortes valeurs de TMR obtenues.

Il a de plus été prédit théoriquement l'importance des interfaces Fe/MgO, tant au niveau de leur qualité cristallographique (rugosité de surface) qu'au niveau de la chimie de l'interface (présence de C, O, Ag, Cr...). Dans le système Fe/MgO/Fe parfait, les calculs *ab initio* donnent la présence d'un IRS situé à +0.2 eV au dessus du niveau de Fermi de symétrie dominante Δ_1. Cet IRS devrait modifier considérablement le transport car il autorise un canal de conduction interdit en son absence, lorsque l'énergie pour l'atteindre est suffisante.

Ainsi seule une connaissance cristallographique approfondie du système étudié peut permettre la compréhension des propriétés électroniques mesurées.

Chapitre 3

Caractérisations structurale et magnétique

Nous avons vu précédemment la forte dépendance entre la qualité des couches et des interfaces, et les propriétés de transport dépendant du spin dans les JTM épitaxiées Fe/MgO/Fe. La connaissance approfondie de la qualité du dépôt et des interfaces est donc essentielle à la compréhension des résultats observés (cf.paragraphe 4).

La première partie de ce chapitre est consacrée à la présentation de la technique d'épitaxie par Jets Moléculaires, technique utilisée par l'équipe de C. Tiusan au LPM de Nancy afin d'élaborer les JTM Fe/MgO/Fe (100) étudiées dans cette thèse. Le contrôle de la qualité du dépôt et des interfaces est effectué *in situ* par l'utilisation d'un RHEED (Reflexion High Energy Electron Diffraction).

La seconde partie de ce chapitre montre les résultats de caractérisations magnétiques des échantillons effectuées à SPINTEC, comprenant à la fois des cycles magnétiques mais aussi des cycles magnétorésistifs. Les premiers mettent en évidence la présence d'une couche dure et d'une couche douce non couplées, et confirment la faible rugosité d'interface. Les seconds indiquent la présence de domaines de fermetures dans la couche dure entraînant d'une part un phénomène de réplication de domaines dans la couche douce et d'autre part l'impossibilité d'obtenir l'état magnétique anti-parallèle pur.

3.1 Croissance des JTM épitaxiées

3.1.1 La technique d'épitaxie par Jets Moléculaires

La technique d'épitaxie par Jets Moléculaires (EJM), encore appelée en anglais « Molecular Beam Epitaxy »(MBE), consiste à faire interagir dans une enceinte, un flux atomique/ moléculaire avec une surface. Cette interaction donne lieu à l'adsorption des atomes/ molécules sur la surface. Cette technique nécessite une pression dans l'enceinte extrêmement basse comme nous le verrons au paragraphe 3.1.2. Ce n'est que vers la fin des années 60 que les progrès dans le domaine de l'ultra-vide ont permis le développement de cette science. De plus amples informations sur cette technique peuvent être obtenues dans l'article de John R. Arthur [2] ou dans l'ouvrage de M.A. Herman [28]. La croissance des atomes adsorbés à la surface se fait de manière ordonnée et produit un arrangement

cristallin. Les échantillons préparés sont ainsi des systèmes modèles. Ils constituent des outils précieux permettant une interaction forte entre théorie et expérience.

Le dépôt par épitaxie s'effectue lentement à la surface d'un substrat monocristallin, permettant aux atomes/molécules de s'organiser suivant la cristallographie du substrat. Il faut néanmoins que les paramètres de maille du substrat et ceux du possible cristal en train de se former s'accordent. Dans le cas où cette condition est vérifiée, la vitesse lente du dépôt permet de laisser le temps aux atomes de s'organiser en surface. La relation de Knudsen (provenant de la théorie cinétique des gaz parfaits) exprime le flux de particules ϕ (par unité de surface et de temps) en fonction de la pression partielle P dans l'enceinte, de la masse m d'un atome et de la température T.

$$\phi = \frac{P}{\sqrt{2\pi m k_B T}} \tag{3.1}$$

Ces flux, provenant des cellules d'évaporation, sont orientés vers le substrat monocristallin, préalablement préparé (cf 3.1.3) et porté à une température permettant aux atomes de s'adsorber à sa surface.

Les principaux avantages de la MBE sont :
- réalisation de monocouches cristallines,
- contrôle *in situ* de la qualité de l'interface de croissance ainsi que de la vitesse de croissance par diffraction d'électrons (aussi appelé RHEED pour Reflexion High Energy Electron Diffraction),
- très faible pollution des couches minces grâce à un dépôt sous ultra-vide.

La figure 3.1, montre de manière schématique l'enceinte d'une MBE. On trouve les cellules de Knudsen contenant les matériaux à évaporer (rectangles entourés par un filament en haut de la figure), le RHEED et son détecteur pour l'analyse de la surface et enfin le substrat posé sur un support chauffant. Comme nous allons le voir dans le paragraphe suivant, le chauffage du substrat est important pour le contrôle des pollutions en surface.

3.1.2 Pollution de l'interface de croissance

Lorsque des éléments autres que ceux de la couche que l'on désire se déposent à la surface, on parle de pollution. Ce dépôt a lieu lorsque la pression partielle de l'élément pollueur est importante (relativement à celle de l'élément que l'on veut réellement déposer). Il faut donc attendre que la pression dans l'enceinte soit suffisamment basse (donc peu d'éléments polluant) avant de commencer un dépôt. Par exemple, on peut déduire à partir de l'équation 3.1 qu'une pression de 10^{-10} torr d'oxygène donne lieu à l'adsorption d'une monocouche d'oxygène sur la surface au bout d'une dizaine d'heure. Suivant la durée du dépôt, cette pollution sera ou non négligeable.

Malheureusement, cela ne suffit généralement pas. En effet des éléments ou molécules comme l'eau peuvent être adsorbés sur la surface de l'enceinte, ne participant donc pas à la pression. Si la température dans la chambre est augmentée (par exemple durant le dépôt), ces derniers désorbent, faisant augmenter leur pression partielle. Un dépôt d'une couche polluante sur la surface est alors possible. Il est ainsi nécessaire de désorber la surface de l'enceinte avant tout dépôt.

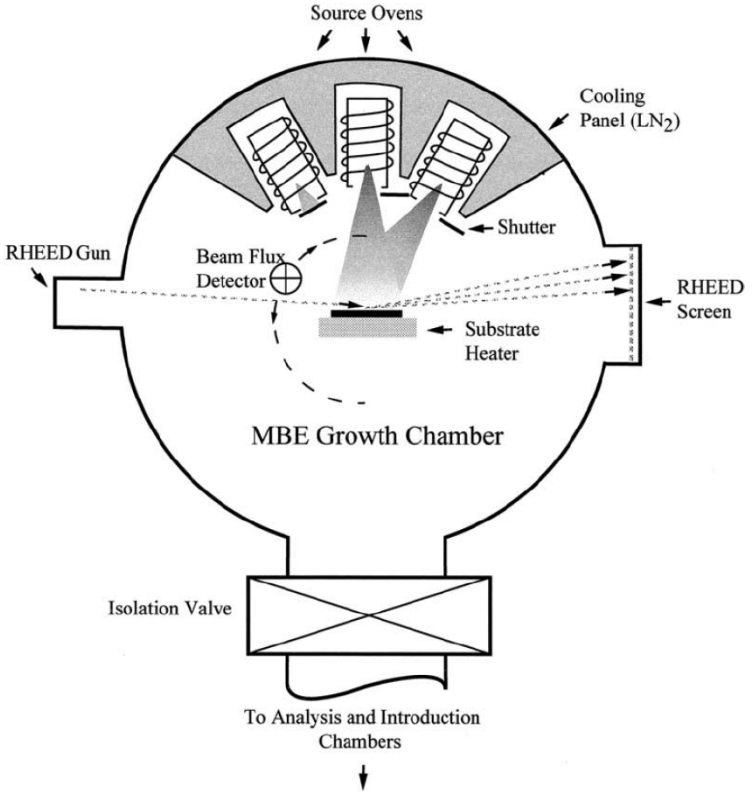

Fig. 3.1 – Schéma de l'enceinte sous ultra-vide d'une MBE. Les cellules de Knudsen contenant les matériaux à évaporer sont représentées par des rectangle entouré d'un filament et se trouvent en haut de la figure. Des caches (un pour chaque cellule) permettent de sélectionner les matériaux à déposer. Le RHEED et son détecteur se font presque face, car le faisceau d'électrons en incidence rasante sur la surface est observé autour de la direction de la réflexion spéculaire. Le substrat se trouve au centre de l'enceinte et est maintenu par le molybloc. Cet ensemble est chauffé. [2].

3.1.3 Préparation des substrats

Les substrats subissent un flash thermique à 500°C pendant 15 minutes, le but étant d'éliminer toutes les molécules, comme le CO ou l'eau, adsorbés en surface de l'échantillon. De plus, la température choisie est supérieure à la température de recuit du Fe (450°C), utilisée lors de la croissance des échantillons Fe/MgO/Fe, permettant d'aplanir l'interface Fe/MgO inférieure. En effet il est important que la température du flash thermique soit supérieure à la plus haute température utilisée pendant la croissance de la couche mince afin d'éviter toutes désorption d'espèces provenant du molybloc (sur lequel le substrat est fixé) ou du four de recuit. Le substrat ainsi préparé n'est plus exposé à l'air avant la fin du dépôt.

3.2 Caractérisation *in situ* par diffraction d'électrons (RHEED)

3.2.1 Principe

La technique de caractérisation par diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (ou RHEED pour Reflexion High Energy Electron Diffraction) permet de suivre *in situ* la vitesse et la qualité de la croissance. Un faisceau monocinétique d'électrons de haute énergie (30keV dans le cas du bâti du Laboratoire de Physique des Matériaux à Nancy) est envoyé en incidence rasante sur l'échantillon. La longueur d'onde associée aux électrons[1] est de l'ordre du dixième d'Angström et leur libre parcours moyen est de plusieurs dizaines de plans atomiques. Travailler en incidence rasante permet alors de ne sonder que les premiers plans atomiques : pour un angle d'incidence de 1°, la profondeur de pénétration des électrons est de l'ordre de la longueur inter-plans atomiques. Dans ces conditions, seule la surface est observée. Des renseignements précieux sur la qualité de celle-ci peuvent être obtenus.

3.2.2 Compréhension théorique des clichés RHEED

Afin de comprendre les clichés RHEED qui seront présentés par la suite, précisons tout d'abord certains points importants de la diffraction sur un cristal.

Soit le système constitué par une source fixe de lumière et un récepteur mobile. Considérons que le vecteur d'onde incident, noté $\vec{k}$, est de norme et direction fixées. Considérons enfin une diffraction élastique (sans perte d'énergie), nous assurant que le vecteur d'onde diffracté, noté $\vec{k'}$, est de norme constante ($\| \vec{k'} \| = \| \vec{k} \|$). La condition de diffraction est obtenue pour tout les vecteurs $\vec{K} = \vec{k'} - \vec{k}$ appartenant au réseau réciproque. Ce vecteur $\vec{K}$ est nommé vecteur de diffraction.

De manière graphique cela revient à trouver l'intersection de la sphère d'Ewald avec le réseau réciproque. La sphère d'Ewald est définie comme l'ensemble des positions possibles de l'extrémité du vecteur de diffraction lorsque $\vec{k}$ est fixé (figure 3.2). Dans le cas des rayons X, la sphère d'Ewald passe, en général, au plus par un petit nombre de noeuds du réseau réciproque. Dans le cas des électrons, pour lesquels la longueur d'onde est beaucoup plus courte et le rayon de la sphère d'Ewald beaucoup plus grand, elle passe, en général, au voisinage d'un grand nombre de noeuds.

Sur la figure 3.2, est donné un exemple de l'obtention graphique de l'ensemble des vecteur de diffraction. On commence par construire la sphère d'Ewald en soustrayant à la sphère des $\vec{k'}$ réfléchis le $\vec{k}$ incident (partie supérieure de la figure). Celle-ci est ensuite placée sur le réseau réciproque. Dans l'exemple choisi, seul le point (001) du réseau réciproque fait partie de la sphère d'Ewald. Le vecteur $\vec{K}$ correspondant est le seul vecteur de diffraction.

[1] On utilise la relation : $\lambda = \frac{h}{\sqrt{2meU}}$ où U est la tension d'accélération des électrons, λ leur longueur d'onde et m leur masse.

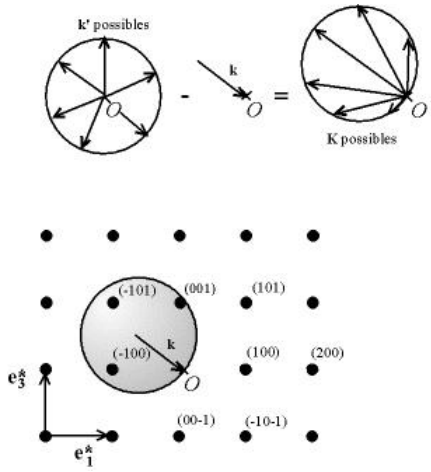

Fig. 3.2 – Obtention graphique de l'intersection de la sphère d'Ewald avec le réseau réciproque. Cette intersection est aussi l'ensemble des positions possibles de l'extrémité du vecteur de diffraction lorsque $\vec{k}$ est fixé. Source de l'image http ://fr.wikipedia.org/wiki/Th%C3%A9orie_de_la_diffraction_sur_un_cristal.

3.2.2.1 Diffraction électronique sur une surface parfaitement plane

Afin de simplifier au maximum les explications sur l'analyse des clichés RHEED, prenons comme exemple un système cubique (cas du Fe). Les atomes sur la surface sont répartis selon les deux directions x et y. L'espacement entre atomes selon ces directions est le même et est noté a. Les directions dans l'espace réciproque associées aux direction x, y et z sont respectivement notées $\vec{e_1^*}$, $\vec{e_2^*}$ et $\vec{e_3^*}$.

Lorsque l'on étudie seulement la surface d'un cristal (cas du RHEED [2]), le réseau réciproque n'est pas une structure 3D périodique de points (cas d'un monocristal), mais une structure 3D périodique de traits infinis dans une direction (figure 3.3). Pour comprendre l'origine de cette structure, prenons un équivalent mathématique de la monocouche atomique qui est une surface périodique de points à 2D dans le plan (x, y) avec z=0. Ce réseau 2D est le résultat de la multiplication d'un réseau périodique 3D (la monocouche répétée périodiquement suivant l'axe z) par une fonction Dirac de l'espace suivant l'axe z et centrée en z=0. La transformée de Fourier de ce système, donnant le réseau réciproque de la surface, est alors le produit de convolution de la transformée de Fourier du réseau périodique 3D par la transformé de Fourier de la fonction Dirac. Cette dernière est un trait infini (toutes les fréquences) selon la direction $\vec{e_3^*}$. La transformé de Fourier du réseau périodique 3D est le réseau réciproque du système cubique. Le produit de convolution est alors un réseau périodique de traits infinis selon l'axe $\vec{e_3^*}$.

L'intersection de la sphère d'Ewald avec ces bâtonnets donne des points dans le cliché de diffraction (figure 3.3 (a)). Cependant trois conditions fortes sont nécessaires à l'obtention d'une telle figure de diffraction. Chaque conditions lorsqu'elle n'est pas respectée change la figure de diffraction et peut apporter des renseignements sur la véritable nature de la surface.

[2]Les électrons arrivant en incidence rasante sur l'échantillon, le système étudié est une surface 2D et non un volume 3D.

La première condition est que seule la première couche atomique est sondée par le faisceau RHEED. En effet, à mesure que l'angle du faisceau RHEED par rapport à la surface du cristal est augmenté, des plans atomiques inférieurs sont sondés. Le système devient un ensemble de N plans atomiques. La fonction Dirac se transforme alors en une fonction porte de longueur spatiale $N \times a$ où a est le paramètre du réseau suivant z. La transformé de Fourier selon cette direction n'est plus un trait mais un sinus cardinal. Plus la porte est fine, plus l'espacement entre deux maxima du sinus cardinal est grand. Ainsi pour N petit, le trait reste un trait continu mais son amplitude est modulée par la superposition des sinus cardinaux sur chaque noeud du réseau réciproque 3D selon l'axe $\vec{e_3^*}$. Lorsque N augmente, le trait continu devient un trait pointillé dont chaque pointillé est positionné sur un noeud du réseau réciproque selon l'axe $\vec{e_3^*}$. Lorsque N tend vers l'infini, les pointillés deviennent des points. On retrouve le réseau réciproque 3D du monocristal.

La deuxième condition est que la sphère d'Ewald est une sphère sans épaisseur. Ceci n'est pas le cas lorsque l'énergie du faisceau incident n'est pas parfaitement définie (équivalent à dire que $\| \vec{k} \|$ n'est pas parfaitement définie), où lorsque la diffraction s'accompagne d'une perte d'énergie donc d'une variation de $\| \vec{k'} \|$. Dans ce cas des taches sont obtenues à la place des points dans le cliché de diffraction (figure 3.3 (b)).

La troisième condition est que la surface est parfaitement plane. Généralement la croissance d'une monocouche passe par la formation d'îlots donnant une figure de diffraction différente de celle de la monocouche.

De manière expérimentale, le détecteur RHEED est placé autour de la position de réflexion spéculaire du faisceau. Seuls les points de diffraction au voisinage de cette position possèdent une intensité lumineuse suffisante pour être détectés. Dans la suite, nous nous concentrerons donc sur la figure de diffraction obtenue en ne prenant en compte que les positions proches de celle de la réflexion spéculaire.

3.2.2.2 Formation d'îlots durant la croissance

Durant la croissance, des îlots sont généralement formés en surface avant de se réunir pour créer la nouvelle monocouche. Si on considère que la monocouche formée est sans défaut, chaque îlot a la même orientation cristallographique. Cependant il y a une perte de cohérence entre chaque îlot pour la diffraction. Le système devient une somme de systèmes identiques (les îlots) mais bien plus petits en taille qu'une monocouche et sans aucun lien entre eux. La figure de diffraction est, par conséquent, celle d'un seul îlot[3]. Chaque trait de l'ancienne figure de diffraction est remplacé par un bâtonnet (trait épais). La nouvelle figure de diffraction est un ensemble de taches de formes allongées dans la direction perpendiculaire à la surface (figure 3.3 (c)).

Les figures de diffraction obtenues *in situ* renseignent sur la qualité de la surface lors de la croissance. Prenons un exemple afin de fixer les idées. Si lors de la croissance on voit, sur le cliché RHEED, se transformer de manière périodique des points en des bâtonnets très fins et inversement, on peut espérer que la croissance s'effectue sous forme d'îlots de surface (d'où les bâtonnets) de grande qualité cristallographique (donc donnant des

[3]L'intensité diffractée peut être considérée en première approximation égale à celle diffractée par un seul îlot multipliée par le nombre d'îlots. Ceci n'est pas parfaitement exacte néanmoins car chaque îlot peut avoir une taille différente.

bâtonnets très fins).

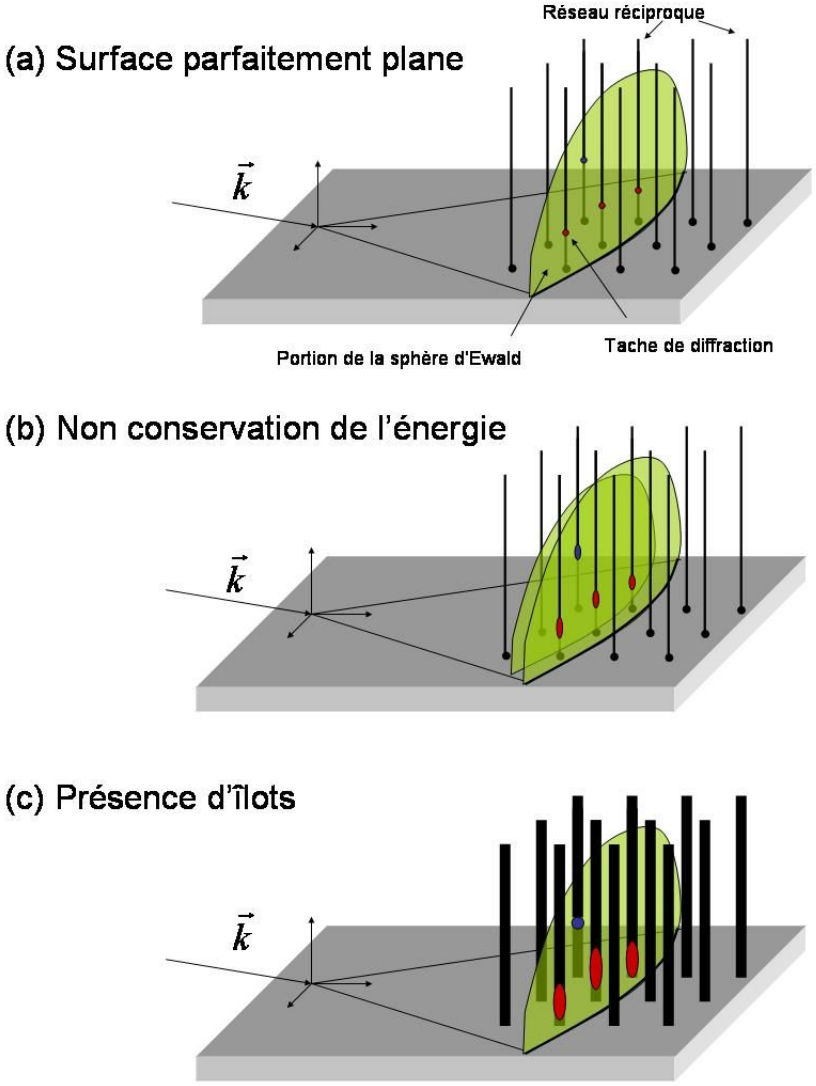

Fig. 3.3 – Les trois figures montrent comment la sphère d'Ewald coupent le réseau réciproque d'une surface 2D. Le détecteur est placé autour de la position de réflection spéculaire. A droite de chaque image est montré le cliché RHEED obtenu. Sur la figure (a), la surface est considérée comme parfaitement plane et la diffraction est supposée s'effectuer sans perte d'énergie (sphère sans épaisseur). La figure (b) représente le cas où l'énergie des électrons n'est pas conservée lors de la diffraction (sphère avec une épaisseur). La figure (c) est pour le cas où le système n'est plus une monocouche infinie mais est formé par un ensemble d'îlots. Le réseau réciproque est dans ce cas un réseau de bâtonnets.

3.2.3 Contrôle de la qualité de l'interface Fe/MgO

La qualité de l'interface Fe/MgO est nettement améliorée par un recuit de la couche de Fe avant le dépôt de MgO. L'étude des clichés RHEED avant et après le recuit montre l'amélioration de la surface de Fe sur laquelle est déposé le MgO. Afin de confirmer ce qui peut être observé sur les clichés RHEED, une étude de rugosité mesurée par AFM a été menée en parallèle. Les résultats présentés ici proviennent de la thèse de Jérôme Faure-Vincent[23] qui a réalisé cette étude.

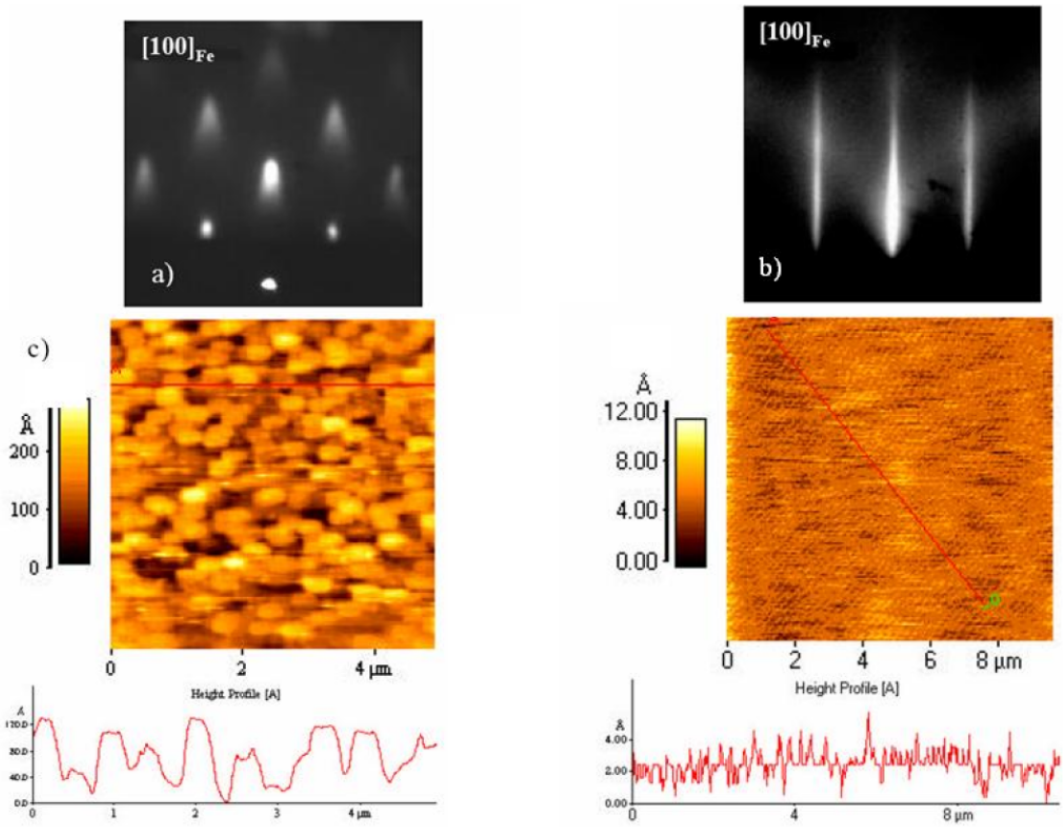

Fig. 3.4 – Figure représentant le cliché RHEED et la topographie mesurée par AFM (ainsi que des coupes selon les axes rouges) d'une surface de Fe(100) sans recuit (images de gauche) et après recuit à 450° (images de droite).

La figure 3.4 (a) montre le cliché RHEED et l'image topographique AFM d'une couche de Fe(100) de 40 nm. Le cliché RHEED est pointé ce qui indique que la surface est fortement rugueuse. Les images AFM montrent en effet de larges terrasses, d'environ 300 nm de large, séparées par des trous d'une profondeur allant jusqu'à 20 nm.

Un recuit permet d'aplanir la surface en apportant une énergie thermique aux atomes, leur conférant ainsi une plus grande mobilité et permettant un réarrangement possible en surface. Après un recuit à 450°C pendant 15 minutes, les bâtonnets RHEED deviennent très fins et allongés (figure 3.4 (b)), preuve d'une surface plane (cf 3.2.2). L'image topographique AFM confirme cette interprétation du cliché RHEED. La rugosité de surface n'est que de 0.5 Å RMS. La largeur des bâtonnets renseigne sur la présence de terrasses en surface (similaire aux îlots du paragraphe 3.2.2). La largeur de ces terrasses est estimée égale à environ 100 nm (largeur d'un pic). D'après ces renseignements, l'épaisseur d'un

terrasse est d'une monocouche atomique[4].

Cette étude souligne d'une part l'importance de l'étude des clichés RHEED qui permettent de connaître, au fur et à mesure du dépôt, la qualité des monocouches déposées. D'autre part, elle confirme l'excellente qualité de l'interface de Fe/MgO inférieure grâce au recuit de la couche de Fe avant le dépôt du MgO.

3.2.4 Oscillation RHEED

Lorsque la croissance se fait couche par couche, il est parfois possible d'observer des oscillations de l'intensité de la tache centrale[5]. La période des oscillations observées correspond au temps d'élaboration d'une monocouche. La vitesse de dépôt peut ainsi être connue.

La première explication [27] de l'origine de ces oscillations est décrite schématiquement figure 3.5.

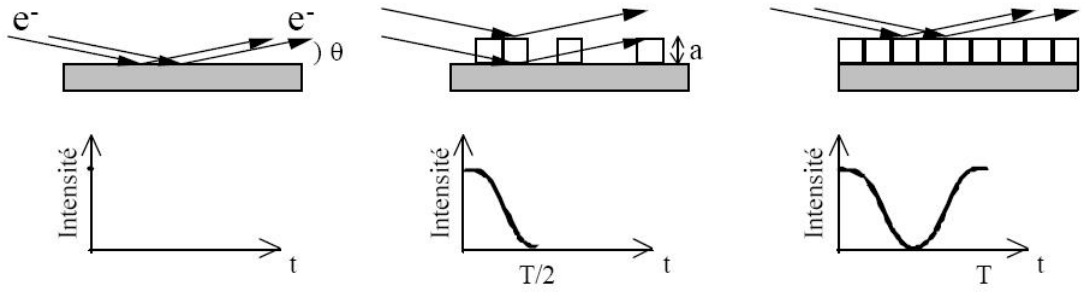

Fig. 3.5 – Interprétation des oscillations RHEED de l'intensité de la tache centrale. L'interférence entre les électrons réfléchis par la surface et par les îlots module l'intensité. Schéma tiré de la thèse de Jérôme Faure Vincent [23].

Considérons une surface parfaitement plane. Comme nous l'avons déjà évoqué précédemment, les atomes s'adsorbent sur la surface d'abord sous forme d'îlots. Les électrons incidents sont donc réfléchis à la fois sur la surface et sur ces îlots. Les interférences entre les électrons sont destructives[6], et l'intensité de la tache centrale diminue. La diminution maximale est obtenue lorsque la surface recouverte par les îlots égale la surface restante. L'intensité maximale est ré-obtenue lorsque la croissance de la monocouche est terminée. Dans ce cas, la surface est de nouveau plane et les interférences, constructives.

Il faut pourtant souligner que cette explication schématique de l'origine des oscillations RHEED ne permet pas d'expliquer l'ensemble des phénomènes pouvant être observés [29, 20]. De plus si la présence d'oscillations RHEED est la preuve d'une croissance 2D,

[4]Les valeurs présentées ici sont celles estimées par J.F. Vincent. Il me semble cependant regrettable que les estimations des terrasses et de la rugosité aient été faites à partir d'une acquisition sur une longueur de 10 μm. Je ne peux en effet, dans ces conditions, conclure sur l'origine du signal observé : le bruit ou la présence de terrasse. Néanmoins, même si le signal est du bruit, cela signifie que la surface est encore plus plane qu'estimée précédemment.

[5]Cette tache est aussi appelée raie 00. Elle correspond à la réflection spéculaire de l'onde incidente sur la surface ($\vec{k}$ et $\vec{k'}$ dans le plan d'incidence et les angles formés par ces vecteurs avec la normale à la surface égaux).

[6]La répartition aléatoire des îlots amène une phase aléatoire entre les électrons et donc des interférences destructives.

leur absence ne prouve en aucun cas le contraire [24] : la croissance peut en effet se faire par avancée de bord de marche.

3.3 Croissance des jonctions Fe/MgO/Fe/Co

3.3.1 Empilement exact et conditions de dépôt

Les jonctions tunnels magnétiques étudiées sont constituées d'un empilement de couches minces déposé sur un substrat de MgO (100). Ce substrat impose un paramètre de maille. La cristallinité de l'empilement déposé n'est possible que lorsque ce paramètre de maille n'est pas trop différent de celui de l'empilement et que le dépôt se fait lentement. Le Fe croît bcc et le MgO croît fcc. Les deux mailles sont tournées d'un angle de 45°

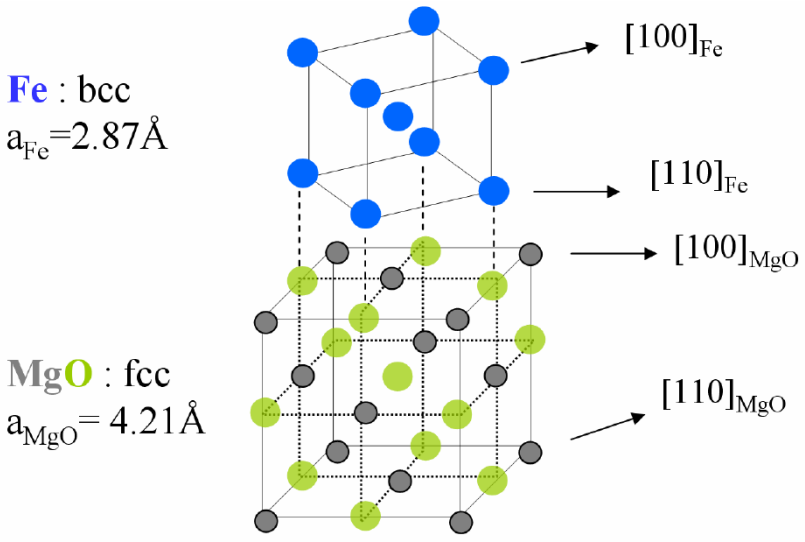

Fig. 3.6 – Schéma montrant l'empilement respectif des atomes de Fe (en bleus) sur ceux du MgO (Mg en gris et O en vert).

comme représenté sur la figure 3.6 : la direction [100] du Fe est parallèle à la direction [110] du MgO. Le désaccord faible entre le paramètre de maille du Fe bcc et la longueur de la diagonale d'une face de la maille fcc est faible. Le Fe va ainsi croître de façon cristalline ainsi que le MgO constituant la barrière et que la couche supérieure de Fe. L'empilement Fe/MgO/Fe est orienté (100). Le Co est lui aussi cristallin. Seuls le Pd et l'Au ne le sont pas. L'empilement exact et les conditions du dépôt sont reportés dans le tableau Tab.3.1

La couche inférieure de Fe est la couche douce. La couche supérieure de Fe est la couche dure. Celle-ci est durcie par la présence de la couche de Co. Les couches de Pd et d'Au ne sont là que pour éviter une oxydation en surface du Co.

3.3.2 Qualité de la croissance

Les résultats présentés dans les paragraphes suivants ont été obtenus sur un seul et même échantillon où quatre zones d'épaisseur différente de MgO ont été définies. Afin

Matériau	Épaisseur désirée	Vitesse de dépôt	T(°C) Cellule	I(mA) Canon	Temps dépôt	Pression (Torr)	T(°C) Four
MgO	100Å	<0.5Å	-	9	-	-	400
Fe	450Å	-	1280	-	74 min	$1.8e^{-9}$	120-100
Recuit 35min à 450°C. Pression 1.8e-9 Torr							
MgO	20Å	Sur tout l'échantillon					93
	22Å	Caché moitié et dépôt 2Å					93
	24Å	Tourné de 90° et dépôt de 4Å					93
	26Å						93
Fe	100Å	-	1280	-	16 min	$2.3e^{-9}$	90
Recuit 10min à 380°C. Pression 2.5e-9 Torr							
Co	200Å	0.7Å	-	29	-	-	108
Pd	100Å	-	1280	-	25min	6.7e-10	99
Au	100Å	1.2Å	-	63	-	-	89

TAB. 3.1 – Conditions utilisées pour le dépôt des échantillons Fe/MgO/Fe/Co à 4 zones.

d'obtenir ce type d'échantillon, l'emploi d'un cache est nécessaire lors du dépôt de la couche de MgO.

Comme il a déjà été dit, les recuits que subissent les couches de Fe permettent d'améliorer la qualité de leurs surfaces. La figure 3.7 montre les clichés RHEED obtenus après le dépôt et le recuit de la couche de Fe inférieure (image *(a)*) et après le dépôt et le recuit de la couche de Fe supérieure (image *(b)*). La forme allongée des bâtonnets indique une croissance 2D, avec une bonne cristallinité de l'interface. Les bâtonnets sont plus fins dans le cas de la couche inférieure de Fe que dans le cas de la couche supérieure. L'interface Fe/MgO inférieure doit par conséquent être de meilleure qualité que l'interface supérieure.

De plus, on peut remarquer que le recuit subi par la deuxième couche de Fe est bien moins important que celui subi par la première. En effet si la température du recuit de la deuxième couche de Fe est trop importante, l'oxygène de la couche de MgO commence à diffuser dans les couches de Fe. La qualité de l'interface Fe/MgO inférieure est alors perdue.

La figure 3.8 représente l'évolution du signal de la tache centrale en fonction du temps. On retrouve les oscillations décrites au paragraphe 3.2.4. Seules les six premières couches sont observées. En effet il existe un risque de claquer la jonction tunnel par l'envoie des électrons du RHEED. Ceux-ci chargent le surface, n'arrivent pas à être évacués et finissent par claquer la jonction. Ce risque est d'autant plus élevé que la barrière est épaisse. Ainsi le reste du dépôt de MgO se fait en mesurant le temps, en considérant que la vitesse de dépôt du MgO ne varie pas sur le temps de la mesure.

En conclusion, l'échantillon à 4 zones pris comme exemple ici est cristallin jusqu'au Co compris. La qualité de l'interface Fe/MgO inférieure est nettement meilleure que celle de l'interface supérieure à cause d'un recuit à plus haute température. Cet échantillon est celui dont les résultats en transport sont présentés au chapitre 4.

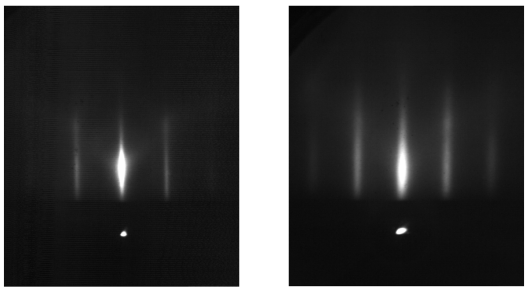

Fig. 3.7 – Clichés RHEED obtenus après le dépôt et le recuit de la couche de Fe inférieure (image (a)) et après le dépôt et le recuit de la couche de Fe supérieure (image(b)).

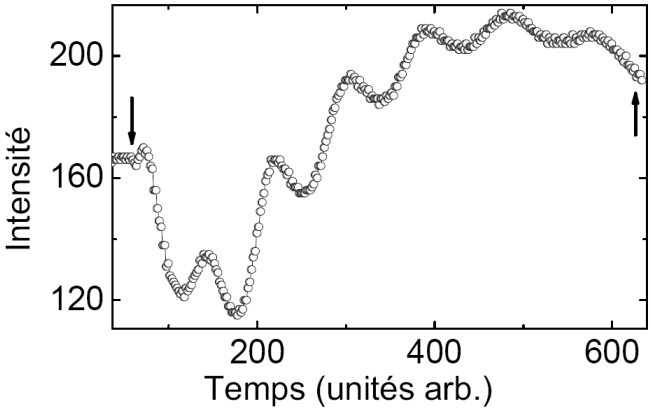

Fig. 3.8 – Oscillations RHEED mesurées au début du dépôt de MgO pour les 6 premières couches atomiques déposées.

3.4 Propriétés magnétiques typiques des empilements Fe/MgO/Fe/Co

Pour des barrières épaisses, le cycle magnétique typiquement obtenu est celui montré figure 3.9. Le retournement de la couche libre se fait à des valeurs de champ faibles, de l'ordre de quelques oersteds tandis que le retournement de la couche dure a lieu pour des valeurs de champ bien plus importantes d'environ 250 Oe. Le cycle mineur permet de connaître le champ d'échange qui existe entre les deux couches magnétiques de Fe. En effet un couplage ferromagnétique ou anti-ferromagnétique entre les deux couches entraîne un décalage du cycle mineur. Supposons une couche magnétique unique. Son cycle magnétique est centré en 0, c'est à dire que les valeurs absolues de ses champs coercitifs ($H_{haut \rightarrow bas}$ et $H_{bas \rightarrow haut}$) sont égales. Ceci se traduit par un champ d'échange (ou de décalage) nul. Ce dernier est défini comme la valeur moyenne des deux champs coercitifs. A partir de ce champ d'échange noté H_{ex}, on peut déterminer, dans le cas d'une interaction de surface, la constante d'échange notée J. On a pour ce faire la relation suivante :

$$J = H_{ex} \times d_{Fe} \times M_{Fe} \tag{3.2}$$

Où d_{Fe} est l'épaisseur de la couche de Fe la plus douce (ici la couche inférieure) et

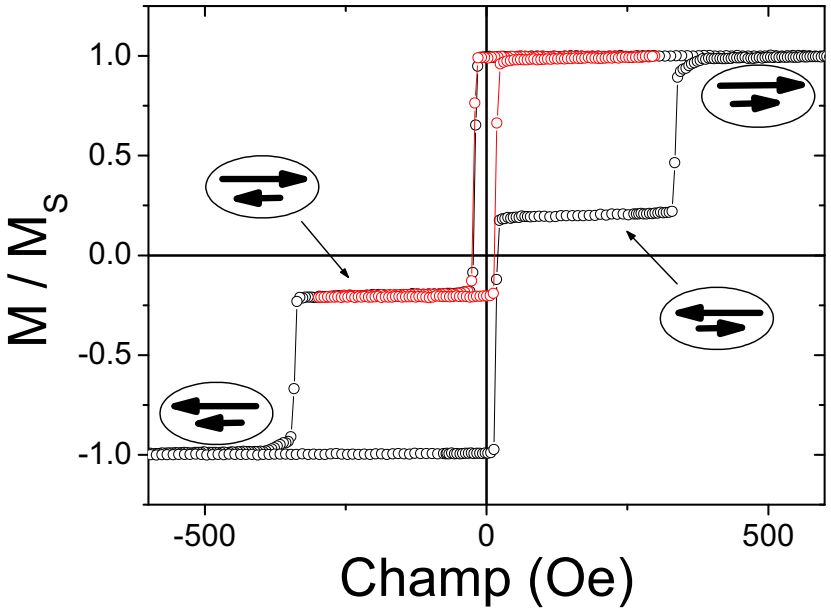

Fig. 3.9 – Cycles magnétiques majeur (noir) et mineur (rouge) typiques d'un échantillon de $Fe_{45}/MgO_{2.5}/Fe_{10}/Co_{20}$. Les épaisseurs sont données en nanomètre. Les valeurs de champ coercitif obtenues pour le cycle mineur sont $H_{bas\rightarrow haut} = 8$ Oe et $H_{haut\rightarrow bas} = -24$ Oe. Les schémas représentent l'orientation relative de la couche libre (petite flèche) et de la couche piégée (grande flèche).

M_{Fe} son aimantation à saturation.

Pour les épaisseurs qui ont été étudiées (2.2, 2.4 et 2.6 nm[7]), le couplage d'échange entre les couches de Fe est un couplage ferromagnétique. Ce couplage devient un couplage anti-ferromagnétique pour des épaisseurs de MgO inférieures à 8 Å [21, 22] (figure 3.10).

Le couplage ferromagnétique est attribué à l'effet « peau d'orange » aussi appelé couplage de Néel. Son origine provient de la rugosité des interfaces de Fe/MgO [50, 55]. La figure 3.11 montre une image MET (Microscopie Électronique à Transmission) d'un dépôt de Fe/MgO/Fe/Co vu en coupe. L'épaisseur de la couche douce de Fe est ici de 70 Å. Le trait blanc montre l'estimation du profil de rugosité que les auteurs en ont fait [23]. Ils trouvent une rugosité faible dont la période d'oscillation peut être estimée à 80 Å et l'amplitude d'oscillation à 4 Å. Ces valeurs permettent d'estimer la constante de couplage. En effet celle-ci est égale à [50, 55] :

$$J = \frac{(\pi\ h\ M_{Fe})^2 \cdot d_{Fe}}{\lambda\ t_{Fe}\ \sqrt{2}} e^{\left(-\frac{2\pi\sqrt{2}}{\lambda}\ t_{Fe}\right)} \tag{3.3}$$

Où λ est la période et h l'amplitude des oscillations de rugosité. La valeur de la constante d'échange ainsi trouvée est égale à 0.015 erg/cm^2 qui est proche de la valeur expérimentale de 0.020 erg/cm^2 déduite du graphe 3.10 (épaisseur de 1 nm de MgO).

Lorsque l'épaisseur de la couche de MgO diminue en dessous de 8 Å, le couplage entre les deux couches de Fe devient antiferromagnétique. Ce couplage semble être dû à un effet

[7]L'épaisseur de 2 nm n'a pas été étudiée car cette zone a servi de test de gravure afin de vérifier si le SIMS était assez sensible pour permettre la détection des espèces.

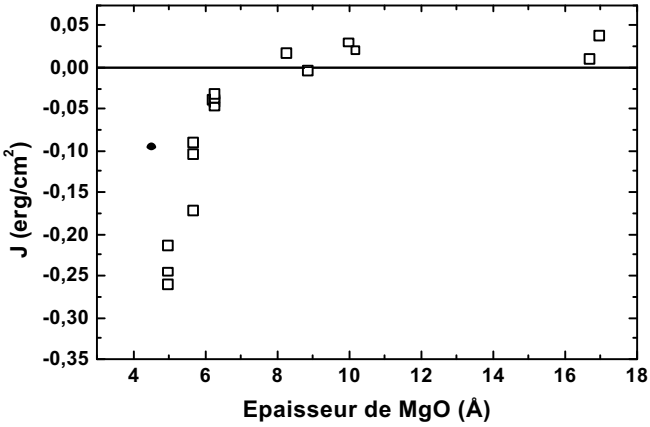

Fig. 3.10 – Variation du couplage J entre les deux couches de Fe en fonction de l'épaisseur de la barrière de MgO. Tiré de [23].

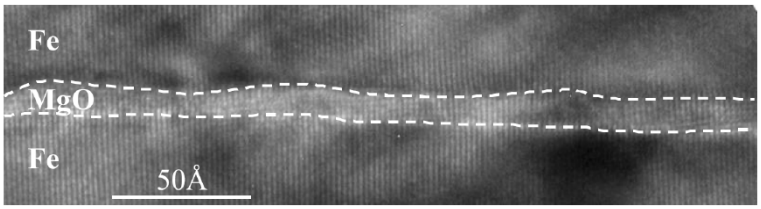

Fig. 3.11 – Image MET d'une jonction Fe(70Å)/MgO(8.9Å)/Fe. Le profil de rugosité est symbolisé par les pointillés. La période des « oscillations » a été estimée à 80 Å et leur amplitude à 4 Å. Tiré de [23].

de transfert de spin à l'équilibre. Pour de plus amples explications, j'invite le lecteur à consulter la thèse de Jérôme Faure Vincent [23].

3.5 Nanofabrication des échantillons

La fabrication des échantillons repose sur une technique de gravure ionique à travers un masque dur qui permet de reproduire le motif du masque dans l'empilement étudié. La figure 3.12 schématise les différentes étapes permettant la fabrication des échantillons étudiés. Dans notre cas ce masque sert aussi d'électrode supérieure. Il est donc métallique et doit être assez épais pour être encore présent à la fin de la gravure. Tous les échantillons réalisés lors de cette thèse l'ont été en utilisant les équipement du pôle technologique NanoFab de l'institut Néel (CNRS).

Le dessin de notre masque est constitué de plots de formes carré, rond ou elliptique de tailles variables. Les motifs sont obtenus en insolant à l'aide d'un canon à électrons une résine positive (ce qui est insolé part), le PMMA 2% en masse dont le solvant est l'éthyle lactate (étape a). Après une révélation au MIBK/IPA 1/3 (Méthyl Isobutyl Cétone / Isopropanol) de la résine insolée (étape b), suivie d'un rinçage dans l'IPA, une couche métallique de Ti est déposée par évaporation (évaporateur avec canon à électron) (étape c). L'échantillon ainsi obtenu est composé de l'empilement de départ sur lequel, suivant les zones, se trouve du PMMA surmonté de Ti ou bien simplement du Ti (zones insolées).

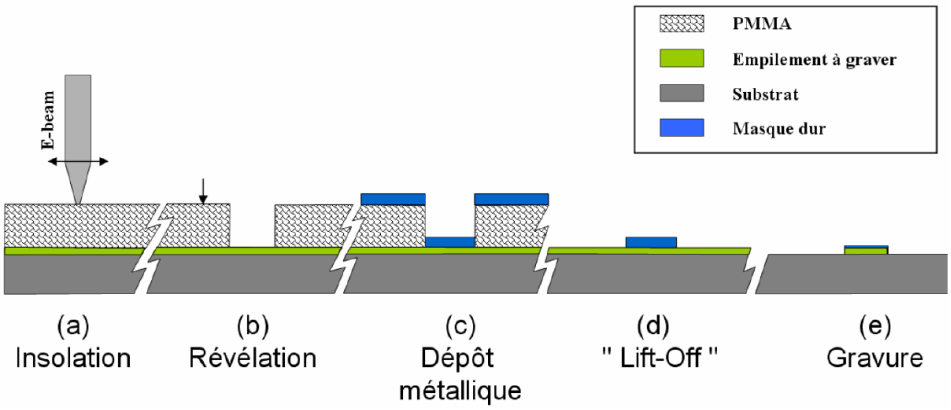

Fig. 3.12 – Étapes de fabrication d'un pilier nanométrique dans un substrat par une technique de gravure ionique à travers un masque dur.

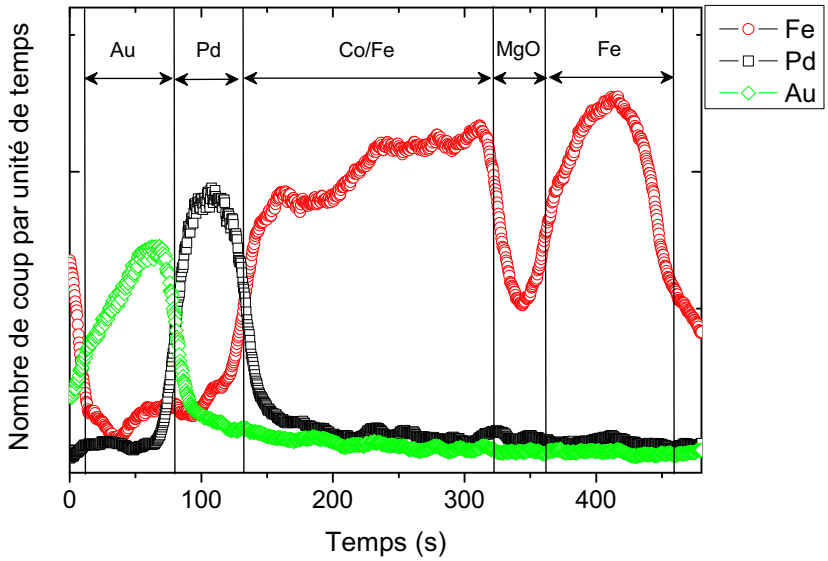

Fig. 3.13 – Quantité d'espèces détectées par le SIMS dans la chambre en nombre de coups par unité de temps, lors d'une gravure d'un échantillon de $Fe_{45}/MgO_{2.2}/Fe_{10}/Co_{20}/Pd_{10}/Au_{10}$. Les espèces de Fe, Pd et Au ont été détectées. La présence du Co est détectée dans le signal du Fe car d'une part les masses atomiques des deux espèces sont peu différentes et d'autre part, la résolution en masse de la détection du SIMS n'est peut être pas parfaite. Nous faisons les arrêts de gravure dans le MgO c'est à dire au milieu des deux bosses du Fe.

En plongeant l'échantillon dans une solution de N-méthyl-2-pyrolidone, le reste de résine ainsi que le Ti au dessus sont enlevés : c'est l'étape de lift off (d). Il reste alors des plots de Ti à la surface de l'échantillon. Par une gravure ionique IBE (Ion Beam Etching) les motifs sont reproduits dans l'échantillon (étape e). Durant cette gravure, les espèces gravées sont analysées à l'aide d'un spectromètre de masse SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry). Cette détection permet d'arrêter les gravures dans certaines couches dans la limite où la vitesse de gravure est lente et que la détection de la couche d'arrêt ou de sa couche supérieure est possible. Sur la figure 3.13 est montré un spectre de masse obtenu sur un échantillon de Fe/MgO/Fe. L'empilement exact est $Fe_{45}/MgO_{2.2}/Fe_{10}/Co_{20}/Pd_{10}/Au_{10}$

où les épaisseurs sont exprimées en nanomètre. A l'exception du MgO, toutes les couches gravées sont détectées au SIMS. Ceci permet d'arrêter la gravure dans n'importe quelle couche. Par exemple, si l'on souhaite arrêter la gravure dans le MgO, bien que celui-ci ne soit pas détectable, il suffit d'observer l'évolution du Fe car cette espèce est présente de part et d'autre de la barrière. On peut voir dans le spectre de masse deux bosses de tailles différentes, caractéristiques des deux épaisseurs différentes des couches de Fe. La gravure est donc arrêtée lors de la première redescente du Fe. Cette arrêt dans la barrière permet de s'affranchir de possibles courts circuits de la barrière par des redépôts de gravure.

3.6 Cycle magnétique d'un échantillon semi-structuré

La figure 3.14, montre deux cycles magnétiques obtenus sur un échantillon de Fe/MgO/Fe/Co dont l'épaisseur de la barrière de MgO est de 2nm. Le premier, en noir, a été obtenu directement après dépôt. Il est donc équivalent au cycle de la figure 3.9. Le second, en rouge, est un cycle réalisé après gravure de la couche dure de Fe/Co en plots comme décrit au paragraphe 3.5. Lors de la gravure, l'échantillon est maintenu à l'aide de bandes adhésives de Kapton. Ce Kapton agit comme un masque de gravure et protège une zone de Fe/Co assez importante pour que le retournement de cette couche soit détecté.

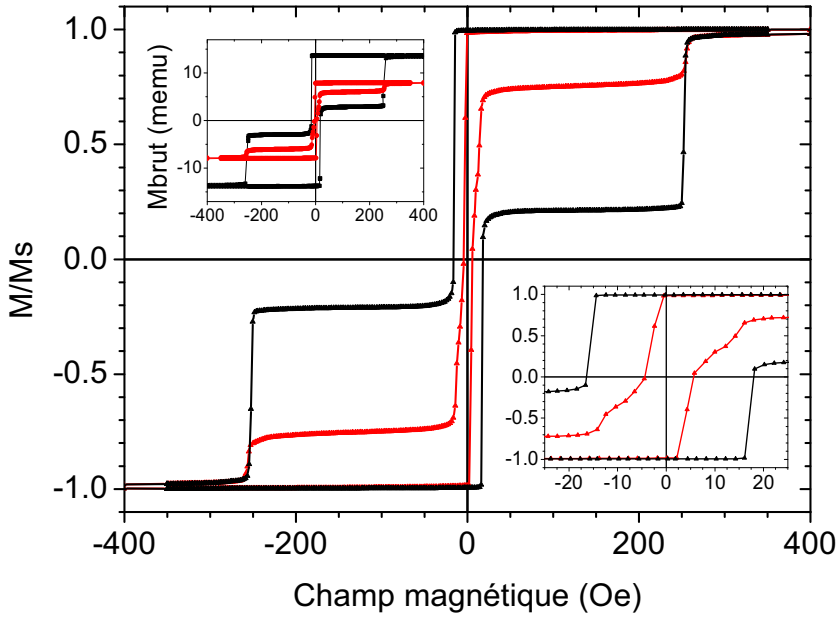

Fig. 3.14 – Cycles magnétiques mesurés au VSM (Vibrating Sample Magnetometer) d'un échantillon Fe/MgO/Fe/Co continu (en noir) et après gravure avec arrêt dans l'espaceur de MgO (rouge). L'insert en haut à gauche montre les courbes brutes obtenues c'est à dire non normalisées à 1. L'insert en bas à droite est un zoom centré autour du champ nul.

Trois zones peuvent être distinguées sur l'échantillon étudié (figure 3.15). La première (notée (a)) ne contient que la couche de Fe inférieure et l'espaceur de MgO. La seconde (b), est une zone très petite de l'échantillon contenant les plots gravés de Fe/Co au dessus de la couche de Fe inférieure. La quantité de matériau magnétique (Fe et Co) est cependant trop faible pour pouvoir être détectée. Enfin sur une troisième zone (c), de

surface bien plus importante que la seconde, environ 20% de la surface totale, l'empilement Fe/MgO/Fe/Co est conservé.

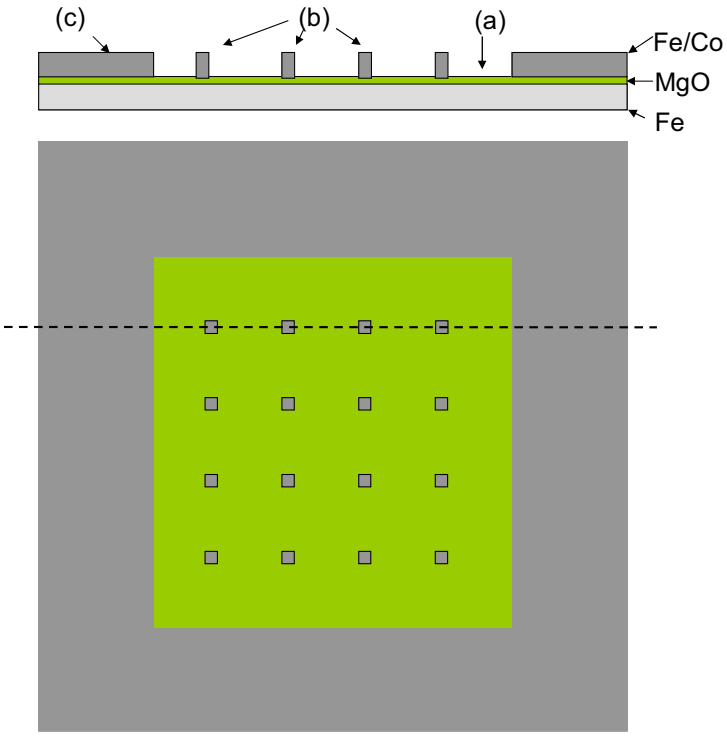

Fig. 3.15 – Schéma représentant l'échantillon après gravure. L'arrêt de gravure se fait dans l'espaceur de MgO. Une vue de profil de l'échantillon suivant la ligne en pointillé (présente sur la face de dessus) est représentée.

L'interprétation d'une branche du cycle rouge partant d'une des deux configurations parallèles est la suivante. Une nucléation a lieu dans la zone (a) pour des valeurs de champ extrêmement faibles (de 0.5 et 2.2 Oe suivant la branche de champs croissants ou décroissants considérée), directement suivie par la propagation de la paroi de domaine formée. Vers 5 Oe environ, la propagation est perturbée. Les parois de domaines ont atteint le bord de la zone (c). Le couplage ferromagnétique existant entre les deux couches de Fe s'oppose à la propagation de la paroi de domaine de la couche douce sous la couche dure. Vers 20 Oe environ, la couche douce est pratiquement entièrement retournée. Le retournement de la couche dure de la zone (c) se fait pour une valeur d'environ 250 Oe, valeur comparable à celle trouvée sur l'échantillon avant gravure (cycle noir).

Un point intéressant de cette étude est que dû au couplage ferromagnétique, le retournement de la couche douce de P vers AP est difficile sous la couche dure. Même si cela n'a pu être mesuré au VSM faute de signal magnétique, nous pouvons supposer que le même phénomène se produit sous les piliers. Si tel est le cas, le retournement de la couche douce sous les piliers, de P vers AP, peut ne plus être abrupt. Afin de connaître le processus de retournement local des couches douce et dure au niveau d'un pilier, et ainsi vérifier l'hypothèse émise, nous avons réalisé des cycles mineurs R(H). Le paragraphe suivant montre les résultats obtenus.

3.7 Cycles R(H)

J'ai mesuré par la technique sous pointe AFM la variation de résistance d'un échantillon sous l'application d'un champ magnétique[8]. Les cycle obtenus sont des cycles magnétorésistifs R(H). L'amplitude maximale des champs alternatifs que nous pouvons appliquer est de l'ordre de 200 Oe. Les résultats présentés ici ont été obtenus sur un échantillon de $Fe_{45}/MgO_{2.6}/Fe_{10}/Co_{20}$ (épaisseurs en nanomètre) dont seule la couche piégée supérieure de Fe/Co a été structurée en piliers de taille 3x20 μm^2. La taille des piliers est assez importante car le RA[9] de cet échantillon est élevé, environ 10 M$\Omega.\mu m^2$. La résistance des piliers est alors de l'ordre de la centaine de kΩ. Cette valeur de résistance atteint les limites du dispositif électronique, limites imposées par les impédances d'entrée des cartes d'acquisition. Il n'est donc pas possible de mesurer des échantillons de tailles plus faibles pour une épaisseur de barrière de 2.6 nm.

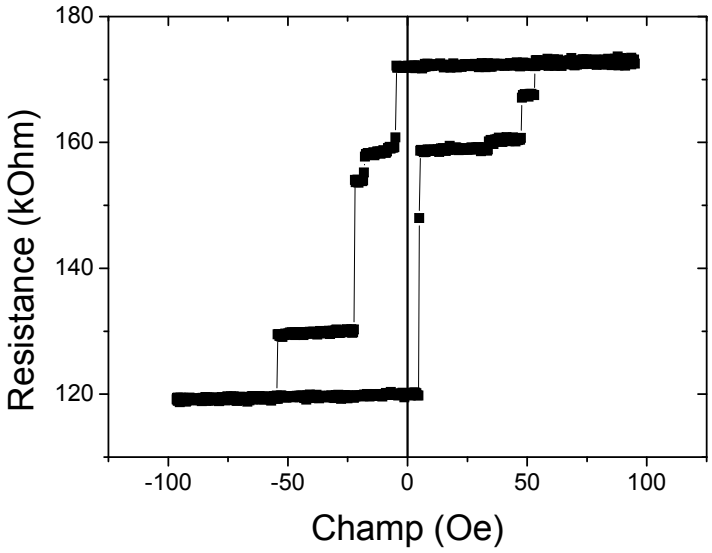

Fig. 3.16 – Cycle R(H) typique obtenu sur un pilier de Fe_{10}/Co_{20} au dessus d'une couche continue de $Fe_{45}/MgO_{2.6}$. La taille du pilier est de 3x20 μm^2.

Les lignes de courant s'évasent assez rapidement dans l'électrode inférieure et continue de Fe. Le pilier de Fe/Co, ainsi que le volume de Fe se trouvant directement sous le pilier et ne dépassant pas quelques couches atomiques d'épaisseur, participent pour la quasi totalité à la résistance totale mesurée[10]. Comme la configuration magnétique est déduite de la valeur de la résistance, seule la configuration magnétique au niveau du pilier est réellement sondée.

Partant des renseignements obtenus sur le cycle magnétique d'un échantillon structuré représenté figure 3.14 (en rouge), nous nous attendons à ce que le retournement de la

[8]Pour plus d'explications se reporter au paragraphe 1.4.1.1.

[9]Produit de la résistance électrique dans l'état P, par la surface sondée par le courant. Dans le cas d'un pilier cette surface est égale à la surface du pilier.

[10]Des simulations avec le logiciel FEMLAB (logiciel de simulation numérique par éléments finis) montrent cela.

couche dure ait lieu pour des champs supérieurs à 250 Oe. Cette augmentation du champ coercitif par rapport au champ trouvé dans le cas d'une couche mince [35, 36] s'explique de la manière suivante. Le processus de retournement est de type nucléation - propagation, et le champ de nucléation est supérieur au champ de propagation. Dans le cas de la couche mince, le retournement est déterminé par le champ de nucléation le plus faible de toute la couche. Dans le cas d'une assemblée de piliers, la couche ayant été divisée, chaque pilier se retourne pour le champ de nucléation local le plus faible. Ce champ est différent pour chacun des piliers et est supérieur à celui obtenu pour la couche mince. La distribution locale des centres de nucléation, dont l'origine principale est la distribution locale de l'anisotropie, peut donc être mise en évidence par la structuration [66] [11].

Ces valeurs de champ sont supérieures aux spécifications de notre bobine magnétique. Il nous est donc impossible de mesurer un cycle majeur R(H) avec cette bobine. Le champ appliqué étant faible devant les champs nécessaires au retournement de la couche dure, sa configuration magnétique peut être considérée constante tout au long du cycle. Chaque palier intermédiaire correspond alors à une configuration magnétique non uniforme de la couche douce. Pour des valeurs assez élevées du champ magnétique appliqué, par exemple ±100 Oe sur le graphe de la figure 3.16, nous pensons qu'une configuration magnétique uniforme alignée suivant le champ est atteinte pour la couche douce. Comment expliquer, cependant, les configurations magnétiques non uniformes de la couche douce durant le cycle (présence des paliers) ainsi que les valeurs apparemment faibles de TMR obtenues (environ 45%) ?

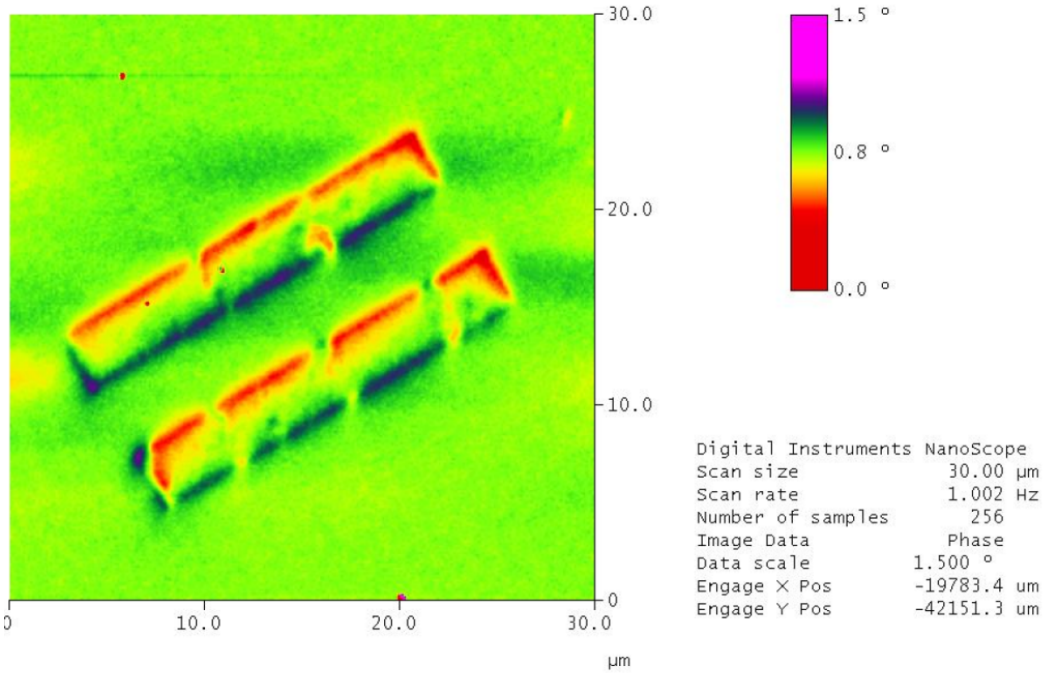

Fig. 3.17 – Image MFM réalisée sur deux piliers de taille 3x20μm^2 après une saturation sous 0.7 T et quelques cycles magnétiques de 100 Oe d'amplitude. Le champ a été appliqué suivant la longueur du pilier.

[11] La structuration peut induire des défauts et des centres de nucléation facile. L'observation de la distribution locale d'anisotropie peut en être gênée.

Afin de répondre à ces questions, nous avons réalisé plusieurs images MFM sous champ, pour des valeurs de champ équivalentes à celles utilisées lors du cycle R(H). Les images MFM obtenues sont toutes identiques à celle montrée figure 3.17. L'échantillon a été aimanté suivant la longueur du rectangle avec un champ de 0.7 T et a subi ensuite quelques cycles en champ de 100 Oe d'amplitude. L'histoire magnétique est donc sensiblement la même que celle de la figure 3.16. La figure 3.17 montre d'une part que l'aimantation de la couche dure n'est pas orientée parfaitement suivant la longueur L du rectangle. En effet les contrastes rouges et bleus se retrouvent sur les deux bords L alors qu'ils ne devraient se trouver que sur les deux bords l (l désignant la largeur du rectangle). D'autre part, l'aimantation d'un pilier n'est pas uniforme. Cela se caractérise sur l'image MFM par la discontinuité des traits rouges et bleus. L'aimantation non-uniforme de la couche dure ajoutée au couplage ferromagnétique existant entre cette couche et la couche douce expliquent les paliers intermédiaires observés figure 3.16 : la configuration de la couche dure peut influencer celle de la couche douce au moyen du couplage ferromagnétique, jusqu'à la situation extrême où la couche dure se « réplique » dans la couche douce [33]. Nous avons confirmé ce scénario ainsi que la situation extrême de réplication comme le montre la figure 3.18. Lors de ce cycle, un état est obtenu dont la résistance est inférieure à celle de l'état P' obtenu pour un champ appliqué relativement fort (environ 100 Oe). Lorsque l'état P' est atteint, le champ appliqué est assez fort pour que la couche douce soit aimantée uniformément. La couche dure étant non uniforme, l'état obtenu n'est pas celui de résistance minimale. Lorsque le champ appliqué est plus faible, le couplage ferromagnétique peut mener à la réplication de la couche dure sur la couche douce. Aucune des aimantations des deux couches n'est uniforme, cependant quelque soit la position dans le plan parallèle aux couches, ces aimantations sont les mêmes. L'état obtenu est très similaire à l'état parallèle pur (état P) du point de vue du transport électronique.

Il existe de plus un champ rayonné par la couche dure sur la couche douce. Ce champ est de sens opposé, dans la couche douce, à l'aimantation de la couche dure et induit un couplage anti-ferromagnétique d'origine magnétostatique entre les deux couches. Il est localement fort sur les bords du plot car au delà, les lignes de champ s'évasent rapidement. Une paroi magnétique comme celle se propageant lors du retournement de la couche douce, peut être piégée localement par ce champ. Ce couplage magnétostatique complexifie l'analyse fine du système.

Pour conclure, la couche dure ne joue, quoi qu'il en soit, plus son rôle de couche de référence, au sens où jamais les états P et AP purs ne peuvent être obtenus. L'aimantation de la couche dure étant non uniforme, la résistance mesurée, à des valeurs de champ assez élevées pour que l'aimantation de la couche douce soit uniforme, est un mélange des résistances des états P pur et AP pur. On observe cela sur le cycle 3.16 où aucun des deux états n'est l'état P ou AP pur. La TMR mesurée est donc une valeur minorée de la TMR réelle de l'empilement. Une question se pose alors. Peut-on réellement mesurer les propriétés de transport de notre système dans ses configurations P pure et AP pure ?

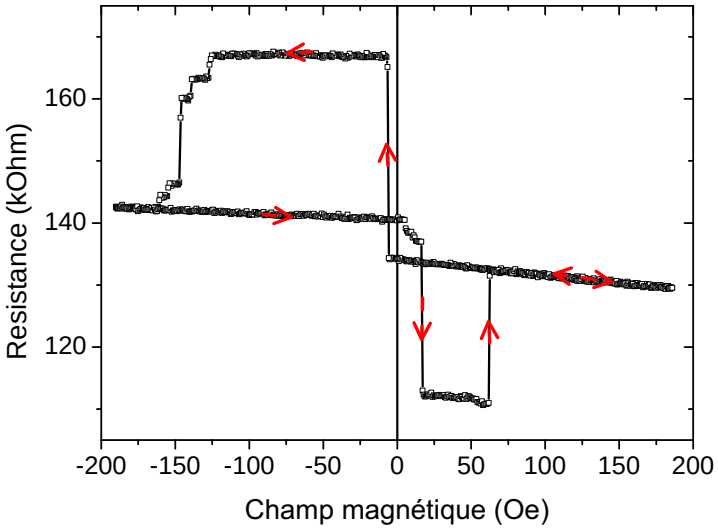

Fig. 3.18 – Cycle R(H) obtenu sur un pilier de Fe_{10}/Co_{20} au dessus d'une couche continue de $Fe_{45}/MgO_{2.6}$. La taille du pilier est de 3x20 μm^2. Les flèches indiquent le sens de formation du cycle. Un état est obtenu dont la résistance est bien inférieure à celle de l'état P', état obtenu pour des valeurs de champ magnétique de l'ordre de +175 Oe.

3.8 Obtention des états P et AP

3.8.1 Procédure

Il existe deux manières d'obtenir l'état P en vue de le mesurer sous AFM. La première consiste à saturer l'échantillon avant de le placer sous l'AFM. La caractéristique obtenue est donc une caractéristique du système à la rémanence après saturation. En théorie l'état P est stable. Cependant des champ très faibles suffisent à retourner la couche douce. Il est alors très difficile (mais pas impossible) d'obtenir l'état P à la rémanence. La deuxième méthode consiste à mesurer la caractéristique I(V) de l'état P sous champ. J'ai pour cela développé un circuit magnétique composé de deux aimants permanents en NdFeB et d'un circuit en Fer doux pouvant s'adapter sous l'AFM. Le champ constant obtenu dans l'entrefer de 8mm de large par 10mm de long est de 8kOe dans le plan pour seulement 50 Oe hors du plan.

L'obtention de l'état AP est beaucoup plus compliquée. Afin de l'atteindre, il faut d'abord partir de l'état P. Or il nous est impossible de faire un cycle majeur sous l'AFM compte tenu des spécifications de notre bobine magnétique. Nous devons donc placer l'échantillon sous l'AFM dans l'entrefer de la bobine magnétique, en l'ayant au préalable préparé dans l'état P. Cependant comme il a été vu au paragraphe 3.14, le champ coercitif de la couche douce seule est inférieur à 5 Oe. Il est dans ces conditions très difficile de conserver l'état P. Il est donc important de vérifier que l'état P, comme mesuré sous le champ de 8kOe, existe encore avant de commencer à appliquer un champ opposé. Lorsque cela est le cas, un champ magnétique opposé à l'aimantation de la couche douce permet d'obtenir « un » état AP.

3.8.2 L'état AP réellement obtenu ?

Compte tenu des difficultés technique d'obtention de l'état P pur à la rémanence ainsi que de celles liées au contact électrique, une seule étude sur un plot a pu être réalisée. Elle est cependant suffisante pour conclure sur la possibilité ou non d'obtenir l'état AP pur.

Sur la figure 3.19 sont représentés en noir les trois premiers cycles obtenus en partant de la configuration P (épaisseur de MgO de 22 Å). Les champ coercitifs sont de l'ordre de 2 Oe et le saut de résistance est très faible (la TMR pour ce cycle égale est à 6%). En rouge et bleu sont représentés les cycles obtenus ensuite. On remarque que les états P et AP sont modifiés jusqu'à se fixer sur les deux valeurs extrêmes du cycle rouge. Ces variations de résistance ne peuvent être attribuées au contact électrique pointe-pilier. En effet une soudure a été réalisée et cette résistance de contact est de l'odre de l'Ohm.

L'état P pur est celui du cycle noir et est différent de l'état de plus basse résistance du cycle rouge. Ce dernier n'est donc pas un état purement P. La référence magnétique donnée par la couche dure est alors multidomaine avec malgré tout une direction privilégiée (cf image MFM figure 3.17). Dans ces conditions, même lorsque le retournement de la couche douce est complet, l'état AP pur n'est pas obtenu.

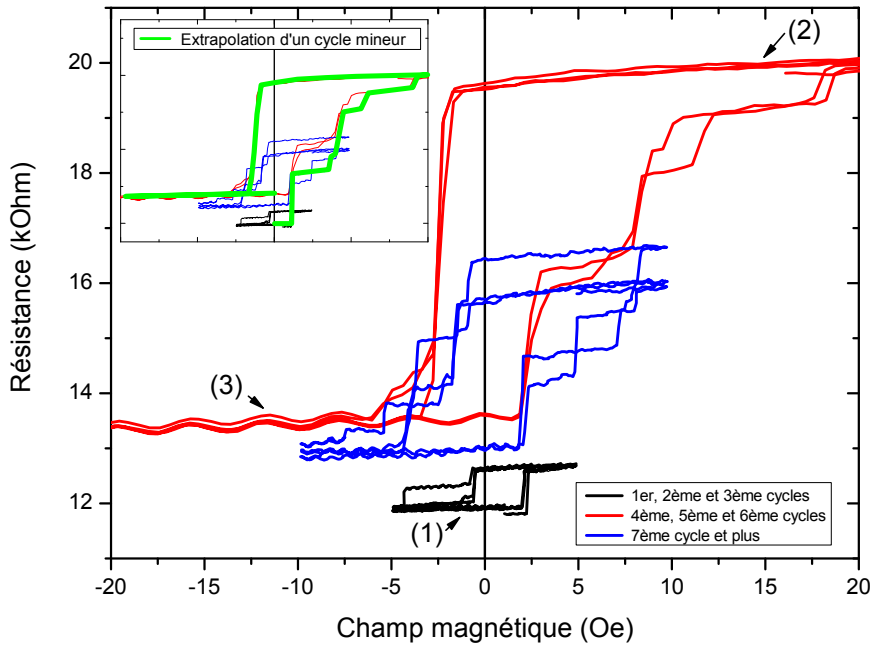

Fig. 3.19 – Cycles R(H) mesurés sur un pilier de 3x20μm^2. L'empilement est $Fe_{45}/MgO_{2.6}/Fe_{10}/Co_{20}$ où les épaisseurs sont exprimées en nanomètre. L'état de départ est l'état P pur. Il correspond à l'état de plus basse résistance du cycle noir. Les cycles en noir puis en bleu et enfin en rouge ont été mesurés successivement. Dans l'insert est représentée en vert une extrapolation d'un cycle mineur d'aimantation.

3.8.3 Interprétation des premiers cycles R(H)

Il est difficile de conclure catégoriquement sur le mécanisme se déroulant exactement dans les couches dure et douce lors de ces cycles. Je propose donc ici une interprétation possible des résultats obtenus figure 3.19, interprétation qui fait suite aux résultats présentés dans les paragraphes précédents.

- Le cycle noir : la couche douce se retourne mais ne se propage pas ou peu sous le cycle. Les champ coercitifs obtenus sont en accord avec ceux de la figure 3.14.
- Le cycle bleu : un champ plus important permet la propagation partielle de la couche douce sous le plot ainsi que l'orientation de l'aimantation vers une aimantation uniforme de la couche douce dans le sens opposé à celle de la couche dure. Dans ce cycle la couche douce n'est pas entièrement retournée. En effet un champ plus fort positif (cycle rouge) permet d'atteindre un état AP plus important. Cependant, le champ est ici déjà assez fort pour avoir modifié la configuration magnétique de la couche dure : son aimantation n'est plus uniforme. En effet l'état de plus basse résistance de ce cycle correspond à une résistance supérieure à celle de l'état P du cycle noir.
- Le cycle rouge : le champ plus important permet le retournement total de la couche douce. Malheureusement ce champ est assez important pour modifier considérablement la configuration magnétique de la couche dure. Ni l'état P, ni l'état AP obtenus sur ce cycle ne sont des états purs.

Une critique possible de cette étude est que le champ magnétique appliqué lors du premier cycle n'a pas été suffisant pour obtenir le retournement de la couche douce dans sa totalité. Ainsi aucun des cycles présentés ici n'est un véritable cycle mineur. Cependant une lecture plus approfondie des cycles permet de nuancer un peu cette critique. En effet il semble, d'après les niveaux de résistance, que le cycle bleue ait commencé dans l'état de haute résistance du cycle noir. Ainsi ce cycle bleu est une continuité parfaite du cycle noir. La même remarque peut être faite entre le cycle bleu et le cycle rouge. Il est alors possible de recomposer ce qu'aurait dû être le premier cycle d'aimantation si le champ maximum appliqué avait été de 20 Oe. L'extrapolation est représentée dans l'insert de la figure 3.19.

3.8.4 Convention d'écriture

Les mesures qui seront présentées dans les paragraphes suivants prennent comme conventions :

- P désigne les mesures réalisées alors qu'un champ de 8kOe est appliqué. C'est donc a priori l'état P pur.
- AP désigne les mesures réalisées dans l'état de résistance la plus élevée mesurée. Cet état n'est pas l'état AP pur.
- P' désigne l'état de plus basse résistance obtenu après quelques cycles magnétiques. P' est différent de P.
- Le RA est donné pour la configuration P.
- La TMR est définie par les valeurs de résistance obtenues dans les états P et AP. Elle est donc minorée par rapport a sa véritable valeur.

3.8.5 Perspectives pour l'obtention d'états purs

Afin de s'affranchir des difficultés liées à l'empilement substrat/couche douce continue/couche dure structurée, deux solutions ont été envisagées.

La première idée est de forcer l'aimantation de la couche dure à être uniforme au maximum, en jouant sur l'anisotropie de forme des piliers. Un pilier sous forme d'ellipse et de taille suffisamment petite ($\approx$ 70x200 nm) permettrait d'obtenir l'aimantation la plus uniforme possible dans la direction du grand axe. Cette solution ne peut cependant être envisagée que pour les échantillons dont le RA est suffisamment faible, c'est à dire pour ceux dont l'épaisseur de MgO est faible (inférieure à 1.5 nm d'après la figure 4.7).

La deuxième idée est de piéger la couche dure à l'aide d'un AF (anti-ferromagnétique) tel IrMn ou PtMn et non plus par la couche de Co.

La troisième idée est d'utiliser une structure inversée : la couche dure sous la couche douce. D'une part, la couche douce ne subirait plus aucun champ rayonné par la couche dure. D'autre part, si l'on suppose que la non uniformité de l'aimantation de la couche dure provient principalement de la réorientation de cette aimantation afin de minimiser l'énergie du pilier (création de domaines de fermeture), la couche dure en étant continue devrait conserver son aimantation uniforme après saturation.

Cependant, renverser l'empilement tel quel est difficile, voire impossible, à réaliser car l'épitaxie du MgO est perdue lorsque celui-ci croît sur le Co. De même commencer l'empilement par un AF afin de piéger la couche inférieure de Fe, ne permet pas de faire croître en épitaxie l'empilement Fe/MgO/Fe.

Des tests ont commencé à être réalisés pour obtenir un empilement de type substrat/ AFS/ MgO/ Fe. L'AFS (Anti-Ferromagnétique Synthétique) est un empilement Fe/ MgO/ Fe où l'épaisseur du MgO est faible afin d'obtenir un couplage anti - ferromagnétique important (cf. paragraphe 3.10). Cet empilement permettrait à la fois de laisser la couche dure continue, d'éviter qu'elle ne rayonne sur la couche douce et enfin de la durcir. La croissance de cette empilement est en théorie possible mais demande un temps de développement. Il n'a donc pas pu être mesuré durant le temps de cette thèse.

3.9 Conclusion

Le dépôt par épitaxie est une méthode de croissance contraignante, permettant d'obtenir des empilements modèles utiles à la compréhension fine de phénomènes physiques comme le transport dépendant du spin dans des JTM. Comme il a été vu au chapitre 2, seule une connaissance cristallographique approfondie du système étudié peut permettre la compréhension des propriétés électroniques mesurées. L'utilisation au cours de la croissance d'un RHEED permet le contrôle *in situ* de la qualité cristallographique des couches déposées.

Nous avons montré au cours de ce chapitre que la structure imposée par le substrat de MgO est conservée lors de la croissance de l'empilement Fe/MgO/Fe effectuée au LPM de Nancy. De plus, la qualité des deux interfaces Fe/MgO est différente : la rugosité de surface de l'interface inférieure est très faible et est bien moindre que celle de l'interface supérieure.

Nous verrons au chapitre suivant comment cette différence de qualité d'interface modifie les valeurs de conductance en fonction de la tension appliquée.

Enfin, l'étude magnétique effectuée sur les échantillons nano-structurés a montré la difficulté d'obtenir l'état AP pur entre les deux couches de Fe. Diverses solutions ont été proposées mais n'ont pu être testées au cours de cette thèse comme par exemple le piégeage de la couche dure par un AF synthétique. Les mesures électroniques de transport qui seront présentées au chapitre suivant ont donc été réalisées sur un état P pur et un état majoritairement AP. Comme nous allons le voir, elles suffisent cependant à conclure sur la présence d'états électroniques situés au niveau de l'interface inférieure et participant au transport.

Chapitre 4

Propriétés électroniques de transport

Dans ce chapitre nous présentons les résultats obtenus sur le système épitaxié bcc Fe/MgO/Fe pour trois différentes valeurs d'épaisseur de MgO. La technique employée consiste à mesurer les caractéristiques I(V) de piliers de taille 3x20 μm^2. Ces piliers sont obtenus par une technique de gravure ionique de masque dur. Les conventions électriques sont : quand la tension est positive, les électrons circulent de l'électrode supérieure de Fe vers l'électrode inférieure de Fe, à travers la barrière de MgO. Les caractéristiques de TMR ainsi que de conductance dynamique ($G_{dyn} = dI/dV$) sont déduites des caractéristiques I(V) obtenues dans les configurations magnétiques P et AP.

4.1 Résultats expérimentaux du transport tunnel

4.1.1 Caractéristiques I(V)

Trois caractéristiques I(V), acquises dans différents états de résistance, sont présentées figure 4.1. Ces états sont des états équivalents aux états P, P' et AP de la figure 3.19 (mêmes valeurs de résistance, même échantillon, pilier différent). Elles sont non linéaires en raison de la présence d'une barrière tunnel. Chaque caractéristique est différente et dépend donc de l'état magnétique du système. La caractéristique de l'état P' est comprise entre les deux autres caractéristiques. L'état P' est un mélange des états P et AP comme vu au paragraphe 3.8.2. De plus, la partie négative du graphe est différente de la partie positive. En tension positive, les courbes sont très rapprochées et presque indistinguables, tandis qu'en tension négative elles s'écartent jusqu'à environ -1.5V avant de toutes se rapprocher pour se confondre. Ainsi, la conductance de l'état AP est notablement inférieure pour les tensions négatives à celles des états P et P' alors que pour les tensions positives, cette différence est beaucoup moins importante. On peut dès à présent présumer de la participation au transport, pour cette configuration magnétique, d'un « canal » supplémentaire disponible uniquement en tension positive.

La variation de résistance déduite de ces courbes en fonction de la tension est représentée figure 4.2 pour les états P et AP. Quelque soit l'état magnétique, la résistance chute avec la tension. Cette chute est plus importante pour l'état AP que pour l'état P. Pour des tensions positives et négatives élevées, la valeur de résistance de ces deux états

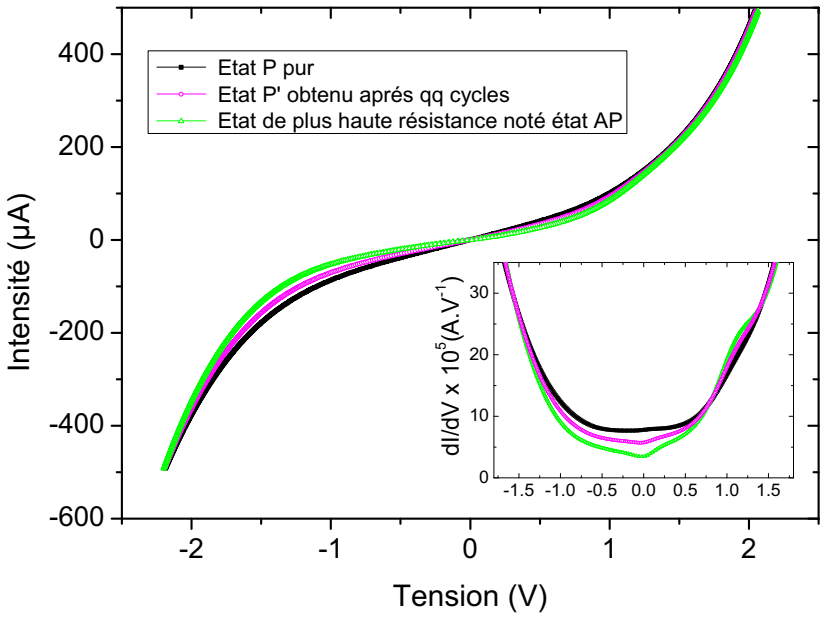

Fig. 4.1 – Caractéristiques I(V) des états P, AP et P'. Ces états sont similaires à ceux représentés figure 3.19. En insert est représentée la dérivée première de la caractéristique I(V) par rapport à la tension pour ces 3 états.

est sensiblement identique. En insert est représentée la variation de la TMR en fonction de la tension. Celle-ci diminue avec la tension.

Les chutes de la résistance et de la TMR avec la tension sont des résultats standards caractéristiques des JTM et peuvent s'expliquer simplement : avec la tension, la hauteur de barrière diminue permettant ainsi à un plus grand nombre d'électrons de traverser la barrière.

4.1.2 Dérivées premières et secondes

Comme nous l'avons vu au paragraphe 2.3, la caractéristique I(V) ne donne, sur les propriétés de transport de nos échantillons, que des renseignements intégrés. La dérivée première du courant par rapport à la tension permet, elle, d'obtenir dans certaines conditions des renseignements quantitatifs à énergie ou tension fixée, c'est à dire permet de faire une étude spectroscopique. La dérivée seconde nous permet d'amplifier visuellement ces variations importantes.

La figure 4.3 donne les caractéristiques dI/dV (insert) et d^2I/dV^2 pour les trois états (P, AP et P') de la figure 4.1. Deux pics sont observés à tension positive dans les états AP et P'. Le premier est situé à +0.2V, tandis que le second est situé à +1.1V. Un pic plus petit en amplitude existe en tension négative vers -0.2V. L'amplitude des bosses en tension positive est plus faible dans la configuration P' que AP. La présence de celles-ci semble donc reliée à la partie AP de la configuration magnétique [1].

[1]Lorsqu'il existe un désalignement entre les aimantations des 2 couches magnétiques de l'empilement, les spins des électrons de conduction alignés suivant l'aimantation de la première couche, se décomposent en une combinaison (spin↑ ; spin↓) dans la base imposée par la direction d'aimantation de la seconde couche. Du point de vue du transport électronique, cette configuration magnétique, où les deux aimanta-

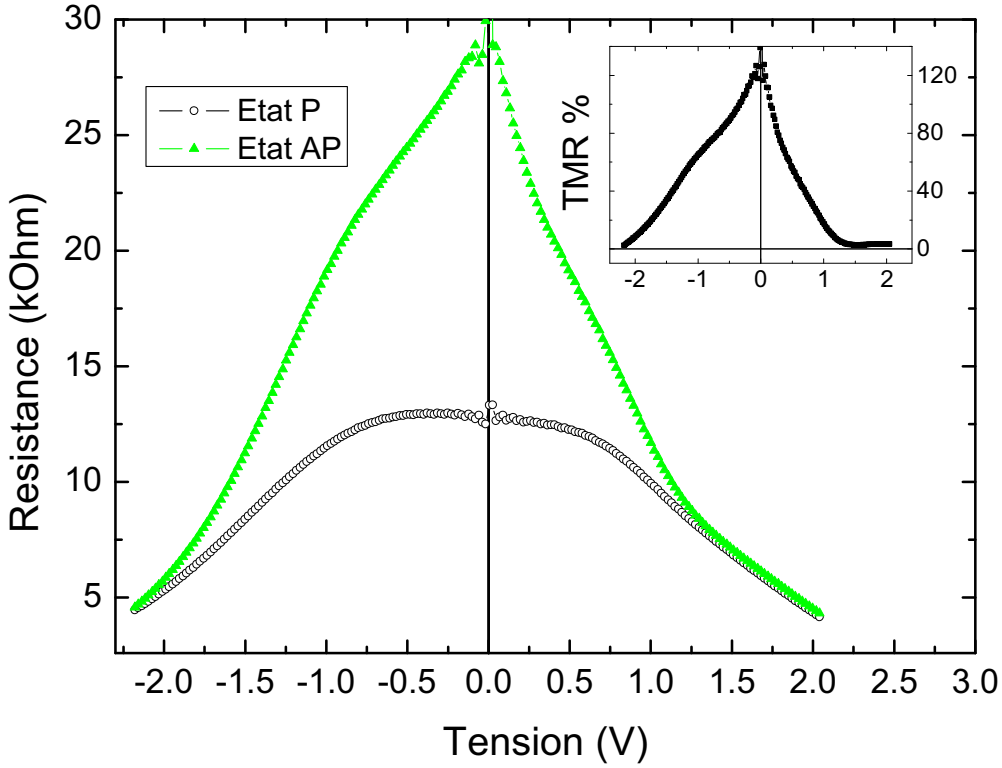

Fig. 4.2 – Variation en fonction de la tension de la résistance dans les états P et AP d'un empilement $Fe_{45}/MgO_{2.2}/Fe_{10}/Co_{20}$. La taille du pilier est 3x20 μm^2. Le RA déduit de la valeur de résistance à tension nulle dans l'état P est égal à $770k\Omega.\mu m^2$. En insert est représentée la variation de la TMR en fonction de la tension déduite des courbes.

Ceci est confirmé par les caractéristiques d^2I/dV^2 obtenues pour différentes valeurs de résistance. Après avoir fait un cycle R(H) sur un échantillon de $Fe_{45}/MgO_{2.6}/Fe_{10}/Co_{20}$, nous pouvons déterminer l'histoire magnétique et les valeurs de champ à appliquer afin de se placer dans un état de résistance intermédiaire. Une caractéristique I(V) est alors acquise pour chacun des états de résistance obtenus.

La figure 4.4 montre les résultats obtenus sur les deux cycles présentés au chapitre 3. On rappelle que le cycle du haut est un cycle typique. Celui du bas est moins souvent observé. Il permet néanmoins de renforcer l'idée d'une duplication de la configuration magnétique de la couche dure dans celle de la couche douce (cf. paragraphe 3.7). On voit clairement que l'amplitude des pics observés est d'autant plus importante que l'on se rapproche de l'état AP. Je rappelle que dans de tels cycles, ni l'état AP pur ni l'état P pur ne sont obtenus (cf. paragraphe 3.8.2).

Enfin, une légère bosse est observée dans la dérivée seconde pour l'état P à +1.1V. Dans les parties précédentes, cet état a été supposé être l'état P pur car il est obtenu sous un champ de 8kOe. Or la présence de cette bosse montre, d'après ce que l'on vient

tions ne sont pas parallèles, est équivalente à une combinaison des états P et AP. Ceci est faux du point de vue magnétique et constitue en ce sens un abus de langage. En effet l'aimantation d'une couche peut prendre une direction quelconque par rapport à celle de l'autre couche et une configuration quelconque ne peut donc pas magnétiquement être représentée comme la superposition de régions de configuration parallèle et de régions de configuration anti-parallèle.

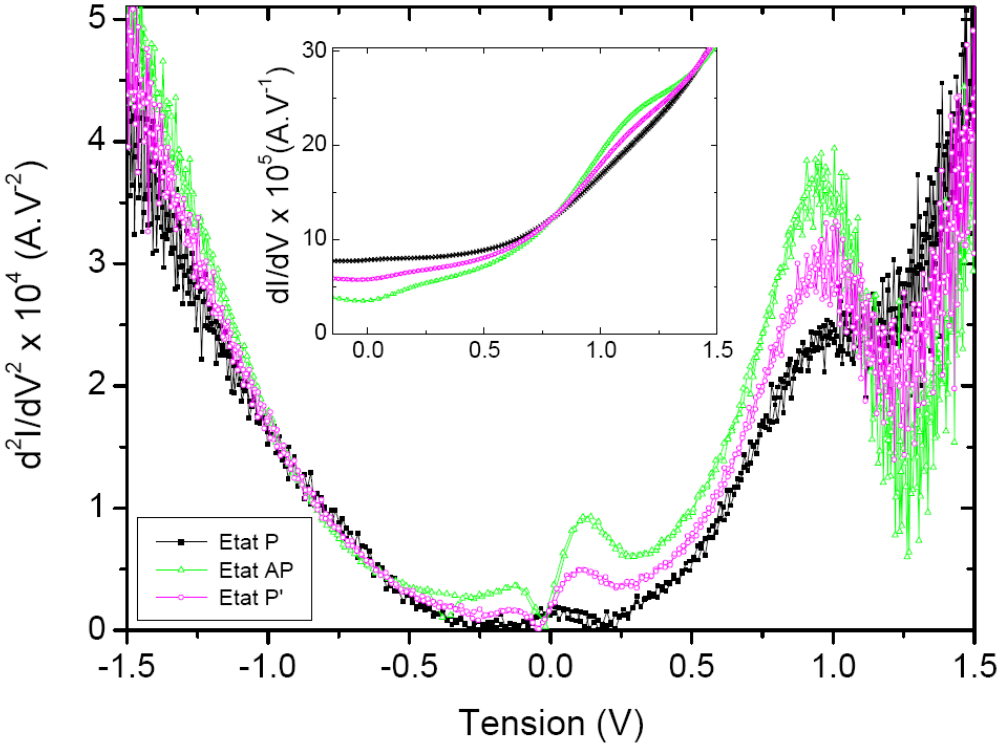

Fig. 4.3 – Caractéristiques d^2I/dV^2 en fonction de la tension, pour les états P pur, AP pur et P'. L'insert montre un agrandissement autour des valeurs de tension positives des caractéristiques dI/dV. On rappelle qu'une tension positive correspond à un déplacement d'électrons de l'électrode supérieure de Fe vers l'électrode inférieure de Fe.

de voir, qu'une proportion faible d'état AP persiste. Bien qu'un champ d'environ 8kOe ait été appliqué pendant la mesure, il est possible que ce champ ne soit pas suffisant pour imposer une aimantation uniforme de la couche dure.

4.1.3 Présence d'états résonnants d'interface (IRS)

Essayons dans un premier temps d'expliquer les pics observés par des arguments électroniques de volume. Dans notre système, une tension positive correspond à des électrons circulant de l'électrode de Fe supérieure vers l'électrode de Fe inférieure. Dans l'état AP, deux canaux de conduction peuvent être distingués. Le canal $\uparrow$ vers $\downarrow$ et le canal $\downarrow$ vers $\uparrow$. Considérons d'abord le canal $\uparrow$ vers $\downarrow$ comme représenté figure 2.8. Pour une tension d'environ 1V, le canal Δ_2 devient disponible au transport. Pour une tension d'environ 2V, c'est au tour du canal Δ_1 de participer au transport. Pour le canal $\downarrow$ vers $\uparrow$, les électrons Δ_5 et Δ_2' ne conduisent plus pour des tensions supérieures à +0.2V.

Un réflex naturel serait de tenter d'expliquer les anomalies observées au moyen de ces considérations. Or toutes ces constatations peuvent être faites à l'identique pour les tensions négatives car le système Fe/MgO/Fe est parfaitement symétrique en volume. Ainsi, le pic à +1.1V n'étant pas observé en tension négative, la contribution au transport des électrons Δ_2 ne peut en être l'origine. Pour les pics à +0.2V et -0.2V, la fin de la bande de conduction des électrons Δ_5 peut expliquer ces deux pics. Cependant, là encore

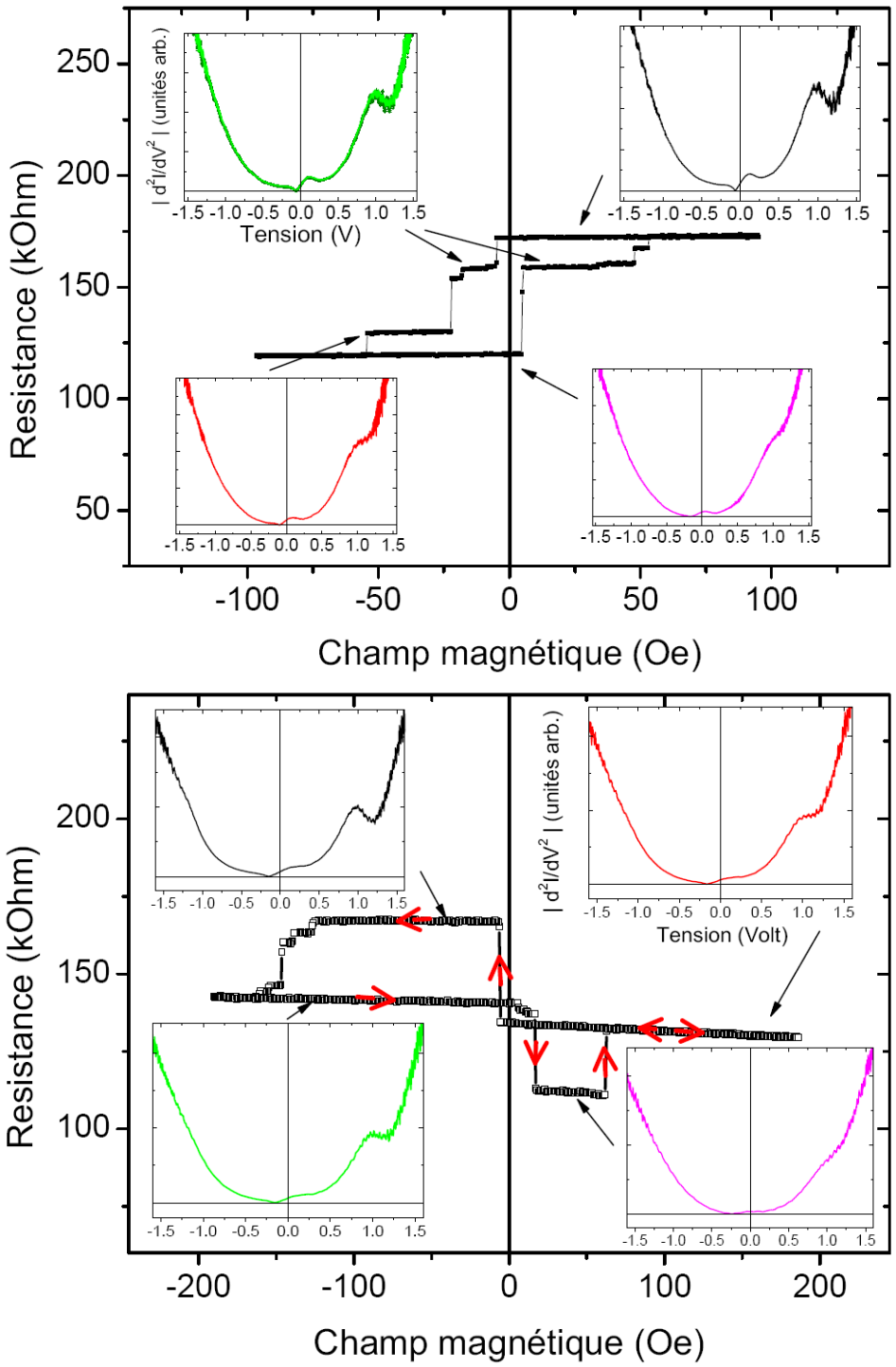

Fig. 4.4 – Cycles R(H) sur un échantillon de $Fe_{45}/MgO_{2.6}/Fe_{10}/Co_{20}$ (épaisseurs exprimées en nm). Des caractéristiques I(V) ont été acquises pour chacun des états de résistance intermédiaire. Les caractéristiques d^2I/dV^2 déduites sont reportées sur la figure. L'amplitude des pics observés en tension positive sur les caractéristiques d^2I/dV^2 est d'autant plus importante que l'on se rapproche de l'état AP.

par l'argument de symétrie, les amplitudes des pics observés devraient être égales. Or l'amplitude du pic à +0.2V est bien plus importante que celle du pic à -0.2V. Nous pensons que le pic à -0.2V ainsi qu'une partie du pic à +0.2V sont dûs à la fin de la bande Δ_5 (la symétrie $\Delta_{2'}$ étant très fortement atténuée dans la barrière, la disparition de la bande Δ_5 doit avoir une forte influence sur la conduction). La partie restante du pic à +0.2V est attribuée à la présence d'un IRS.

La seule asymétrie de notre système, provient de la qualité des interfaces. En effet, l'empilement subit deux recuits comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3.1. Le premier effectué à 450°C pendant 35min après le dépôt de la couche inférieure de Fe permet d'obtenir une interface inférieure Fe/MgO très peu rugueuse (cf paragraphe 3.2.3). Le second est effectué après le dépôt de la couche supérieure de Fe à une température moins importante qui ne permet pas d'obtenir une aussi bonne qualité d'interface. De plus, comme nous l'avons vu au paragraphe 2.5.2, il a été prédit théoriquement [79] la présence d'un IRS dans la densité d'états des porteurs minoritaires. Cet IRS est prédit pour être très sensible à l'état de surface [71]. Il semble donc possible d'une part que cet IRS existe au niveau de l'interface inférieure grâce à la qualité de celle-ci et que d'autre part il n'existe pas d'IRS au niveau de l'autre interface vue sa qualité moindre.

L'allure de la courbe obtenue dans l'état AP se comprend alors. Le transport dominant est le transport $\uparrow$ vers $\downarrow$, régi par les électrons Δ_5. Une plus faible contribution est due aux électrons Δ_5 du canal $\downarrow$ vers $\uparrow$. Pour une tension de $\pm$0.2V, la fin de ce canal est visible dans la caractéristique dI/dV. Pour une tension positive de +0.2V, l'IRS situé au niveau de l'interface inférieure est sondé par les électrons majoritaires Δ_1 du Fe supérieur. Ces électrons, peu atténués dans la barrière, modifient la conductivité à cette valeur de tension. Cette modification s'ajoute à celle engendrée par la perte de la bande majoritaire Δ_5 du Fe inférieur. A tension négative, les états de la bande de conduction de l'IRS ne peuvent participer au transport car cette bande n'existe pas au niveau de Fermi pour des $\vec{k}_{\parallel}$ peu différents de zéro.

Aucune prédiction théorique n'a pour l'instant été faite sur la présence ou non d'un second IRS autour de 1.1V dans le système Fe/MgO/Fe. Un tel état a cependant été prédit à l'interface Fe(100)/vide par Stroscio *et al.* [61]. Pour $k_{\parallel} = 0$, il devrait se trouver à une valeur d'environ 1.5V. Nous pensons que le pic observé à +1.1V est dû à la participation au transport d'un second IRS. Cette hypothèse est renforcée par la nette asymétrie de la courbe obtenue.

4.1.4 Variation avec l'épaisseur

Trois échantillons d'épaisseurs différentes ont pu être mesurés. Ils proviennent tous du même substrat et ont donc subi le même dépôt (même Fe inférieur, même recuit). Seule l'épaisseur de MgO a été variée à l'aide d'un cache. Les épaisseurs mesurées sont : 2.2, 2.4 et 2.6 nm. La figure 4.5 montre la dérivée première obtenue sur ces trois échantillons, dans l'état AP (traits continus). La caractéristique mesurée pour l'état P de l'épaisseur de 2.6 nm est donnée (cercle noir). La figure 4.6 montre la dérivée seconde obtenue à partir de ces dérivées premières. La forme des signaux obtenus dans les états AP est identique pour ces trois épaisseurs. Ils sont asymétriques, présentent deux pics prononcés à tension positive autour de +0.2 et +1.1V, et un pic de plus faible amplitude à -0.2V. La variation du RA en fonction de l'épaisseur de MgO est reportée figure 4.7. L'ensemble des mesures

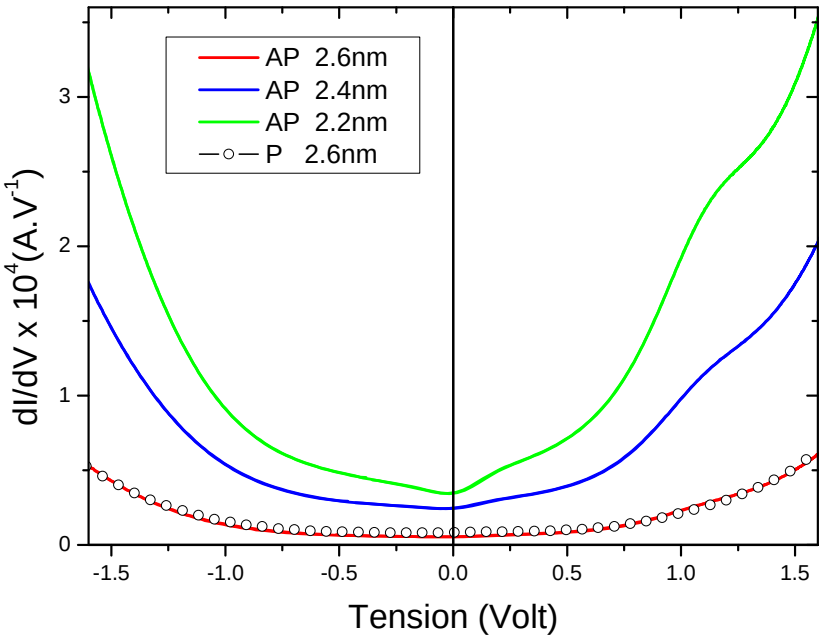

Fig. 4.5 – Caractéristiques dI/dV en fonction de la tension, pour les états AP des 3 échantillons Fe/MgO/Fe d'épaisseurs de MgO différentes. La caractéristique mesurée pour l'état P de l'épaisseur de 2.6 nm est représentée par des cercles noirs.

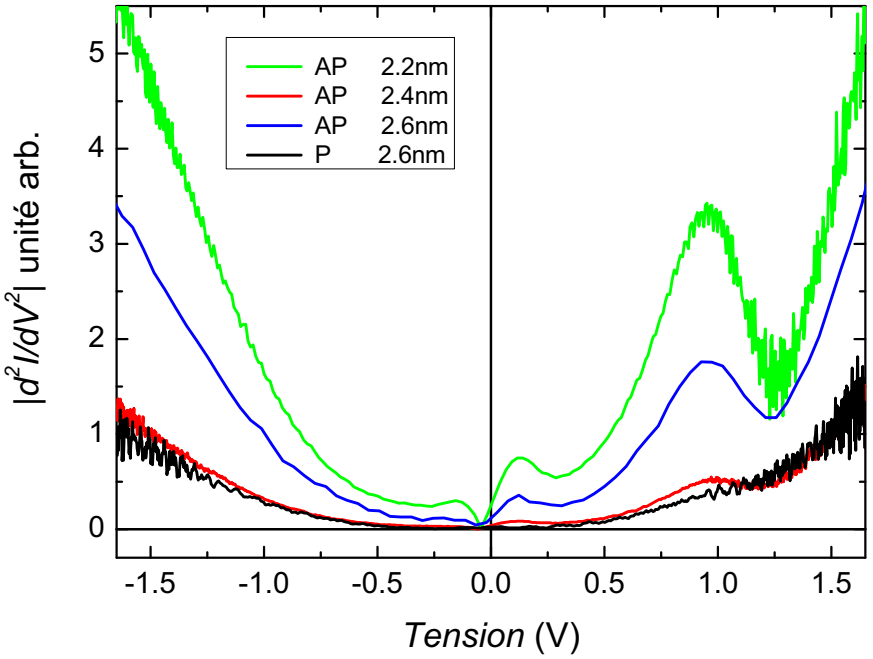

Fig. 4.6 – Caractéristiques d^2I/dV^2 en fonction de la tension, pour les états AP des 3 échantillons Fe/MgO/Fe d'épaisseur de MgO différentes. La caractéristique mesurée pour l'état P de l'épaisseur de 2.6 nm est reportée en noir.

a été réalisé sur des piliers de taille 3x20μm^2. La surface S sondée par le courant est donc de 60μm^2. Le RA est défini comme :

$$RA = Résistance_P(V = 0) \times S \tag{4.1}$$

Les résultats obtenus sur le même type d'empilement par l'équipe de C. Tiusan y sont reportés. Peu de points expérimentaux existent pour véritablement conclure sur l'évolution du RA avec l'épaisseur de MgO. Les différences entre les deux courbes peuvent peut être s'expliquer par la différence entre les deux techniques de mesure employées : fabrication des piliers et taille des plots (environ 60x60μm^2). D'un point de vue purement applicatif, l'étude des systèmes à faible valeur de RA est importante car ce sont des systèmes moins consommateur d'énergie. Cependant, les résultats actuellement obtenus montre que la TMR diminue elle aussi lorsque l'épaisseur de MgO est diminuée [77]. Combiner à la fois forte TMR et faible RA est un véritable challenge qui motive de nombreuses équipes de part le monde tant académiques qu'industrielles.

Dans notre cas, il n'a pas été possible de déduire des mesures une courbe de l'évolution de la TMR en fonction de l'épaisseur de MgO. En effet, comme il a été vu paragraphe 3.8.2, l'état AP n'est pas l'état anti-parallèle pur. Ainsi la TMR trouvée est inférieure à la TMR absolue. Les valeurs plus ou moins importantes nous renseignent seulement sur la qualité de la configuration magnétique mesurée. Comme nous l'avons vu au paragraphe 3.8.5 différentes pistes sont envisagées afin d'obtenir les états P et AP purs, permettant ainsi de conclure sur l'évolution de la TMR en fonction de l'épaisseur.

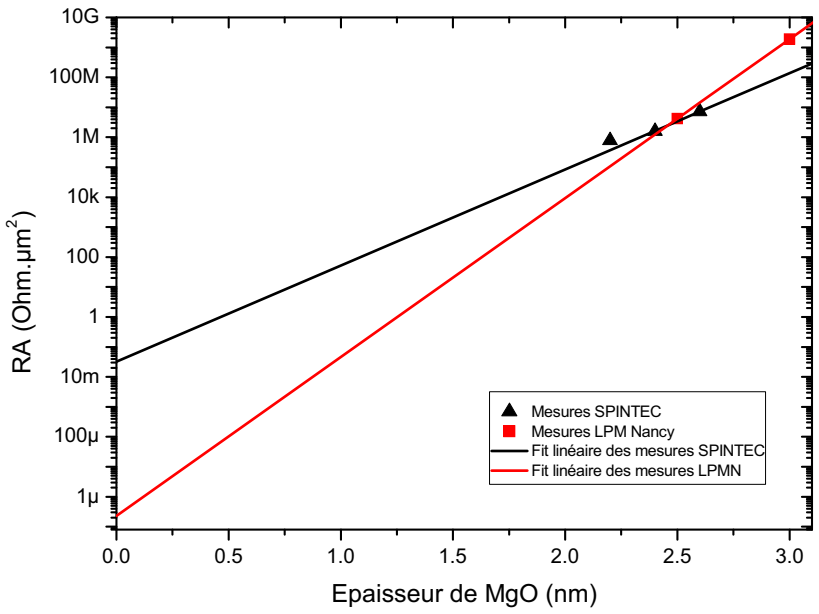

Fig. 4.7 – Évolution du RA en fonction de l'épaisseur de MgO. Les mesures faites à SPINTEC et au LPMN (équipe de C.Tiusan) sont reportées.

4.2 Symétrie des IRS

Le but des paragraphes suivant est d'expliquer les méthodes que nous avons employées afin de connaître la symétrie dominante de l'IRS participant au transport. Pour cela, en se basant sur les résultats du chapitre présentant la technique de spectroscopie employée dans cette thèse (paragraphe 2.8), et en rajoutant la présence d'un fond continu sur les caractéristiques dI/dV dont nous discuterons l'existence, nous donnons les expressions de ces caractéristiques des états P et AP pour des tensions positives et négatives.

4.2.1 Présence d'un fond continu dans l'expression des dI/dV

La dérivée d'une caractéristique I(V) par rapport à la tension appliquée pour un système Ferro_1/Isolant/Ferro_2, c'est à dire la conductivité différentielle en fonction de la tension appliquée, dépend des densités d'états des électrodes ferromagnétiques, de la mobilité des électrons dans ces électrodes, de la proportion d'électrons réfléchis et transmis à chaque interface ainsi que des différents taux d'atténuation dans la barrière.

Il peut être montré, dans le cas de barrières épaisses et sous certaines conditions, que la conductivité différentielle s'exprime dans le formalisme de Landauer comme (cf. paragraphe 2.3.2) :

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0} = \frac{e^2}{h}\sum_{k_\parallel} T_d T_g e^{(-2\kappa d)} \tag{4.2}$$

Le coefficient $T_{g(resp.\ d)}$ exprime la probabilité de transmission des électrons du milieu ferromagnétique de gauche (resp. isolant) vers l'isolant (resp. milieu ferromagnétique de droite). Ces coefficients contiennent l'information de la valeur des densités d'états ainsi que de la mobilité des électrons pour chacune des symétries du système (ou plus généralement des différentes bandes de conduction). L'épaisseur de l'isolant est notée d et le vecteur d'onde évanescent dans la barrière, κ. Restreignons notre cadre d'étude.

Considérons le système symétrique cristallin Fe/MgO/Fe (100). Le transport dans ce système est régi par les symétries Δ. Supposons qu'il n'existe pas de diffusion pouvant modifier le vecteur d'onde des électrons incidents. Supposons enfin la barrière assez épaisse pour que seuls les électrons dont $k_\parallel = 0$ participent au transport. Par convention, une tension positive correspond à un déplacement des électrons de l'électrode de gauche vers l'électrode de droite. En décomposant la conductivité différentielle suivant les différentes symétries des électrons nous pouvons récrire l'équation 4.2 sous la forme[2] :

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0} = \frac{e^2}{h}\sum_{\Delta_i,m,n} T^i_{d,m}(0)\gamma_i T^i_{g,n}(V_0) \quad pour\ V_0 > 0 \tag{4.3}$$

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0} = \frac{e^2}{h}\sum_{\Delta_i,m,n} T^i_{d,m}(V_0)\gamma_i T^i_{g,n}(0) \quad pour\ V_0 < 0 \tag{4.4}$$

[2]Nous avons choisi ici de considérer une variation de la caractéristique dI/dV due à un changement se produisant au niveau de Fermi de l'électrode de droite pour la tension positive et au niveau de Fermi de celle de gauche pour la tension négative. Pour plus de précision, je renvoie le lecture aux hypothèses permettant d'obtenir l'équation 2.29 du paragraphe 2.3.2.

Où $\gamma_i = e^{(-2\kappa_i e)}$ représente le taux de décroissance dans la barrière pour la symétrie Δ_i. Les indices m et n représentent l'orientation magnétique du spin des électrons considérés relativement à l'orientation de l'aimantation de l'électrode. Par convention $\uparrow$ désigne les électrons majoritaires et $\downarrow$ les électrons minoritaires.

Cependant, dans le type d'échantillons étudiés, une description du transport au moyen des symétries Δ, et en considérant un empilement parfaitement cristallin, mène à des valeurs de TMR de plus de 1000%. Or les valeurs expérimentales obtenues ne sont que de 150%. L'origine exacte de cette différence n'est pas parfaitement comprise[3] : défauts à la cristallinité dûs par exemple à la présence de dislocations induites par des relaxations de contraintes épitaxiales, défauts de qualité des interfaces qui mélangent les différents états... Ainsi, tout se passe comme si une partie non négligeable du transport, notamment pour la configuration AP la plus sensible[4], s'effectue indépendemment des symétries (cf. annexe C). Ce transport est à l'origine d'un fond continu dépendant de la tension dans les caractéristiques $dI/dV(V)$ que l'on notera $F(V)$. Celui-ci dépend sans doute de la configuration magnétique mais pas du sens du courant, car on peut supposer les défauts à l'empilement symétriques en moyenne par rapport à la barrière de MgO. Dans ces conditions, le système étant lui même symétrique, la caractéristique $dI/dV(V)$ doit être symétrique en tension pour une configuration magnétique donnée. Les fonds continus seront notés par la suite $F_P(V)$ et $F_{AP}(V)$.

4.2.2 Expression des dI/dV pour les états P et AP

De manière générale, les symétries Δ_1, Δ_5, Δ_2 et Δ_2' participent au transport. Cependant, leur taux de décroissance γ_i dans la barrière sont très différents. Sur la figure 2.14 du paragraphe 2.5.1 sont reportées pour les quatre différents canaux de conductions possibles (deux pour la configuration P et deux pour la configuration AP) les variations des densités d'états tunnels, TDOS, pour chacune des symétries existantes au niveau de Fermi de l'électrode émettrice. Les TDOS sont normalisées à l'unité, loin de l'interface. Elles permettent d'une part de connaître la proportion d'onde transmise et réfléchie à l'interface et d'autre part de connaître la variation des coefficients γ_i en fonction de l'épaisseur. A partir de ces graphes, nous pouvons négliger les symétries Δ_2 et $\Delta_{2'}$ dont les décroissances dans la barrière sont importantes et ne conserver que les symétries Δ_1 et Δ_5. Concernant la symétrie Δ_5, on remarque que les électrons minoritaires sont bien moins réfléchis que les électrons majoritaires aux interfaces. La raison est que la mobilité des électrons minoritaires Δ_5 est bien plus grande que celle des majoritaires Δ_5. Ceci est visible dans les diagrammes de bande $E(k_z)$, où la mobilité des électrons à un niveau d'énergie E (dans le cas qui nous intéresse $E = E_F$) est proportionnelle à la dérivée des bandes en fonction de E. On négligera donc dans la configuration parallèle le canal $\uparrow\uparrow$ pour les électrons Δ_5.

Écrivons pour chaque configuration magnétique la valeur de la conductivité différentielle en considérant qu'il existe des IRS au niveau de l'interface de droite (sondée en

[3]On observe par exemple que les plus forts taux de TMR sont obtenus sur des empilements réalisés par pulvérisation et non par épitaxie.

[4]En effet, celle-ci est prédite très faible par les forts taux d'atténuation des symétries Δ_2, $\Delta_{2'}$ et Δ_5 impliquées. Le moindre « apport » de conductivité supplémentaire se ressent fortement sur la TMR au contraire de la conductivité de l'état P moins sensible car régi par les porteurs majoritaires Δ_1.

tension positive seulement). Leur participation au transport en tension négative est nulle. En effet aucune bosse n'est observée dans la conductivité différentielle en tension négative, sur les courbes expérimentales. On a alors le système d'équations suivant.

Pour $V_0 > 0$:

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{P} = T_{g\uparrow}^{1}(0)\gamma_1 T_{d\uparrow}^{1}(V_0) + T_{g\downarrow}^{5}(0)\gamma_5 T_{d\downarrow}^{5}(V_0) + F_P(V_0) \tag{4.5}$$

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP} = T_{g\uparrow}^{5}(0)\gamma_5 T_{d\downarrow}^{5}(V_0) + T_{g\downarrow}^{5}(0)\gamma_5 T_{d\uparrow}^{5}(V_0) + T_{g\uparrow}^{i}(0)\gamma_i T_{d\downarrow}^{i-IRS}(V) + F_{AP}(V_0) \tag{4.6}$$

Pour $V_0 < 0$:

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{P} = T_{g\uparrow}^{1}(0)\gamma_1 T_{d\uparrow}^{1}(V_0) + T_{g\downarrow}^{5}(0)\gamma_5 T_{d\downarrow}^{5}(V_0) + F_P(V_0) \tag{4.7}$$

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP} = T_{g\uparrow}^{5}(0)\gamma_5 T_{d\downarrow}^{5}(V_0) + T_{g\downarrow}^{5}(0)\gamma_5 T_{d\uparrow}^{5}(V_0) + F_{AP}(V_0) \tag{4.8}$$

Pour des barrières épaisses, seuls les coefficients γ_i sont modifiés lorsque l'épaisseur de barrière est variée : les termes $T_{d,m}^{i}$ et $T_{g,n}^{i}$ ne dépendent pas de l'épaisseur car ils sont donnés pour un système métal/isolant, réunion du système métallique semi-infini et du système isolant semi-infini. Ainsi l'étude de la variation des conductivités différentielles en fonction de l'épaisseur permet de remonter à la symétrie des porteurs majoritaires. Nous présentons deux méthodes différentes permettant d'isoler la contribution au transport tunnel des IRS et ainsi de remonter à leur symétrie.

4.2.3 1ère méthode : soustraction AP-P

La première méthode que nous avons employée afin de trouver la symétrie des IRS s'est avérée ne pas être la plus pertinente. Cependant il me paraît bon d'expliquer les motivations premières qui ont conduit à cette méthode ainsi que ses limites.

Cette méthode consiste à retrancher la caractéristique dI/dV de l'état parallèle à celle de l'état anti-parallèle, le but étant de s'affranchir du fond continu. Cette méthode repose donc sur le fait que les fonds continus des configurations AP et P sont identiques, ce qui n'est pas forcément évident à démontrer. Cette hypothèse faite, la différence des conductivités différentielles s'écrit pour des tensions positives :

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP} - \left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{P} = \left(T_{g\uparrow}^{5}(0) - T_{g\downarrow}^{5}(0)\right)\gamma_5 T_{d\downarrow}^{5}(V) + T_{g\downarrow}^{5}(0)\gamma_5 T_{d\uparrow}^{5}(V) + T_{g\uparrow}^{i}(0)\gamma_i T_{d\downarrow}^{i-IRS}(V) - T_{g\uparrow}^{1}(0)\gamma_1 T_{d\uparrow}^{1}(V) \tag{4.9}$$

Comme il a déjà été dit précédemment, à cause de la réflexion plus importante sur la première interface des électrons Δ_5 majoritaires par rapport aux minoritaires, nous avons $10 \times T_{g\uparrow}^{5}(0) < T_{g\downarrow}^{5}(0)$. Nous pouvons re-écrire l'équation 4.9 comme :

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP} - \left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{P} = T_{g\downarrow}^{5}(0)\gamma_5\left(T_{d\uparrow}^{5}(V) - T_{d\downarrow}^{5}(V)\right) + T_{g\uparrow}^{i}(0)\gamma_i T_{d\downarrow}^{i-IRS}(V) - T_{g\uparrow}^{1}(0)\gamma_1 T_{d\uparrow}^{1}(V) \tag{4.10}$$

Le signe de cette différence dépend de l'importance relative de chacun des termes la composant. La figure 4.8 donne pour les trois épaisseurs étudiées la variation de cette différence en fonction de la tension. On remarque que pour des valeurs de tension positives supérieures à 0.8V, la différence est positive. Cela indique que la conductance des électrons majoritaires Δ_1 dans la configuration P est moins importante que celle de la configuration AP qui est due pour sa part à des électrons Δ_5 ou à la présence d'IRS. Trois solutions sont possibles : la conduction est dominée par l'IRS centré en 1.1V ; la différence $T^5_{d\uparrow}(V) - T^5_{d\downarrow}(V)$ est positive et la conduction des électrons Δ_5 de l'état AP est plus importante à cette valeur de tension que celle des électrons Δ_1 de l'état P ; enfin la troisième qui est la réunion des deux premières.

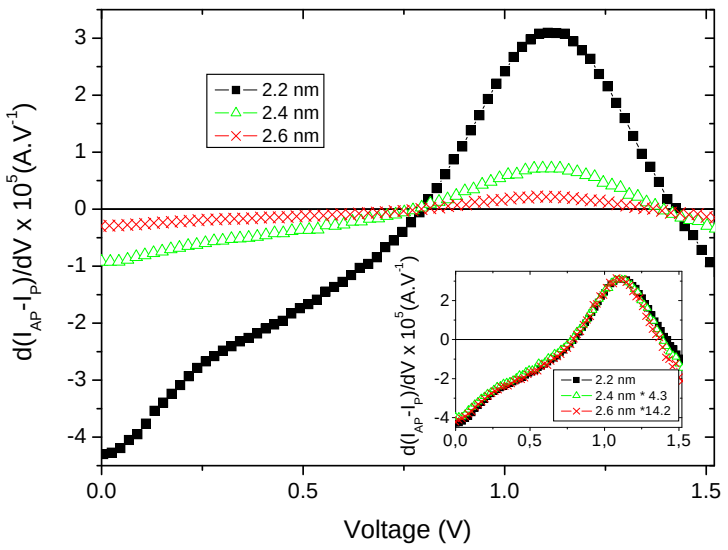

Fig. 4.8 – Différence entre les conductivités différentielles des états AP et P, pour différentes épaisseurs de MgO : 2.2, 2.4 et 2.6 nm. Le graphe en insert représente les courbes obtenues pour 2.4 et 2.6 nm multipliées respectivement par 4.3 et 14.2, afin de les faire se superposer avec celle obtenue pour 2.2 nm.

Dans le cadre de notre modèle, seuls les coefficients γ_i dépendent de l'épaisseur de barrière. La valeur exacte de ces coefficients n'est pas connue. Cependant seule leur variation en fonction de l'épaisseur de barrière est nécessaire afin de connaître la symétrie des porteurs dominants : Δ_1 pour la partie négative et de symétrie i à déterminer pour la partie positive.

Cette variation est équivalente à celle du rapport, noté $1/\alpha_f$, entre l'amplitude maximum de la courbe pour une épaisseur de (22+f) Å et celle de la courbe pour l'épaisseur de 22 Å. La courbe de plus faible épaisseur, 22 Å, est prise comme référence. Nous trouvons respectivement pour les épaisseurs de 24 et 26 Å : $\alpha_2 = 4.3$ et $\alpha_4 = 14.2$. Le résultat obtenu en multipliant chacune des courbes par le coefficient lui correspondant est représenté dans l'insert de la figure 4.8. On remarque que les trois courbes se superposent pour chaque valeur de tension positive. La symétrie des électrons dominant le transport pour les tensions supérieures à 0.8V est donc la même que celle pour les tensions inférieures

à 0.8V à savoir Δ_1. Or la conduction à ces valeurs de tension est dominée par l'IRS. La symétrie de l'IRS doit donc être la symétrie Δ_1.

Afin de confirmer ceci, nous avons tracé sur un même graphe l'évolution des coefficients $1/\alpha_f$ trouvés ainsi que l'évolution théorique[5] de γ_1 et γ_5 en fonction de l'épaisseur $d = 22+f$ Å de MgO. Le résultat obtenu est reporté figure 4.9. L'épaisseur de 2.2 nm est prise comme référence. On retrouve bien la décroissance dans la barrière relative à la symétrie Δ_1 ce qui confirme que la symétrie de l'IRS dominant le transport est la symétrie Δ_1.

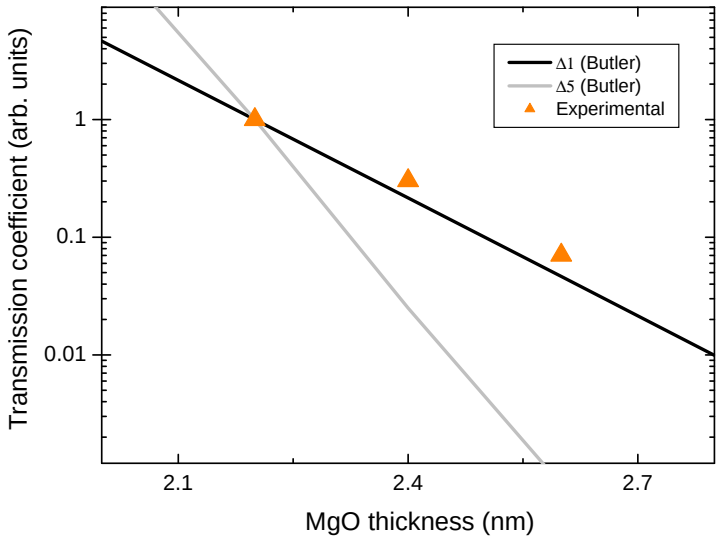

Fig. 4.9 – La ligne noire (grise) représente la variation des taux d'atténuation γ_1 et γ_5 pour $k_\parallel = 0$ en fonction de l'épaisseur de MgO. Les triangles sont les coefficients $1/\alpha_f$ trouvés permettant de superposer les courbes obtenues pour 2.4 et 2.6 nm à celle obtenue pour 2.2 nm. La référence est prise à 2.2 nm.

Cette méthode semble permettre de montrer que la symétrie prédominante de l'IRS centré en 1.1V est Δ_1. Elle repose néanmoins sur l'hypothèse que les fonds continus des configurations P et AP sont identiques, ce qui n'est pas démontré. De plus cette méthode aboutit à un résultat car la participation au transport dans la configuration AP de l'IRS centré en 1.1V est assez importante pour dominer le transport Δ_1 de la configuration P. Cela se traduit graphiquement par des valeurs positives de la différence des conductivités différentielles de ces deux configurations à partir de 0.8V. Dans ce cas précis, cette méthode malgré ces insuffisances semble convenir. Elle ne permet cependant pas d'obtenir des indications sur la symétrie de l'IRS centré en 0.2V.

4.2.4 2nd méthode : soustraction partie positive - partie négative dans la configuration AP

La seconde méthode consiste à retrancher la partie en tension négative de la courbe $(dI/dV)_{AP}$ à sa partie en tension positive. En effet la partie négative ne montre pas la

[5]Tirées de [79].

présence d'IRS. Cette différence s'écrit d'après le système d'équation 4.5 à 4.8 :

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP\ pos} - \left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP\ neg} = T_{g\uparrow}^{i}(0)\gamma_i T_{d\downarrow}^{i-IRS}(V) \tag{4.11}$$

Sur le graphe figure 4.10 est représentée cette différence en fonction de la tension pour les trois épaisseurs. Elle est cette fois-ci égale à la conductivité différentielle partielle des IRS. Cette différence permet donc, a priori, de ne conserver que la participation des IRS au transport. Les coefficients α_f trouvés par cette méthode sont $\alpha_2 = 2.3$ et $\alpha_4 = 10.7$. Là encore toutes les courbes se superposent pour chaque valeur de tension (cf. insert figure 4.10). La variation des coefficients $1/\alpha_f$ en fonction de l'épaisseur est représentée figure 4.11. On retrouve bien que cette variation suit la loi de décroissance de la symétrie Δ_1. La symétrie Δ_1 est donc la symétrie dominante des deux IRS. On retrouve alors la prédiction théorique de Zhang et Butler [79] pour l'IRS centré en 0.2V (et dans le cas $k_{\parallel} = 0$).

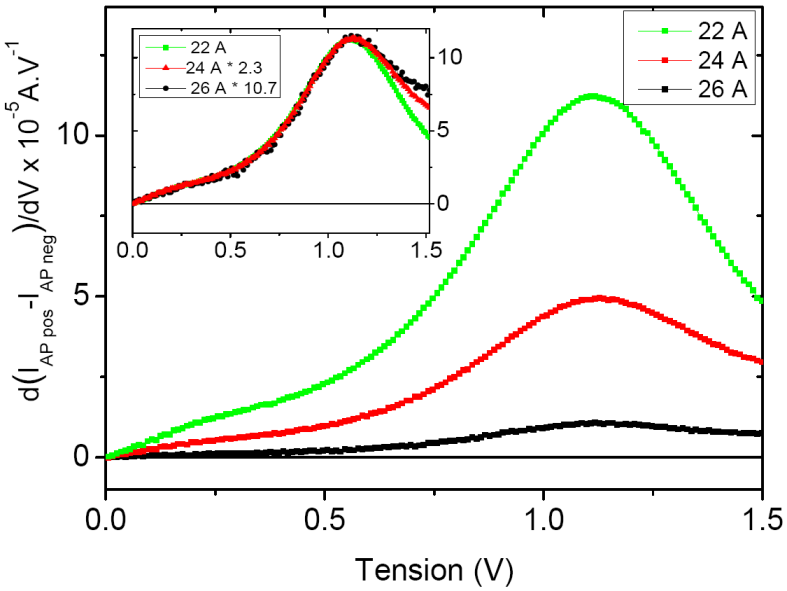

Fig. 4.10 – Différence entre la partie positive et la partie négative de la caractéristique $dI/dV(V)$ de l'état AP, pour trois épaisseurs de MgO : 22, 24 et 26 Å. L'insert donne le résulat de la multiplication de chacune des courbes par un coefficient α_f : α_0=1 pour la courbe de 22 Å ; α_2=2.3 pour la courbe de 24 Å ; α_4=10.7 pour la courbe de 26 Å.

4.2.5 Critique

Je ne pense pas que nous puissions conclure que la symétrie principale de l'IRS est la symétrie Δ_1. En effet la symétrie, trouvée à partir des courbes de transport, correspond à celle des électrons participant le plus au transport et non pas à la symétrie dominante des IRS. Pour les épaisseurs considérées (2.2 nm et au dessus), le taux de transmission γ_5 est largement inférieur au taux γ_1. Par exemple, en supposant une transmission à l'interface avec la barrière égale à l'unité pour les symétries Δ_1 et Δ_5, le rapport γ_5/γ_1 est d'environ

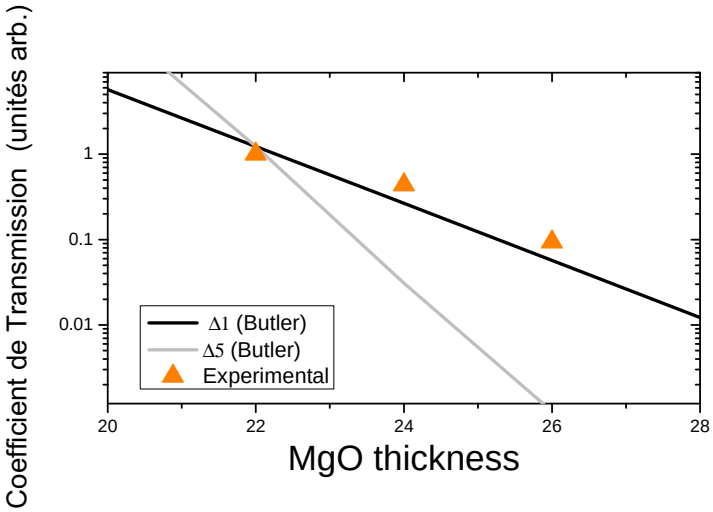

Fig. 4.11 – La ligne noire (grise) représente la variation des taux d'atténuation γ_1 et γ_5 pour $k_{\|} = 0$ en fonction de l'épaisseur de MgO. Les triangles sont les coefficients $1/\alpha_f$ trouvés permettant de superposer les courbes obtenues pour 2.4 et 2.6 nm à celle obtenue pour 2.2 nm. La référence est prise à 2.2 nm.

10^{-7} pour une épaisseur de 2.2 nm. Cette écart important ne permet pas de détecter une symétrie autre que Δ_1 pour les IRS, puisque qu'aucun électron de symétrie différente ne peut traverser la barrière.

Pour fixer les idées prenons l'exemple suivant. Supposons que les IRS soient à 99% de symétrie Δ_5 et à seulement 1% de symétrie Δ_1. L'équation 4.11 devient :

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP\ pos} - \left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP\ neg} = T_{g\uparrow}^{1}(0)\gamma_1 T_{d\downarrow}^{1-IRS}(V) + T_{g\uparrow}^{5}(0)\gamma_5 T_{d\downarrow}^{5-IRS}(V) \tag{4.12}$$

Restreignons le cadre de cet exemple pour simplifier les équations et ne garder que l'idée principale exposée ici. On suppose d'une part que $T_{g\uparrow}^{1}(0) = T_{g\uparrow}^{5}(0) = 1$ et d'autre part que $T_{d\downarrow}^{1}(V_0) = 0.01 \cdot T^{IRS}(V_0)$ et $T_{d\downarrow}^{5}(V_0) = 0.99 \cdot T^{IRS}(V_0)$. On a alors :

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP\ pos} - \left(\frac{dI}{dV}\right)_{V_0}^{AP\ neg} = T^{IRS}(V_0)\left(0.01\gamma_1 + 0.99\gamma_5\right) \tag{4.13}$$

Dans ce cas seuls restent en compétition les taux de transmission dans la barrière pour savoir qui, des symétries Δ_1 ou Δ_5, participe le plus à la conductivité différentielle partielle. Comme nous l'avons déjà évoqué, pour l'épaisseur de barrière la plus fine que nous avons étudiée, le rapport γ_5/γ_1 est de 10^{-7}. Ceci est largement supérieur au 1% que nous avons pris pour décrire la symétrie de l'IRS.

Cependant, la conclusion forte que nous pouvons tirer de cette étude est que la description théorique du système selon les symétries Δ_i semble correcte. On trouve en effet

que la symétrie Δ_1 est la symétrie dominant le transport. Ce résultat est à ma connaissance le premier résultat quantitatif attestant de la véracité de la théorie proposée par Zhang et Butler.

Au regard des taux de décroissance des différentes symétries dans le MgO calculés par Zhang et Butler, seule une étude pour des épaisseurs faibles (inférieur à 1 nm) pourrait permettre d'étudier plus en détail les différentes symétries composant les IRS. Cependant l'étude pour de faibles épaisseurs de barrière n'est pas triviale. D'un point de vue expérimental, cela sous entend d'être capable de mesurer des caractéristiques I(V) sur des piliers de faibles tailles[6]. De plus, il est possible qu'à des tailles inférieures à 0.1x0.1μm^2, le système ne soit pas équivalent au système étudié sur une surface plus grande. D'une part ces tailles sont de l'ordre de la taille des terrasses (cf. paragraphe 3.2.3). D'autre part, l'anisotropie de forme commence à jouer un rôle dans la configuration magnétique du pilier. Enfin, d'un point de vue théorique, le modèle présenté précédemment n'est plus valable : il faut rajouter une intégration sur les $k_{\parallel} \neq 0$. Cette intégration complexifierait l'interprétation des résultats.

4.3 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les résultats expérimentaux de transport obtenus sur des échantillons Fe/MgO/Fe ayant des épaisseurs de MgO différentes. Trois épaisseurs ont pu être étudiées : 22, 24 et 26 Å. Le RA a pu être mesuré pour ces 3 épaisseurs et semble suivre une loi exponentielle en fonction de l'épaisseur. D'autres mesures sur des épaisseurs différentes et notamment plus petites sont indispensables pour conclure. Aucune variation de la TMR en fonction de l'épaisseur n'a pu être montrée car, comme il a été vu au chapitre précédent, l'état magnétique AP pur ne peut être obtenu dans ce type d'empilement (couche dure au dessus). Enfin, nous avons mis en évidence la présence de deux IRS à tension positive (électrons circulant de l'électrode supérieure vers l'électrode inférieure). Ces IRS sont situés au niveau de l'interface inférieure Fe/MgO dont la rugosité de surface est bien meilleur que celle de l'interface supérieure. Le premier IRS est situé à environ 0.2eV au dessus du niveau de Fermi ce qui est en accord avec les prédiction théoriques. Le second IRS n'a pour l'instant pas été étudié ou prédit théoriquement dans le système Fe/MgO/Fe. Cependant si l'on s'autorise l'analogie avec le système Fe/vide, un état de surface a été prédit autour de 1eV au dessus du niveau de Fermi pour $k_{\parallel} = 0$. Nous avons montré que la symétrie dominant le transport pour ces IRS est la symétrie Δ_1.

Au regard des résultats obtenus, il est important d'étudier d'autres épaisseurs plus fines de barrière de MgO afin de compléter les données déjà acquises mais aussi d'étudier le couplage anti-ferromagnétique observé à faible épaisseur dont l'origine est peut être un couplage d'échange par effet tunnel polarisé en spin. Une solution doit être trouvée permettant de piéger la couche dure dans une configuration magnétique déterminée. Des

[6]Le RA étant très faible, il est nécessaire de travailler avec des piliers de surface petite pour ne pas injecter des courants trop importants dans le système. A titre d'exemple, pour une épaisseur de MgO de 1 nm (RA=100$\Omega.\mu m^2$) si le pilier fait 0.1x0.1μm^2 alors le courant à injecter pour atteindre 2V est de 0.2mA, alors qu'il est de 20mA pour une surface de 1x1μm^2.

propositions ont été faites comme l'utilisation d'un anti-ferromagnétique synthétique et seront testées prochainement.

Enfin, une compréhension plus fine des IRS est nécessaire comme par exemple savoir si leur position en énergie dépend de l'épaisseur de barrière. Des modifications de la chimie de surface, similaire aux expériences d'ajout de C ou d'O, permettraient de mieux comprendre leur nature. Ces modifications pourraient se faire par implantation ionique en collaboration avec le LPM de Nancy et le CEMES de Toulouse.

« *Don't Dream It, Be It* »

Dr. Frank-N-Furter

Conclusion

L'objectif principal du travail présenté ici était d'étudier l'influence de la structure cristalline sur le transport dépendant du spin dans des jonctions tunnel et plus particulièrement l'influence d'éventuels états localisés à l'interface entre l'isolant et le métal magnétique. Nous avons choisi d'effectuer cette étude sur un système modèle : les jonctions tunnel monocristallines Fe/MgO/Fe. En effet, ces systèmes ont établi récemment des records de taux de TMR qui ne peuvent être expliqués que par l'influence des symétries cristallines sur les électrons de conduction. De plus, il a été démontré à la fois théoriquement et expérimentalement que la surface du Fe bcc (100), à l'interface avec du vide, pouvait être le siège d'états électroniques disponibles pour le transport : des états résonants d'interface ou IRS. Le même résultat a été prédit théoriquement à l'interface Fe bcc (100) / MgO fcc (100) et l'existence d'un IRS a été démontré expérimentalement peu de temps après.

Le second objectif de ma thèse était de développer une technique de mesure en transport vertical de nanopiliers. L'étude du transport dépendant du spin dans des systèmes verticaux, comme des empilements de multicouches, nécessite de définir deux électrodes de part et d'autre du système : une électrode inférieure généralement constituée par la première couche métallique déposée sur le substrat ou par le substrat lui même lorsqu'il est conducteur, et une électrode supérieure. Celle-ci est beaucoup plus délicate à définir. D'une part, le système à contacter est en général petit : de l'ordre typiquement d'une centaine de nanomètres jusqu'à moins de 10 nm lorsque l'on cherche à contacter des objects uniques issus par exemple de la synthèse chimique. D'autre part il faut que les deux électrodes soient isolées électriquement l'une de l'autre et que les éventuels couplages capacitifs soient réduits au maximum.

J'ai développé une instrumentation dédiée à l'étude électrique sous champ magnétique de nano-objets. Elle associe un AFM utilisé en mode contact à une électronique d'acquisition rapide de signaux électriques. La possibilité d'appliquer un champ magnétique soit dans le plan soit perpendiculaire au plan lorsque le contact est établi, permet l'étude d'empilements magnétiques comme des jonctions tunnel magnétiques. Une des difficultés importantes de ce développement a été l'obtention d'un contact électrique stable et de faible résistance entre la pointe et l'échantillon. Un couple pointe AFM/matériau constituant l'électrode supérieure à contacter a été dégagé : pointe entièrement en tungstène et surface d'or. Il permet d'obtenir des résistances de contact faibles, de l'ordre de 3Ω, et peu fluctuantes le temps de la mesure. Celui-ci, limité à une dizaine de secondes environ au début de l'étude a pu être augmenté jusqu'à plus d'une minute grâce à la réalisation d'une soudure entre la pointe et l'échantillon. L'électronique d'acquisition rapide permet sur ce temps court la mesure moyennée du signal, par exemple la tension, en fonction

des différents paramètres, typiquement les amplitudes de l'intensité et du champ magnétique. Nous avons de plus développé une méthode permettant la mesure de sauts de résistance et de champs de décalage d'empilements magnétorésistifs dont le produit de la résistance par la surface (RA) est faible. Cette méthode combinée aux caractéristique de l'instrumentation développée permet de mesurer des sauts de résistance faibles de l'ordre de $10^{-6}\,\Omega.A$, soit par exemple un saut de $10^{-3}\,\Omega$ en injectant 1 mA dans le système.

Ce dispositif expérimental permet de mesurer rapidement des empilements nanostructurés en simplifiant le processus de nanofabrication. Les étapes délicates d'encapsulement par un diélectrique et d'ouverture supérieure, par exemple au moyen d'une planarisation mécano-chimique ne sont plus nécessaires. Les nanostructures sont réalisées en trois étapes seulement : lithographie électronique, dépôt/lift-off d'un masque dur en métal et gravure ionique. Elles sont ensuite imagées par AFM et connectées directement avec la même pointe.

Un avantage important de notre instrumentation est sa grande résolution spatiale basée sur l'emploi d'une technique de champ proche, le microscope à force atomique. Les empilements étudiés étant très résistifs, les mesures présentées dans ce manuscript ont été réalisées sur des piliers de taille importante ($3*20\,\mu m^2$) pour lesquels la grande résolution spatiale n'a pas été exploitée. Nous avons néanmoins, pour une autre étude, contacté des piliers de tailles aussi petites que $40*60\,\mathrm{nm}^2$. Ces tailles peuvent a priori être encore réduite car la résolution n'est limitée que par l'apex de la pointe AFM qui peut être aussi petit que 20 nm. De plus, ces pointes peuvent, si besoin, être usinées par faisceau d'ions focalisé (FIB) afin de les affiner jusqu'à 4 nm. Ce dispositif expérimental peut ainsi permettre de connecter de très petits nano-objets isolés ou assemblés dans un réseau dense, très difficilement adressables par les techniques classiques de nanofabrication. Une étude en transport sur des nanobâtonnets de cobalt d'un diamètre inférieur à 10 nm a déjà commencé en collaboration avec le LPCNO et le CEMES à Toulouse. Pour de si faibles dimensions se pose néanmoins la question de la stabilité temporelle. Même si l'acquision des mesures est rapide, toute dérive ou fluctuation de la position de quelques nanomètres seulement sera très préjudiciable. Notre dispositif va être optimisé, notamment au niveau des fluctuations spatiales afin de permettre la mesure de très petits nano-objets. Nous pensons, pour ce faire, mettre au point une rétroaction sur le signal topographique de la nanostructure étudiée, afin par exemple de se situer toujours au point topographique le plus élevé.

Avant de procéder à l'étude en transport, nous avons caractérisé structurellement et magnétiquement les empilements Fe/MgO/Fe déposés par épitaxie au LPM Nancy. La structure imposée par le substrat de MgO est conservée lors de la croissance de l'empilement. Celui-ci présente deux interfaces fer/isolant de qualités différentes. L'interface inférieure présente une très faible rugosité obtenue grâce à un recuit à haute température, 450 °Celsius, effectué au préalable du dépôt de l'isolant. Un tel recuit n'est pas réalisable après le dépôt de la seconde couche de fer et l'interface supérieure présente une rugosité plus marquée.

La caractérisation magnétique a montré la difficulté d'obtenir les états parallèle et antiparallèle. Même après une saturation à haut champ magnétique la couche dure présente, après quelques cycles réalisés avec des champs de faible amplitude, une aimantation non-uniforme. L'état parallèle peut alors être obtenu directement après saturation ou grâce au

faible couplage ferromagnétique qui existe entre les deux couches et peut "'répliquer"' la couche dure sur la couche douce. L'état antiparallèle au contraire n'est que très rarement obtenu. Diverses solutions ont été proposées mais n'ont pu être testées au cours de ce travail comme par exemple l'inversion couche supérieure/couche inférieure des couches dure et douce ou le piégeage de la couche dure par un antiferromagnétique synthétique. La fabrication de ces empilements permettra de travailler avec les états parallèle et antiparallèle purs et ainsi de mesurer des valeurs de TMR non minorées. Les mesures de transport ont donc été réalisées sur un état parallèle pur et un état antiparallèle seulement majoritairement antiparallèle. Cela n'a pas gêner l'étude sur les états d'interface ni les conclusions obtenues.

Nous avons mesuré des empilements Fe/MgO/Fe présentant trois épaisseurs différentes de MgO : 2.2, 2.4 et 2.6 nm. Le RA mesuré dans l'état parallèle semble suivre comme attendu une loi exponentielle décroissante avec l'épaisseur. Des mesures sur d'autres épaisseurs et notamment des barrières plus fines sont indispensables pour conclure quantitativement. Aucune variation de la TMR en fonction de l'épaisseur n'a pu être obtenue avec certitude car la mesure de la TMR nécessite l'obtention de l'état antiparallèle pur.

Nous avons montré que la mesure des caractéristiques $dI/dV(V)$ peut être équivalente à une spectroscopie seulement sous certaines conditions. Ainsi, l'étude spectroscopique d'une couche de fer se fait dans notre cas au moyen de l'autre couche de fer. Aucune des deux ne peut être considérée comme un émetteur parfait d'électron, c'est à dire ayant des bandes de conduction plate en énergie. L'étude « spectroscopique » sera alors le résultat de la convolution des bandes des deux électrodes qui participent au transport. Néanmoins, quand une variation importante des densités d'états apparaît à une certaine énergie comme l'apparition ou la disparition d'une bande de conduction, l'anomalie mesurée peut être traitée comme un pic en spectroscopie.

Nous avons, au moyen des caractéristiques $I(V)$ et $dI/dV(V)$, mis en évidence deux IRS localisés au niveau de l'interface Fe/MgO inférieure. Le premier IRS, avait été prédit théoriquement et sa position, environ 0.2 eV au dessus du niveau de Fermi, est en accord avec les prédictions. Son observation expérimentale avait été reportée auparavant dans la littérature mais pour une interface possiblement polluée par du carbone. Nous prouvons clairement son existence pour une interface Fe/MgO propre. Le second IRS, situé à environ 1.1 eV au dessus du niveau de Fermi n'avait auparavant pas été prédit théoriquement ni observé expérimentalement pour le système Fe/MgO/Fe. Les modifications qu'il génère sur le régime de transport sont assez importantes pour inverser la TMR dynamique : l'état antiparallèle devient l'état de moindre résistance et l'amplitude de la TMR augmente localement avec la tension. De plus, lorsque l'épaisseur de MgO diminue l'importance de cet IRS sur le transport augmente.

La question de la symétrie de ces IRS est importante car elle conditionne leur propriétés de transport dans la barrière de MgO. Certains documents de la littérature leur assigne une symétrie Δ_1 en les plaçant dans le gap des électrons Δ_1 minoritaires. Nous avons discuté la contradiction d'une telle prédiction et fait remarquer que la brisure de symétrie à l'interface empêche que ces états puissent avoir les symétries pures Δ_i du massif. Ils peuvent ne pas présenter de symétries Δ_i ou au mieux n'être qu'une combinaison de ces différentes symétries. Nous avons montré expérimentalement que ces IRS avaient une composante de symétrie Δ_1 et que cette symétrie dominait leur propriété de transport.

Il est maintenant important d'étudier d'autres épaisseurs de barrière de MgO et notamment des épaisseurs plus petites. En effet, plus l'épaisseur de MgO diminue plus l'amplitude de la partie négative de la TMR augmente. Il sera intéressant de savoir si celle-ci sature ou non dans le but par exemple d'obtenir des taux de TMR importants pour des tensions appliquées aussi grandes que 1 V. De plus, l'étude de la position en énergie de ces IRS lorsque l'épaisseur diminue pourra nous renseigner sur l'évolution de ces IRS : augmentation/diminution de leur largeur en énergie, couplage avec l'autre électrode, ... Une des origines du couplage antiferromagnétique entre les deux couches de fer observé pour des épaisseurs de MgO inférieures à 8 peut être un couplage d'échange par effet tunnel dépendant du spin impliquant ces IRS. L'étude pour des épaisseurs plus fines pourra amener un éclairage important sur ce problème.

Un consensus existe sur la forte dépendance de ces IRS à la qualité de l'interface, non seulement sa rugosité mais aussi sa chimie. L'apport à ce niveau d'atomes « contaminant » comme par exemple de l'oxygène ou du carbone peut à la fois modifier les liaisons et les environnements électroniques locaux mais aussi complexifier les filtrages en symétrie. L'impact de cette « pollution » contrôlée permettra de mieux comprendre la nature de ces IRS. Cette étude est d'ores et déjà prévue en collaboration avec le LPM à Nancy et le LEPES à Toulouse.

Enfin, les résultats de ces différentes expériences devraient permettre de comprendre plus finement l'influence de la structure cristalline à la fois du matériau massif mais aussi des interfaces sur le transport tunnel magnétique. Ces résultats pourront être étendus à d'autres diélectriques que le MgO et conduire à une ingénierie contrôlée des barrières tunnel dans le but par exemple d'obtenir des forts taux de TMR alliés à des bas RA, des forts taux de TMR pour des tensions appliquées importantes.

Annexe A

Justification d'une fréquence de champ multiple du temps d'acquisition

Le temps d'acquisition détermine dans l'espace de Fourier la résolution fréquentielle. En d'autres termes, lors d'une transformée de Fourier (TF) discrète d'un signal, la distance entre deux points dans l'espace de Fourier appelée résolution fréquentielle est égale à l'inverse du temps d'acquisition : $\Delta f = \frac{1}{\tau_{aqc}}$. De plus l'acquisition d'un signal infini périodique pendant un temps fini revient à multiplier ce signal par un signal (ou fonction) porte. Cette fonction prend la valeur 1 entre $-T_{acq}/2$ et $+T_{acq}/2$ et 0 partout ailleurs. On parle de fenêtrage. Pour comprendre l'influence du fenêtrage sur la TF, la notion de produit de convolution est utile, en effet une propriété de la TF est que la TF d'un produit de signaux est le produit de convolution des TF des signaux. Pour fixer les idées prenons l'exemple d'un signal sinusoïdal de fréquence F_0 fenêtré par une fonction porte de longueur T_1. La TF d'un signal sinusoïdal infini est un Dirac positionné en F_0. La TF d'une fonction porte est un sinus cardinal centré en 0 et dont chaque lobe secondaire est séparé d'une distance de $1/T_1$. Le produit de convolution de ces deux TF est alors un sinus cardinal centré en F_0 dont chaque lobe secondaire est séparé d'une distance $1/T_1$. La figure A.1 montre pour une valeur de F_0 de 10Hz la TF continue d'un signal sinusoïdal de fréquence F_0 acquis pendant deux temps différents T_1 et $T_1^{'}$. Les espacements entre lobes secondaires sont légèrement différents entre les deux courbes car T_1 et $T_1^{'}$ sont très proches (respectivement 1s et 1.023s). L'amplitudes des lobes est elle identique pour les deux graphes.

L'acquisition d'un signal pendant un temps fini ne permet qu'une TF discrète. On a dans ce cas les signaux fréquentiels représentés avec des points bleus et rouges sur la figure A.1. La différence entre ces deux signaux est importante. En effet, pour T_1, la résolution fréquentielle étant de 1 Hz, la valeur maximum du signal fréquentiel est obtenue (10 Hz étant un multiple de 1 Hz). De plus les autres points acquis sont tous égaux à zéro. Les lobes ne sont alors pas visibles. Pour $T_1^{'}$, le point le plus proche de 10 Hz acquit est 9.77 Hz ($10 \times \frac{1}{1.023}$). L'enveloppe du pic central est plus large car des points faisant partie des lobes sont acquis. Ces points ne sont pas représentatifs du signal physique mesuré mais proviennent du fenêtrage c'est à dire de la technique d'acquisition.

En conclusion, la fréquence du champ doit être prise multiple du temps d'acquisition

dans nos mesures, afin de ne pas voir le spectre caractéristique du fenêtrage.

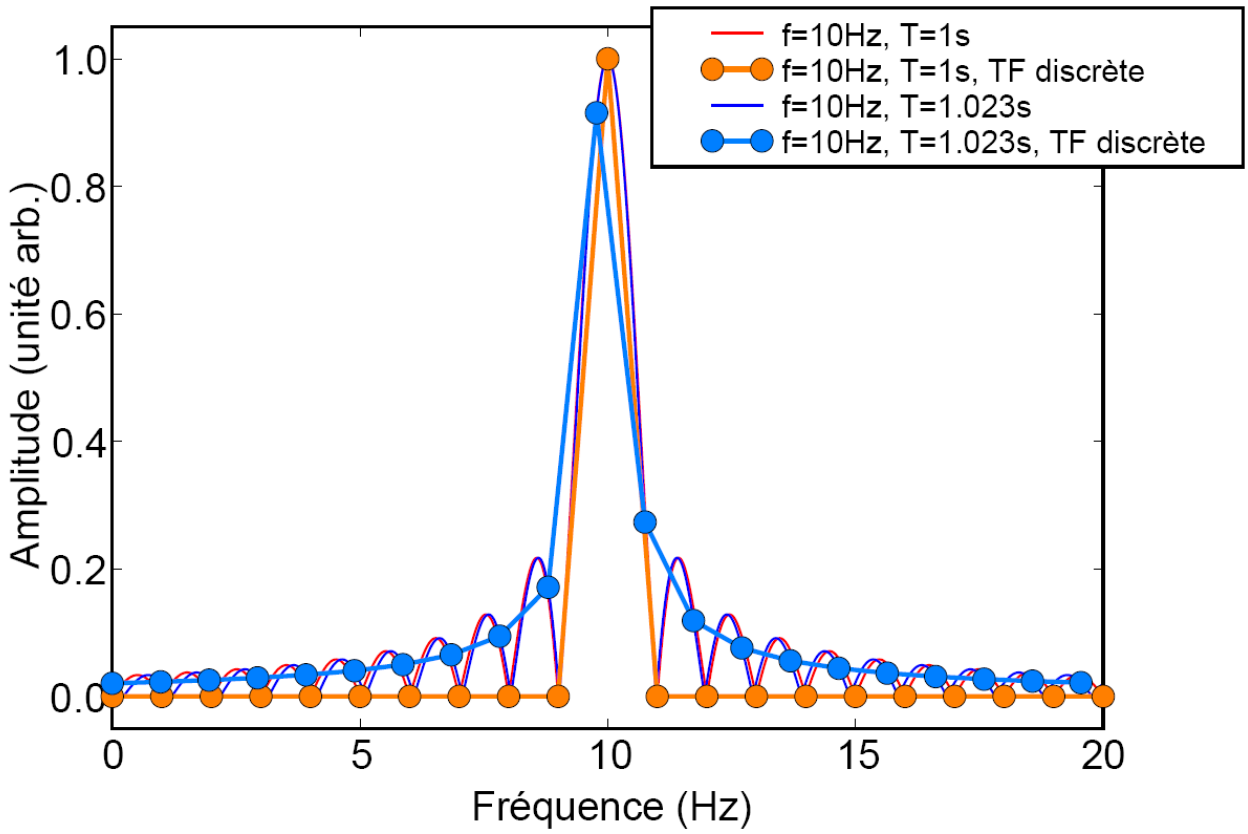

Fig. A.1 – TF d'un signal sinusoïdal de fréquence 10Hz par une fonction porte. Les caractéristiques en bleus représentent les TF lorsque que le temps d'acquisition τ_{aqc} (temps passé à l'état haut du signal porte) est de 1s. Les caractéristiques en rouge représentent les signaux obtenus pour $\tau_{aqc} = 1.023s$ (non multiple de la période du signal sinusoïdale). Les TF discrète et continue obtenues pour les deux valeurs de τ_{aqc} sont représentées. Pour $\tau_{aqc} = 1s$ on ne détecte que l'amplitude du pic central. Pour $\tau_{aqc} = 1.023s$, le pic s'élargit due à la contribution des maxima secondaires du sinus cardinal. De plus dans ce cas l'amplitude maximal du pic central n'est pas connue.

Annexe B

Expression analytique d'une courbe $dI/dV(V)$ dans le modèle des électrons libres

Nous sommes dans le cadre des électrons libres à 3D. Le système étudié est une JTM. Un électron de l'électrode de gauche traverse la barrière tunnel avec une probabilité fixée[1] lorsqu'un état vide est disponible au même niveau d'énergie dans l'électrode de droite. Cela revient à considérer la transparence de la barrière comme étant égale à une constante. Sous cette hypothèse forte, le nombre d'électrons ayant une énergie E et traversant la barrière est alors proportionnel au produit, à cette énergie E, de la densité d'états de l'électrode de gauche par la densité d'états de l'électrode de droite. La densité d'états est donc proportionnelle à la racine carré de l'énergie. La référence d'énergie est prise égale au bas de la bande de l'électrode de gauche lorsque la tension appliquée est nulle (figure B.1 (a) où un seul canal de spin est montré). Les énergies de Fermi de l'électrode de gauche et de celle de droite sont notées E_{F_g} et E_{F_d}. Par convention l'énergie E_{F_d} n'est pas modifiée est sera notée E_F. On considère un décalage d'échange entre les deux bandes noté δ.

Le cas présenté sur la figure B.1 ((a) sans tension appliquée, (b) avec une tension V appliquée) est une JTM dans la configuration anti-parallèle ($\delta \neq 0$) : un électron minoritaire traverse la barrière vers un état majoritaire de l'électrode de droite. La configuration parallèle peut être traitée à partir des mêmes équations en considérant $\delta = 0$. Dans la suite nous ne considérerons que le canal $\downarrow\uparrow$ (d'après la figure) parmi les 4 possibles : $\uparrow\uparrow$, $\downarrow\downarrow$, $\uparrow\downarrow$ et $\downarrow\uparrow$.

On peut écrire le courant I dépendant de la tension V appliquée entre les deux électrodes comme :

$$I(V) \propto \int_{E_F}^{E_F+V} \sqrt{E-V}\sqrt{E+\delta}\, dE \tag{B.1}$$

On fait le changement de variable suivant : $E = x + E_F$. L'expression du courant devient :

[1] Elle est prise comme étant égale à une constante. Elle ne dépend donc pas de la tension appliquée, ni de la hauteur de barrière.

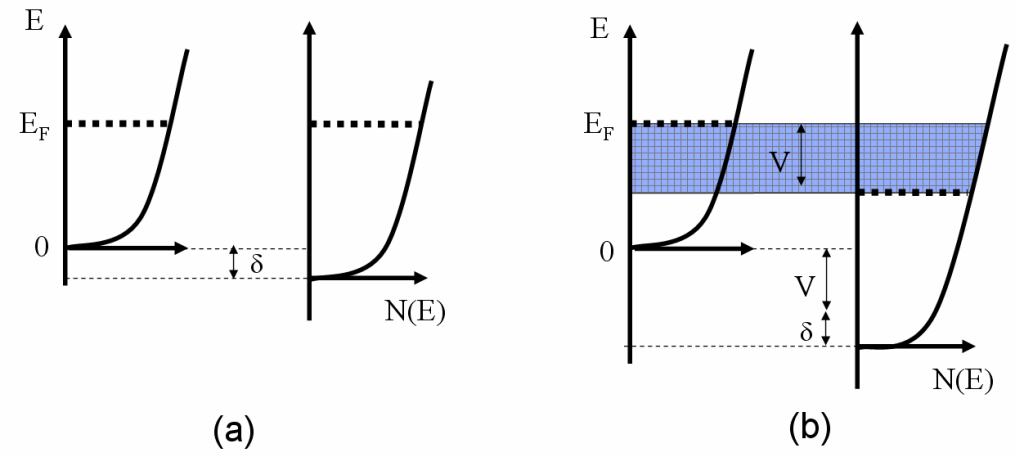

Fig. B.1 – Représentation des densités d'états dans les électrodes de gauche et de droite d'une JTM dans le cadre des électrons libres, en ne considérant qu'un seul canal de spin. L'image (a) représente le système sans tension appliquée. La différence d'énergie δ modélise le décalage d'échange. L'image (b) représente le système lorsqu'une tension V est appliquée entre les électrodes de gauche et de droite. Les électrons participant au transport sont ceux compris entre les deux niveaux de Fermi (partie hachurée).

$$I(V) \propto \int_0^V \sqrt{x + E_F - V}\sqrt{x + E_F + \delta}\ dx \tag{B.2}$$

Sous l'action d'une faible variation de tension dV autour de la tension V, le courant devient :

$$I(V + dV) \propto \int_0^{V+dV} \sqrt{x + E_F - (V + dV)}\sqrt{x + E_F + \delta}\ dx \tag{B.3}$$

La différence de courant due à la variation de tension dV est donc égale à :

$$\begin{aligned} I(V + dV) - I(V) \quad \propto \quad & \int_0^{V+dV} \sqrt{x + E_F - (V + dV)}\sqrt{x + E_F + \delta}\ dx \\ & - \int_0^V \sqrt{x + E_F - V}\sqrt{x + E_F + \delta}\ dx \end{aligned} \tag{B.4}$$

Faisons un développement limité à l'ordre 1 en dV :

$$\begin{aligned}\sqrt{x+E_F-(V+dV)} &= \sqrt{x+E_F-V}\sqrt{1-\frac{dV}{x+E_F-V}} \\ &= \sqrt{x+E_F-V}\left(1-\frac{dV}{2\left(x+E_F-V\right)}\right) \\ &= \sqrt{x+E_F-V}-\frac{dV}{2\sqrt{x+E_F-V}} \end{aligned} \tag{B.5}$$

En remplaçant dans B.4 on trouve

$$\begin{aligned} I(V+dV)-I(V) \quad \propto \quad & \int_V^{V+dV} \sqrt{x+E_F-V}\sqrt{x+E_F+\delta}\, dx \\ & -\frac{dV}{2}\int_0^{V+dV} \frac{\sqrt{x+E_F+\delta}}{\sqrt{x+E_F-V}}\, dx \end{aligned} \tag{B.6}$$

Le premier terme de l'équation se réduit à :

$$\int_V^{V+dV} \sqrt{x+E_F-V}\sqrt{x+E_F+\delta}\, dx = \int_0^{dV} \sqrt{x+E_F}\sqrt{x+E_F+\delta+V}\, dx \tag{B.7}$$

$$\approx \sqrt{E_F}\sqrt{E_F+\delta+V}dV \tag{B.8}$$

Le second terme à :

$$\int_0^{V+dV} \frac{\sqrt{x+E_F+\delta}}{\sqrt{x+E_F-V}}\, dx = \int_0^{V} \frac{\sqrt{x+E_F+\delta}}{\sqrt{x+E_F-V}}\, dx + \int_0^{dV} \frac{\sqrt{x+E_F+\delta+V}}{\sqrt{x+E_F}}\, dx \tag{B.9}$$

Deux termes apparaissent dont le second peut être négligé. En effet :

$$\int_0^{dV} \frac{\sqrt{x+E_F+\delta+V}}{\sqrt{x+E_F}}\, dx \approx \frac{\sqrt{E_F+\delta+V}}{\sqrt{E_F}}dV \tag{B.10}$$

Étant proportionnel à dV, il est en dV^2 dans l'équation B.6 et est donc négligeable à l'ordre 1. On trouve alors comme simplification pour l'équation B.9 :

$$\int_0^{V+dV} \frac{\sqrt{x+E_F+\delta}}{\sqrt{x+E_F-V}}\, dx \approx \int_0^{V} \frac{\sqrt{x+E_F+\delta}}{\sqrt{x+E_F-V}}\, dx \tag{B.11}$$

Finalement l'expression de la dérivée du courant par rapport à la tension s'écrit :

$$\frac{dI}{dV} \propto \sqrt{E_F}\sqrt{E_F+\delta+V}-\frac{1}{2}\int_0^{V} \frac{\sqrt{x+E_F+\delta}}{\sqrt{x+E_F-V}}\, dx \tag{B.12}$$

On remarque que la variation d'intensité est due à la fois aux variations proches du niveau de Fermi E_F mais aussi au décalage des bandes. Résolvons la deuxième intégrale. On trouve à la référence [11] les relations suivantes :

$$\int \sqrt{\frac{Y}{X}}\, dx = \frac{1}{a}\sqrt{XY}-\frac{\Delta}{2a}\int \frac{dx}{\sqrt{XY}} \qquad avec \qquad \begin{aligned} Y &= fx+g \\ X &= ax+b \\ \Delta &= bf-ag \end{aligned} \tag{B.13}$$

$$\int \frac{dx}{\sqrt{XY}} = \frac{2}{\sqrt{af}}\, ln\left(\sqrt{aY}+\sqrt{fX}\right) \qquad lorsque \qquad af>0$$

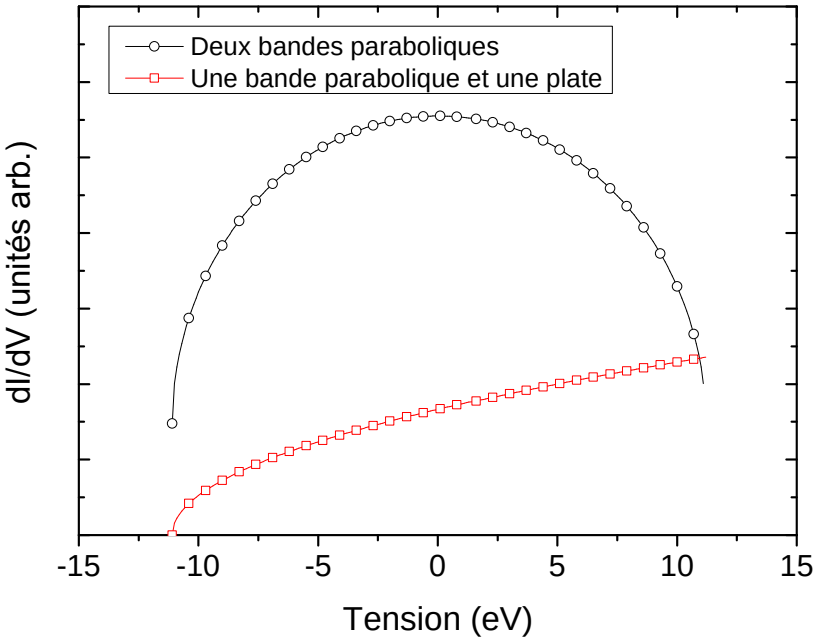

Fig. B.2 – En trait et cercles est montrée la caractéristique $dI/dV(V)$ dans le cas où la DOS de chaque électrode est supposée être parabolique (d'après l'expression B.15). En trait et carrés est montrée la caractéristique $dI/dV(V)$ dans le cas où la DOS de l'électrode de gauche est constante avec l'énergie et la DOS de l'électrode de droite est parabolique.

En posant $Y = x + E_F + \delta$ ($f = 1$, $g = E_F + \delta$) et $X = x + E_F - V$ ($a = 1$, $b = E_F - V$) la solution de l'intégral de l'équation B.12 est :

$$\frac{1}{2}\int_0^V \frac{\sqrt{x+E_F+\delta}}{\sqrt{x+E_F-V}}\,dx = \frac{1}{2}\left[\sqrt{E_F(E_F+\delta+V)} - \sqrt{(E_F-V)(E_F+\delta)} + (V+\delta)\,ln\frac{\sqrt{E_F+\delta+V}+\sqrt{E_F}}{\sqrt{E_F+\delta}+\sqrt{E_F-V}}\right] \tag{B.14}$$

L'expression finale de la dérivée du courant par rapport à la tension (en ne considérant qu'un seul canal de spin) s'écrit :

$$\left(\frac{dI}{dV}\right)_V \propto \frac{1}{2}\sqrt{E_F(E_F+\delta+V)} + \frac{1}{2}\left[\sqrt{(E_F-V)(E_F+\delta)} - (V+\delta)\,ln\frac{\sqrt{E_F+\delta+V}+\sqrt{E_F}}{\sqrt{E_F+\delta}+\sqrt{E_F-V}}\right] \tag{B.15}$$

Cette expression est compliquée. Elle montre que la dérivée du courant par rapport à la tension ne renseigne pas seulement sur les changements se produisant aux deux niveaux de Fermi, mais que la variation du système considéré, c'est à dire de la variation des bandes entre elles, participe aussi à ce signal.

Afin de fixer les idées, nous avons tracé figure B.2 la caractéristique $dI/dV(V)$ obtenue à partir de l'équation B.15 et celle obtenue lorsque l'on considère la densité d'états de l'électrode de gauche comme constante en énergie. Dans le second cas, la forme en racine carré de la densité d'états de l'électrode de droite est retrouvée : la mesure de $dI/dV(V)$ permet d'effectuer une spectroscopie. Dans le premier cas, la caractéristique est symé-

trique (δ est ici pris égal à 0)[2]. Cette mesure n'est donc pas strictement équivalente à une spectroscopie.

Néanmoins dans le cas où de fortes perturbations du système ont lieu à un des deux, ou aux deux, niveaux de Fermi, comme par exemple l'apparition ou la disparition de bandes de conduction, la variation forte de conductance dynamique domine totalement le signal. La mesure de $\frac{dI}{dV}(V)$ est alors assimilable à une spectroscopie.

[2]Concernant la caractéristique obtenue, celle-ci ne ressemble pas à la caractéristique tunnel attendue : la courbure est inversée. Cette différence provient du fait que nous n'avons pas pris en compte l'évolution de la forme et de la hauteur de la barrière tunnel. La raison est double. D'une part la résolution algébrique est nettement plus compliquée. D'autre part le modèle pris est suffisant pour démontrer que l'étude de la densité d'états d'une électrode à l'aide d'une seconde électrode qui n'est pas parfaite n'est pas une véritable spectroscopie.

Annexe C

Présence d'un fond continu indépendant des symétries

La compréhension de cette annexe est facilitée par la lecture, au préalable, du paragraphe 4.2.

Cette annexe a pour but de montrer qu'un fond continu indépendant des symétries Δ_i existe dans les caractéristiques dI/dV(V). Bien que son origine ne soit actuellement pas comprise, nous pensons que ce fond continu est à l'origine de l'écart entre les valeurs de TMR mesurées et celles prédites.

Montrons par l'absurde, qu'il existe un fond continu dans les caractéristiques dI/dV(V), qui est soit sans symétries, soit de symétrie autre que la symétrie Δ_1. Pour cela revenons un instant sur la méthode permettant de remonter à la symétrie dominant le transport, qui doit être la symétrie Δ_1 dans l'état P. Si on considère qu'il n'existe pas de fond continu ou que celui-ci est de symétrie Δ_1, alors les facteurs multiplicatifs permettant de superposer les courbes obtenues pour 2.4 et 2.6 nm à celle obtenue pour 2.2nm sont inversement proportionnels au taux d'atténuation dans la barrière de la symétrie Δ_1. Or il est impossible de trouver de tels coefficients qui permettent la superposition des trois courbes : un fond continu existe par conséquent.

Regardons plus en détail les résultats obtenus. Comme nous venons de le dire, il est impossible de trouver un coefficient multiplicatif permettant de superposer pour chaque valeur de tension les trois caractéristiques[1]. Cela indique donc, en supposant les systèmes Fe/MgO/Fe équivalents pour les trois épaisseurs (même structure de bande, même configuration magnétique) qu'il existe un signal ($F_P(V)$) se superposant au signal $S_1(V)$ donné par le transport des Δ_1 et n'étant pas de symétrie Δ_1. En effet si $F_P(V)$ est de symétrie Δ_1, alors $F_P(V) + S_1(V)$ est aussi de symétrie Δ_1 : toutes les courbes se superposent.

De plus, on s'attend à ce que l'évolution du coefficient trouvé en fonction de l'épais-

[1]Le coefficient multiplicatif choisi est celui permettant de superposer à tension nulle les courbes obtenues pour 2.4 et 2.6nm à celle obtenue pour 2.2nm. En effet, il me semble que c'est à tension nulle que les systèmes pour chaque épaisseur ont le plus de chance d'être équivalent du point de vue des propriétés électroniques (barrière de potentiel non déformée par exemple). Les résultats obtenus sont représentés figure C.1.

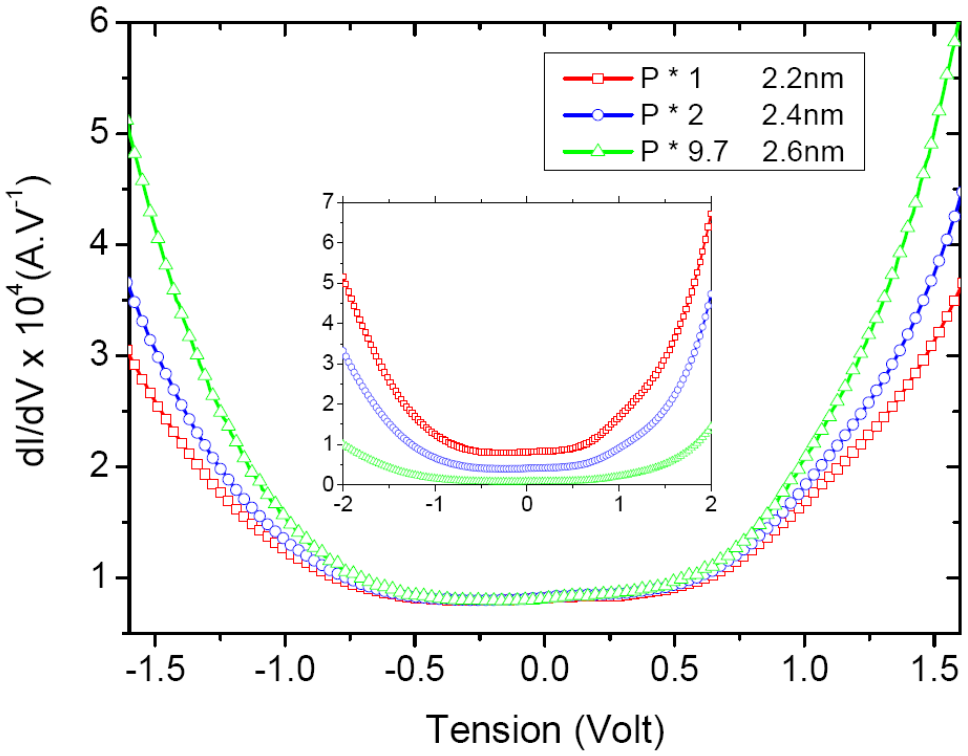

Fig. C.1 – L'insert donne les caractéristiques dI/dV(V) en fonction de la tension pour les états P des 3 échantillons Fe/MgO/Fe d'épaisseur de MgO différentes. La figure principale donne le résultat de la multiplication des caractéristiques obtenues pour 2.4 et 2.6nm par les coefficients $\alpha_2 = 2$ et $\alpha_4 = 9.7$ respectivement, afin de superposer ces courbes à celle obtenue pour 2.2nm ($\alpha_0 = 1$) à tension nulle.

seur soit exponentielle avec l'épaisseur et suive la décroissance du taux de transmission des Δ_1 à travers la barrière. Cette évolution est représentée figure C.2. La décroissance n'est pas exponentielle et est moins rapide que celle des Δ_1. Ceci confirme la présence d'un fond continu pour toutes les valeurs de tension : ce fond continu ne permet pas de venir superposer les signaux S_1 de chaque épaisseur et ainsi de retrouver la décroissance caractéristique de la symétrie Δ_1. De plus, la décroissance de ce coefficient avec l'épaisseur est moins rapide que celle caractéristique de la symétrie Δ_1 qui est la symétrie la moins atténuée à travers la barrière. Ainsi, soit la symétrie du fond continue ne fait pas partie des symétries Δ_i, soit le fond continu n'a pas de symétrie.

Une même démonstration devrait être possible pour la configuration AP. Cependant dans notre cas la configuration AP pure n'est jamais obtenue. Ainsi il est plus délicat de conclure sur un résultat physique par la comparaison des caractéristiques dI/dV pour différentes épaisseurs : on ne peut être sûr que la non superposition des courbes provient de la présence d'un fond continu et non d'une différence de configuration magnétique. L'étude proposée ici, et que nous étendrons au fond continu dans l'état AP ($F_{AP}(V)$) a permis de montrer d'une part l'existence du fond continu $F_P(V)$ et d'autre part que celui-ci ne possède pas de symétrie Δ_i et peut être même aucune symétrie.

La question de la nature de ce fond continu reste ouverte ainsi que les raisons pour lesquelles il est moins atténué dans la barrière que la symétrie Δ_1, qui est la symétrie a priori favorisée par la barrière MgO.

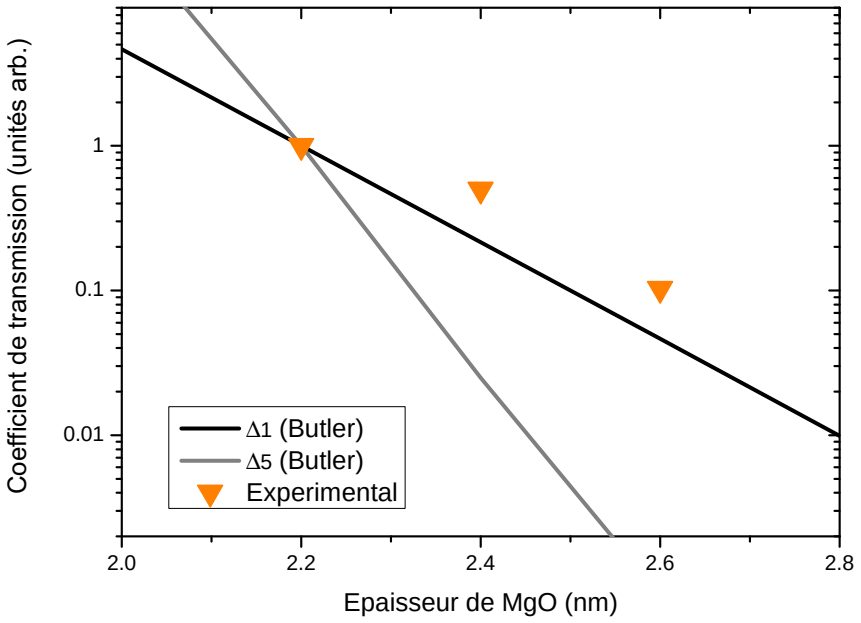

Fig. C.2 – La ligne noire (grise) représente la variation des taux d'atténuation γ_1 et γ_5 pour $k_{\parallel} = 0$ en fonction de l'épaisseur de MgO. Les triangles sont les coefficients $1/\alpha_f$ trouvés permettant de superposer au mieux les courbes obtenues pour 2.4 et 2.6 nm à celle obtenue pour 2.2 nm. La référence est prise à 2.2nm.

Bibliographie

[1] O. K. Andersen. Linear methods in band theory. *Physical Review B*, 12(8) :3060–3083, 1975.

[2] John R. Arthur. Molecular beam epitaxy. *Surface Science*, 500(1-3) :189–217, March 2002.

[3] S. Bae, C. S. Han, M. S. Kim, C. C. Chung, and H. Lee. Atomic force microscope anodization lithography using pulsed bias voltage synchronized with resonance frequency of cantilever. *Nanotechnology*, 16(10) :2082–2085, October 2005.

[4] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of Fe(001)/Cr(001) magnetic superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 61(21) :2472–2475, Nov 1988.

[5] K. D. Belashchenko, E. Y. Tsymbal, M. van Schilfgaarde, D. A. Stewart, I. I. Oleynik, and S. S. Jaswal. Effect of interface bonding on spin-dependent tunneling from the oxidized Co surface. *Phys. Rev. B*, 69(17) :174408, May 2004.

[6] K. D. Belashchenko, J. Velev, and E. Y. Tsymbal. Effect of interface states on spin-dependent tunneling in Fe/MgO/Fe tunnel junctions. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 72(14) :140404, 2005.

[7] L. Berger. Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current. *Physical Review B*, 54(13) :9353–9358, October 1996.

[8] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic-structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical Review B*, 39(7) :4828–4830, March 1989.

[9] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthélémy, J.-P. Contour, A. Anane, Y. Lemaître, and A. Fert. Nearly total spin polarization in $La_{2/3}Sr_{1/3}MnO_3$ from tunneling experiments. *Appl. Phys. Lett.*, 82(2) :233–235, 13 January 2003.

[10] W. F. Brinkman, R. C. Dynes, and J. M. Rowell. Tunneling conductance of asymmetrical barriers. *Journal of Applied Physics*, 41(5) :1915, 1970.

[11] Bronstein and Semendjajew. *Taschenbuch der Mathematik*. Harri, 1981.

[12] W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren. Reduction of electron tunneling current due to lateral variation of the wave function. *Phys. Rev. B*, 63(9) :092402, Jan 2001.

[13] W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren. Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches. *Phys. Rev. B*, 63(5) :054416, Jan 2001.

[14] M. Buttiker. Symmetry of electrical-conduction. *IBM Journal of Research and Development*, 32(3) :317–334, May 1988.

[15] F. Laloë C. Cohen-Tannoudji, B. Diu. *Mécanique quantique*. Hermann, 1988.

[16] J. Callaway and C. S. Wang. Energy bands in ferromagnetic iron. *Phys. Rev. B*, 16(5) :2095–2105, Sep 1977.

[17] V. Cambel and J. Soltys. The influence of sample conductivity on local anodic oxidation by the tip of atomic force microscope. *Journal of Applied Physics*, 102(7) :074315, October 2007.

[18] J. M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J. P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, and A. Vaurès. Inverse tunnel magnetoresistance in $Co/SrTiO_3/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$: New ideas on spin-polarized tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 82(21) :4288–4291, May 1999.

[19] David D. Djayaprawira, Koji Tsunekawa, Motonobu Nagai, Hiroki Maehara, Shinji Yamagata, Naoki Watanabe, Shinji Yuasa, Yoshishige Suzuki, and Koji Ando. 230% room-temperature magnetoresistance in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 86(9) :092502, 2005.

[20] P. J. Dobson, B. A. Joyce, J. H. Neave, and J. Zhang. Current understanding and applications of the RHEED intensity oscillation technique. *Journal Of Crystal Growth*, 81(1-4) :1–8, February 1987.

[21] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, and A. Schuhl. Interlayer magnetic coupling interactions of two ferromagnetic layers by spin polarized tunneling. *Physical Review Letters*, 89(10) :107206, September 2002.

[22] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, and E. Snoeck. Antiferromagnetic coupling by spin polarized tunneling. *Journal of Applied Physics*, 93(10) :7519–7521, May 2003.

[23] Jérôme Faure-Vincent. *Transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxié Fe/MgO/Fe : Interactions magnétiques et Symétries électroniques*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004.

[24] H. Fischer. *Elaboration et propriétés physiques de superréseaux à base de manganèse*. PhD thesis, Thèse de l'Universite H. Poincaré, Nancy I, 1995.

[25] T. Hantschel, P. Niedermann, T. Trenkler, and W. Vandervorst. Highly conductive diamond probes for scanning spreading resistance microscopy. *Applied Physics Letters*, 76(12) :1603–1605, March 2000.

[26] T. Hantschel, S. Slesazeck, P. Niedermann, P. Eyben, and W. Vandervorst. Integrating diamond pyramids into metal cantilevers and using them as electrical afm probes. *Microelectronic Engineering*, 57-8 :749–754, September 2001.

[27] J. J. Harris, B. A. Joyce, and P. J. Dobson. RED intensity oscillations during MBE of GaAs - Comment. *Surface Science*, 108(2) :L444–L446, 1981.

[28] M. A. Herman. *Epitaxy, Physical Principles and Technical Implementation*, volume 62. Springer, 2004.

[29] B. A. Joyce, P. J. Dobson, J. H. Neave, K. Woodbridge, J. Zhang, P. K. Larsen, and B. Bolger. RHEED studies of heterojunction and quantum-well formation during

MBE growth - from multiple-scattering to band offsets. *Surface Science*, 168(1-3) :423–438, March 1986.

[30] M. Jullière. Tunneling between ferromagnetic-films. *Physics Letters A*, 54(3) :225–226, 1975.

[31] S. F. A. Kettle. *Symmetry and Structure - Readable Group Theory for Chemists*. Wiley and Sons Ltd, England, 1995.

[32] W. Kohn and L. J. Sham. Self-consistent equations including exchange and correlation effects. *Physical Review*, 140(4A) :1133–&, 1965.

[33] D. Lacour, M. Hehn, O. Lenoble, A. Schuhl, C. Tiusan, and K. Ounadjela. Domain duplication in ferromagnetic sandwiches. *Journal of Applied Physics*, 89(12) :8006–8010, June 2001.

[34] R. Landauer. Spatial variation of currents and fields due to localized scatterers in metallic conduction. *IBM Journal of Research and Development*, 1(3) :223–231, 1957.

[35] S. Landis, B. Rodmacq, and B. Dieny. Magnetic properties of Co/Pt multilayers deposited on silicon dot arrays. *Physical Review B*, 62(18) :12271–12281, November 2000.

[36] S. Landis, B. Rodmacq, B. Dieny, B. Dal'Zotto, S. Tedesco, and M. Heitzmann. Magnetic properties of Co/Pt multilayers deposited on patterned Si substrates. *Journal Of Magnetism And Magnetic Materials*, 226 :1708–1710, May 2001.

[37] M. A. Lantz, S. J. O'Shea, and M. E. Welland. Characterization of tips for conducting atomic force microscopy in ultrahigh vacuum. *Review Of Scientific Instruments*, 69(4) :1757–1764, April 1998.

[38] P. LeClair, J. T. Kohlhepp, H. J. M. Swagten, and W. J. M. de Jonge. Interfacial density of states in magnetic tunnel junctions. *Phys. Rev. Lett.*, 86(6) :1066–1069, Feb 2001.

[39] P. LeClair, H. J. M. Swagten, J. T. Kohlhepp, R. J. M. van de Veerdonk, and W. J. M. de Jonge. Apparent spin polarization decay in Cu-dusted $Co/Al_2O_3/Co$ tunnel junctions. *Phys. Rev. Lett.*, 84(13) :2933–2936, Mar 2000.

[40] J. M. MacLaren, X.-G. Zhang, and W. H. Butler. Validity of the Julliere model of spin-dependent tunneling. *Phys. Rev. B*, 56(18) :11827–11832, Nov 1997.

[41] J. M. MacLaren, X.-G. Zhang, W. H. Butler, and Xindong Wang. Layer KKR approach to Bloch-wave transmission and reflection : Application to spin-dependent tunneling. *Phys. Rev. B*, 59(8) :5470–5478, Feb 1999.

[42] Ph. Mavropoulos, N. Papanikolaou, and P. H. Dederichs. Complex band structure and tunneling through Ferromagnet /Insulator /Ferromagnet junctions. *Phys. Rev. Lett.*, 85(5) :1088–1091, Jul 2000.

[43] Ph. Mavropoulos, O. Wunnicke, and P. H. Dederichs. Ballistic spin injection and detection in Fe/semiconductor/Fe junctions. *Phys. Rev. B*, 66(2) :024416, Jul 2002.

[44] H. L. Meyerheim, R. Popescu, N. Jedrecy, M. Vedpathak, M. Sauvage-Simkin, R. Pinchaux, B. Heinrich, and J. Kirschner. Surface X-ray diffraction analysis of the MgO/Fe(001) interface : Evidence for an FeO layer. *Phys. Rev. B*, 65(14) :144433, Apr 2002.

[45] H. L. Meyerheim, R. Popescu, J. Kirschner, N. Jedrecy, M. Sauvage-Simkin, B. Heinrich, and R. Pinchaux. Geometrical and compositional structure at metal-oxide interfaces : MgO on Fe(001). *Phys. Rev. Lett.*, 87(7) :076102, Jul 2001.

[46] D. J. Monsma and S. S. P. Parkin. Temporal evolution of spin-polarization in ferromagnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 77(6) :883–885, 2000.

[47] J. S. Moodera, Lisa R. Kinder, Terrilyn M. Wong, and R. Meservey. Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions. *Phys. Rev. Lett.*, 74(16) :3273–3276, Apr 1995.

[48] E. B. Myers, D. C. Ralph, J. A. Katine, R. N. Louie, and R. A. Buhrman. Current-induced switching of domains in magnetic multilayer devices. *Science*, 285(5429) :867–870, August 1999.

[49] N. David Mermin N. W. Ashcroft. *Physique des solides.* EDP Sciences Editions, 2002.

[50] L. Neel. Magnetisme - sur un nouveau mode de couplage entre les aimantations de deux couches minces ferromagnetiques. *Comptes rendus hebdomadaires des seances de l'academie des sciences*, 255(15) :1676, 1962.

[51] S. J. O'Shea, R. M. Atta, and M. E. Welland. Characterization of tips for conducting atomic-force microscopy. *Review of Scientific Instruments*, 66(3) :2508–2512, March 1995.

[52] M. Palacio and B. Bhushan. Nanomechanical and nanotribological characterization of noble metal-coated AFM tips for probe-based ferroelectric data recording. *Nanotechnology*, 19(10) :105705, March 2008.

[53] Xavier Rocquefelte. *Modélisation du comportement électrochimique de matériaux pour batteries au lithium à partir de calculs de premiers principes.* PhD thesis, Université de Nantes, 2001.

[54] O. Schneegans, F. Houze, R. Meyer, and L. Boyer. Study of the local electrical properties of metal surfaces using an afm with a conducting probe. *Components, Packaging, and Manufacturing Technology, Part A, IEEE Transactions on [see also Components, Hybrids, and Manufacturing Technology, IEEE Transactions on]*, 21(1) :76–81, Mar 1998.

[55] B. D. Schrag, A. Anguelouch, S. Ingvarsson, G. Xiao, Y. Lu, P. L. Trouilloud, A. Gupta, R. A. Wanner, W. J. Gallagher, P. M. Rice, and S. S. P. Parkin. Neel "orange-peel" coupling in magnetic tunneling junction devices. *Applied Physics Letters*, 77(15) :2373–2375, October 2000.

[56] P. Seneor, A. Fert, J.-L. Maurice, F. Montaigne, F. Petroff, and A Vaurès. Large magnetoresistance in tunnel junctions with an iron oxide electrode. *Appl. Phys. Lett.*, 74(26) :4017–4019, 30 April 1999.

[57] J. G. Simmons. Generalized formula for electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film. *Journal Of Applied Physics*, 34(6) :1793, 1963.

[58] J. C. Slater. Wave functions in a periodic potential. *Phys. Rev.*, 51(10) :846–851, May 1937.

[59] J. C. Slonczewski. Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier. *Phys. Rev. B*, 39(10) :6995–7002, Apr 1989.

[60] J. C. Slonczewski. Current-driven excitation of magnetic multilayers. *Journal Of Magnetism And Magnetic Materials*, 159(1-2) :L1–L7, June 1996.

[61] J. A. Stroscio, D. T. Pierce, A. Davies, R. J. Celotta, and M. Weinert. Tunneling spectroscopy of bcc(001) surface-states. *Physical Review Letters*, 75(16) :2960–2963, October 1995.

[62] J. Z. Sun. Current-driven magnetic switching in manganite trilayer junctions. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 202(1) :157–162, July 1999.

[63] P. M. Tedrow and R. Meservey. Spin-dependent tunneling into ferromagnetic nickel. *Phys. Rev. Lett.*, 26(4) :192–195, Jan 1971.

[64] P. M. Tedrow and R. Meservey. Spin polarization of electrons tunneling from films of Fe, Co, Ni, and Gd. *Phys. Rev. B*, 7(1) :318–326, Jan 1973.

[65] R. E. Thomson and J. Moreland. Development of highly conductive cantilevers for atomic-force microscopy point-contact measurements. *Journal Of Vacuum Science & Technology B*, 13(3) :1123–1125, May 1995.

[66] T. Thomson, G. Hu, and B. D. Terris. Intrinsic distribution of magnetic anisotropy in thin films probed by patterned nanostructures. *Physical Review Letters*, 96(25) :257204, 2006.

[67] C. Tiusan, J. Faure-Vincent, C. Bellouard, M. Hehn, E. Jouguelet, and A. Schuhl. Interfacial resonance state probed by spin-polarized tunneling in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions. *Phys. Rev. Lett.*, 93(10) :106602, Sep 2004.

[68] C. Tiusan, J. Faure-Vincent, M. Sicot, M. Hehn, C. Bellouard, R. Montaigne, S. Andrieu, and A. Schuhl. Spin filtering effects in monocristalline Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions. *Materials Science And Engineering B-Solid State Materials For Advanced Technology*, 126(2-3) :112–119, January 2006.

[69] T. Trenkler, T. Hantschel, R. Stephenson, P. De Wolf, W. Vandervorst, L. Hellemans, A. Malave, D. Buchel, E. Oesterschulze, W. Kulisch, P. Niedermann, T. Sulzbach, and O. Ohlsson. Evaluating probes for "electrical" atomic force microscopy. *Journal Of Vacuum Science & Technology B*, 18(1) :418–427, January 2000.

[70] M. Tsoi, A. G. M. Jansen, J. Bass, W. C. Chiang, M. Seck, V. Tsoi, and P. Wyder. Excitation of a magnetic multilayer by an electric current. *Physical Review Letters*, 80(19) :4281–4284, May 1998.

[71] E. Y. Tsymbal, K. D. Belashchenko, J. P. Velev, S. S. Jaswal, M. van Schilfgaarde, I. I. Oleynik, and D. A. Stewart. Interface effects in spin-dependent tunneling. *Progress In Materials Science*, 52(2-3) :401–420, February 2007.

[72] A. M. Turner and J. L. Erskine. Surface electronic-properties of Fe(100). *Physical Review B*, 30(11) :6675–6688, 1984.

[73] M. J. Vasile, D. Grigg, J. E. Griffith, E. Fitzgerald, and P. E. Russell. Scanning probe tip geometry optimized for metrology by focused ion-beam ion milling. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, 9(6) :3569–3572, November 1991.

[74] C. S. Wang and A. J. Freeman. Surface states, surface magnetization, and electron spin polarization : Fe(001). *Phys. Rev. B*, 24(8) :4364–4371, Oct 1981.

[75] H. Y. Ximen and P. E. Russell. Microfabrication of afm tips using focused ion and electron-beam techniques. *Ultramicroscopy*, 42 :1526–1532, July 1992.

[76] S. Yuasa. Giant tunneling magnetoresistance in MgO-based magnetic tunnel junctions. *Journal Of The Physical Society Of Japan*, 77(3) :031001, March 2008.

[77] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando. Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions. *Nature Materials*, 3(12) :868–871, December 2004.

[78] Shinji Yuasa, Akio Fukushima, Hitoshi Kubota, Yoshishige Suzuki, and Koji 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*, 89(4) :042505, 2006.

[79] X. G. Zhang and W. H. Butler. Band structure, evanescent states, and transport in spin tunnel junctions. *Journal of Physics-Condensed Matter*, 15(41) :R1603–R1639, October 2003.

[80] X.-G. Zhang, W. H. Butler, and Amrit Bandyopadhyay. Effects of the iron-oxide layer in Fe-FeO-MgO-Fe tunneling junctions. *Phys. Rev. B*, 68(9) :092402, Sep 2003.

Résumé

La prédiction et l'observation de très forts taux de magnétorésistance tunnel (TMR) dans des jonctions tunnel magnétiques à base de MgO a ouvert de nouvelles perspectives d'applications dans le domaine de l'électronique de spin. Ces forts taux de TMR ne peuvent s'expliquer qu'en prenant en compte la structure cristalline des électrodes et le filtrage de la barrière tunnel dépendant des symétries.

Un dispositif original de mesures de transport sous champ magnétique d'objets de taille nanométrique a été développé au cours de cette thèse. Il associe une électronique d'acquisition rapide et un Microscope à Force Atomique (AFM) muni d'une pointe métallique. Ce dispositif très versatile permet de contacter électriquement et d'étudier de différents types de nano-objets sans étapes compliquées de nanofabrication.

Ce dispositif a été utilisé pour étudier l'influence des interfaces sur le transport dans des jonctions tunnel Fe/MgO/Fe (100) cristallines obtenues par épitaxie. Deux états résonants d'interface (IRS) ont été observés pour la première fois dans ce système à 0.2eV et 1.1eV au dessus du niveau de Fermi pour les électrons minoritaires. Ces IRS modifient fortement le transport tunnel et le dominent autour de 1V avec une inversion de la TMR dynamique. Une étude en fonction de l'épaisseur de MgO a permis de trouver la symétrie dominant le transport de ces IRS.

Mots clés : transport tunnel polarisé en spin, jonctions tunnel magnétiques, système épitaxié, symétries électroniques, microscope à force atomique (AFM).

Abstract

Many possible applications have arisen in the domain of spin electronics since the prediction and experimental observation of high tunneling magneto-resistance (TMR) values in MgO-based tunnel junctions. These high TMR values are due to the crystallinity of the stack, which allows the electronic transport to be described by Bloch wave functions and gives a symmetry dependence of the spin filtering in the tunnel barrier.

An original experimental set-up has been developed during this PhD that is able to measure the electronic properties of nano-objects under an applied magnetic field. It combines fast electronic acquisition cards and an atomic force microscope (AFM) equipped with a full metallic tip. This set-up is highly versatile and allows nano-objects to be electrically contacted without difficult nano-fabrication steps.

This set-up has been used in order to study the influence of the interfaces on the electronic properties of the fully epitaxial magnetic tunnel junction Fe/MgO/Fe (100). Two interface resonant states (IRS) have been observed for the first time in this system at 0.2 eV and 1.1 eV above the Fermi energy of the minority spin electrons. These IRS drastically modify the tunnel transport and even reverse the dynamic TMR. The transport symmetry of the IRS has been found from a study of samples with different MgO thicknesses.

Keywords : spin polarized tunnel transport, magnetic tunnel junctions, epitaxy, electronic symetries, atomic force microscope (AFM).