



HAL
open science

**Propriétés structurales et magnétiques de
MnAs/GaAs(001) et son utilisation comme gabarit pour
la croissance et la manipulation de couches
ferromagnétiques**

Romain Breitwieser

► **To cite this version:**

Romain Breitwieser. Propriétés structurales et magnétiques de MnAs/GaAs(001) et son utilisation comme gabarit pour la croissance et la manipulation de couches ferromagnétiques. Autre [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2009. Français. NNT : . tel-00667644

HAL Id: tel-00667644

<https://theses.hal.science/tel-00667644v1>

Submitted on 8 Feb 2012

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 de DOCTORAT
de l'UNIVERSITE PIERRE et MARIE CURIE

Spécialité : Chimie Physique et Chimie Analytique

présentée par

Romain Breitwieser

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITE PIERRE et MARIE CURIE

Propriétés structurales et magnétiques de
MnAs/GaAs(001) et son utilisation comme gabarit
magnétique pour la croissance et la manipulation de
couches ferromagnétiques

soutenue le 18 novembre 2009
devant le jury composé de :

Jean-Marie GEORGE	Président
Frédéric OTT	Rapporteur
Jan VOGEL	Rapporteur
Giovanni CARLOTTI	Examineur
Andrea GAUZZI	Examineur
Jean-Michel MARIOT	Directeur de thèse
Massimiliano MARANGOLO	Co-Directeur de thèse
Maurizio SACCHI	Co-Directeur de thèse

Remerciements

A l'issue de mon travail de thèse, je me rends compte à quel point trois années peuvent passer extrêmement vite. En effet, ce temps passé durant ma thèse fût très riche : mélange de découvertes (tant scientifiques qu'humaines), de stress (présentations orales) mais aussi de convivialité : me rendre chaque matin au labo a été pour moi un véritable plaisir. J'en profite pour remercier Alain Dubois de m'avoir accueilli chaleureusement au laboratoire de Chimie-Physique, Matière et Rayonnement.

Tout d'abord, je voudrais exprimer toute ma gratitude aux membres du jury de ma thèse. Je remercie Frédéric Ott et Jan Vogel qui ont corrigé méticuleusement ce mémoire, ainsi que Jean-Marie Geaorge et Giovanni Carlotti qui ont bien voulu juger le travail présenté dans cet ouvrage. Je ne peux aussi m'empêcher d'avoir une pensée pour William Saxs qui avait accepté d'être membre du jury de ma thèse mais qui a malheureusement eu des problèmes de santé entre temps.

Mes premières pensées vont à mes directeurs de thèse, pour tout le temps qu'ils m'ont consacré : Jean-Michel Mariot, pour son aide à la rédaction de ce manuscrit et pour la confiance qu'il m'a accordé, me permettant ainsi de vivre cette belle aventure qu'est la thèse ; Massimiliano Marangolo et Maurizio Sacchi pour les discussions scientifiques, leur accompagnement lors des différentes manip et pour le suivi continu des résultats obtenus. Max, merci à toi de m'avoir montré l'exemple en matière de créativité et de quantité de travail. Maurizio, merci de m'avoir montré la voie à suivre, notamment en ce qui concerne la discipline nécessaire dans l'acquisition et l'analyse de données et un grand merci à toi pour m'avoir fait découvrir le microcosme si particulier du travail sur des lignes synchrotron ; je n'oublierai jamais ces moments privilégiés !

Je remercie les membres de l'équipe "Croissance et propriétés de systèmes hybrides en couches minces" de l'Institut des Nano-Sciences de Paris, et particulièrement Victor Etagens qui m'a accueilli au sein du groupe avec enthousiasme et qui a réalisé les échantillons que j'ai étudiés. Un grand merci à Mahmoud Eddrief qui a toujours été disponible pour moi et qui m'a expliqué avec beaucoup de patience la croissance épitaxiale et les techniques de XPS, RHEED et XRD. Je remercie Franck Vidal : merci à toi Franck pour ton aide concernant l'étude de la surface de MnAs et pour ton humour décalé si appréciable dans un milieu parfois trop sérieux. Comment ne pas remercier aussi Dominique Demaille qui a fait un travail considérable par TEM et qui m'a permis de combler certaines lacunes en cristallographie.

Merci aussi à Benjamin Salles pour les discussions sur MnAs/GaAs et sa bonne humeur. Je regrette aussi de ne pas avoir passé plus de temps avec Yunlin Zheng qui m'a aidé pour les mesures SQUID et avec qui j'ai passé d'excellents moments.

Je remercie toutes les personnes qui ont participé de près ou de loin à l'étude de mon sujet de thèse. Merci beaucoup à Jan Luning, Nicolas Jahouen, Oria Popescu, Renaud Delaunay, Cédric Baumier, Frithjof Nolting, Loïc Joly, Armin Kleibert, Mohammed Selmane, Yanling Li, Julian Milano, Dante Mosca, Ismaël Graff, sans oublier Carlo Spezzani qui a participé aux mesures XRMS et qui m'a accueilli si chaleureusement lors de mes venues à Trieste.

J'adresse mes remerciements à Karine Le Guen et Nadine Witkowski qui m'ont permis d'enseigner pendant ma thèse. Je remercie aussi Marie-Françoise pour la correction orthographique du manuscrit.

Une pensée émue me vient lorsque je pense au temps passé auprès des thésards et du personnel du troisième étage du LCPMR. Pour leur soutien et leur bonne humeur, j'adresse un grand merci à Richard, Jérémie, Alfred, David, Patricia, Angela, Claire, Greg, Nico, Cédric, Lara, Stéphane, Xuxu, Ahlem, Hélène, Jer, Jérôme, Mawe, Cécé, Ignald, Minhui, Lena, ainsi qu'à ceux que j'ai oublié et qui se reconnaîtront.

Enfin je tiens à remercier ma famille et particulièrement mon père et mon grand-père qui m'ont soutenu et motivé tout au long de mes études.

Résumé

Ce travail porte sur la caractérisation de couches minces de MnAs épitaxiées sur GaAs(001) et sur leur utilisation comme gabarit pour la croissance et la manipulation magnétique de fines couches de fer. Les résultats montrent qu'il est possible de renverser l'aimantation de la couche de fer, sans appliquer de champ magnétique, mais en faisant varier la température du système dans une gamme couvrant la transition de phase ferromagnétique/paramagnétique (FM/PM) du gabarit. Cette transition FM/PM se caractérise par la coexistence, entre environ 10 °C et 45 °C, de deux phases auto-organisées en bandes périodiques FM et PM. Le renversement de l'aimantation du fer est possible grâce au champ magnétique de fuite généré par les domaines magnétiques allongés de MnAs.

Le travail présenté comporte l'étude de la morphologie de la surface de MnAs/GaAs(001), la mise en évidence de l'épitaxie du fer sur MnAs et l'analyse de l'interface. L'estimation du champ magnétique de fuite généré par les domaines de MnAs est discutée, ainsi que les résultats expérimentaux concernant l'anisotropie magnétique des couches minces et le renversement de l'aimantation du fer.

L'accordabilité et la polarisation du rayonnement synchrotron ont permis l'étude des propriétés magnétiques du système, avec une sélectivité chimique. Le renversement de l'aimantation du fer a été observé par microscopie de photoémission d'électrons par rayons X et par diffusion magnétique résonante des rayons X. Nous avons ainsi mis en évidence, d'une part, le renversement de l'aimantation totale du fer par traitement thermique et, d'autre part, le renversement local (à l'échelle sub-micrométrique) des domaines magnétiques du fer, à la température ambiante. Ce résultat est très prometteur car, autour de la température ambiante, les couches de fer et de MnAs montrent des configurations magnétiques (parallèles ou antiparallèles) stables et l'aimantation de la couche mince de fer peut être renversée par la réalisation d'un cycle thermique de quelques degrés d'amplitude, sans appliquer de champ magnétique.

Abstract

This work concerns the characterization of thin MnAs layers epitaxially grown on GaAs(001) and their use as a template for the growth and magnetization control of thin Fe layers. The results show that Fe magnetization reversal can be obtained, not by applying a magnetic field, but by varying the temperature over a range covering the ferromagnetic/paramagnetic (FM/PM) phase transition of the template. This FM/PM transition, in the temperature range of 10 °C-45 °C, exhibits the co-existence of two FM and PM phases self-assembled in alternating stripes. The magnetization reversal of iron is due to the strong dipolar field coming from the elongated MnAs magnetic domains.

The present work deals with the surface morphology of MnAs, the epitaxy of Fe on MnAs and the analysis of the interface. The dipolar field is calculated and experimental results on the magnetic anisotropy of the thin films and the magnetization reversal iron are presented.

The magnetic properties of the system have been studied with chemical selectivity, thanks to the tunability and the polarization of the synchrotron radiation. The magnetization reversal of iron has been observed by X-ray photoemission electron microscopy and X-ray resonant magnetic scattering. The total magnetization reversal of the magnetic film by cycling the temperature and also the reversal of individual iron magnetic domains (at the sub-micron scale), at room temperature. This result is promising because, close to room temperature, both parallel and antiparallel configurations of Fe and MnAs magnetization can be stabilized and the magnetization of a thin iron film can be reversed by a thermal cycle having an amplitude of a few degrees, without applying a magnetic field.

Table des matières

Introduction	1
1 Propriétés structurales et magnétiques de MnAs	5
1.1 MnAs massif	6
1.1.1 Propriétés structurales et magnétiques	6
1.1.2 Transition magnéto-structurale α/β -MnAs	8
1.2 Couches minces de MnAs épitaxiées sur GaAs	9
1.2.1 Propriétés structurales	9
1.2.2 Coexistence des phases α et β	12
1.3 MnAs/GaAs(001) : auto-organisation en bandes α et β	16
1.3.1 Morphologie de la surface	16
1.3.2 Modèle élastique de l'auto-organisation des phases α et β	17
1.3.3 Propriétés magnétiques	21
2 Techniques expérimentales	25
2.1 Epitaxie par jets moléculaires	25
2.2 Techniques de microscopie	27
2.2.1 Microscopie à effet tunnel	27
2.2.2 Microscopie électronique en transmission	31
2.3 Techniques de spectroscopie	33
2.3.1 Spectroscopie de photoélectrons induits par rayons X	34
2.3.2 Techniques de mesures magnétiques : utilisation du rayonnement synchrotron	36
2.3.3 Microscopie par photoémission d'électrons avec des rayons X	37
2.3.4 Diffusion magnétique résonante des rayons X	39
3 MnAs/GaAs(001) : morphologie de surface et magnétisme	45
3.1 Croissance épitaxiale de couches minces de MnAs sur GaAs(001)	45
3.2 Surface auto-organisée et coexistence de phases	48
3.2.1 Propriétés des bandes α et β en fonction de l'épaisseur de MnAs	49
3.2.2 Evolution des bandes α et β avec la température	50

3.3	Morphologie à l'échelle sub-micrométrique de la surface	54
3.4	Estimation du champ de fuite généré par les domaines FM α -MnAs	58
3.4.1	Champ magnétique d'un barreau aimanté : théorie	59
3.4.2	Champ magnétique produit par un domaine α -MnAs	62
3.4.3	Champ magnétique produit par plusieurs domaines α -MnAs	65
3.5	Conclusions	66
4	Fe/MnAs/GaAs(001) : résultats expérimentaux	69
4.1	Propriétés structurales	69
4.1.1	Croissance épitaxiale de Fe/MnAs	69
4.1.2	Interface Fe/MnAs : zone d'interdiffusion	70
4.1.3	Surface du fer caractérisée par STM	79
4.2	Propriétés magnétiques	82
4.2.1	Anisotropie magnétique uniaxiale de MnAs	83
4.2.2	Anisotropie magnétique uniaxiale du fer	85
4.2.3	Aimantation du fer à l'échelle sub-micrométrique	89
4.2.4	Renversement de l'aimantation totale du fer	105
	Conclusions	109
A	Calcul du champ de fuite généré par les domaines FM α-MnAs	111
B	Tableaux récapitulatifs des échantillons	115
C	Caractéristiques des lignes de lumière synchrotron	117
	Bibliographie	119

Introduction

Depuis une vingtaine d'années, les progrès réalisés dans le domaine des couches minces magnétiques ont mené à des avancées technologiques importantes en ce qui concerne l'enregistrement magnétique et la lecture magnéto-optique. La découverte majeure du point de vue de son application industrielle et des répercussions économiques est sans doute la magnéto-résistance géante (GMR). Cet effet, qui a valu le prix Nobel de physique 2007 à ses découvreurs (A. Fert et P. Grünberg), est observé dans les structures de films minces composées d'une alternance de couches ferromagnétiques (FM) et non magnétiques. La GMR se manifeste par une baisse de la résistance électrique de la multicouche lorsque l'alignement de l'aimantation des couches FM passe d'une configuration antiparallèle à parallèle [1]. En l'absence de champ magnétique, la couche séparatrice non magnétique (d'environ 1 nm d'épaisseur) peut donner lieu dans certains cas à un alignement antiparallèle entre les aimantations des deux électrodes par couplage RKKY [2] (système Fe/Cr/Fe par exemple). La configuration parallèle est obtenue en renversant l'aimantation d'une des deux électrodes par l'application d'un champ magnétique extérieur. La GMR est aujourd'hui utilisée dans diverses applications : capteurs de champ magnétique, têtes de lecture de disque dur. Dans le cas des têtes de lecture de disque dur, la GMR a amélioré la sensibilité de la lecture des champs magnétiques, permettant de diminuer la taille des bits et d'augmenter ainsi la densité de stockage d'information. Un effet de magnéto-résistance est aussi observé dans des jonctions tunnel magnétiques (MTJs), jonctions dans lesquelles la couche séparatrice non magnétique est remplacée par une couche ultra-mince non magnétique isolante [3, 4]. Cet effet, appelé magnéto-résistance tunnel (TMR), donne lieu à de nombreuses applications en cours de développement, notamment l'élaboration de mémoires magnétiques non volatiles à accès aléatoire (MRAM), où l'information magnétique est stockée dans des MTJs sub-micrométriques. Dans de telles structures, les bits magnétiques sont associés aux configurations parallèles et antiparallèles des aimantations des couches FM. Notons qu'à la différence des RAM actuellement disponibles, les MRAM sont des mémoires vives présentant l'avantage de conserver les données en l'absence d'alimentation électrique. Le couplage magnétique entre deux films FM, dont les applications suivent de très près les découvertes fondamentales, suscite un grand intérêt et fait l'objet de nombreuses recherches.

Dans les disques durs actuels, la densité de stockage est limitée par la taille de grains magnétiques (quelques gigabits par pouce carré). L'augmentation de la

densité de stockage passe par la diminution de la taille des grains. Toutefois, ce développement technologique se heurte à certains problèmes liés principalement à :

- La fluctuation de l'aimantation d'objets magnétiques de plus en plus petits, celle-ci pouvant être causée entre autres par le superparamagnétisme ou encore le couplage dipolaire entre grains trop proches. L'augmentation de l'anisotropie magnétique des objets et couches minces magnétiques est alors nécessaire.
- La détection d'un signal magnétique de plus en plus faible.
- L'écriture de l'information nécessitant un champ magnétique de plus en plus localisé.

Bien que les têtes de lecture/écriture aient été récemment améliorées en terme de lecture par l'utilisation de multicouches de type GMR, l'écriture des bits est encore réalisée par l'utilisation d'un champ magnétique extérieur. Ce dernier est généré par un électroaimant disposé sur la tête de lecture/écriture. Ce procédé donne une direction d'aimantation à une centaine de grains à la fois et ne permettra sûrement pas l'écriture de bits de dimension nanométrique sans interférer avec les bits voisins. De plus, la diminution de la taille des bits et la nécessité d'une anisotropie magnétique forte mènent à une situation paradoxale : l'utilisation d'un champ magnétique de plus en plus localisé mais aussi de plus en plus intense pour renverser les bits.

Afin de trouver une solution à ce problème, des recherches ont été menées dans le but de contrôler la direction de l'aimantation de couches FM sans appliquer de champ magnétique extérieur. On peut rappeler brièvement les découvertes récentes les plus marquantes :

- Une méthode d'écriture au laser, montrant un renversement de l'aimantation des bits induit par des flash de lumière polarisée [5].
- L'utilisation d'un courant polarisé en spin afin de renverser l'aimantation via l'interaction directe entre le spin de l'électron et l'aimantation (spin torque) [6].
- Le contrôle de la direction de l'aimantation par l'application d'un champ électrique dans des systèmes multiferroïques, ces derniers montrant un couplage entre la polarisation électrique et l'aimantation [7].
- L'élaboration de systèmes hybrides FM/piézoélectrique pour lesquels l'application de tensions permet de contrôler la direction de l'aimantation spontanée via l'effet piézoélectrique inverse [8].

Le travail présenté s'inscrit dans la recherche consistant à renverser l'aimantation de couches minces FM sans appliquer de champ magnétique. Dans notre cas,

la méthode employée consiste à épitaxier une couche mince FM (dont l'aimantation doit être renversée) sur un gabarit magnétiquement actif de MnAs/GaAs(001), et à faire varier la température du système dans une gamme couvrant la transition de phase FM/PM du gabarit. Cette transition de phase montre une coexistence des phases FM et PM entre environ 10 °C et 45 °C. Ces phases sont auto-organisées en bandes périodiques alternant des domaines FM et PM. La direction de l'aimantation des domaines FM de MnAs observée pendant la coexistence de phases est à l'origine d'un fort champ démagnétisant dans la direction opposée à celle de l'aimantation. Le champ de fuite (ou dipolaire) généré par ces domaines nous a permis d'obtenir le renversement de l'aimantation d'une couche mince de fer au voisinage de la température ambiante.

Les propriétés principales de l'hétérostructure MnAs/GaAs(001) seront exposées dans le Chap. 1.

Les principes de base concernant d'une part la technique utilisée pour la croissance des échantillons Fe/MnAs/GaAs(001) (épitaxie par jets moléculaires) et, d'autre part, les techniques de caractérisation employées, seront présentés dans le Chap. 2. Les techniques de microscopie (microscopie à effet tunnel, microscopie électronique en transmission) précéderont les techniques spectroscopiques (la spectroscopie de photoélectrons induits par rayons X et les techniques synchrotron de microscopie par photoémission d'électrons par rayons X et la diffusion magnétique résonante des rayons X).

Avant le dépôt du fer, l'étude préalable du gabarit a été nécessaire puisque les propriétés magnétiques observées dépendent essentiellement des domaines magnétiques de MnAs/GaAs(001). Nous avons notamment suivi l'évolution de la coexistence de phases (via la morphologie de la surface) avec la température. Les résultats obtenus ainsi qu'une estimation du champ de fuite généré par les domaines de MnAs seront présentés dans le Chap. 3.

Enfin, les principaux résultats expérimentaux obtenus pour le système Fe/MnAs/GaAs(001) seront détaillés dans le Chap. 4 et ce, en deux temps :

- Les propriétés structurales relatives à l'épitaxie du fer sur MnAs et à l'interdiffusion observée entre ces deux couches.
- L'étude des propriétés magnétiques observées, c'est-à-dire l'anisotropie magnétique uniaxiale du fer et de MnAs et le renversement de l'aimantation du fer à l'échelle sub-micrométrique. Finalement, nous démontrerons le renversement contrôlé de l'aimantation de la couche de fer.

Chapitre 1

Propriétés structurales et magnétiques de MnAs

A la température ambiante, l'arséniure de manganèse (MnAs) est un métal ferromagnétique (FM). Il présente une transition de phase magnéto-structurale à $\approx 40^\circ\text{C}$ [9]. Récemment, des couches minces de MnAs ont pu être épitaxiées sur des semi-conducteurs classiques, comme le silicium [10, 11] ou l'arséniure de gallium (GaAs) [12]. MnAs et GaAs ont une faible réactivité, ce qui permet l'élaboration d'hétéro-jonctions présentant des interfaces abruptes [13]. Le système MnAs/GaAs s'est révélé d'une grande efficacité en ce qui concerne l'injection de courants polarisés en spin [14, 15] dans un semi-conducteur. Ces propriétés font de MnAs un matériau très prometteur pour la spintronique.

Dans son état massif, MnAs présente une transition de phase du premier ordre à $T_p \approx 40^\circ\text{C}$, au cours de laquelle il passe de l'état ferromagnétique (FM), α -MnAs, à l'état paramagnétique (PM), β -MnAs. Lorsque MnAs est épitaxié sur GaAs, cette température peut changer à cause des contraintes induites par le substrat. La coexistence des phases α et β , dépendante de l'orientation du substrat, est alors observée. Bien que supérieure à la température ambiante, la valeur de T_p limite le potentiel d'application de MnAs. Il sera montré par la suite comment cette température peut être augmentée par l'application de contraintes externes sur le substrat [16]. En plus des propriétés relatives au transport d'électrons polarisés en spin, les couches minces de MnAs épitaxiées sur GaAs(001) présentent une modulation de leur surface. Cette morphologie de la surface est issue de la coexistence des phases α et β et de leur auto-organisation en bandes α/β alternées et périodiques. Ces propriétés originales nous ont amenés à utiliser ce système comme gabarit afin de contrôler la direction de l'aimantation d'une couche mince de fer, sans appliquer de champ magnétique extérieur.

Dans ce travail, les propriétés relatives à l'auto-organisation des phases α et β dans MnAs/GaAs(001) jouent un rôle déterminant. L'accent sera donc mis dans ce chapitre sur la description de ces phases, pour le MnAs massif dans un premier temps, puis dans le cas de couches minces de MnAs épitaxiées sur GaAs(001) et

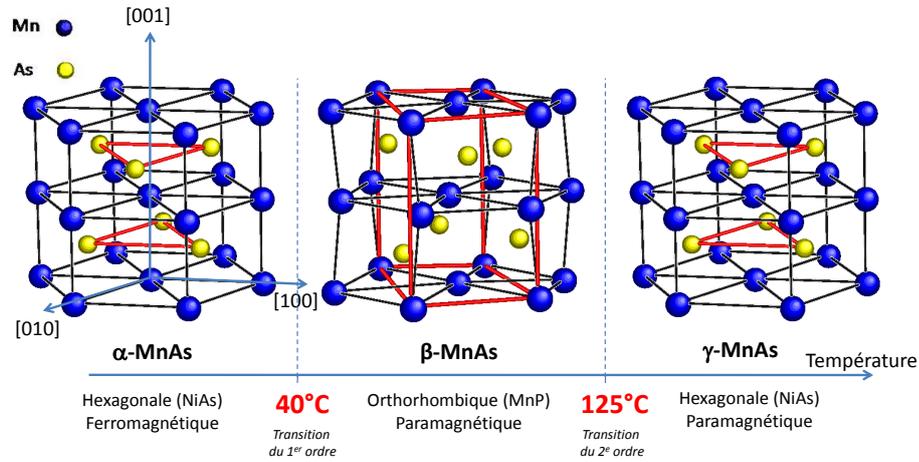


FIGURE 1.1 – Structure cristalline de MnAs : phase α à gauche, phase β au centre, phase γ à droite.

GaAs(111). L'orientation du substrat modifie la coexistence des phases. L'étude comparative de ces deux hétéro-épitaxies montrera l'origine de cette coexistence de phases. Enfin, les propriétés du gabarit MnAs/GaAs(001) seront présentées. Les propriétés relatives à la morphologie de la surface seront exposées tout d'abord. Puis une discussion sur l'origine élastique de l'auto-organisation des domaines sera engagée, faisant référence au modèle élastique proposé par Kaganer *et al.* [17]. Les propriétés magnétiques présentant un intérêt pour notre étude (anisotropie, configuration des domaines) seront présentées en fin de chapitre.

1.1 MnAs massif

1.1.1 Propriétés structurales et magnétiques

MnAs est un métal FM à basse température (phase α) qui devient PM (phase β) à $T_p \approx 40^\circ\text{C}$ (Fig. 1.1). A cette température, MnAs montre une discontinuité dans la perte de son aimantation spontanée [Fig. 1.2(a)] ainsi que dans l'augmentation de sa résistivité [18]. Au-delà de T_p , l'inverse de la susceptibilité PM diminue jusqu'à une température de 125°C puis augmente en suivant un comportement de type Curie-Weiss [Fig. 1.2(a)]. On peut noter ici que le comportement de la susceptibilité PM entre 40°C et 125°C a été attribué par Guillaud *et al.* à un ordre antiferromagnétique (AFM) des moments magnétiques portés par les atomes de manganèse. Remarquons la publication de mesures de diffusion de neutrons polarisés en spin, montrant un ordre FM à courte portée dans la phase β [19]. Des calculs de type fonctionnelle de la densité (DFT) ont aussi montré que cette phase correspondrait à un ordre AFM entre atomes de manganèse dans la base de la structure

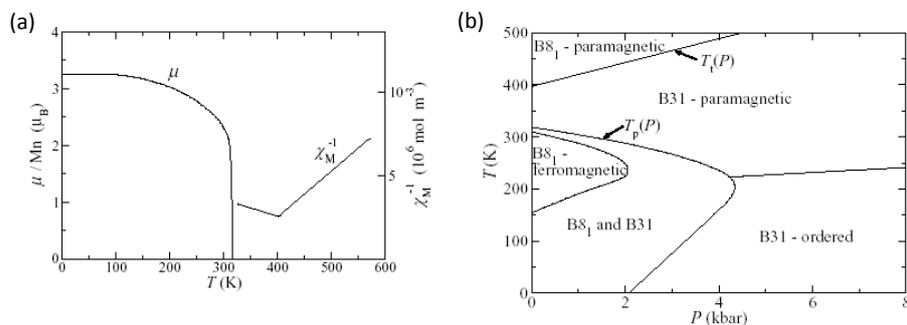


FIGURE 1.2 – (a) Evolution avec la température de l’aimantation spontanée de MnAs et de l’inverse de la susceptibilité χ_M^{-1} . (b) Diagramme de phase pression-température de MnAs, indiquant T_p et T_t en fonction de la pression [25].

hexagonale [plan (a,b)], accompagné d’une distribution aléatoire de cet ordre selon l’axe c ([001] MnAs) [20]. Cette distribution serait rendue possible grâce au faible couplage entre les atomes de manganèse inter-plans. Cependant, la phase β est communément qualifiée de PM du fait de la rareté des preuves expérimentales montrant un ordre AFM pour cette phase.

Du point de vue structural, la transition de phase α - β montre le passage d’une structure hexagonale de type NiAs (symétrie $P63/mmc$) à une structure orthorhombique de type MnP (symétrie $Pnma$) [21, 22, 23, 24, 9] (Fig. 1.1). La structure orthorhombique correspond à une légère distorsion de la structure hexagonale et le volume diminue d’environ 2%. Dans ce mémoire, la structure cristalline de MnAs sera décrite dans un système d’axes hexagonal. Cette transition de phase est caractérisée par un pic de chaleur latente (7490 J/kg) [22] et par une hystérésis en température : T_p est d’environ 34 °C au refroidissement, mais d’environ 40 °C à l’échauffement [24]. Ces propriétés indiquent clairement que cette transition de phase est du premier ordre. Au-delà de T_p , la distorsion de la maille hexagonale diminue progressivement jusqu’à disparaître à $T_t \approx 125$ °C [21]. On observe alors une seconde transition de phase au cours de laquelle MnAs retrouve sa structure hexagonale (phase PM γ -MnAs). L’absence de chaleur latente et la variation continue des paramètres de maille sont caractéristiques d’une transition de phase du deuxième ordre.

L’évolution complexe de la structure de MnAs avec la pression et la température a des conséquences sur l’ordre magnétique. Le diagramme de phase [Fig. 1.2(b)] indique que l’application d’une pression diminue T_p et augmente T_t . De plus, l’application d’une pression suffisante (par exemple 2 kbar à 250 K) peut provoquer la transition de la phase hexagonale à la phase orthorhombique à température constante. Cette transition de phase montre une hystérésis en pression puisque à 210 K par exemple, la transition $\alpha \rightarrow \beta$ a lieu à 4 kbar alors que la transition $\beta \rightarrow \alpha$ a lieu à $\approx 1,5$ kbar. Ainsi, la phase β peut être favorisée par

l'application d'une contrainte en compression, c'est-à-dire pour une diminution du volume de la maille. Dans l'approximation des champs moléculaires, Bean et Rodbell ont proposé un modèle montrant qu'il est possible, en théorie, que la transition de phase α - β soit du premier ordre si l'interaction d'échange dépend fortement du volume de la maille [22]. La dépendance de la température de Curie (T_C) avec le volume de la maille est :

$$T_C = T_0 \left[1 + \Gamma \frac{V - V_0}{V_0} \right] \quad (1.1)$$

où T_0 est la température de Curie correspondant au système sans interaction d'échange, de volume V_0 , et Γ est un paramètre d'ajustement entre théorie et expériences.

1.1.2 Transition magnéto-structurale α/β -MnAs

Les propriétés de MnAs sont originales tant du point de vue structural que du point de vue magnétique. L'augmentation de la température donne lieu à une augmentation continue du paramètre de maille c (selon [001] MnAs) [Fig. 1.3(b)] alors que le paramètre de maille a (selon [100] MnAs) se contracte jusqu'à 40 °C ($T_p = 313$ K) avant de suivre une dilatation thermique [Fig. 1.3(a)]. Du point de vue magnétique, MnAs présente une forte anisotropie magnéto-cristalline ($K_u = 1,2 \times 10^6$ J/m³) : les moments magnétiques des atomes de manganèse sont orientés dans les plans (a, b) (plans où ces atomes décrivent un hexagone).

L'inter-dépendance de ces propriétés structurales et magnétiques donne lieu à des transitions de phase complexes. La contraction de a , et par conséquent le rapprochement des atomes de Mn dans la base de l'hexagone, provoque la transition d'un alignement parallèle à un alignement antiparallèle des moments magnétiques [25]. Autrement dit, la configuration parallèle entre les moments magnétiques de Mn est favorisée pour les grandes valeurs de a , alors que la configuration antiparallèle minimise l'énergie du système pour les faibles valeurs de a . L'alignement entre les moments magnétiques des atomes de manganèse change à partir d'une valeur critique du paramètre a . Cette valeur est atteinte à 40 °C (313 K) lorsque a passe de 3,717 Å à 3,673 Å lors de l'échauffement du système [25] (Fig. 1.3). Puis le paramètre a suit une dilatation thermique et atteint de nouveau sa valeur critique à 125 °C (398 K) où la structure hexagonale devient de nouveau stable. Des calculs *ab initio* réalisés par Rungger et Sanvito [25] ont montré que la température de transition entre les phases α et β dépend non seulement du volume mais aussi de la distorsion de la maille de MnAs. Lorsque MnAs est épitaxié sur GaAs, ce dernier induit des contraintes provoquant ainsi la coexistence des deux phases. La suite de ce chapitre concerne l'étude comparative des systèmes MnAs/GaAs(111) et MnAs/GaAs(001) : leurs propriétés structurales, puis l'influence des contraintes sur la transition de phase α - β .

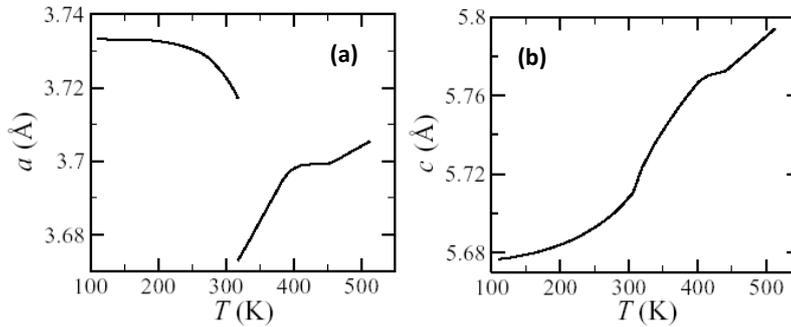


FIGURE 1.3 – Evolution des paramètres de maille a et c de MnAs avec la température [21].

1.2 Couches minces de MnAs épitaxiées sur GaAs

La croissance épitaxiale des couches minces de MnAs sur GaAs est réalisée par épitaxie par jets moléculaires (paragr. 2.1). Les épitaxies décrites par la suite sont MnAs/GaAs(111) et MnAs/GaAs(001), systèmes pour lesquels les phases α et β coexistent dans une gamme de température qui s'étend sur plusieurs dizaines de degrés autour de la température ambiante. Cette gamme de température est plus ou moins étendue selon l'orientation du substrat. L'étude comparative de ces deux hétéro-épitaxies a pour but d'exposer l'influence de l'orientation du substrat et des contraintes imposées par celui-ci sur MnAs, montrant ainsi l'origine de la coexistence des phases.

1.2.1 Propriétés structurales

GaAs cristallise dans une structure de type zinc-blende (ZnS), dans laquelle les atomes d'arsenic forment un réseau cubique à faces centrées, les atomes de gallium occupant 1/4 des sites tétraédriques. Chaque atome Ga (respectivement As) est entouré de quatre plus proches voisins As (respectivement Ga), les quatre liaisons étant orientées suivant les directions [111] (Fig. 1.4).

Épitaxie MnAs/GaAs(001)

Pour l'épitaxie MnAs/GaAs(001), le plan MnAs(010) est le plan de l'interface. Les relations épitaxiales (de type A_0) sont : MnAs(010) \parallel GaAs(001), MnAs[001] \parallel GaAs $[\bar{1}10]$ et MnAs[100] \parallel GaAs[110] [Fig. 1.4(a)]. La croissance épitaxiale d'un cristal sur un autre dépend de processus complexes relatifs à l'énergie de surface du substrat, aux différentes reconstructions de surface ou encore au désaccord de maille entre les cristaux considérés. Les principaux paramètres de contrôle de la croissance sont le flux des jets atomiques et la

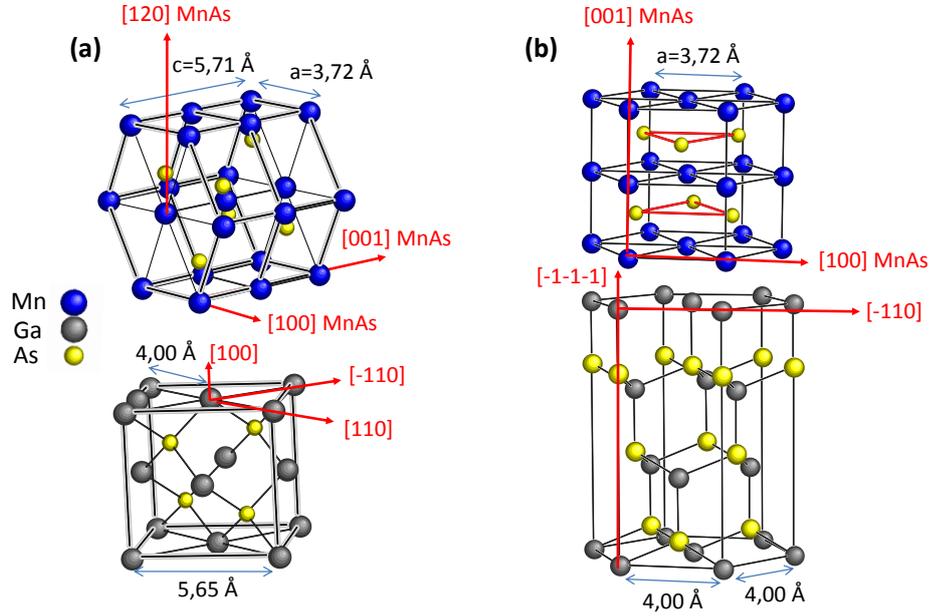


FIGURE 1.4 – Epitaxies de (a) MnAs/GaAs(001) et (b) MnAs/GaAs(111).

température du substrat. On peut considérer que les orientations épitaxiales dépendent en premier lieu de la minimisation du désaccord de maille m . Dans notre cas, m est donné par :

$$m = \frac{p_{\text{MnAs}} - p_{\text{GaAs}}}{p_{\text{GaAs}}} \quad (1.2)$$

où p sont les paramètres de maille des deux cristaux, correspondant aux orientations épitaxiales. MnAs/GaAs(001) montre un désaccord d'environ 30% selon GaAs[110] et de 7% selon GaAs[110]. Le fort désaccord selon GaAs [110] est réduit à 5% grâce à un réseau de coïncidence entre quatre plans (002) de MnAs et six plans (220) de GaAs [26]. Après la croissance de quelques monocouches, les contraintes dues au désaccord de maille sont relaxées par la génération de dislocations coins à l'interface [26].

Par ailleurs, du fait de la structure zinc-blende de GaAs, dans laquelle les atomes As sont alignés alternativement selon $[\bar{1}10]$ et $[110]$ dans le plan de croissance, MnAs peut être épitaxié selon différentes orientations sur GaAs(001). La rotation de l'axe $[001]$ MnAs de 90° par rapport à l'axe de croissance caractérise l'épitaxie dite de type B : $\text{MnAs}(010) \parallel \text{GaAs}(001)$, $[001] \text{ MnAs} \parallel [110] \text{ GaAs}$ et $[100] \text{ MnAs} \parallel [\bar{1}10] \text{ GaAs}$ (Fig. 1.5). De plus, ce même axe peut se trouver incliné de différentes manières par rapport à la surface de GaAs(001) (types A_1 , B_1 et B^*) [27]. Ces épitaxies dépendent des différentes reconstructions possibles de GaAs [28]. Elles dépendent des conditions de croissance (température, taux de pression équivalente As_4 : Mn, vitesse de croissance) et de l'épaisseur de

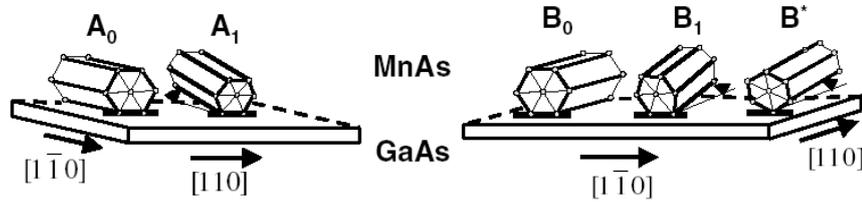


FIGURE 1.5 – Schéma des épitaxies de type A et B de MnAs/GaAs(001), où l'axe $[001]$ MnAs présente différentes inclinaisons par rapport à la surface de GaAs [27]. Les différentes relations épitaxiales figurent dans [27].

MnAs [26]. Notons que l'épitaxie de type A_0 (resp. de type B) est favorisée lorsque la croissance est initiée par le flux d'arsenic (resp. de manganèse). Dans certains cas, les couches minces de MnAs peuvent alors être composées de grains de type A ainsi que de grains de type B.

L'épitaxie réalisée dans le cadre de notre étude est de type A_0 puisque dans ce cas, la couche mince présente la propriété qui nous intéresse principalement : l'auto-organisation de la coexistence des phases α et β en bandes. Les conditions de croissance donnant lieu à cette épitaxie seront données dans le paragr. 3.1.

Épitaxie MnAs/GaAs (111)

Les couches minces de MnAs sont épitaxiées sur GaAs (111) selon les relations épitaxiales suivantes : MnAs(001) \parallel GaAs ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$), MnAs [110] \parallel GaAs $[\bar{1}10]$ et MnAs $[\bar{1}10]$ \parallel GaAs $[11\bar{2}]$. Dans ce cas, le désaccord de maille est d'environ 7-8% dans les deux directions du plan de croissance. Ce désaccord est réduit à 0,5% par un réseau de coïncidence entre quatorze plans (0 $\bar{1}0$) de MnAs et 13×3 plans (4 $\bar{2}\bar{2}$) de GaAs [29]. On remarque que lorsque GaAs est clivé selon (111), les plans Ga décrivent une structure hexagonale. Lors de cette épitaxie, la symétrie d'ordre trois de MnAs selon la direction $[001]$ est alors conservée.

Comme MnAs/GaAs(001), l'hétéro-épitaxie MnAs/GaAs(111) se caractérise par une interface abrupte, permettant l'injection d'électrons polarisés en spin. Le groupe de recherche "Croissance et propriétés de systèmes hybrides en couches minces" de l'Institut des Nano-Sciences de Paris (INSP) a notamment étudié le transport de courants polarisés en spin à travers des jonctions tunnel MnAs/GaAs(111)/MnAs [30, 15].

Morphologie de surface

En plus des propriétés relatives au transport d'électrons, MnAs/GaAs présente aussi un intérêt dû à la coexistence des phases α et β au voisinage de la température ambiante. Les deux hétéro-épitaxies MnAs/GaAs(001) et MnAs/GaAs(111) présentent des morphologies de surface très différentes qui sont corrélées à cette

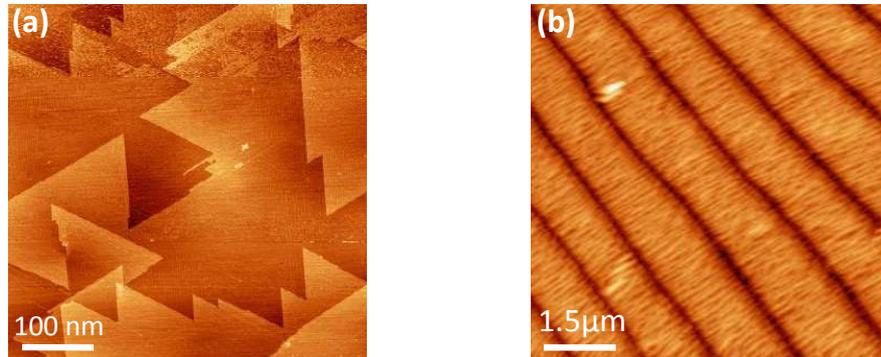


FIGURE 1.6 – Images STM, obtenues à la température ambiante, de la surface de (a) MnAs/GaAs (111) et de (b) MnAs/GaAs(001) (échantillon MnAs-280).

coexistence de phases. La microscopie tunnel à balayage (STM) montre que la surface de MnAs/GaAs(111) s’auto-organise en terrasses triangulaires de plus de 200 nm de large [Fig. 1.6(a)]. La surface de MnAs/GaAs(001) s’auto-organise, elle, sous forme de bandes périodiques FM/PM [Fig.1.6(b)]. Les gammes de température couvrant cette coexistence sont différentes pour ces deux épitaxies.

1.2.2 Coexistence des phases α et β

La coexistence des phases α et β est due à la présence de contraintes dans la couche de MnAs et à la minimisation de l’énergie élastique associée [17]. Ces contraintes sont induites par la différence des coefficients de dilatation thermique de MnAs et GaAs. En effet, selon les directions, les coefficients de MnAs peuvent être de 10 à 100 fois plus grands que ceux de GaAs (Tab. 1.1). De plus, on remarque que, dans la phase α , ce coefficient est négatif selon [100] MnAs. C’est la

		Coefficient de dilatation thermique (K^{-1})	
MnAs	selon [100] :	$-1,1 \times 10^{-4}$ (phase α)	$6,3 \times 10^{-5}$ (phase β)
	selon [001] :	$2,8 \times 10^{-5}$	
GaAs		$6,0 \times 10^{-6}$	

TABLE 1.1 – Coefficients de dilatation thermique de MnAs et GaAs [12].

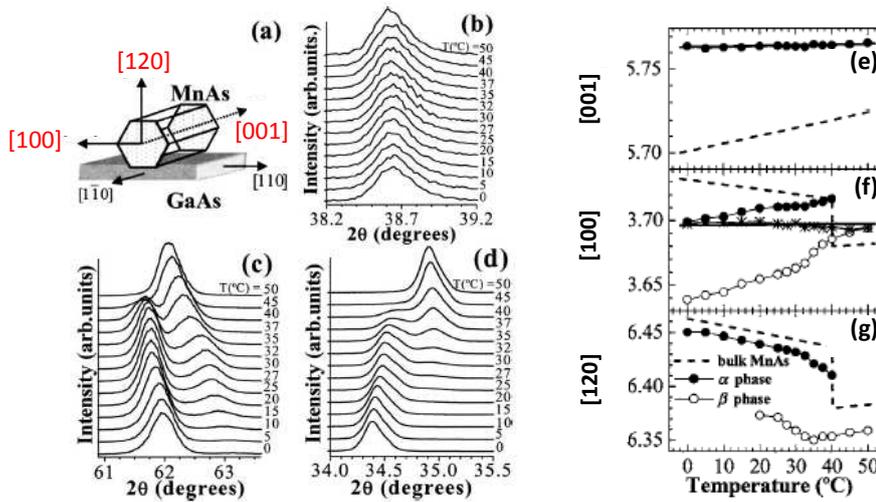


FIGURE 1.7 – (a) Schéma représentant les relations épitaxiales de MnAs/GaAs(001). (b, c, d) Diffractogrammes $\theta/2\theta$ mesurés pour la réflexion des plans (002), (200) et (020) respectivement, en fonction de la température. (e, f, g) Evolution avec la température des paramètres de mailles c , a et hors plan de croissance (selon [120]) [31].

minimisation de l'énergie élastique emmagasinée dans la couche mince, lors de la variation en température du système, qui est à l'origine de la coexistence de phases. Les contraintes élastiques issues de la différence des coefficients de dilatation thermique vont modifier les paramètres de maille selon les directions épitaxiales considérées précédemment. Ainsi, MnAs/GaAs(001) et MnAs/GaAs(111) montrent des différences dans la coexistence de phases.

MnAs/GaAs(001)

L'épitaxie MnAs/GaAs(001) s'effectue avec le plan de la base de l'hexagone perpendiculaire au plan de croissance. Ce sont donc principalement les paramètres de maille a et c qui subissent la contrainte biaxiale induite par GaAs, même si le paramètre selon [120] subit une faible variation par rapport au MnAs massif, via la loi de Poisson. Des mesures de diffraction des rayons X (XRD) pour MnAs (130 nm)/GaAs(001) [Fig. 1.7(b, c, d)] montrent l'évolution de l'intensité réfléchiée par les plans (002), (200) et (020) avec la température. Ces mesures ont permis de suivre l'évolution des paramètres de maille des phases α et β avec la température [Fig. 1.7(e, f, g)]. Lors du refroidissement, à partir de 260 °C (température de croissance) jusqu'à 0 °C, MnAs passe successivement par les phases γ , β seule, α - β (coexistence) à partir de $T_p \approx 40$ °C avant d'arriver finalement à la phase α seule, à partir d'environ 10 °C.

- $40^\circ\text{C} < T < 260^\circ\text{C}$: la transition de phase γ - β a lieu. Cette transition du second ordre, à 127°C , montre une diminution continue des paramètres de maille. Puisque le coefficient de dilatation thermique de GaAs est 10 fois plus faible que celui de MnAs, ce refroidissement contraint la couche mince de MnAs en tension, dans les deux directions du plan de croissance ([001] et [100]) : les mesures d'Adriano *et al.* [31] donnent $a = 0,369$ nm et $c = 0,576$ nm pour la phase β seule à 50°C [Fig. 1.7(e)(f)(g)], alors que $a = 0,368$ nm et $c = 0,572$ nm pour MnAs massif, à la même température.
- $T \leq 40^\circ\text{C}$: la transition de phase magnéto-structurale $\beta \rightarrow \alpha$ du MnAs massif a lieu à $T_p \approx 40^\circ\text{C}$. D'après la Fig. 1.7(e), l'axe c de la couche mince montre une élongation d'environ 1% par rapport à sa valeur dans le MnAs massif, menant à une contrainte en tension de la couche mince selon [001]. Remarquons que, dans la couche mince, le coefficient de dilatation thermique de MnAs selon l'axe c est presque le même que celui de GaAs (presque constant) puisque l'axe c est dans le plan de croissance, et donc contraint par le substrat. En revanche, l'évolution du paramètre de maille selon [120] est la même dans la couche mince que dans le MnAs massif puisqu'il est libre de toute contrainte provenant du substrat (orientation hors-plan de croissance). La particularité du système MnAs/GaAs(001) vient de l'évolution du paramètre de maille selon l'axe a , à partir de T_p . En effet, alors que la couche mince de MnAs est dans un état de tension pour $T > 40^\circ\text{C}$, la couche mince de MnAs se trouve contrainte en compression à partir de T_p , lorsque le paramètre de maille selon a varie de $3,68 \text{ \AA}$ à $3,72 \text{ \AA}$ [Fig. 1.7(f)]. Puis en refroidissant à partir de T_p , le paramètre de maille (selon l'axe a) de la couche mince de MnAs diminue alors que ce paramètre de maille augmente dans le MnAs massif (le coefficient de dilatation thermique dans la phase α est négatif selon [100]). L'état de contrainte en compression de la couche mince provoque la persistance de la phase β au-dessous de T_p et donc la coexistence des deux phases : en effet, rappelons que la diminution de a stabilise la phase β (paragr. 1.1.2). La Fig. 1.7(f, g) montre la mesure de deux paramètres distincts correspondant aux phases α (symboles pleins) et β (symboles vides).

Des expériences ont été menées dans le but d'augmenter la température critique de la phase FM pour MnAs/GaAs(001). Les mesures de diffraction de rayons X (XRD) réalisées par Iikawa *et al.* montrent l'évolution de T_p avec la déformation de la maille de MnAs [16]. Cette étude a été réalisée par l'application d'une contrainte planaire isotrope externe dans le plan de la couche mince. Pour cela, la déformation du matériau a été effectuée en générant de fins mouvements d'une sphère (située sous l'échantillon) vers des anneaux (fixant l'échantillon par sa surface). La Fig. 1.8(a) montre l'évolution du pic de diffraction correspondant à la réflexion des plans (040) de MnAs, pour différentes contraintes. L'application de contraintes induit un décalage du pic vers des angles plus grands car la distance inter-réticulaire selon [120] diminue. Il a été démontré que l'augmentation du vo-

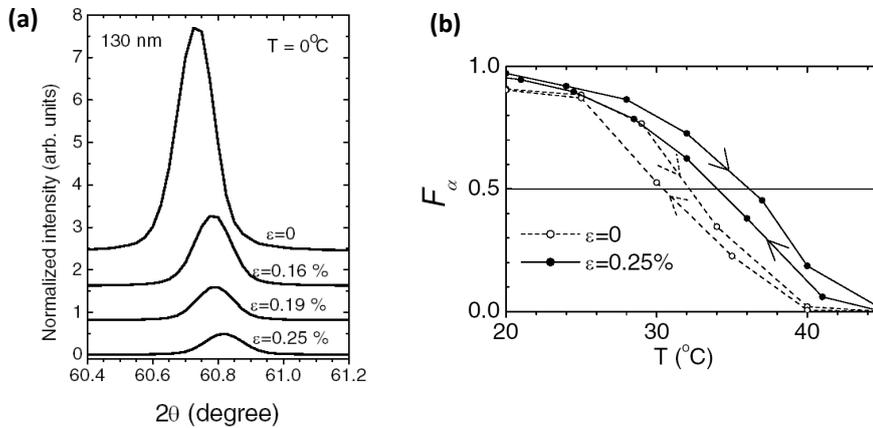


FIGURE 1.8 – MnAs/GaAs(001) : (a) Influence de la déformation de MnAs (130 nm)/GaAs(001) sur la position des pics XRD mesurés par la réflexion des plans (040), à 0 °C ; (b) évolution de la fraction de phase α -MnAs en fonction de la température avec et sans contrainte externe [16].

lume de la maille de la couche mince contrainte par rapport à la couche mince non contrainte (avec c et a qui augmentent et le paramètre de maille selon [120] qui diminue) mène à l'augmentation de T_p [16]. La Fig. 1.8(b) montre la fraction de la phase α , déterminée à partir des mesures de XRD [Fig. 1.8(a)], en fonction de la température, avec et sans application de contraintes externes. MnAs est caractérisé par une augmentation de T_p d'environ 4 °C pour une contrainte externe de 0,25%. La distorsion de la maille permet donc d'induire une variation de la température critique de la transition de phase α - β .

MnAs/GaAs(111)

Pour MnAs/GaAs(111), des mesures de diffraction de neutrons ont montré la présence des phases α et β dans une gamme de température plus grande que pour MnAs/GaAs(001) : entre environ 0 et 75 °C [30]. De plus, un signal de dichroïsme circulaire magnétique en absorption des rayons X (XMCD) a permis d'attribuer les propriétés FM mesurées au-delà de T_p à la phase α [32]. Cette différence dans la gamme de température de la coexistence de phases entre MnAs/GaAs(001) et MnAs/GaAs(111) est liée à l'orientation du plan de la base de l'hexagone par rapport au substrat. Dans le cas de MnAs/GaAs(111), la base de l'hexagone appartient au plan de croissance de GaAs (Fig. 1.4) et subit par conséquent une contrainte isotrope selon [100] et [010].

En assimilant cette contrainte à une pression hydrostatique exercée sur MnAs, des considérations thermodynamiques permettent d'expliquer la présence des phases α et β entre 0 et 75 °C [32]. L'évaluation des pressions correspondant aux

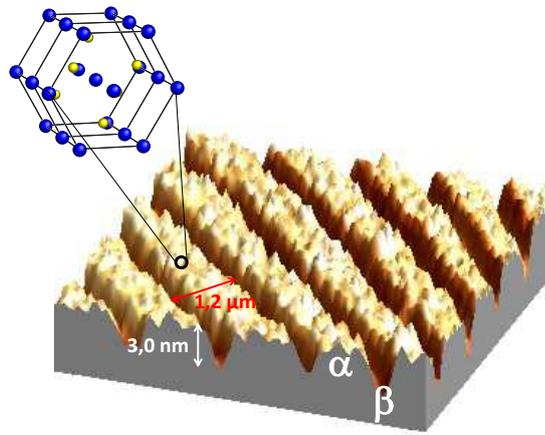


FIGURE 1.9 – Image STM représentée en 3D de la surface d’une couche mince de MnAs/GaAs(001), montrant l’alternance de bandes périodiques α et β (échantillon MnAs-280).

déformations des paramètres de maille mesurés a permis le calcul des températures critiques à partir du diagramme de phase de MnAs. Les valeurs de -8°C et 74°C ont été calculées pour le début et la fin de la coexistence de phases, ce qui corrobore les résultats expérimentaux. La contrainte imposée par le substrat sur la couche mince pour l’hétéro-épitaxie MnAs/GaAs(111) est donc le paramètre pertinent pour prolonger la phase α FM à haute température.

1.3 MnAs/GaAs(001) : auto-organisation en bandes α et β

1.3.1 Morphologie de la surface

Lorsque MnAs est épitaxié sur GaAs(001), sa surface présente une modulation en hauteur auto-organisée sous forme de bandes périodiques (Fig. 1.9). Ces bandes sont allongées selon $[001]$ MnAs, périodiques selon $[100]$ MnAs et correspondent à l’alternance des phases FM α et PM β (paragr. 1.3.3). La Fig. 1.10 montre des images obtenues par microscopie à force atomique (AFM) de la surface de MnAs/GaAs(001) [33]. Le profil des bandes indique une amplitude h de la modulation α/β d’environ 8 nm pour une couche de MnAs d’épaisseur $e \approx 130$ nm. Cette amplitude h correspond donc à environ 6% de e [Fig. 1.10(a)]. Pour le même échantillon, la période T des bandes est de 880 nm. La Fig. 1.10(b) montre $h = 5$ nm et $T = 400$ nm pour $e = 95$ nm. Dans ce cas, h représente 5,2% de e . Une série de mesures similaires a été réalisée pour une dizaine de couches minces d’épaisseurs différentes, montrant une dépendance linéaire : $T = 4,8 \times e$ [33]. Contrairement à la reproductibilité des résultats publiés concernant cette dépendance de la période des bandes avec l’épaisseur de MnAs, les mesures de h rappor-

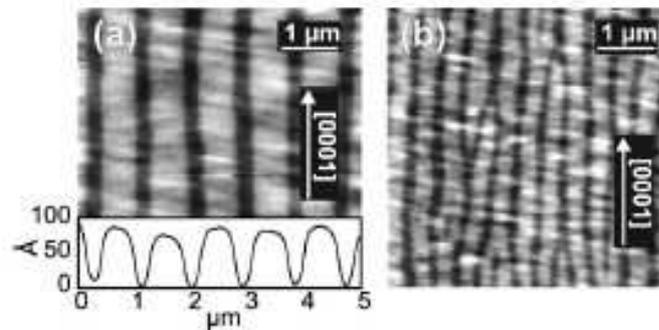


FIGURE 1.10 – MnAs/GaAs(001) : Images AFM de la surface d’une couche mince de MnAs de (a) 130 nm d’épaisseur et de (b) 95 nm d’épaisseur. La modulation en hauteur de cette surface est due à la coexistence des phases α (bandes claires) et β (bandes foncées) [33].

tées dans la littérature montrent une grande dispersion des résultats : h représente entre 2% [27] et 6% [33] de l’épaisseur de MnAs. Ces mesures seront comparées aux nôtres dans le paragr. 3.2.1.

La Fig. 1.10(a) montre aussi la présence d’une modulation en hauteur de la surface selon $[001]$ MnAs. Cette structure sub-micrométrique, peu commentée dans la littérature, est en fait composée de monticules que j’ai étudiés par STM (paragr. 3.3).

La morphologie de la surface correspondant à la coexistence des phases α et β évolue en fonction de la température, entre environ 10°C et 40°C . Cette évolution a déjà fait l’objet de nombreuses études par XRD, spectroscopie optique et microscopie en champ proche [27, 34, 31]. La Fig. 1.11 montre nos mesures STM de l’évolution de la surface de MnAs, à différentes températures couvrant la transition de phase α - β . A 51°C , la surface ne présente aucune modulation puisque MnAs est dans la phase β seule [Fig. 1.11(a)]. Puis, le nucléation de la phase α a lieu en refroidissant le système. Les bandes α sont alors visibles à 40°C bien que celles-ci ne soient pas arrivées jusqu’à leur coalescence dans la direction $[001]$ MnAs [Fig. 1.11(b)]. En diminuant la température, les bandes α s’élargissent et sont plus rectilignes [Fig. 1.11(c)]. Elles s’élargissent jusqu’à atteindre une proportion équivalente aux bandes β à $\approx 30^\circ\text{C}$ [Fig. 1.11(d)]. Puis les bandes α deviennent plus larges que les bandes β [Fig. 1.11(e)] pour finalement recouvrir la totalité de la surface. La modulation de la surface sous forme de bandes disparaît à $\approx 10^\circ\text{C}$ [Fig. 1.11(f)].

1.3.2 Modèle élastique de l’auto-organisation des phases α et β

Nous avons vu précédemment que l’épitaxie de MnAs/GaAs induit la coexistence des phases α et β . La surface de MnAs/GaAs(001) reflète directement cette

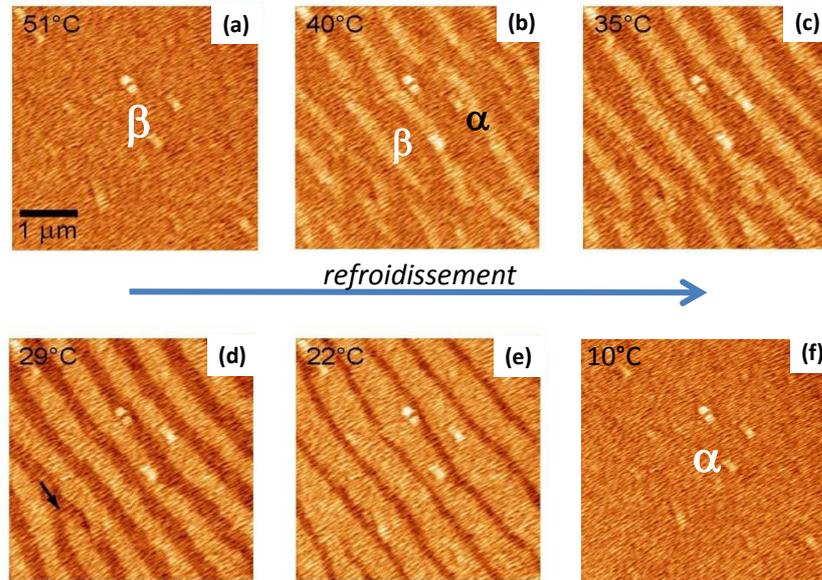


FIGURE 1.11 – Images STM de la surface d’une couche mince de MnAs de 140 nm d’épaisseur, obtenues à différentes températures (échantillon MnAs-140).

coexistence par l’auto-organisation d’un réseau périodique alternant des bandes α et β . Kaganer *et al.* [17, 34] ont montré que la division de la couche mince de MnAs en deux types de domaines (contraints différemment) distribués périodiquement permet de minimiser l’énergie élastique présente dans MnAs.

Coexistence de phases

Lorsque la couche mince de MnAs est épitaxiée sur GaAs, ses dimensions latérales sont fixées par les dimensions du substrat. Ainsi, la variation des paramètres de maille (dilatation thermique et transition de phase) induit une contrainte biaxiale anisotrope dans le plan de croissance [Fig. 1.12(a)]. Dans le même temps, le paramètre de maille hors-plan de croissance est libre de toute contrainte et peut relaxer. La coexistence de phases est alors le résultat de la compétition entre l’énergie libre libérée à la transition de phase et l’énergie élastique emmagasinée. Pour comprendre l’origine de ce phénomène, on peut imaginer plusieurs scénarios. Si des dislocations coins pouvaient être générées, l’énergie élastique pourrait être libérée et la transition de phase α - β pourrait alors avoir lieu de la même manière que pour le MnAs massif. Mais la génération de telles dislocations est difficilement concevable pour des températures proches de l’ambiante. Dans ce cas, si des dislocations ne peuvent ni être générées, ni bouger par glissement, la contrainte ne pourrait ni être libérée, ni redistribuée et la transition de phase aurait lieu de manière uniforme dans toute la couche, à une température différente de celle du MnAs massif

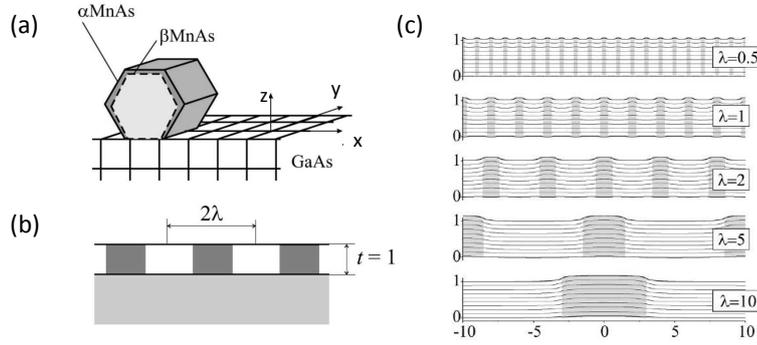


FIGURE 1.12 – MnAs/GaAs(001) : (a) Schéma de l'épitaxie ; (b) Schéma des domaines périodiques, de période (par unité d'épaisseur) 2λ ; (c) Champ de déplacement ($\times 10$) u_z calculé selon la direction normale au plan de croissance, pour différentes périodes, avec $\xi = 0,3$ et $\eta = 0,01$ [33].

(ce qui n'est pas le cas ici). Kaganer *et al.* ont suggéré que le glissement, le long de l'interface, des dislocations générées lors de la croissance pourrait redistribuer les contraintes [17]. Dans ce cas, c'est seulement la contrainte moyenne présente dans toute la couche de MnAs qui est fixée. Les calculs d'élasticité Kaganer *et al.* montrent que le minimum d'énergie libre est atteint par la coexistence de deux phases organisées périodiquement, présentant deux états de contrainte différents.

Afin d'expliquer la coexistence des deux phases, MnAs est considéré dans un premier temps comme libre de s'étendre sur le substrat, c'est-à-dire que ses dimensions latérales ne sont pas fixées. Dans ce cas (fictif), la différence entre les paramètres de maille de GaAs et ceux de chaque phase de MnAs peut être décrite par deux tenseurs de contraintes internes, η_α et η_β . La différence $\eta = \eta_\alpha - \eta_\beta$ représente alors la contrainte issue de la transition de phase ajoutée à la contrainte issue de la différence des coefficients de dilatation thermique entre les deux phases. Cette dernière contribution ne peut être négligée puisque les coefficients de dilatation thermique de MnAs sont de l'ordre de 10^{-4} K^{-1} , c'est-à-dire très grands comparés à ceux de GaAs ($6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$). Puis en considérant le cas (réel) où les dimensions latérales de MnAs sont fixées par GaAs, la couche mince se retrouve contrainte élastiquement, ce qui nécessite d'ajouter un tenseur de contrainte élastique pour chaque phase, notés e_α et e_β . Ainsi, si ξ représente la fraction de la phase α , en considérant les dimensions latérales de MnAs fixées par le substrat (impliquant une contrainte totale nulle), on peut écrire l'état de contrainte totale de MnAs comme :

$$\xi(\eta_\alpha + e_\alpha) + (1 - \xi)(\eta_\beta + e_\beta) = 0 \quad (1.3)$$

En tenant compte de ces contraintes élastiques, la densité d'énergie libre de MnAs, f , est égale à la somme des densités d'énergie libre des phases non contraintes, f_α

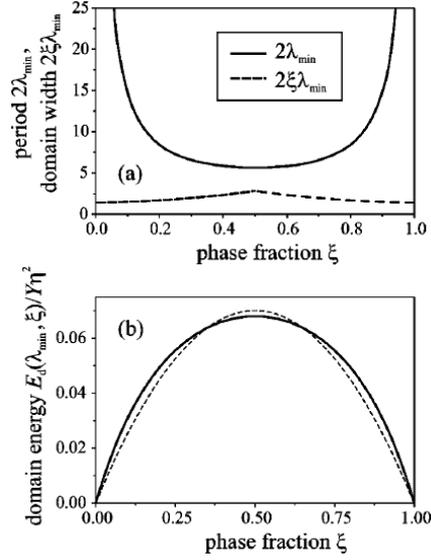


FIGURE 1.13 – Evolution avec la fraction ξ de phase α de : (a) la période/épaisseur des domaines $2\lambda_{\min}$ minimisant l'énergie élastique (trait plein) et la largeur des domaines, égale à $2\xi\lambda_{\min}$ pour $\xi < 1/2$ et égale à $2(\xi - 1)\lambda_{\min}$ pour $\xi > 1/2$ (trait pointillé) ; (b) l'énergie élastique calculée pour $2\lambda_{\min}$ (trait plein) et sa courbe d'ajustement parabolique (trait pointillé) [34].

et f_β , et des densités d'énergie élastique E_α et E_β :

$$f = \xi(f_\alpha + E_\alpha) + (1 - \xi)(f_\beta + E_\beta) \quad (1.4)$$

Auto-organisation des phases α et β en domaines périodiques

En considérant un réseau périodique (la période divisée par l'épaisseur est notée 2λ) de domaines élastiques alternant les deux phases α et β [Fig. 1.12(b)], Kaganer *et al.* ont montré que la densité d'énergie libre [Eq. (1.4)] de MnAs doit tenir compte d'un terme d'énergie élastique E_d tel que :

$$E_d = 2Y\eta^2 \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ 1 - \frac{2\lambda}{\pi n} \left[1 - \exp\left(\frac{-\pi n}{\lambda}\right) \right] \right\}^2 \frac{\sin^2(\pi n \xi)}{(\pi n)^2} \quad (1.5)$$

où Y est le module d'Young de MnAs. Cette énergie, dépendant de la période et de la fraction ξ de la phase α [Fig. 1.13(b)], présente un minimum pour $2\lambda_{\min}$, si l'on considère ξ constant. Cette période des domaines rapportée à l'épaisseur de MnAs a été calculée en fonction de ξ [Fig. 1.13(a), trait continu]. Le résultat de ce calcul montre un minimum de cette période de 5,65 (en unité d'épaisseur) pour $\xi = 0,5$ c'est-à-dire pour des domaines α et β de même largeur.

La période des domaines dépend aussi de l'épaisseur de la couche considérée. En effet, cette période minimisant l'énergie élastique du système est le résultat de la compétition entre deux phénomènes : l'interaction domaine/substrat et l'interaction domaine α /domaine β . Le premier tend à minimiser la taille des domaines car, pour des domaines de même largeur, plus les domaines sont fins et plus la contrainte est localisée à l'interface. En revanche, si les domaines sont trop fins, ceux-ci ne permettent plus la relaxation des contraintes de chaque phase, indépendamment l'une de l'autre. Dans ce cas, la modulation élastique qui est nécessaire à la minimisation de l'énergie du système ne peut pas avoir lieu. En revanche, des domaines suffisamment larges permettent la relaxation des contraintes dans chacune des phases, indépendamment les unes des autres. L'équilibre entre ces deux contributions explique la dépendance de la période des domaines avec l'épaisseur de la couche mince (Fig. 1.12).

1.3.3 Propriétés magnétiques

Nous avons vu précédemment que MnAs, dans son état massif, présente une forte anisotropie magnéto-cristalline dans le plan contenant la base de l'hexagone. La Fig. 1.14(a) montre la variation de l'aimantation de MnAs/GaAs(001) avec un champ magnétique appliqué dans les directions [100], [001] et [120] de MnAs, dans la phase α (à 17 °C). Ces mesures, réalisées avec un dispositif supraconducteur à interférence quantique (SQUID), indiquent que l'axe de facile aimantation est selon [100] MnAs, c'est-à-dire dans la direction perpendiculaire aux bandes. Dans cette direction, l'aimantation est saturée pour un champ magnétique appliqué environ 20 et 10 fois plus faible que lorsqu'il est dirigé selon [001] et [120] respectivement. Cela signifie que l'axe de difficile aimantation est parallèle aux bandes (selon [001]), direction selon laquelle l'aimantation est saturée pour un champ d'environ 2 T. Par contre, l'aimantation est saturée pour un champ d'environ 1 T lorsque ce dernier est appliqué selon la direction hors-plan de croissance [120], qui peut être alors qualifiée d'axe intermédiaire.

L'évolution de l'aimantation de MnAs(60 nm)/GaAs(001) avec la température, durant la coexistence de phases, a été mesurée avec un SQUID [Fig. 1.14(b)] [36]. Ces résultats montrent, qu'à l'échauffement, l'aimantation rémanente selon l'axe facile a varie d'environ 650 kA/m à 0 °C (phase α seule) à environ 0 kA/m à 45 °C (phase β) [Fig. 1.14(b)-carrés vides]. Cette diminution de l'aimantation dans les couches minces de MnAs a pour origine trois phénomènes distincts : la diminution de l'aimantation de la phase α avec la température ; l'apparition prématurée (par rapport à l'état massif de MnAs) de la phase β PM suivie de l'augmentation de la fraction de cette phase au détriment de la phase α FM ; une composante de l'aimantation selon [120].

La Fig. 1.14(b) montre la mesure de la composante de l'aimantation rémanente de MnAs hors du plan de croissance, selon [120] (ronds pleins). L'aimantation selon [120] vaut environ 30 kA/m, cette valeur augmentant de quelques kA/m entre 25 et 40 °C, puis diminuant jusqu'à 20 kA/m au delà de 40 °C. La composante de

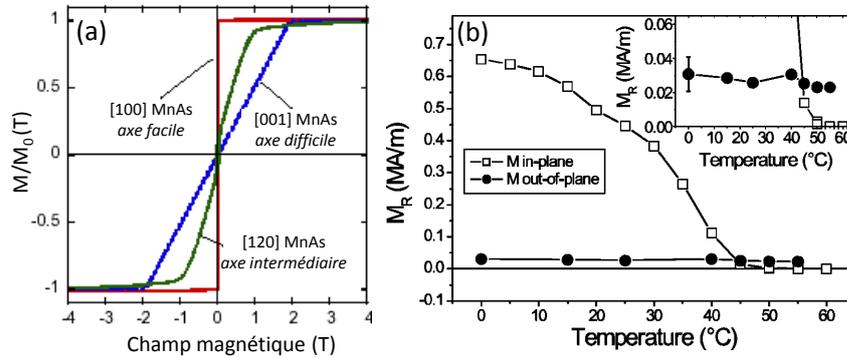


FIGURE 1.14 – (a) Cycles d’hystérésis mesurés pour MnAs(250 nm)/GaAs(001), à 17 °C, avec un champ appliqué dans les directions [100] (rouge), [001] (bleu) et [120] (vert) [35]. (b) Evolution de l’aimantation rémanente de MnAs(60 nm)/GaAs(001) avec la température, mesurée avec un dispositif supraconducteur à interférence quantique (SQUID), selon [100] (carrés) et selon [120] (ronds) [36].

l’aimantation selon [120], présente jusqu’à 55 °C, a été attribuée par Ney *et al.* à de petits grains magnétiques résiduels, ce qui est en bon accord avec leurs mesures de microscopie à force magnétique (MFM) [36]. Par ailleurs, une autre contribution de l’aimantation selon [120] a été attribuée à l’anisotropie de forme des domaines α qui évolue avec la température. Des mesures de diffusion magnétique des rayons X et des calculs de l’énergie d’anisotropie magnétique de forme ont montré qu’un changement de configuration des domaines est énergétiquement favorable lors de la transition de phase, passant d’un domaine orienté dans le plan à trois domaines hors plan et ce, pour un rapport largeur/hauteur inférieur à 3 (c’est-à-dire pour des températures comprises entre environ 25 °C et 40 °C) [37]. Ce résultat est donc en bon accord avec l’augmentation de la composante de l’aimantation selon [120] de la Fig. 1.14(b), dans cette gamme de température. Cependant, l’aimantation de MnAs/GaAs(001) provient principalement de sa composante selon a pour des températures inférieures à environ 25 °C. Notons que par la suite, les calculs de champs magnétiques seront effectués en faisant l’approximation d’un système de MnAs/GaAs(001) aimanté de manière homogène selon a (paragr. 3.4).

La particularité de MnAs/GaAs(001) est la corrélation entre la modulation de la surface et les propriétés magnétiques du système. En effet, il a été démontré par différentes techniques expérimentales [microscopie à force magnétique (MFM) [38, 27], microscopie de photoémission d’électrons avec des rayons X (X-PEEM) [39]] que la partie la plus haute (resp. basse) de la modulation de la surface correspond à la phase FM α (resp. β). Nos mesures rapportées dans la Fig. 1.15 illustrent cette correspondance par la comparaison d’images montrant d’une part [Fig. 1.15(a)] la morphologie de la surface [images obtenues par microscopie d’électrons de basse énergie (LEEM)], et d’autre part [Fig. 1.15(b)],

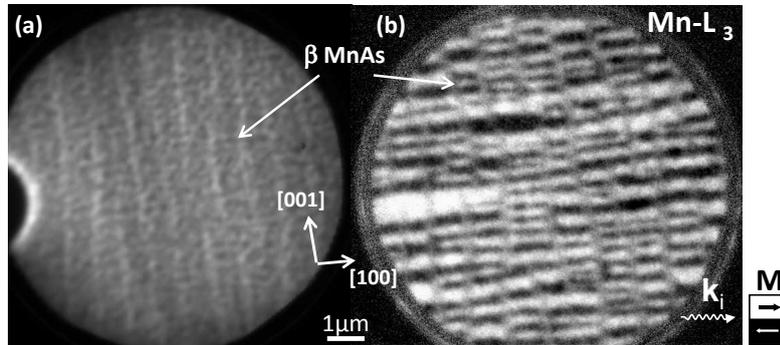


FIGURE 1.15 – (a) Image LEEM de la topographie de Fe(4 nm)/MnAs (140 nm)/GaAs(001). (b) Image X-PEEM des domaines magnétiques du même échantillon, obtenue au seuil d'absorption L_3 de Mn, à la température ambiante, avec le plan d'incidence contenant l'axe de facile aimantation $[100]$ MnAs.

l'orientation des domaines magnétiques (image X-PEEM). Le X-PEEM nous a permis d'imager les domaines FM en utilisant des rayons X de polarisation circulaire, avec le plan d'incidence (plan contenant le vecteur d'onde incident k_i et la normale à la surface) contenant l'axe de facile aimantation de MnAs ($[100]$ MnAs). Les zones grises correspondent à la phase PM β ; celles en blanc et noir, visibles dans chaque bande FM α , indiquent que les domaines magnétiques sont orientés parallèlement et antiparallèlement à l'hélicité des photons. La taille des domaines évolue avec la température puisque les bandes α s'élargissent lors de l'échauffement de l'échantillon. L'influence de leur taille (soit l'influence de l'épaisseur et de la température) sur la valeur du champ démagnétisant sera discutée dans le parag. 3.4.2. Nous verrons alors dans quelle mesure le champ de fuite généré par ces domaines peut être utilisé pour renverser l'aimantation d'une couche de fer.

Chapitre 2

Techniques expérimentales

Au cours de ce travail, trois types de techniques expérimentales ont été mises en œuvre :

- L'épitaxie par jets moléculaires, pour la croissance des échantillons Fe/MnAs/GaAs(001).
- La microscopie, qui nous a permis d'observer les surfaces obtenues (microscopie à effet tunnel) et d'étudier l'interface Fe/MnAs et la structure cristalline des différentes couches (microscopie électronique en transmission).
- Des techniques de spectroscopie dans le domaine des rayons X pour sonder la structure électronique (spectroscopie de photoélectrons induits par rayons X) et les propriétés magnétiques (microscopie de photoélectrons émis par rayons X et diffusion magnétique résonante des rayons X).

2.1 Epitaxie par jets moléculaires

Ce n'est qu'à la fin des années soixante que la croissance de matériaux par épitaxie par jets moléculaires (MBE, pour molecular beam epitaxy) a été mise en œuvre, principalement grâce aux progrès des techniques d'ultra-vide. La MBE est une technique de croissance consistant à évaporer des atomes en direction d'un substrat mono-cristallin. La croissance lente du cristal, dont la vitesse de dépôt est inférieure à une monocouche atomique par seconde, permet le contrôle de l'épaisseur à la monocouche près. Des orientations bien définies sont obtenues entre les directions cristallographiques du cristal obtenu par dépôt et du substrat, ce qui est désigné par le terme *épitaxie*.

Principe

Pour réaliser une croissance par MBE, les constituants élémentaires sont évaporés à partir de cellules à effusion, dites cellules de Knudsen (Fig. 2.1). Leur température est contrôlée par des thermocouples et portée à une valeur de consigne.

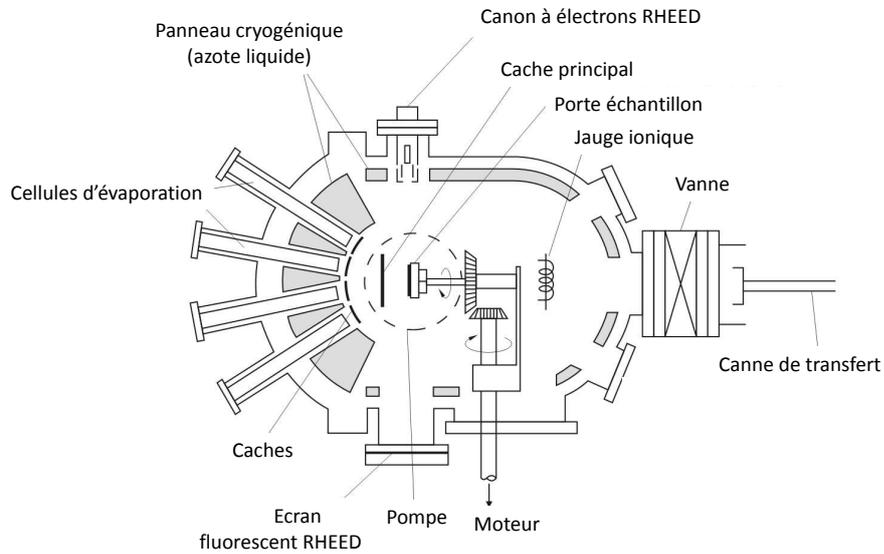


FIGURE 2.1 – Bâti de croissance d'éléments III-V par épitaxie par jets moléculaires, disposant de la technique d'analyse *in situ* de diffraction d'électrons à haute énergie.

Les charges des cellules sont chauffées par effet Joule jusqu'à sublimation, donnant lieu à des jets atomiques ou moléculaires (Ga ou As₄ par exemple). La température des cellules contrôle les flux atomiques et par conséquent les vitesses d'intégration des différents éléments. Ces flux permettent la formation de couches minces sur le substrat, à la température T_{sub} . Les grandeurs thermodynamiques intervenant lors de la croissance sont la température du substrat et la pression partielle des espèces incidentes. Les conditions d'ultra-vide ($\approx 10^{-10}$ Torr) permettent d'obtenir des surfaces ne présentant que très peu d'impuretés superficielles. Lorsque les flux atomiques et moléculaires atteignent le substrat, différents processus peuvent avoir lieu :

- L'adsorption atomique ou moléculaire.
- La dissociation éventuelle des molécules.
- La diffusion des atomes arrivant sur la surface.
- La fixation des atomes sur des sites cristallins (lacunes, bords de marches, etc.) ou la nucléation de nouveaux îlots avec des atomes déjà présents sur la surface.

L'adsorption peut être décrite par deux processus : la physisorption et la chimisorption. On parle de physisorption lorsque les atomes déposés sur la surface subissent une force attractive de Van der Waals. Dans ce cas, il n'y a pas de transfert

d'électron entre les atomes adsorbés et ceux du substrat. En revanche, la chimisorption fait intervenir des recouvrements d'orbitales atomiques entre les atomes adsorbés et ceux du substrat. Lorsque l'on fait croître, par MBE (ou autre) un cristal borné par une face de haute symétrie [(001) dans notre cas], les adatoms arrivent sur la surface et diffusent plus ou moins lentement (selon la valeur de T_{sub}). L'obstacle qui arrête un adatome en train de diffuser peut être un autre adatome. Les deux adatoms forment alors une paire qui est à peu près stable si la température est suffisamment basse. D'autres adatoms vont ensuite s'ajouter à la paire qui formera le noyau d'une terrasse. D'autres terrasses se forment et coalescent au bout d'un certain temps, formant une nouvelle couche : il s'agit du mode de croissance couche par couche, qui est le mode le plus généralement obtenu. A haute température, la croissance peut parfois s'opérer selon un mode dit d'écoulement stable des marches. Dans ce cas, les adatoms vont directement se fixer sur les bords de marches atomiques, la présence de celles-ci étant inévitable, quelle que soit la qualité de la surface.

Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental du groupe de l'INSP "Croissance et propriétés de systèmes hybrides en couches minces" est constitué de différents éléments permettant à la fois la croissance et l'analyse de systèmes variés tels que des métaux ou bien des semi-conducteurs constitués d'éléments III-V, II-VI ou à base d'oxydes. Chaque élément du dispositif est sous ultra-vide et les différents bâtis sont interconnectés par un tunnel central permettant le transfert des échantillons entre chacune des chambres de croissance ou d'analyse sous ultra-vide (Fig. 2.2).

Pour le système Fe/MnAs/GaAs(001), les éléments utilisés ont été :

- la chambre de préparation pour le dégazage du substrat GaAs ;
- le bâti de croissance III-V (II-VI) pour l'élaboration des couches minces de MnAs (de fer et du recouvrement par ZnSe) ;
- les chambres d'analyse de microscopie à effet tunnel et de photoémission pour la caractérisation de surface du système.

2.2 Techniques de microscopie

2.2.1 Microscopie à effet tunnel

La microscopie à effet tunnel (STM) est une technique de microscopie en champ proche, consistant à balayer une pointe extrêmement fine (terminée par quelques atomes seulement) à moins d'un nanomètre de la surface à étudier. La restitution d'une image de la surface est faite en mesurant l'intensité d'une interaction entre la pointe et la surface. Dans le cas du microscope à effet tunnel, c'est le courant tunnel entre la pointe et la surface qui est mesuré. Ce microscope a été

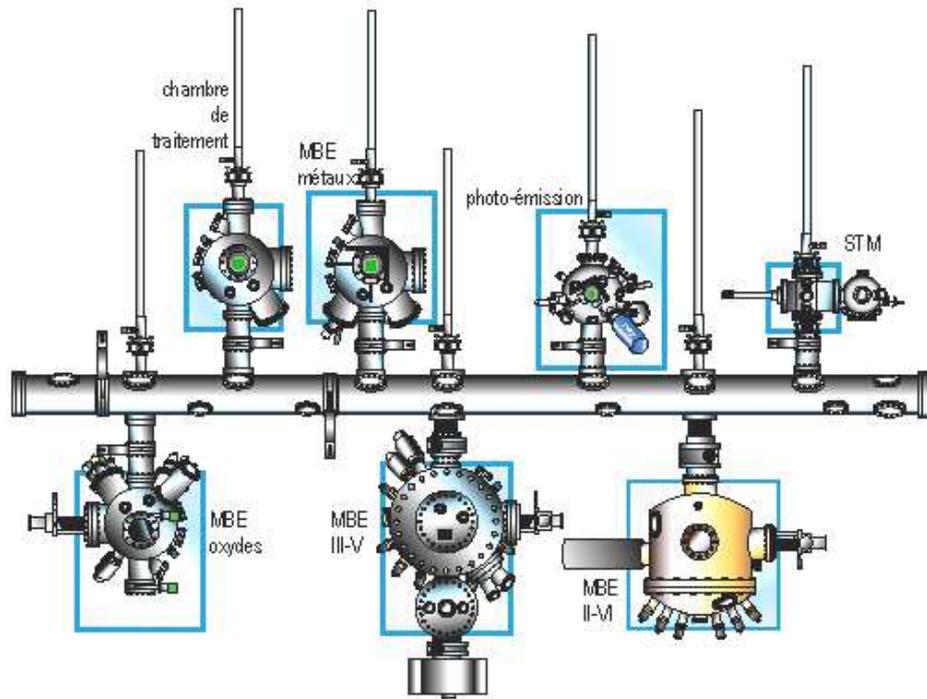


FIGURE 2.2 – Illustration du dispositif expérimental agencé et utilisé par le groupe de l’INSP “Croissance et propriétés de systèmes hybrides en couches minces”.

conçu en 1981 par G. Binnig et H. Rohrer, qui ont obtenu en 1986 le prix Nobel de physique pour cette réalisation.

L’effet tunnel

L’effet tunnel est un phénomène physique typiquement quantique. En effet, en mécanique classique, si une particule n’a pas une énergie supérieure à celle d’une barrière de potentiel, elle ne pourra jamais franchir cette barrière. En mécanique quantique, cette barrière de potentiel a une probabilité non nulle d’être franchie même si la particule n’a pas l’énergie suffisante pour atteindre son sommet. A l’intérieur de la barrière, la fonction d’onde de la particule s’atténue de manière exponentielle (Fig. 2.3) : la probabilité de présence de la particule à la sortie de la barrière dépend donc de la largeur de celle-ci.

L’effet tunnel peut avoir lieu pour les électrons libres d’un conducteur, si l’on amène deux électrodes de métal à proximité l’une de l’autre sans qu’elles ne se touchent. Pour une distance entre les deux conducteurs de moins de 1 nm, les électrons qui se trouvent dans des états proches du niveau de Fermi d’un conducteur peuvent passer, par effet tunnel, dans les états vides de l’autre conducteur en traversant la barrière de potentiel (Fig. 2.3). Si une différence de potentiel (V_{bias}) est

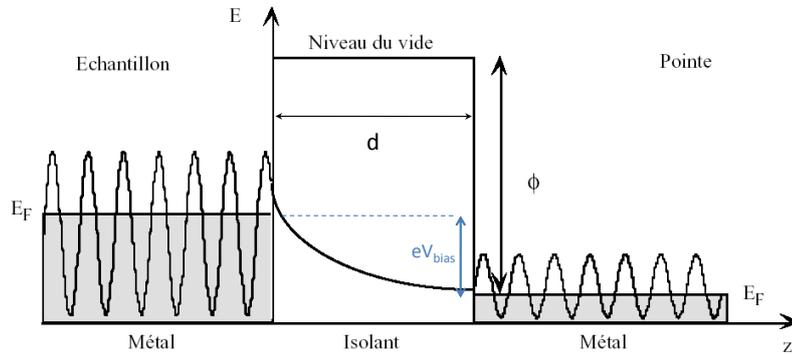


FIGURE 2.3 – Pour deux métaux séparés par un isolant, une différence de potentielle V_{bias} appliquée entre les deux électrodes donne lieu au décalage de leur niveau de Fermi, permettant l'établissement d'un courant tunnel.

appliquée entre les deux conducteurs, les niveaux de Fermi sont décalés et un courant tunnel peut être mesuré. La probabilité pour qu'un électron proche du niveau de Fermi traverse la barrière par effet tunnel est proportionnelle à la tension appliquée et dépend exponentiellement de la largeur d de la barrière de potentiel, dont le coefficient de transmission T est de la forme :

$$T \propto \exp(-2kd) \quad \text{avec} \quad k = \frac{\sqrt{2m\Phi}}{\hbar} \quad (2.1)$$

où m est la masse de l'électron et Φ le travail de sortie.

Principe de fonctionnement du STM en mode courant constant

Dans le cas d'un microscope à effet tunnel, l'une des électrodes est la pointe métallique du microscope, l'autre est l'échantillon conducteur (ou semi-conducteur) étudié. Un système d'approche permet d'amener la pointe à quelques angströms de la surface. On polarise alors la pointe par rapport à la surface en appliquant une différence de potentiel V_{bias} (de l'ordre du volt). Si la pointe est suffisamment proche de la surface, on peut mesurer un courant tunnel.

Un système électronique d'asservissement pilote le mouvement de la pointe (par l'effet piézoélectrique) dans la direction perpendiculaire à la surface, de façon à maintenir le courant tunnel entre la pointe et la surface à une valeur de consigne (Fig. 2.4). Pour obtenir une image, la surface est balayée avec la pointe grâce aux déplacements latéraux générés par l'effet piézoélectrique (Fig. 2.4). Lorsque le système détecte une augmentation du courant tunnel, il augmente la distance pointe-surface. En enregistrant la position de la pointe au cours du balayage, on obtient une nappe tridimensionnelle correspondant à un isocourant tunnel, qui représente la topographie de la surface de l'échantillon.

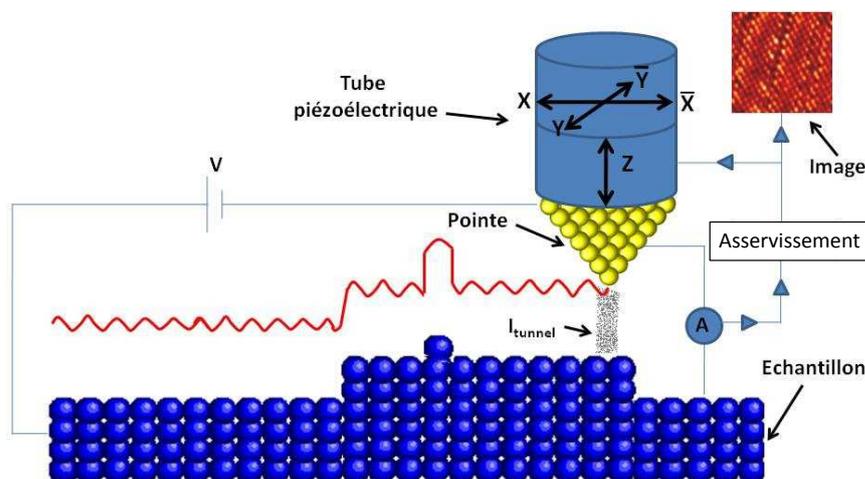


FIGURE 2.4 – Schéma d'un STM fonctionnant en mode courant constant : un système d'asservissement pilote un tube piézoélectrique portant une pointe. L'ajustement en Z (par effet piézoélectrique) permet de maintenir un courant tunnel constant entre la pointe et la surface de l'échantillon.

Microscope STM variable en température

Des images STM ont été réalisées afin de caractériser la surface de couches ultra-minces (1-5 nm) de fer épitaxiées sur MnAs/GaAs(001). Préalablement, des échantillons sans fer ont été étudiés pour suivre la morphologie de la surface au cours de la transition de phase du gabarit MnAs/GaAs(001). La dépendance de la coexistence des phases α et β avec l'épaisseur de MnAs et la température a été observée par STM (VT-STM Omicron Nanotechnology) sous ultra-vide. Les échantillons ont donc pu être préservés de toute contamination, depuis leur croissance jusqu'à leur caractérisation. Bien que le STM utilisé soit lié à une structure de masse importante (Fig. 2.2) et soumis à certaines vibrations, celles-ci ont pu être réduites grâce à un système d'amortissement par courant de Foucault.

Par ailleurs, un cryostat ainsi que des supports chauffants solidaires du porte-échantillons nous ont permis d'obtenir des images à différentes températures. Nos images ont été obtenues en variant la température de 0 °C à 60 °C, couvrant largement la transition de phase α - β de MnAs.

Les images ont été réalisées en balayant la pointe en mode courant constant (de l'ordre de 1 nA), sur des distances de plusieurs μm pour la caractérisation des bandes α et β (paragr. 3.2) et à l'échelle du nanomètre pour l'étude des monticules présents à la surface de MnAs (paragr. 3.3). Ces mesures ont été réalisées en appliquant une différence de potentiel d'environ 1 V entre l'échantillon et la pointe. Pour toutes les images STM présentées dans ce mémoire, la tension (positive) a été appliquée à l'échantillon ce qui signifie que les électrons tunnel traversent la barrière de potentiel de la pointe vers les états vides de la surface de l'échantillon.

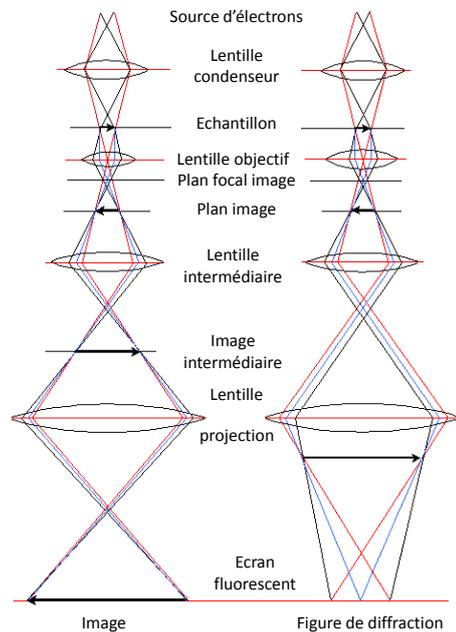


FIGURE 2.5 – Schéma optique permettant la formation d'une image TEM en mode image (à gauche) et en mode diffraction (à droite).

Après l'acquisition, les images sont analysées à l'aide du logiciel de traitement d'images WSxM [40] qui permet notamment de calculer la rugosité moyenne de la surface, de tracer des profils, et de déterminer les périodes caractérisant la surface par transformée de Fourier rapide et par le calcul de fonctions d'autocorrélation.

2.2.2 Microscopie électronique en transmission

Microscopie électronique en transmission

La microscopie électronique en transmission (TEM) consiste à placer un échantillon sous un faisceau d'électrons, puis à projeter son image sur un écran fluorescent pour transformer l'image électronique en une image optique. La TEM permet d'obtenir des images dont la résolution est de l'ordre de l'angström. L'amélioration de la résolution obtenue par TEM, comparée à celle obtenue par microscopie optique classique, est due à la faible longueur d'onde des électrons. En effet, alors que la longueur d'onde de lumière visible est comprise entre 400 et 800 nm, la longueur d'onde associée à des électrons de quelques centaines de keV peut atteindre quelques picomètres. Notons que la résolution obtenue en TEM n'atteint pas le picomètre à cause des aberrations de l'optique électronique.

Durant le processus de formation d'une image obtenue par TEM (Fig. 2.5), les électrons sont :

- arrachés d'un filament par effet thermoionique ;
- accélérés dans un champ électrique par l'application d'une tension de l'ordre de 100 kV ;
- focalisés sur l'échantillon par un système de lentilles électromagnétiques (lentille condenseur) ;
- transmis et diffusés (diffractés dans le cas d'un cristal) à travers l'échantillon si celui-ci est suffisamment mince (de 10 à 100 nm d'épaisseur) ;
- focalisés par la lentille objectif, dont les caractéristiques sont déterminantes pour la résolution de l'image finale ;
- projetés par un système de lentilles électromagnétiques (lentille projection) sur un écran fluorescent afin d'obtenir une image optique.

Le système de projection est composé de lentilles permettant un agrandissement de l'image allant de $\times 80$ à $\times 300\,000$.

Dans le cas d'un échantillon cristallin, la microscopie électronique en transmission offre la possibilité d'obtenir des images en mode diffraction ou en mode image. Le mode diffraction (resp. image) est réalisé en imageant le plan focal image (resp. le plan image) de la lentille objectif. Le passage d'un mode à l'autre se fait simplement en changeant la tension dans les lentilles électromagnétiques. Le mode image peut être obtenu en champ clair ou en champ sombre. Pour cela, un diaphragme est placé dans le plan focal image de la lentille objectif et permet de sélectionner soit le faisceau transmis seulement (champ clair), soit un faisceau diffracté particulier (champ sombre). L'image obtenue en champ clair, formée par les électrons non diffractés peut être obtenue sans diaphragme. Dans ce cas, le contraste de l'image peut provenir de l'épaisseur de l'échantillon (les zones sombres correspondant aux zones les plus épaisses) mais aussi des éléments plus ou moins lourds puisque la probabilité de diffusion des électrons par un atome dépend du numéro atomique Z (zones claires obtenues pour Z faible).

On peut aussi mentionner la possibilité d'obtenir des images TEM à haute résolution, issues de l'interférence entre un faisceau d'électrons diffractés et un faisceau transmis en ligne droite.

Dans cette étude, des images TEM obtenues en mode image (champ clair) ont permis de déterminer l'épaisseur des couches de fer et de MnAs, et d'observer l'interface entre ces deux couches. L'analyse cristallographique a été faite à partir d'images obtenues en mode diffraction. La détermination des distances inter-réticulaires de MnAs et du fer (par l'application de la loi de Bragg) nous a permis d'indexer les tâches observées sur les figures de diffraction. Nous avons pu ainsi montrer l'épitaxie de MnAs/GaAs(001) et celle du fer sur MnAs/GaAs(001).

Perte en énergie des électrons

Certains électrons perdent de l'énergie lors leur diffusion inélastique. Il est possible de détecter les électrons ayant subi une perte d'énergie donnée ΔE . Ces pertes d'énergie correspondent à l'excitation des niveaux atomiques profonds (K , L , etc.). Le spectre de perte d'énergie d'électrons (EELS) renseigne donc sur la composition de l'échantillon, ainsi que sur sa structure électronique et atomique.

Par ailleurs, il est possible de réaliser des images à partir d'électrons ayant perdu une certaine quantité d'énergie. Une telle image, dite filtrée en énergie (EF-TEM), est obtenue en plaçant une fente de sélection en énergie dans le plan de l'image formée par le spectromètre. Une caméra CCD, placée après le spectromètre et le détecteur, est alors nécessaire pour visualiser l'image formée. Celle-ci montre des zones claires, correspondant aux parties de l'échantillon diffusant les électrons avec la perte d'énergie choisie. Les images EFTEM sont donc des images montrant la composition chimique et la distribution spatiale des éléments constituant l'échantillon. Ainsi, en filtrant les énergies aux seuils d'absorption L_3 de Fe (707 eV) et de Mn (640 eV), cette technique d'imagerie nous a permis de visualiser l'interdiffusion entre Fe et MnAs.

2.3 Techniques de spectroscopie

Les mesures spectroscopiques présentées dans ce travail ont été réalisées en utilisant des rayons X, permettant dans notre cas de sonder les niveaux de cœur $2p$ de Fe, Mn et As.

En préambule de la présentation des techniques spectroscopiques utilisées pour étudier les propriétés du système Fe/MnAs/GaAs(001), rappelons que dans le cas non relativiste, l'opérateur hamiltonien d'un électron dans un champ électromagnétique contient les termes (en laissant de côté d'autres termes comme le potentiel atomique) :

$$\frac{1}{2m} (\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2 = \frac{p^2}{2m} - \frac{q}{m} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \frac{q^2}{2m} A^2 \quad (2.2)$$

où \mathbf{A} est le potentiel vecteur du champ [décrit dans la jauge de Coulomb ($\text{div } \mathbf{A} = 0$)], \mathbf{p} est l'impulsion de l'électron, q et m sont respectivement la charge et la masse de l'électron. L'équation (2.2), valable pour des énergies de photons faibles par rapport à l'énergie de masse de l'électron, fait intervenir un terme en p^2 (énergie cinétique de l'électron) et les termes décrivant l'interaction entre les rayons X et l'électron : $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}$ et A^2 .

En considérant une onde électromagnétique de pulsation ω et de vecteur d'onde \mathbf{k} , les équations de Maxwell et le traitement quantique de la lumière [41] conduisent à l'expression du potentiel vecteur :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}} \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 V \omega_{\mathbf{k}}}} \boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{k}} \{a_{\mathbf{k}} \exp[-i(\omega_{\mathbf{k}} t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] + \text{c.c.}\} \quad (2.3)$$

où $a_{\mathbf{k}}$ et $a_{\mathbf{k}}^+$ sont les opérateurs de création et d'annihilation de photons, où ϵ est le vecteur unitaire de la polarisation de la lumière, et où V est le volume du système. L'interprétation physique de l'Eq. (2.2) indique que le terme en $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}$ correspond à l'absorption (terme en $a_{\mathbf{k}}^+$) et à l'émission (terme en $a_{\mathbf{k}}$) d'un photon. Le terme en A^2 fait intervenir un terme en $a_{\mathbf{k}}a_{\mathbf{k}}^+$, correspondant à la disparition puis à la création d'un photon, décrivant la diffusion Thomson. Ces termes d'interaction entre les rayons X et la matière sont considérés comme des perturbations de l'hamiltonien de l'électron.

Au premier ordre de la théorie des perturbations, le terme en A^2 de l'Eq. (2.2) est négligeable devant le terme en $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}$. La probabilité de transition par unité de temps $\Gamma_{i,f}$ d'un état initial $|i\rangle$ (d'énergie E_i) vers un état final $|f\rangle$ (d'énergie E_f) est donnée par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma_{i,f} = \frac{2\pi}{h} |\langle f | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} | i \rangle|^2 \delta(h\nu - E_f + E_i) \quad (2.4)$$

Outre la conservation de l'énergie $\delta(h\nu - E_f + E_i)$, le moment cinétique est conservé, impliquant certaines restrictions (règles de sélection) lors d'une transition électronique. Dans l'approximation dipolaire électrique, les règles de sélection sont : $\Delta l = \pm 1$, $\Delta j = 0, \pm 1$, $\Delta s = 0$ et $\Delta m = 0, \pm 1$. La dernière de ces règles dépend de la polarisation du champ électrique de la lumière : $\Delta m = 0$ pour une polarisation linéaire selon l'axe de quantification ; $\Delta m = +1$ pour une polarisation circulaire gauche et $\Delta m = -1$ pour une polarisation circulaire droite, pour des photons se propageant dans la direction de quantification. Cette dépendance en polarisation des transitions dipolaires est à l'origine du dichroïsme magnétique. Nous verrons que cet effet est utilisé pour obtenir un contraste magnétique par microscopie par photoémission d'électrons par rayons X (paragr. 2.3.3).

2.3.1 Spectroscopie de photoélectrons induits par rayons X

La spectroscopie de photoélectrons induits par rayons X (XPS) consiste à exciter par du rayonnement monochromatique les atomes d'un échantillon et à détecter les électrons émis, ou photoélectrons. Cette spectroscopie est sensible aux propriétés électroniques et chimiques des matériaux.

Principe

L'interaction principale entre les rayons X et la matière est l'effet photoélectrique, au cours duquel un atome absorbe un photon d'énergie $h\nu$ et émet un électron (Fig. 2.6). Si E_l est l'énergie de liaison de l'électron, l'énergie cinétique E_c de l'électron émis est donnée par la relation de la conservation de l'énergie :

$$h\nu = E_c + E_l + \Phi_{\text{éch}} \quad (2.5)$$

où $\Phi_{\text{éch}}$ est le travail de sortie de l'échantillon. Connaissant $h\nu$ et $\Phi_{\text{éch}}$, l'analyse de l'énergie E_c permet de déterminer E_l . L'énergie de liaison d'un électron est propre

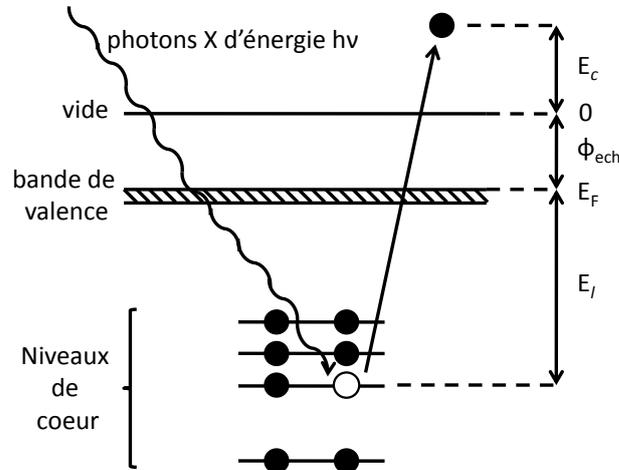


FIGURE 2.6 – Principe de la spectroscopie de photoélectrons par rayons X.

à l'élément et fait de la XPS une technique sensible à la composition chimique des matériaux. La XPS est aussi sensible à l'environnement chimique des atomes car l'énergie des niveaux électroniques dépend de cet environnement. Dans notre cas, cette technique a été utilisée afin de détecter l'interdiffusion entre le Fe/MnAs.

Le transport vers le vide d'un photoélectron (créé dans un solide) est limité par la distance moyenne λ qu'il peut parcourir avant une collision inélastique, appelée libre parcours moyen. L'intensité des pics de photoémission dépend donc de la profondeur d'émission d selon la loi d'atténuation :

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{d}{\lambda \cos \theta}\right) \quad (2.6)$$

où I est l'intensité mesurée, I_0 l'intensité du signal, d la profondeur et θ l'angle entre la direction du photoélectron et la normale à la surface. Le libre parcours moyen limite donc la profondeur qu'il est possible de sonder par XPS [Fig. 2.7(b)]. Il dépend essentiellement de l'énergie cinétique [Fig. 2.7(a)] et reste inférieur à environ 20 Å dans la gamme d'énergie usuellement utilisée. La XPS est donc une technique d'analyse de surface.

Expériences réalisées pour Fe/MnAs

Les mesures XPS nécessitent une source de rayons X pour exciter les atomes de l'échantillon. Les spectres XPS ont été obtenus avec la raie $K\alpha$ ($h\nu = 1486,6$ eV) d'une source d'aluminium non monochromatique. Un analyseur électrostatique hémisphérique a permis de filtrer l'énergie cinétique des photoélectrons.

Après avoir contrôlé la propreté de la surface de l'échantillon en mesurant les spectres XPS des niveaux de coeur C 1s et O 1s, nous avons mesuré les spectres 2p

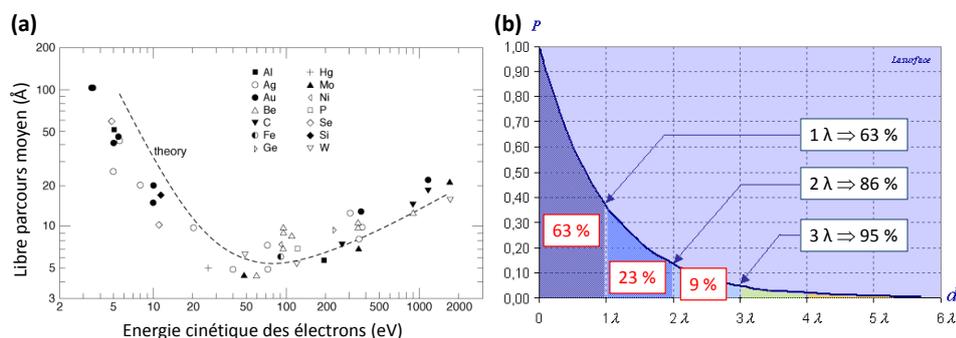


FIGURE 2.7 – (a) Evolution du libre parcours moyen λ des électrons avec leur énergie cinétique E_c . (b) Probabilité P pour qu'un électron de profondeur d atteigne la surface d'un solide. Le pourcentage d'électrons provenant d'une profondeur inférieure à d est obtenu en intégrant P entre 0 et d .

de Fe, Mn et As ; dans un premier temps pour MnAs seul (spectre de référence), puis pour différents recouvrements du fer : 2 nm, 5 nm et 8 nm.

L'analyse des spectres ainsi obtenus a été réalisée après la soustraction du fond continu dû aux électrons secondaires selon la méthode proposée par Shirley [42], considérant qu'à une énergie donnée, le fond continu est proportionnel à l'intensité intégrée de l'ensemble des photoélectrons situés aux énergies cinétiques immédiatement supérieures. Pour détecter une éventuelle interdiffusion entre le fer et MnAs, nous avons porté notre attention sur :

- la forme des pics $2p$ de Mn, As et Fe, afin de détecter un éventuel changement d'environnement chimique de ces atomes lors des trois recouvrements successifs de fer.
- l'intensité des pics mesurée et son évolution pour les trois recouvrements de fer. En l'absence d'interdiffusion, l'intensité devrait suivre la loi d'atténuation (2.6). Dans notre cas, $\cos \theta = 1$ car les photoélectrons analysés sont ceux émis dans la direction normale à la surface de l'échantillon.

2.3.2 Techniques de mesures magnétiques : utilisation du rayonnement synchrotron

Les sources de rayonnement synchrotron, outre un flux de photons très important, offrent une accordabilité en énergie et une polarisation des photons, ce qui a permis de développer de nouvelles techniques de caractérisation spectroscopique et magnétique des matériaux. L'énergie des photons, pouvant être accordée aux seuils d'absorption d'éléments spécifiques, permet d'obtenir une sélectivité chimique et de discriminer, dans des systèmes multicomposants, les propriétés relatives à chaque élément séparément. La possibilité de disposer de rayonnements

polarisés a mené au développement des techniques de dichroïsme magnétique, d'abord dans l'absorption des rayons X (XMCD, XMLD), puis avec des extensions aux techniques de photoémission, diffusion élastique et inélastique. Toutes ces approches permettent des études magnétiques avec une sensibilité chimique. Dans notre étude du système Fe/MnAs/GaAs(001), nous avons utilisé la diffusion magnétique résonante des rayons X et la microscopie par photoémission d'électrons avec des rayons X.

2.3.3 Microscopie par photoémission d'électrons avec des rayons X

La microscopie par photoémission d'électrons avec des rayons X (X-PEEM) consiste à former une image d'un échantillon par détection des électrons émis suite à l'absorption d'un photon. Dans le cas le plus courant, où l'on n'analyse pas l'énergie des photoélectrons, l'image est formée principalement par les électrons secondaires. L'intensité mesurée peut alors être considérée comme proportionnelle à l'absorption locale des rayons X incidents. Un premier mécanisme de contraste est lié à l'énergie des photons incidents, laquelle peut être accordée au seuil d'absorption d'un élément spécifique qui donne lieu à un contraste chimique. Nous verrons par la suite comment la polarisation des photons peut être utilisée pour induire en plus un contraste magnétique. Notons que la topographie de la surface, perturbant la trajectoire des électrons, peut être une source de contraste des images. Le libre parcours moyen des électrons photoémis fait de la X-PEEM une technique relativement sensible à la surface des échantillons.

Principe

Pour des domaines FM, le contraste magnétique obtenu par X-PEEM est issu du dichroïsme magnétique circulaire (XMCD), nécessitant l'utilisation de rayons X polarisés circulairement. Une manière intuitive de voir l'origine du dichroïsme magnétique dans les métaux de transition $3d$ est de considérer la probabilité de transition d'un électron de spin donné, induite par l'absorption d'un photon polarisé circulairement à l'énergie de l'un des deux partenaires spin-orbite du seuil $2p$ (Fig. 2.8) [44]. Une polarisation circulaire droite excite 62,5% d'électrons spin-down (37,5% d'électrons spin-up) au seuil L_3 et 75% spin-up (25% spin-down) au seuil L_2 . A chaque seuil, ces proportions sont inversées pour une polarisation circulaire gauche. On fait de plus l'hypothèse que dans le processus d'absorption, la densité d'états vides à caractère $3d$ se comporte comme un détecteur de spin, c'est-à-dire que chaque état vide à spin donné peut accueillir seulement un électron de même spin. On voit alors que si le matériau n'est pas magnétique (c'est-à-dire si la bande vide possède, pour chaque énergie, autant d'états de spin opposés), l'inversion de la polarisation de la lumière ne comporte aucune variation de la probabilité d'absorption. Mais, si les densités d'états vides spin-up et spin-down diffèrent, une inversion de l'hélicité des photons conduira à une différence d'absorption avec un signe opposé aux seuils L_2 et L_3 (Fig. 2.9).

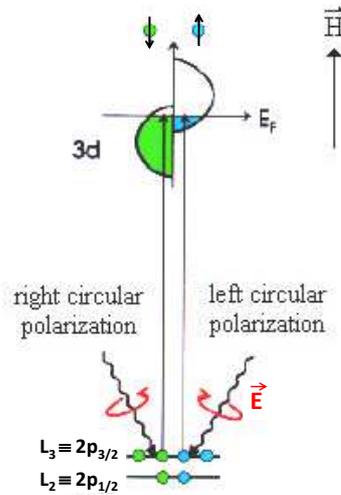


FIGURE 2.8 – Modèle décrivant le XMCD en deux étapes : 1• Des électrons des niveaux de cœur $2p$ sont excités lors de l'absorption de photons polarisés circulairement droite ou gauche. Leur polarisation en spin dépend du seuil d'absorption L_2 ou L_3 et de la polarisation des photons. 2• La bande $3d$ agit comme un détecteur de spin selon la densité des états vides spin-up et spin-down [43].

L'exploitation de l'effet de dichroïsme circulaire permet donc d'étendre de manière naturelle la technique de X-PEEM à l'imagerie magnétique. Le contraste magnétique d'une image est obtenu par soustraction de deux images mesurées soit pour des hélicités opposées de la lumière (droite et gauche), soit pour des énergies correspondantes aux deux composantes spin-orbite du seuil (L_2 et L_3), ou encore en combinant ces deux procédés. Les zones claires et sombres de l'image correspondent alors à des directions opposées de l'aimantation locale par rapport au vecteur d'onde des photons incidents. Les zones grises sont liées soit à une aimantation perpendiculaire à cet axe, soit à une aimantation nulle.

Mesures X-PEEM réalisées pour Fe/MnAs/GaAs(001)

Les images X-PEEM ont été obtenues au synchrotron Swiss Light Source (Villigen, Suisse), sur la ligne de lumière Surfaces/Interfaces Microscopy (Annexe C). Les mesures ont été réalisées en irradiant l'échantillon Fe/MnAs/GaAs(001) sur quelques dizaines de μm^2 afin d'éclairer tout le champ de vue du microscope. Les électrons photoémis ont été accélérés à -20 keV (tension appliquée à l'échantillon), collectés, multipliés puis projetés sur un écran phosphorescent afin de convertir les photoélectrons en photons (Fig. 2.10). Une caméra CCD a finalement été utilisée pour faire une image de la distribution spatiale de l'absorption de l'échantillon.

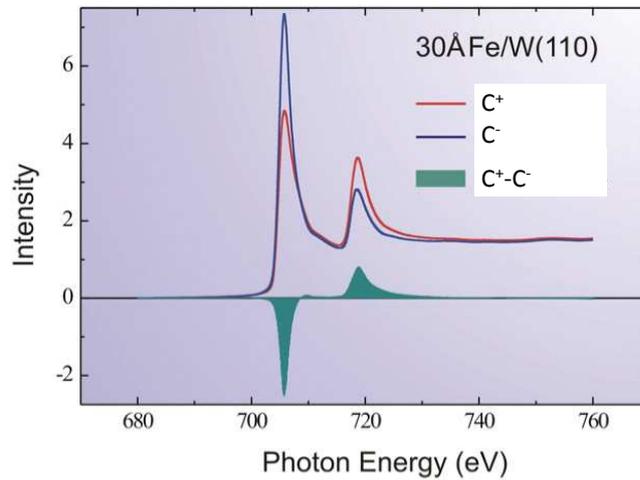


FIGURE 2.9 – Spectres d’absorption X mesurés aux seuils d’absorption $L_{2,3}$ du fer, pour le système Fe(3 nm)/W(110). Ces spectres ont été obtenus avec des rayons X polarisés circulairement droite (C^+) et gauche (C^-). Le signal dichroïque XMCD correspond à la différence des deux spectres d’absorption (aire en vert) [45].

Les mesures ont été réalisées avec l’axe de facile aimantation de MnAs (selon [100]) appartenant au plan d’incidence (plan contenant le vecteur d’onde des photons incidents et la normale à la surface) (Fig. 2.10). L’angle entre le vecteur d’onde des photons et la surface de l’échantillon est d’environ 16° , donnant un contraste magnétique des images issu principalement de l’aimantation dans le plan de la surface.

2.3.4 Diffusion magnétique résonante des rayons X

La diffusion élastique des rayons X est une technique de choix pour l’étude de l’ordre structural au niveau atomique et microscopique. Habituellement, on travaille à une énergie de photon fixe et on s’intéresse à la corrélation entre la structure de l’échantillon et la distribution angulaire de l’intensité diffusée. En introduisant l’énergie du photon comme variable de la mesure, on peut obtenir des informations sur la réponse optique de l’échantillon. Le balayage de l’énergie sur une région comprenant des résonances de cœur amène à ce que l’on appelle la diffraction anormale, ou diffusion résonante. L’aspect important à souligner est que, dans ce cas, on dispose d’une spectroscopie : les mesures d’intensité diffusée donnent des informations, non seulement sur la distribution de la densité de charge, mais aussi sur les propriétés électroniques d’un élément spécifique dans l’échantillon. Comme dans le cas de l’absorption X, l’utilisation de photons polarisés élargit le champ d’application de la technique, pour inclure notamment les études de magnétisme. On parle alors de diffusion magnétique résonante, ou XRMS (X-Ray Resonant Ma-

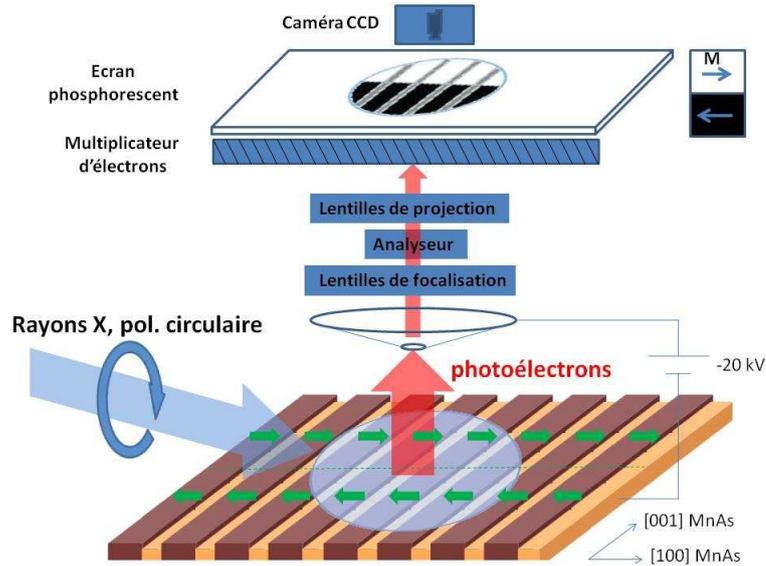


FIGURE 2.10 – Illustration des mesures X-PEEM pour Fe/MnAs/GaAs(001) montrant le principe de fonctionnement du microscope à photoémission d'électrons et la configuration dans laquelle nos mesures ont été réalisées. Les rayons X polarisés circulairement incidents sur l'échantillon à 16° par rapport à la direction [100] (axe de facile aimantation de MnAs) et perpendiculairement à la direction [001] (axe parallèle aux bandes).

netic Scattering). Les effets magnétiques sur la diffusion élastique des rayons X polarisés (diffraction de Bragg, réflectivité spéculaire ou diffusion diffuse) sont fortement renforcés en condition de résonance. Dans la suite, nous nous intéresserons aux énergies des photons correspondant aux résonances $2p \rightarrow 3d$ (seuils d'absorption $L_{2,3}$) de Fe et Mn.

La diffusion magnétique résonante

L'interaction entre les rayons X et les moments magnétiques portés par les électrons dépend de l'énergie des photons incidents. Hors résonance, cette interaction donne lieu à une diffusion magnétique de faible intensité comparée à la diffusion par la charge des électrons (diffusion Thomson). Lorsque l'énergie des photons est accordée à une résonance, une dispersion anormale apparaît. L'effet de résonance dans la diffusion magnétique a été observé pour la première fois par Namikawa *et al.* en 1985 sur du nickel ferromagnétique [46]. Ces résultats peuvent être décrits par la théorie développée par Hannon et Trammell [47, 48]. Dans une approche cinématique, l'intensité diffusée s'écrit :

$$I \propto \left| \sum_n f(\mathbf{r}_n) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_n) \right|^2 \quad (2.7)$$

où $f(\mathbf{r}_n)$ est l'amplitude de diffusion atomique au site \mathbf{r}_n et \mathbf{q} est le moment transféré :

$$\mathbf{q} = \mathbf{k}_{\text{sc}} - \mathbf{k}_{\text{in}} \quad (2.8)$$

où \mathbf{k}_{sc} et \mathbf{k}_{in} sont respectivement les vecteurs d'onde des faisceaux diffusé et incident. L'amplitude de diffusion atomique peut s'écrire comme :

$$f \approx f_0 + f' + f'' + f^{\text{mag}} \quad (2.9)$$

Le premier terme f_0 de cette expression correspond à la diffusion Thomson ; f' et f'' correspondent aux termes résonants relatifs à la dispersion et à l'absorption ; f^{mag} représente la contribution magnétique (résonante et non résonante). Au voisinage d'un seuil d'absorption, le terme magnétique résonant domine le terme magnétique non résonant. On peut exprimer l'amplitude de diffusion par :

$$f \simeq f_0 + f_{\text{res}} \quad (2.10)$$

où f_{res} regroupe tous les termes résonants.

Pour les transitions dipolaires, f_{res} prend la forme :

$$\begin{aligned} f_{\text{res}} = f_{E1} \propto & (\hat{\mathbf{e}}_{\text{sc}}^* \cdot \hat{\mathbf{e}}_{\text{in}}) [F_{11} + F_{1-1}] \\ & - i (\hat{\mathbf{e}}_{\text{sc}}^* \times \hat{\mathbf{e}}_{\text{in}}) \cdot \mathbf{m} [F_{11} - F_{1-1}] \\ & + (\hat{\mathbf{e}}_{\text{sc}}^* \cdot \mathbf{m}) (\hat{\mathbf{e}}_{\text{in}} \cdot \mathbf{m}) [2F_{10} - F_{11} - F_{1-1}] \end{aligned} \quad (2.11)$$

où $\hat{\mathbf{e}}_{\text{in}}$ et $\hat{\mathbf{e}}_{\text{sc}}$ sont respectivement les vecteurs unitaires de la polarisation des faisceaux incidents et diffusés, et \mathbf{m} est le vecteur unitaire de l'aimantation dans la direction de quantification. Les fonctions F_{li} sont liées directement aux sections efficaces d'absorption pour les transitions considérées, avec un changement du nombre quantique magnétique M (i) égal à -1 , 0 ou $+1$. F_{1+1} et F_{1-1} décrivent l'absorption d'un photon polarisé circulairement (hélicité positive ou négative) qui se propage le long de l'axe de quantification ; F_{10} décrit l'absorption d'un photon polarisé linéairement. Dans la suite, nous identifierons l'axe de quantification à l'aimantation de l'échantillon. Dans l'Eq. (2.11), le premier terme du membre de droite ne dépend pas de l'aimantation : il représente la contribution résonante à l'amplitude de la diffusion Thomson. Les autres termes dépendent de l'orientation relative entre l'aimantation et la polarisation des photons entrants et sortants. Le deuxième terme, lié à la différence de probabilité de transition selon la polarisation circulaire droite ou gauche des photons, n'intervient que si le coefficient $F_{11} - F_{1-1}$ est non nul. Sa dépendance linéaire en \mathbf{m} conduit à une sensibilité à l'ordre FM. Le troisième terme, quadratique en \mathbf{m} , est lié au dichroïsme magnétique linéaire en absorption. Cette contribution est toujours très faible et difficilement observable dans les systèmes métalliques $3d$ et sera donc négligée par la suite.

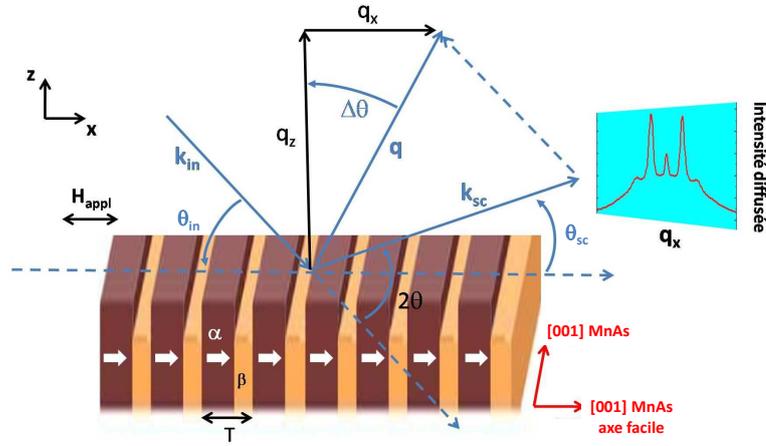


FIGURE 2.11 – Schéma de la configuration des mesures XRMS réalisées pour Fe/MnAs/GaAs(001), montrant la périodicité T des bandes α et β -MnAs, la direction du champ magnétique \mathbf{H}_{appl} , le moment transféré \mathbf{q} et ses composantes q_x et q_z . En utilisant des photons polarisés circulairement droite et gauche, les mesures XRMS sont sensibles à la composante x de l'aimantation, c'est-à-dire selon la direction de facile aimantation.

Les mesures XRMS pour le système Fe/MnAs/GaAs(001)

Les mesures consistent à détecter l'intensité diffusée pour différentes géométries. L'intensité diffusée dépend de l'énergie des photons et du moment transféré. L'intensité diffusée varie aussi selon la direction d'aimantation du matériau considéré selon l'Eq. (2.11).

On définit le plan d'incidence comme étant le plan contenant \mathbf{k}_{in} et la normale \mathbf{n} à la surface. Le plan de diffusion correspond au plan contenant les faisceaux incident et diffusé (Fig. 2.11). Quand les deux plans coïncident, on parle de géométrie coplanaire, qui est la configuration utilisée pour toutes nos mesures. Dans la phase α et jusqu'à environ 25 °C, l'aimantation de MnAs est majoritairement dans le plan de la surface et son axe de facile aimantation est selon $[100]$ MnAs (direction perpendiculaire aux bandes α et β). La plupart des mesures ont donc été réalisées avec le plan de diffusion contenant cette direction. Les composantes du moment transféré parallèle (q_x) et perpendiculaire (q_z) à la surface de l'échantillon peuvent être écrites comme :

$$q_x = \frac{2\pi}{\lambda} [\cos(2\theta - \theta_{\text{in}}) - \cos(\theta_{\text{in}})] \quad (2.12)$$

$$q_z = \frac{2\pi}{\lambda} [\sin(2\theta - \theta_{\text{in}}) + \sin(\theta_{\text{in}})] \quad (2.13)$$

Le système Fe/MnAs/GaAs(001) présente une modulation de surface, dépendant de la température et liée à la coexistence des phases α et β -MnAs. Nous avons

donc mesuré l'intensité diffusée afin d'obtenir des informations structurales et magnétiques en fonction de la température.

Les propriétés structurales. Les propriétés structurales de nos échantillons et particulièrement la période des bandes α et β ont été sondées en balayant l'échantillon en angle, à 2θ constant, c'est-à-dire pour une position du détecteur fixée (rocking scan). Dans cette géométrie, les rayons X sont diffractés par la présence d'une structure périodique latérale menant à la mesure de pics de Bragg, selon l'équation :

$$m\lambda = 2T \sin \theta \sin \Delta\theta \quad (2.14)$$

où m est l'ordre de diffraction, λ est la longueur d'onde des photons, T est la périodicité de la structure sondée et 2θ est l'angle de diffusion $\Delta\theta = \theta_{\text{in}} - \theta$, représentant la déviation de la condition spéculaire ($\theta_{\text{in}} = \theta_{\text{sc}}$) (Fig. 2.11).

Le système Fe/MnAs/GaAs(001) est auto-organisé périodiquement selon [100] MnAs (bandes α et β) et selon [001] MnAs (monticules). Nous avons donc réalisé des balayages en q_{\parallel} afin de détecter les pics de Bragg relatifs à ces périodicités. La position en q_{\parallel} de ces pics est donnée par :

$$q_i = \frac{2\pi}{T_i} \quad (2.15)$$

où T_i est la période sondée et i la composante x ou y selon la direction de la périodicité. Ainsi nous avons pu déterminer :

- la périodicité des bandes en effectuant des rocking scans en q_x , pour un plan d'incidence perpendiculaire à la direction des bandes (configuration de la Fig. 2.11) ;
- la périodicité des monticules par la réalisation de rocking scans en q_y , pour un plan d'incidence perpendiculaire aux monticules.

Ces mesures ont été réalisées à différentes températures pour suivre l'évolution de la modulation de la surface pendant la transition de phase α - β que l'on a pu directement corrélérer aux propriétés magnétiques du système.

Les propriétés magnétiques. L'évolution de la réflectivité spéculaire avec un champ magnétique extérieur nous a permis d'obtenir des cycles d'hystérésis. De cette manière, nous avons pu déterminer les grandeurs magnétiques caractéristiques :

- M_r/M_s , qui est le rapport entre l'aimantation rémanente (en champ nul) et l'aimantation à saturation ;
- le champ coercitif H_c , défini comme étant le champ magnétique pour lequel l'aimantation est nulle ;

- le champ saturant H_s , correspondant au champ magnétique à partir duquel l'aimantation est constante.

Les mesures magnétiques sont souvent présentées sous la forme de taux d'asymétrie : $(I - I_{\text{moy}})/I_{\text{moy}}$ pour les cycles d'hystérésis et $(I_+ - I_-)/(I_+ + I_-)$ pour les mesures d'aimantation en fonction de la température, où I est l'intensité diffusée, I_{moy} étant la valeur de la réflectivité spéculaire moyennée sur un cycle entier, I_+ et I_- étant respectivement les réflectivités mesurées pour un champ appliqué parallèlement ou antiparallèlement à l'hélicité des photons polarisés elliptiquement. Contrairement aux mesures classiques d'aimantation (SQUID, VSM), où l'aimantation mesurée provient de tout l'échantillon, la XRMS nous a permis, en mesurant l'intensité diffusée aux seuils d'absorption L_3 de Mn et de Fe, de déterminer l'aimantation de chacune des deux couches séparément. Nous avons alors pu comparer et corrélérer les propriétés magnétiques de la couche de fer à celles de MnAs.

Instrumentation

La XRMS nécessite une source de rayons X polarisés accordable en énergie ainsi qu'un instrument d'analyse permettant de faire varier les angles faisceau incident-échantillon et échantillon-détecteur. Nos mesures ont été réalisées au synchrotron ELETTRA (Trieste, Italie), sur la ligne de lumière Circular Polarization (CiPo) (Annexe C). Le monochromateur utilisé couvre la gamme d'énergie 5 - 1000 eV. Dans notre cas, l'énergie a été balayée entre environ 630 et 760 eV, incluant les seuils d'absorption L_3 de Mn (640 eV) et de Fe (707 eV).

Les mesures ont été effectuées en utilisant le réflectomètre ultra-vide IRMA [49], caractérisé par un plan de diffusion vertical. L'intensité diffusée a été détectée par une diode GaAs. Les mesures ont été effectuées en plaçant une fente verticale devant le détecteur afin de limiter l'acceptance angulaire du détecteur à environ $0,08^\circ$. Dans les cas où l'intensité mesurée était trop faible, l'utilisation d'un multiplicateur d'électrons a été nécessaire.

Nous avons réalisé des mesures XRMS en fonction de la température puisque l'auto-organisation du système étudié Fe/MnAs/GaAs (001) dépend de la température. Pour cela, un dispositif à effet Peltier, monté sur le porte-échantillon, nous a permis de faire varier la température du système entre environ -10°C et 80°C , gamme de température suffisante pour couvrir la coexistence des phases α et β -MnAs (10°C - 40°C).

Les propriétés magnétiques ont été mesurées en appliquant un champ magnétique extérieur produit par un électroaimant en fer à cheval, fixé sur le porte-échantillon (champ maximal d'environ 0,2 T). Ce champ est suffisant pour saturer l'aimantation des couches minces de MnAs et de Fe, dont les champs coercitifs sont inférieurs à 50 mT suivant l'axe de facile aimantation.

Chapitre 3

MnAs/GaAs(001) : gabarit corrélant morphologie de surface et magnétisme

Les couches minces de MnAs épitaxiées sur GaAs(001) montrent une auto-organisation des phases α et β , qui alterne ces phases sous forme de domaines périodiques. Cette coexistence de phases provoque une modulation verticale de la surface en bandes α et β , corrélées aux domaines. L'utilisation d'une telle surface comme gabarit magnétique pour un dépôt FM a été imaginée dans le but de contrôler la direction de l'aimantation de cette couche, sans appliquer de champ magnétique extérieur. Il s'agit ici d'utiliser le champ dipolaire généré par la forme des domaines de MnAs pour renverser l'aimantation d'une fine couche de fer. Il a donc été nécessaire de caractériser la surface du gabarit MnAs/GaAs(001) et d'estimer le champ de fuite généré par les domaines α -MnAs.

Tout d'abord, le protocole de croissance des échantillons sera donné. La caractérisation STM de la morphologie de la surface de MnAs sera ensuite présentée. Enfin, les calculs du champ magnétique généré par les domaines α -MnAs seront exposés. Ils permettront de déterminer les conditions optimales (température, épaisseur de MnAs) pour lesquelles le champ magnétique généré par MnAs est le plus intense et donc susceptible de renverser l'aimantation d'une couche de fer.

3.1 Croissance épitaxiale de couches minces de MnAs sur GaAs(001)

La croissance de MnAs sur GaAs(001) est réalisée par épitaxie par jets moléculaires (MBE), technique permettant l'élaboration de couches minces de haute qualité cristalline, ce qui est déterminant pour certaines propriétés magnétiques qui nous intéressent, à savoir : le champ coercitif, l'aimantation rémanente et l'anisotropie magnéto-cristalline de MnAs.

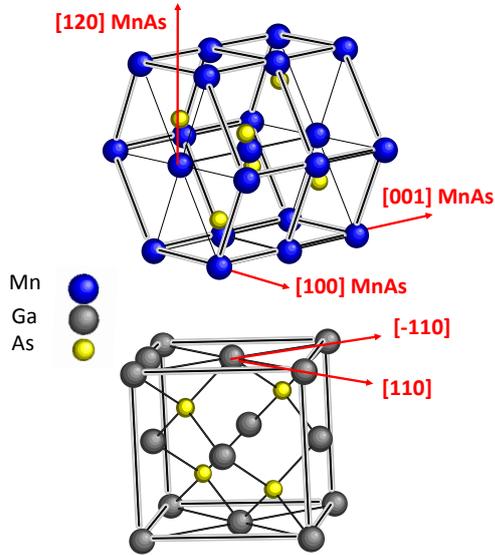


FIGURE 3.1 – Structure cristalline de MnAs/GaAs(001) et relations épitaxiales pour une croissance de type A_0 : MnAs (010) \parallel GaAs (001), [001] MnAs \parallel $[\bar{1}10]$ GaAs et [100] MnAs \parallel [110] GaAs.

Nous avons vu précédemment (paragr. 1.2.1) que cette épitaxie peut être obtenue malgré le fort désaccord de maille, avec les orientations épitaxiales (type A_0) : MnAs (010) \parallel GaAs (001), [001] MnAs \parallel $[\bar{1}10]$ GaAs et [100] MnAs \parallel [110] GaAs (Fig. 3.1). Cela est possible car l'épitaxie est réalisée à basse température, avec une température du substrat (T_{sub}) d'environ 250 °C. La croissance de nos échantillons a été réalisée selon le protocole expérimental permettant l'établissement de l'épitaxie de MnAs sur GaAs(001) de type A_0 et ce, afin d'obtenir l'auto-organisation des bandes α et β nécessaire pour disposer d'un gabarit magnétiquement actif. Ce protocole est décrit ci-dessous.

Le substrat est préalablement dégazé à environ 200 °C dans une chambre de traitement sous ultra-vide. L'élaboration des couches minces MnAs/GaAs(001) se fait en trois étapes : désorption de l'oxyde en surface de GaAs ; croissance d'une couche tampon de GaAs ; croissance de MnAs. Chacune de ces étapes est réalisée en vapeur saturante d'arsenic, dont la pression partielle est maintenue à environ 1×10^{-6} Torr, pendant et hors phase de croissance. Pour cela, la température de la cellule d'arsenic est ajustée entre environ 170 et 200 °C. L'évolution de la surface est suivie *in situ* par diffraction d'électrons de haute énergie en géométrie de réflexion (RHEED) (Fig. 3.2).

La désorption de l'oxyde natif de GaAs commence à partir de $T_{\text{sub}} \approx 550$ °C. Cette étape est réalisée avec un léger flux d'arsenic pour ne pas dégrader la surface. Afin de s'assurer de la complète désorption de l'oxyde, le substrat est chauffé jusqu'à 600 °C.

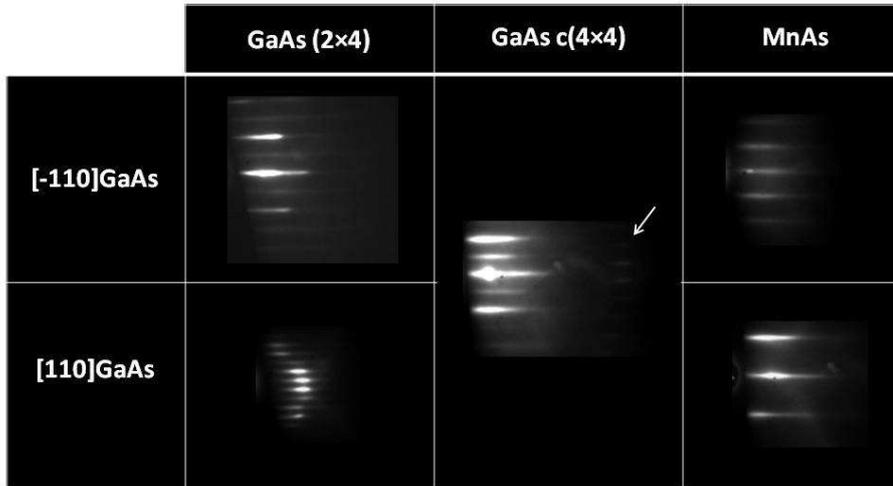


FIGURE 3.2 – Diagrammes RHEED enregistrés selon $[110]$ et $[\bar{1}10]$ GaAs, montrant les reconstructions (2×4) et $c(4 \times 4)$ de GaAs et les lignes correspondant aux paramètres a de MnAs.

Ensuite, le substrat est porté à environ 550°C et une reconstruction (2×4) de la surface de GaAs est obtenue (Fig. 3.2). Cette reconstruction de surface est préservée durant la croissance de GaAs. Après la croissance de la couche tampon, un recuit d'environ 10 min (sous un flux d'arsenic) est réalisé à 600°C afin de lisser la surface. L'épitaxie de MnAs monophasée de type A_0 nécessite l'obtention d'une surface de GaAs riche en arsenic $c(4 \times 4)$ et la formation de dimères As-As [50]. Pour cela, la température de GaAs est lentement abaissée à 500°C (environ $2^\circ\text{C}/\text{min}$) comme cela a été décrit par Araï *et al.* [50]. Puis cette reconstruction est stabilisée par un recuit à 350°C pendant environ 3 heures.

La croissance de MnAs est réalisée sur le substrat porté à environ 250°C , en deux étapes : la première consiste à amorcer la croissance en réalisant une dizaine de monocouches à une vitesse de croissance relativement lente comparée à la deuxième étape, la croissance de MnAs proprement dite (environ $3 \text{ nm}/\text{min}$). Cette méthode permet de diminuer la rugosité de la surface en jouant sur la mobilité des adatoms. Il est important de préciser ici que l'épitaxie de type A_0 est favorisée si cette croissance est initiée par le flux d'As. On peut constater l'établissement d'une croissance couche par couche et monophasée A_0 par l'apparition de lignes RHEED caractéristiques de MnAs pour cette épitaxie (Fig. 3.2).

Après la croissance, l'échantillon est recuit à environ 300°C pendant une dizaine de minutes dans le but de lisser la surface.

Des mesures de diffraction de rayons X (XRD) en géométrie $\theta/2\theta$ nous ont permis de vérifier la relation épitaxiale obtenue dans la direction normale à la surface des couches. Les directions selon lesquelles les interférences sont constructives

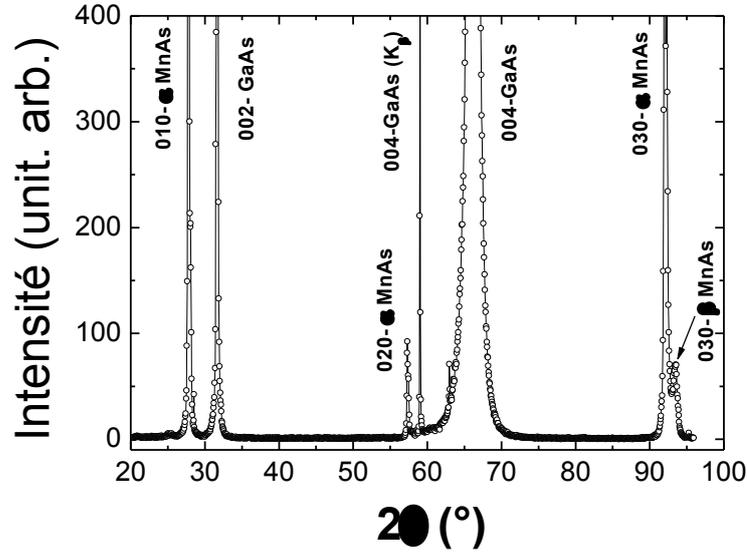


FIGURE 3.3 – Diffractogramme de rayons X ($\theta/2\theta$) montrant l'épitaxie MnAs/GaAs(001).

(pics de diffraction) sont déterminées par la loi de Bragg : $2d \sin \theta = n\lambda$, où d est la distance inter-réticulaire, θ est la moitié de l'angle entre le faisceau incident et le détecteur, n est l'ordre de réflexion et λ est la longueur d'onde des rayons X [1,54 Å ici (Cu $K\alpha$)]. Les pics mesurés pour des angles 2θ de 27,8°, 57,3° et 92,2° [Fig. 3.3(b)] sont en bon accord avec les valeurs calculées (27,6°, 57,1° et 91,6° respectivement) en considérant la réflexion des rayons X par les plans {010} α -MnAs. Ce diffractogramme confirme que les plans (010) de MnAs sont bien parallèles aux plans (001) de GaAs. Nous avons pu de la même manière indexer les pics issus de la diffraction des rayons X par les plans (002) et (004) du substrat GaAs. Les pics mesurés à $2\theta = 92,2^\circ$ (phase α) et à $2\theta = 93,42^\circ$ (phase β) montrent la coexistence des deux phases à la température ambiante.

Après avoir effectué la croissance des couches minces de MnAs, l'analyse de la surface obtenue est réalisée par STM. Le transfert des échantillons entre la chambre de croissance et la chambre d'analyse STM se fait sous ultra-vide. La surface de l'échantillon est ainsi préservée de toute contamination, par le carbone et l'oxygène notamment.

3.2 Surface auto-organisée et coexistence de phases dépendante de la température

Comme nous l'avons vu dans le paragr. 1.3, les couches minces de MnAs épitaxiées sur GaAs(001) montrent une auto-organisation des phases α et β , entre

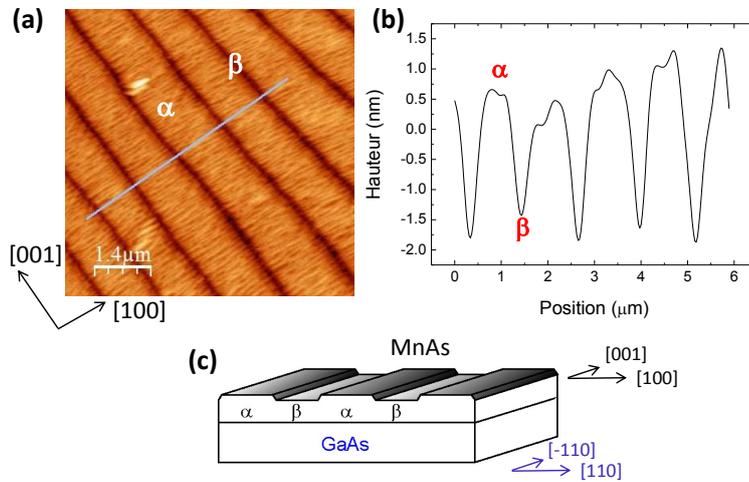


FIGURE 3.4 – (a) Image STM obtenue à 22 °C (échantillon MnAs-280). (b) Profil réalisé à partir de (a), montrant la modulation α/β de la surface selon la direction [100] MnAs. (c) Schéma de l’auto-organisation en bandes des domaines α et β .

environ 10 °C et 45 °C. Celle-ci est directement observable par STM puisqu’elle provoque la modulation de la hauteur de la surface, alternant périodiquement des bandes α et β . La Fig. 3.4(a) est une image STM, obtenue à la température ambiante, de la surface d’une couche de MnAs de 280 nm d’épaisseur (noté MnAs-280 ; cette notation sera utilisée pour les différents échantillons analysés par la suite). Celle-ci montre les bandes α (bandes claires) et β (bandes foncées), allongées selon [001] MnAs et périodiques selon [100] MnAs. Le profil réalisé à partir de cette image montre que l’amplitude et la période de la modulation α/β sont respectivement d’environ 3 nm et 1 μm [Fig. 3.4(b)]. L’analyse de l’image par transformée de Fourier 2D permet de déterminer la périodicité des bandes. La Fig. 3.5(a) montre les densités spectrales obtenues à partir de l’image STM de la Fig. 3.4(a). La distance entre les deux pics correspond ici à $2/T$, où T est la période des bandes. Dans ce cas, on calcule une période de $(1,2 \pm 0,2) \mu\text{m}$.

3.2.1 Propriétés des bandes α et β en fonction de l’épaisseur de MnAs

La caractérisation de la surface de MnAs a été réalisée pour quatre épaisseurs e : 70 nm, 100 nm, 140 nm et 280 nm. En mesurant la période pour chaque échantillon, une augmentation de T avec e comme $T = 4,8 e$ a été observée [Fig. 3.6(a)]. Cette évolution corrobore le modèle élastique proposé par Kaganer *et al.* [17].

Une évolution de l’amplitude h de la modulation α/β avec l’épaisseur a aussi été observée. Les valeurs de h mesurées par STM montrent que h représente environ 1% de e [Fig. 3.6(b)]. Les valeurs de h mesurées corroborent le modèle

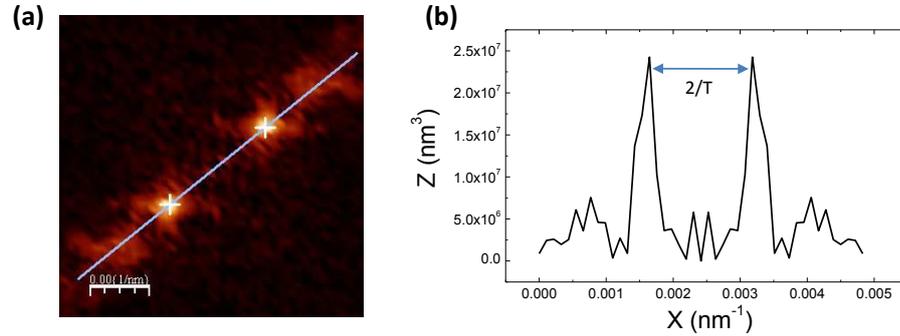


FIGURE 3.5 – Détermination de la période T des bandes par transformée de Fourier. (a) Image obtenue par transformée de Fourier de la Fig. 3.4(a), montrant les densités spectrales correspondant à la période de la modulation α/β . (b) Profil réalisé à partir de (a) où la distance mesurée entre les pics correspond à $2/T$.

élastique décrivant l'auto-organisation des domaines α et β . En effet, la minimisation de l'énergie du système est réalisée par l'alternance périodique des phases α et β selon un processus élastique. La modulation de la surface correspondante est rendue possible puisque l'axe hors plan de la couche mince est libre vis à vis des contraintes imposées par le substrat de GaAs. La différence de hauteur entre les phases α et β ne doit alors correspondre qu'à la différence des paramètres de maille du MnAs massif entre la phase α hexagonale et la phase β orthorhombique. Cette différence a été évaluée à environ 1,1% par des mesures de diffraction de rayons X [31], ce qui correspond à la relation $h \approx 1\% e$ issue de notre analyse STM. Notons que ce résultat diffère des mesures de h en fonction de e présentées dans la littérature. Celles-ci montrent une dispersion selon les publications, passant de $h \approx 1,6\% e$ [27] à $h \approx 6\% e$ [33]. La plupart des valeurs de h ont été mesurées par AFM. Cela nous a amené à mesurer la modulation α/β d'un même échantillon par STM, puis par AFM [Fig. 3.8(e)(f)]. Les images AFM obtenues ont confirmé nos mesures faites par STM, montrant que les valeurs de h ne dépendent pas de la technique utilisée, comme la dispersion des résultats présentés dans la littérature aurait pu le laisser penser. Le résultat de Kastner *et al.* [33], montrant que h correspond à 6% de e , rend compte d'une déformation de la surface allant bien au-delà du régime élastique considéré (coefficients de Poisson $\nu = 0,37$ [51]). Ce résultat pourrait s'expliquer par du déplacement de matière lors de la transition de phase.

3.2.2 Evolution des bandes α et β avec la température

Déplacement de matière ?

Afin de montrer la présence ou non de déplacement de matière à la surface de MnAs, des images STM dans un domaine de température couvrant la transition de

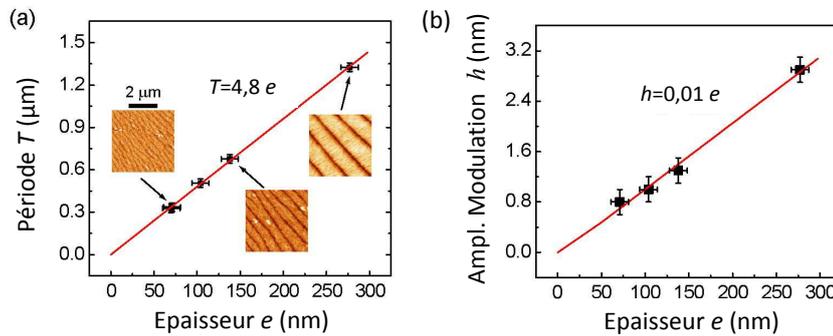


FIGURE 3.6 – Evolution de (a) la période des bandes et (b) l’amplitude de la modulation α/β , en fonction de l’épaisseur de MnAs (échantillons MnAs-70, MnAs-100, MnAs-140, MnAs-280).

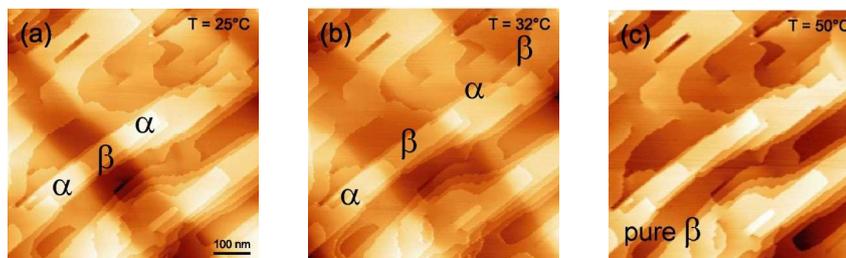


FIGURE 3.7 – Images STM de la surface de MnAs à différentes températures (échantillon MnAs-140).

phase α - β ont été réalisées. La Fig. 3.7 montre des images obtenues dans une seule et même région de MnAs(140 nm)/GaAs(001), à 25 °C, 32 °C et 50 °C. Ces images montrent que ni les terrasses, ni les marches n’évoluent avec la température, alors que dans le même temps la phase β s’étend. Ces mesures donnent pour la première fois une preuve directe, dans l’espace réel, de l’absence de transport de matière, ce qui permet d’écarter définitivement la question du déplacement de matière lié à la transition de phase [52].

Période et amplitude de la modulation α/β

Certaines propriétés de MnAs telles que l’amplitude de la modulation α/β , la période des domaines ou encore la largeur de ceux-ci ont une influence non négligeable sur la valeur du champ démagnétisant des domaines α -MnAs. L’évolution de ces propriétés avec la température pourrait alors modifier l’action des domaines α sur l’aimantation du fer. L’évolution des bandes α/β avec la température a donc été caractérisée par STM.

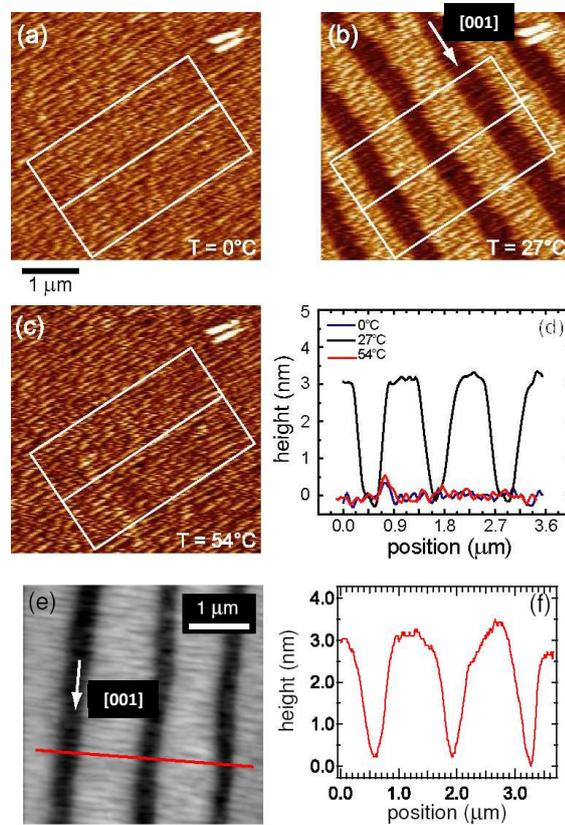


FIGURE 3.8 – Images STM de la surface de MnAs à différentes températures, montrant : (a) la phase α -MnAs seule à 0 °C ; (b) la coexistence de phases à 27 °C ; (c) la phase β seule à 54 °C ; (d) Profil de la surface à partir de ces images STM. (e) Image AFM de la surface du même échantillon, obtenue à la température ambiante ; (f) Profil des bandes α et β réalisé à partir de (e), confirmant les mesures STM pour h et T (échantillon MnAs-280).

La Fig. 3.8 montre des images STM obtenues à trois températures caractéristiques de MnAs : 0 °C (phase α seule), 27 °C (coexistence des phases α et β) et 54 °C (phase β seule), pour un échantillon de 280 nm d'épaisseur (échantillon MnAs-280). L'image enregistrée à 27 °C montre clairement l'auto-organisation des bandes α (bandes claires) et β (bandes foncées) [Fig. 3.8(b)]. Ces bandes ne sont plus visibles à 0 °C et 54 °C [Fig. 3.8(a)-(c)] bien que les images aient été enregistrées dans la même région de l'échantillon, comme on peut le voir par la présence d'un défaut situé en haut à droite des images.

Les profils réalisés à partir de ces images montrent une surface relativement plane à 0 °C et 54 °C alors qu'une modulation d'environ 3 nm de hauteur est mesurée à 27 °C [Fig. 3.8(d)]. A 27 °C, la période des bandes, déterminée par trans-

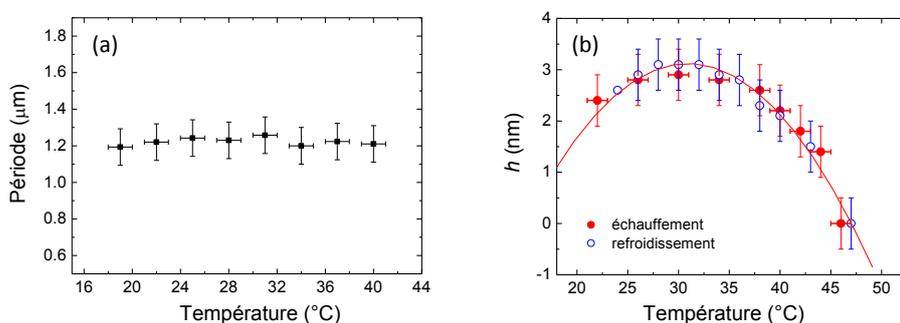


FIGURE 3.9 – Evolution avec la température de : (a) la période des bandes ; (b) l’amplitude de la modulation α/β (échantillon MnAs-280).

formée de Fourier est de $(1,2 \pm 0,2) \mu\text{m}$. Des images STM obtenues en chauffant progressivement l’échantillon de 22°C jusqu’à 50°C indiquent que la période est indépendante de la température [Fig. 3.9(a)]. Cette invariance de la période avec la température a été confirmée par des mesures de diffusion magnétique résonante des rayons X (paragr. 4.2.3).

En revanche, l’amplitude de la modulation h évolue avec la température. La Fig. 3.9(b) montre les valeurs de h mesurées à partir des mêmes images. La hauteur atteint environ 1% de l’épaisseur entre 30°C et 35°C . Puis h diminue pour des températures proches des limites de la coexistence de phases.

Des images STM ont été réalisées durant des cycles thermiques afin de comparer les bandes, avant et après avoir désaimanté l’échantillon à 50°C . La Fig. 3.10 montre l’évolution des bandes pour une couche de 140 nm d’épaisseur, cette épaisseur étant proche de celles des échantillons utilisés comme gabarit pour déposer du fer. Ces images STM montrent l’évolution de la surface de MnAs pour des températures variant de 22°C à 51°C , en chauffant [Fig. 3.10(a)-(e)] puis en refroidissant [Fig. 3.10(e)-(j)]. On remarque qu’à environ 34°C [Fig. 3.10(c)], les bandes α et β sont présentes en proportion égale et se trouvent mieux ordonnées. Après avoir dépassé la transition de phase et porté MnAs dans sa phase β seule, le refroidissement provoque la réapparition des bandes à partir d’environ 45°C . Remarquons que la réapparition des bandes α devrait s’accompagner d’un champ magnétique de fuite, même après avoir désaimanté l’échantillon.

La réalisation de ce cycle en température nous a aussi permis de mesurer la largeur des bandes α (l_α) en fonction de la température (Fig. 3.11). La caractérisation de cette grandeur peut être utile puisqu’elle correspond à la largeur des domaines FM, paramètre déterminant pour l’intensité du champ démagnétisant. Les largeurs des bandes ont été mesurées par la réalisation de profils à partir des images STM de la Fig. 3.10. Les valeurs ainsi déterminées montrent une largeur variant de plus de 500 nm à 20°C , à seulement quelques nanomètres à 45°C .

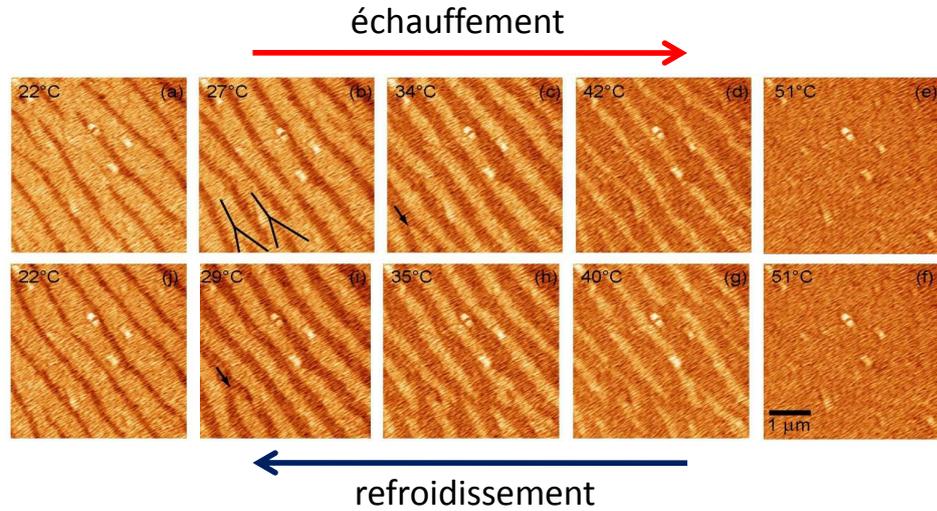


FIGURE 3.10 – Images STM montrant l'évolution des bandes α et β durant un cycle thermique, de 22 °C à 51 °C (échantillon MnAs-140).

Après avoir exposé les principales caractéristiques des bandes α et β en fonction de l'épaisseur ainsi que leur évolution pendant la transition de phase, l'étude de la morphologie de la surface de MnAs à l'échelle nanométrique va être présentée dans la suite de ce chapitre. La surface présente aussi une organisation périodique à cette échelle, indépendante de la coexistence de phases (Fig. 3.12). Contrairement à l'auto-organisation des phases α et β , cette propriété des couches minces de MnAs n'a été que très peu commentée dans la littérature et a fait l'objet d'une attention particulière de notre part. Cette étude a été motivée par l'influence possible de cette morphologie de la surface sur l'anisotropie magnétique d'une couche de fer épitaxiée.

3.3 Morphologie à l'échelle sub-micrométrique de la surface

La surface de MnAs présente une modulation périodique selon l'axe $[001]$ MnAs et allongée selon $[100]$ MnAs (Fig. 3.12). Cette modulation a été observée pour différentes épaisseurs de MnAs. La Fig. 3.12 montre clairement la présence de cette structure dans le cas d'une couche mince de MnAs de 130 nm d'épaisseur. La partie basse de cette figure montre l'image gradient. Ce type d'image fait ressortir les détails de la surface et dans notre cas permet une meilleure appréciation de cette morphologie de la surface. En effet, le contraste de l'image obtenue diminue la contribution de la modulation α/β (moins abrupte) au profit de la structure étudiée ici. Les oscillations de la fonction d'autocorrélation (encadré

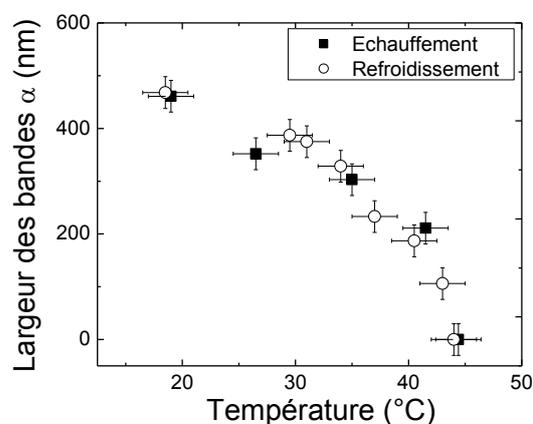


FIGURE 3.11 – Evolution de la largeur des bandes α avec la température, en chauffant (symboles pleins) et en refroidissant (symboles vides) (échantillon MnAs-140).

de la Fig. 3.12) indiquent une période bien définie de 60 nm. Cette période peut atteindre une centaine de nanomètres pour d'autres échantillons.

L'indépendance de cette morphologie de la surface vis à vis de la coexistence de phases α/β est clairement visible sur les images STM de la Fig. 3.7. En effet, il n'y a pas de déplacement des terrasses lors de l'échauffement de l'échantillon, alors que les bandes β s'élargissent. Des images STM réalisées en balayant la surface de MnAs sur quelques dizaines de nanomètres indiquent que cette structure correspond à des empilements de terrasses appelé monticules. La Fig. 3.13(a) montre une telle organisation de la surface pour une couche mince de MnAs de 70 nm d'épaisseur. Ces monticules sont de forme pyramidale et anisotrope, allongés selon $[100]$ MnAs avec un rapport d'anisotropie de forme (longueur/largeur) d'environ 5. L'empilement des terrasses constituant ces monticules est caractérisé par des marches d'environ 0,3 nm de hauteur, correspondant à la moitié du paramètre de maille de MnAs selon la direction de croissance $[120]$: $a\sqrt{3}/2$ avec $a = 0,372$ nm [Fig. 3.13(b)].

La comparaison de cette modulation de la surface dans le cas de couches minces de MnAs de 70 et 130 nm d'épaisseur [Figs. 3.13(a) et 3.12 respectivement] indique à la fois des différences et des similitudes. Contrairement à la structure observée pour 70 nm de MnAs, celle présente en surface de la couche plus épaisse est beaucoup plus allongée et paraît plus continue selon $[100]$ MnAs. En effet, les monticules sont moins ordonnés selon cette direction pour la couche la plus mince. De plus, les modulations des deux couches montrent une périodicité bien définie selon $[001]$ MnAs. La formation de ces monticules pourrait être liée à un processus cinétique de croissance ou encore à un effet purement thermodynamique.

Le mode de croissance couche par couche permet l'obtention de surfaces

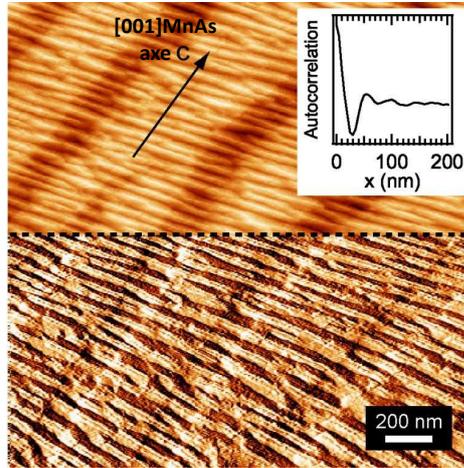


FIGURE 3.12 – Image STM de la surface de MnAs, obtenue à la température ambiante, montrant une structure périodique selon $[001]$ MnAs. La partie basse de la figure montre l’image gradient. L’encadré (en haut à droite) montre la fonction d’autocorrélation calculée selon $[001]$ MnAs (échantillon Fe-5-MnAs-130).

planes. Ce mode est possible seulement dans le cas où les adatoms sont capables de descendre d’une terrasse à une autre. Cela implique que des adatoms puissent diffuser pour franchir les bords de marches et atteindre la terrasse plus en contre-bas. La présence d’une barrière de potentiel ΔE_{ES} en bord de marche, dite barrière d’Ehrlich–Schwoebel (barrière ES), peut empêcher la migration inter-terrasses des adatoms [53, 54] (Fig. 3.14). Cette instabilité de croissance, dépendante de la température du substrat et de la vitesse de croissance, peut perturber le mode de croissance couche par couche. De plus, les adatoms peuvent être rétrodiffusés sur les bords de marches, donnant lieu à un courant d’adatoms sur la terrasse supérieure.

Dans la littérature, des images STM de monticules présents à la surface de métaux montrent des séries de marches dont la hauteur est de l’ordre de la monocouche [55]. La croissance d’un matériau perturbée par des barrières ES mène à l’augmentation de la rugosité de la surface : les monticules sont séparés par des tranchées profondes comme cela est visible sur nos images STM [Figs. 3.13(a) et (b)].

Dans certains cas, l’équilibre entre le courant de Schwoebel et un courant d’adatoms sur les terrasses inférieures conduit à la sélectivité de la pente des monticules. Cela a notamment été observé dans le cas d’homoépitaxies de métaux, comme pour la croissance de Cu/Cu(001) par exemple, où les facettes sont observées selon les plans (113) et (115). Une telle sélectivité de pente est observée pour les monticules présents à la surface de MnAs. Une pente moyenne de

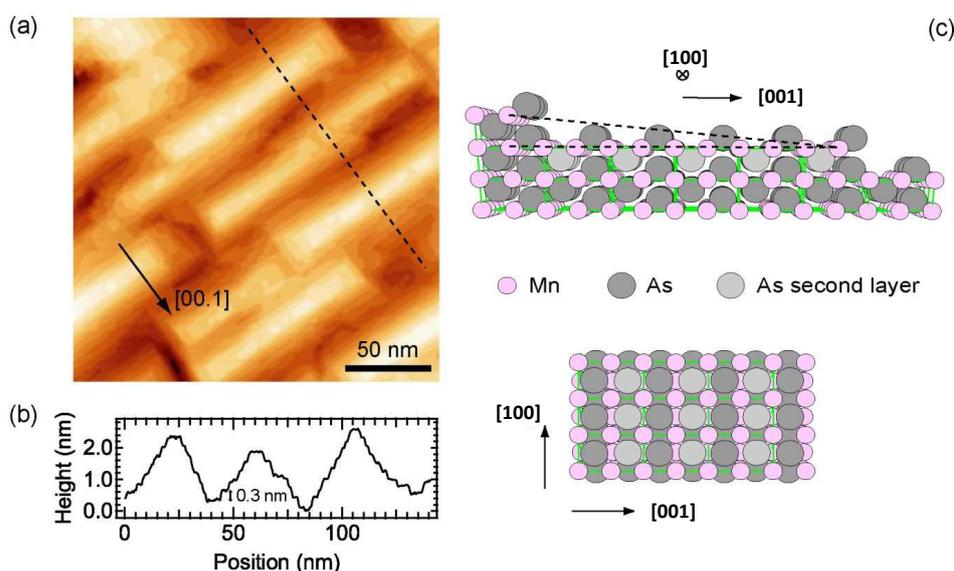


FIGURE 3.13 – (a) Image STM obtenue à la température ambiante, montrant la présence de monticules allongés selon $[100]$ MnAs. (b) Profil des monticules selon $[001]$ MnAs à partir de (a) (ligne pointillée), montrant les marches atomiques de MnAs. (c) Schéma de la structure atomique de MnAs faisant figurer des marches selon $[001]$ MnAs (échantillon MnAs-70).

$(10 \pm 1)\%$ est mesurée selon la direction $[001]$, correspondant à un angle de désalignement de $(5,7 \pm 0,6)^\circ$. Cela correspond à une largeur de terrasse d'environ $5c$ ou $6c$ selon $[001]$ MnAs (avec c valant $0,572$ nm), comme cela est illustré sur la Fig. 3.13(c). Le schéma montre l'empilement des terrasses d'une surface de MnAs se terminant par des atomes d'arsenic, en négligeant d'éventuelles reconstructions ou relaxations. Mais certains points, comme la forme rectangulaire et anisotrope des monticules et la direction de la sélectivité de la pente, nécessitent quelques commentaires.

Le plus souvent, la morphologie de la surface d'une couche mince reflète la symétrie du substrat. Par exemple, les monticules caractérisant la surface de Pt(111) sont de forme hexagonale à cause de la symétrie hexagonale du cristal. Dans notre cas, le MnAs a une symétrie hexagonale. Cependant, la croissance épitaxiale de MnAs/GaAs (001) s'effectue avec la face prismatique de la maille de MnAs orientée parallèlement au plan de croissance (001) de GaAs, induisant alors la symétrie rectangulaire observée [Figs. 3.1 et 3.13(a)]. Pour ce qui concerne l'anisotropie de forme des monticules, celle-ci est probablement due à une différence de diffusion des adatoms selon $[100]$ et $[001]$ -MnAs. Il est également possible que l'énergie des barrières de potentiel ES soit différente pour les marches parallèles à ces deux directions. De plus, la vitesse d'incorporation des adatoms en bord de ces marches

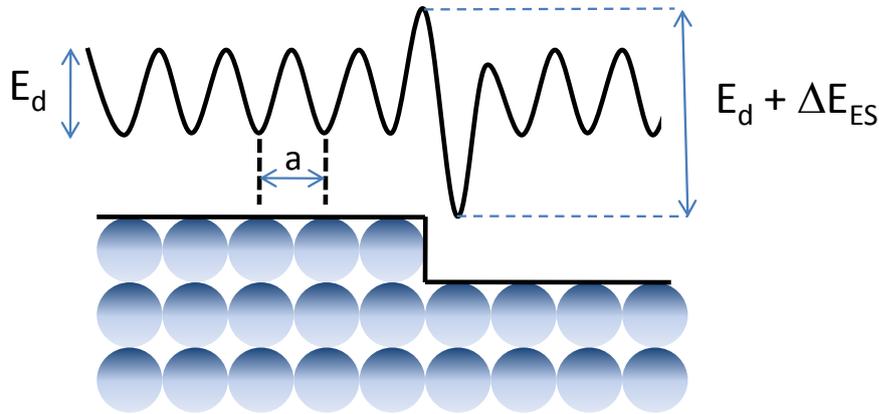


FIGURE 3.14 – Schéma d'une barrière énergétique d'Ehrlich–Schwoebel d'énergie ΔE_{ES} , s'ajoutant à l'énergie de diffusion en surface des adatoms E_d , et pouvant perturber le franchissement des bords de marche.

peut aussi être différente selon l'orientation de celles-ci.

Des études complémentaires sont nécessaires afin d'approfondir la compréhension du processus de croissance de cette structure. La température du substrat ainsi que la vitesse de croissance sont des paramètres déterminants pour contrôler la morphologie de la surface. La variation de la température du substrat lors de la croissance entre environ 260 et 300 °C change la morphologie de la surface. La croissance d'une couche mince de MnAs/GaAs (001), réalisée pour une température du substrat de 315 °C, mène à la formation de terrasses de taille micrométrique. De plus, le lissage de la surface est possible par un recuit après la croissance. Cela a été effectué sur l'échantillon de 70 nm d'épaisseur de MnAs discuté précédemment (MnAs-70). Les images STM de la Fig. 3.15 montrent un élargissement des terrasses après un recuit à 300 °C.

La possibilité pour que cette structure de forme anisotrope induise une anisotropie magnétique dans une couche de fer la recouvrant sera discutée dans le paragr. 4.2.2.

Par ailleurs, l'utilisation de la modulation α/β comme gabarit magnétique pour agir sur la direction de l'aimantation d'une couche FM nous a amené à estimer le champ de fuite généré par les domaines α .

3.4 Estimation du champ de fuite généré par les domaines FM α -MnAs

Dans ce chapitre, nous considérons le champ magnétique dipolaire généré par les domaines FM α -MnAs. Ces domaines présentent une anisotropie magnétique uniaxiale forte selon [100] MnAs (axe x , perpendiculaire aux bandes) et sont auto-

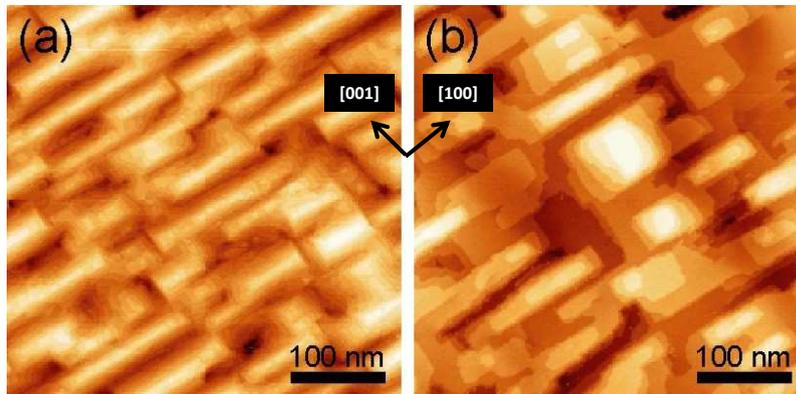


FIGURE 3.15 – Images STM de la surface de MnAs, obtenues à la température ambiante, (a) avant et (b) après un recuit à 300 °C (échantillon MnAs-70).

organisés sous la forme de parallélépipèdes (Fig. 3.16).

La présence d'une aimantation non nulle induit la présence d'un champ H (appelé champ démagnétisant dans l'échantillon et champ de fuite à l'extérieur). L'anisotropie magnétique et la forme des domaines α -MnAs peuvent générer un champ démagnétisant et un champ de fuite (ou champ dipolaire) important, ce qui pourrait permettre d'orienter l'aimantation de couches magnétiques épitaxiées sur ces domaines.

Une publication récente (2008) de Norpoth *et al.* [56] nous a amenés à appliquer à notre cas les équations de magnétostatique exprimant le champ démagnétisant d'un barreau en fonction de ses dimensions. Après avoir présenté l'expression du champ de fuite, la composante selon x de ce champ de fuite (H_x) produit par un barreau uniformément aimanté selon cet axe a été calculée. Précisons ici que nous avons simplifié le problème en ne tenant compte que de la composante x et en considérant l'aimantation de MnAs homogène et orientée dans la plan de la surface, selon [100]. Notons que cette considération est valable pour des températures inférieures à environ 25 °C car au-delà de cette température, une composante de l'aimantation apparaît selon [120]. Nous discuterons des conditions permettant d'intensifier le champ de fuite et ce, dans le but d'utiliser ce champ pour renverser l'aimantation d'une couche FM.

3.4.1 Champ magnétique d'un barreau aimanté : théorie

Considérons un barreau FM d'aimantation \mathbf{M} . Les équations de Maxwell dans la matière sont, en système SI et dans le cas statique sans champ appliqué :

$$\text{div } \mathbf{B} = 0 \quad (3.1)$$

$$\text{rot } \mathbf{H} = \mathbf{0} \quad (3.2)$$

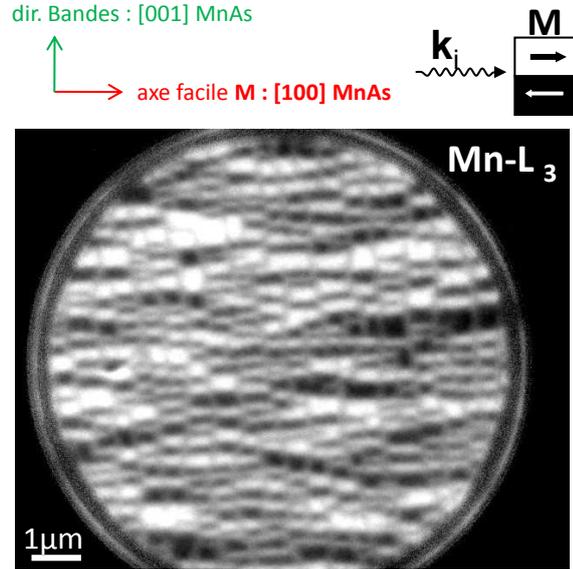


FIGURE 3.16 – Image X-PEEM obtenue au seuil d’absorption L_3 de Mn, à la température ambiante, pour Fe(2 nm)/MnAs(70 nm)/GaAs(001), montrant les domaines α -MnAs organisés sous la forme de parallélépipèdes (échantillon Fe-2-MnAs-70).

avec en surface :

$$(\mathbf{H}_{\text{ext}} - \mathbf{H}_{\text{int}}) \cdot \mathbf{n} = \mathbf{M} \cdot \mathbf{n} \quad (3.3)$$

$$(\mathbf{H}_{\text{ext}} - \mathbf{H}_{\text{int}}) \times \mathbf{n} = \mathbf{0} \quad (3.4)$$

où \mathbf{n} est la normale à la surface.

L’induction \mathbf{B} et le champ magnétique \mathbf{H} présents dans la matière aimantée sont liés par la loi :

$$\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + \mathbf{M}) \quad (3.5)$$

Les calculs du champ de fuite sont réalisés en considérant le cas d’un barreau uniformément aimanté selon l’axe x : $\mathbf{M} = M\mathbf{e}_x$ (Fig. 3.17). Dans ce cas, l’intégration de ces équations est réduite aux seules contributions des surfaces de l’aimant. Les pôles magnétiques sont localisés sur les faces latérales du parallélépipède, où leur distribution est considérée de manière homogène et où la densité de charge en surface est donnée par : $\sigma_m = \mathbf{M} \cdot \mathbf{n}$. Ici, la densité de charges est $\pm M$.

Le champ magnétique peut être décrit par un potentiel scalaire :

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\nabla\phi(\mathbf{r}) \quad (3.6)$$

Cette équation mène à l’équation de Poisson, dont la solution est :

$$\phi(\mathbf{r}) = -\frac{1}{4\pi} \int \frac{\nabla \mathbf{M}_{\mathbf{r}_i}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|} d^3\mathbf{r}_i \quad (3.7)$$

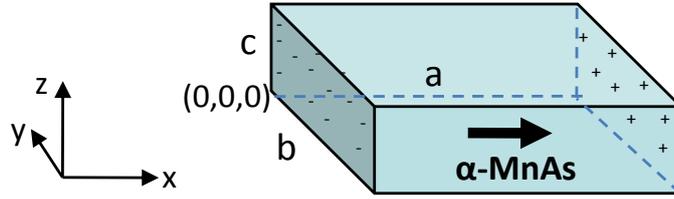


FIGURE 3.17 – Schéma d'un barreau aimanté selon x ($\mathbf{M} = M\mathbf{e}_x$). L'aimantation est considérée homogène, ce qui revient à ne considérer que les charges magnétiques de surface $\pm M$.

\mathbf{M} étant localisé dans le volume du parallélépipède, le théorème de Gauss permet de simplifier cette équation :

$$\phi(\mathbf{r}) = -\frac{1}{4\pi} \nabla \int \frac{\mathbf{M}_{\mathbf{r}_i}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|} d^3 \mathbf{r}_i \quad (3.8)$$

La symétrie du système considéré nous amène à calculer cette intégrale en coordonnées cartésiennes :

$$\begin{aligned} \phi(x, y, z) &= -\frac{M_0}{4\pi} \frac{\partial}{\partial x} \\ &\times \int_0^a \int_0^b \int_0^c \frac{1}{\sqrt{(x-x_i)^2 + (y-y_i)^2 + (z-z_i)^2}} dx_i dy_i dz_i \end{aligned} \quad (3.9)$$

D'après l'Eq. (3.6) et en considérant l'aimantation selon l'axe x , on a :

$$H_x(x, y, z) = -\frac{\partial}{\partial x} \phi(x, y, z) \quad (3.10)$$

La suite du calcul de H_x est détaillée dans l'annexe A.

Avec les dimensions du barreau comme paramètres, la composante x du champ démagnétisant d'un barreau uniformément aimanté selon l'axe x peut s'écrire :

$$\begin{aligned} H_x(x, y, z) &= \frac{M_0}{4\pi} \left[\arctan \frac{vw}{(x-a)[(x-a)^2 + v^2 + w^2]^{\frac{1}{2}}} \right. \\ &\quad \left. - \arctan \frac{vw}{x[x^2 + v^2 + w^2]^{\frac{1}{2}}} \right] \Big|_{\substack{v=y \\ v=y-b}}^{\substack{w=z \\ w=z-c}} \end{aligned} \quad (3.11)$$

Cette expression se développe en la somme de quatre termes, en considérant $v = y$ et $w = z$, $v = y - b$ et $w = z - c$, ainsi que les deux termes croisés (négatifs) calculés pour $v = y - b$ et $w = z$ ainsi que pour $v = y$ et $w = z - c$.

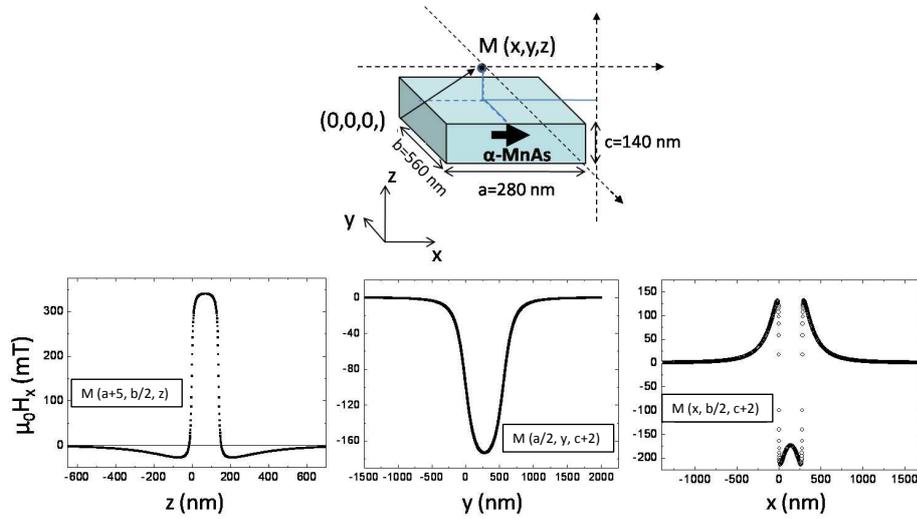


FIGURE 3.18 – Champ de fuite H_x calculé en des points situés au voisinage d'un domaine FM ($c = 140$ nm, $b = 560$ nm et $a = 280$ nm), selon les axes z , y et x .

3.4.2 Champ magnétique produit par un domaine α -MnAs

En considérant les domaines FM α -MnAs comme des parallélépipèdes uniformément aimantés selon x du fait de l'anisotropie magnétique uniaxiale selon la direction $[100]$ MnAs, nous avons calculé la composante x du champ magnétique de fuite H_x d'après l'Eq. (3.11). Remarquons que les effets de champ démagnétisant (notamment en bordure des domaines) sont négligés et devraient être pris en compte dans le cas de simulations micro-magnétiques. Les calculs présentés montrent l'influence du rapport d'anisotropie de forme (hauteur c et dimensions latérales b et a variables) sur H_x . Les calculs ont été effectués avec une aimantation $M(\text{MnAs}) = 640$ kA/m (à 0°C) [36].

H_x calculé en différents points voisins d'un domaine de dimension fixe

Dans un premier temps, le champ H_x est calculé au voisinage d'un domaine de 140 nm de hauteur et dont les dimensions latérales sont 560×280 nm² ($b \times a$). Ces dimensions correspondent à l'échantillon noté Fe-4-MnAs-140 qui a été analysé expérimentalement : cela nous permettra de corréler les calculs avec les résultats expérimentaux (paragr. 4.2.3). La Fig. 3.18 montre l'évolution de H_x selon les directions x , y et z . Plusieurs observations retiennent notre attention :

- Selon y : comme attendu, la valeur absolue maximale de H_x est atteinte au centre des faces du barreau aimanté, où les lignes de champ sont parallèles à l'axe x [Fig. 3.18(centre)]. Cette valeur maximale est ≈ 175 mT en un point centré à 2 nm au-dessus d'un domaine. Ce champ pourrait renverser

l'aimantation d'une couche de fer puisque sa valeur est bien supérieure au champ coercitif du fer $H_c(\text{Fe})$, qui est de l'ordre de 10 mT.

- Selon x : H_x change de signe pour des points situés au-dessus du domaine et pour des points dépassant les limites du domaine [Fig. 3.18(droite)]. Cette évolution de H_x pourrait permettre non seulement de renverser l'aimantation du fer sur les domaines α -MnAs, mais aussi d'aligner parallèlement l'aimantation du fer sur la phase β voisine. La valeur maximale de H_x est calculée à la limite du domaine : 150 mT à la limite extérieure et plus de -200 mT à la limite intérieure. Ces valeurs restent supérieures à $H_c(\text{Fe})$.
- Selon z : une valeur H_x maximale de 340 mT est calculée au voisinage du centre de la face latérale du domaine [Fig. 3.18(gauche)]. Cette valeur devient inférieure à 10 mT pour des points situés à plus de 10 nm au-dessus du domaine, puis tend vers zéro. Le champ de fuite ne pourrait alors dépasser $H_c(\text{Fe})$ et renverser l'aimantation du fer que pour des couches localisées à moins de 10 nm de la surface.

Après s'être intéressé à la valeur du champ de fuite en différents points situés au voisinage d'un domaine dont les dimensions étaient fixées, suivons l'évolution de H_x avec les dimensions du domaine.

H_x calculé en un point centré à 2 nm au-dessus d'un domaine de dimensions variables

Nous allons considérer l'influence du rapport d'anisotropie de forme d'un domaine sur le champ de fuite. La Fig. 3.19 montre l'importance des rapports entre, d'une part, la largeur a du domaine et sa hauteur c (correspondant à l'épaisseur de la couche de MnAs) et d'autre part, les dimensions latérales a et b . On remarque que le champ est optimisé en minimisant le rapport a/c , c'est-à-dire en augmentant l'épaisseur des couches de MnAs ou en diminuant la largeur des domaines. Notons que le contrôle de H_x par l'épaisseur sera limité dans le cas de couches minces de MnAs d'épaisseurs supérieures à environ 200 nm car dans ce cas, certains domaines ne présentent plus une aimantation homogène dans l'épaisseur [39]. Pour les domaines α -MnAs, le contrôle des dimensions latérales des domaines est réalisable en augmentant la température pendant la coexistence de phases entre 15 et 40 °C. Les calculs présentés ne sont cependant pertinents que pour des températures inférieures à environ 25 °C (sans la composante de l'aimantation hors plan de croissance), soit pour $a > 3c$ [37]. Nos considérations sont néanmoins suffisantes puisque les domaines analysés expérimentalement (Chap. 4) sont toujours plus larges que $3c$.

H_x dépend aussi du rapport largeur/longueur des domaines (a/b) : il augmente quand ce rapport diminue. Le champ de fuite H_x peut donc s'intensifier en augmentant la température (domaines de plus en plus fins), tant que $a > 3c$. Les résultats

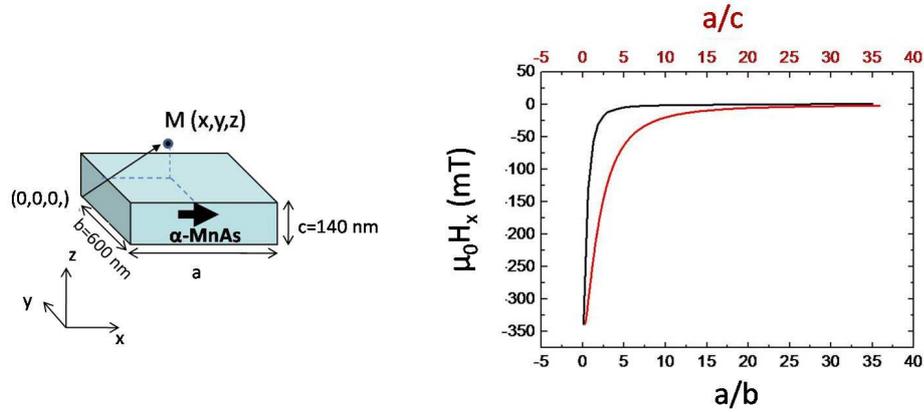


FIGURE 3.19 – Champ de fuite H_x calculé en un point M centré à 2 nm au-dessus d'un domaine FM, en fonction des rapports a/b (noir) et a/c (rouge), avec $a = 140$ nm et $b = 600$ nm.

expérimentaux présentés dans les paragr. 4.2.3 et 4.2.4 traitent du couplage magnétique de bicouches Fe/MnAs et plus particulièrement des propriétés magnétiques en fonction de la température. Par la suite, nous décrivons donc l'évolution de H_x avec les paramètres dépendant de la température, c'est-à-dire des dimensions latérales des domaines.

Les calculs de H_x en des points balayés selon x et situés à 2 nm au-dessus d'un domaine ($c = 140$ nm et $a = 600$ nm) ont été faits pour différents rapports a/b (Fig. 3.20). Les résultats montrent que H_x augmente quand a/b diminue, favorisant non seulement l'alignement antiparallèle de l'aimantation du fer sur α -MnAs mais aussi l'alignement parallèle sur la phase β voisine. Le champ magnétique dépend du rapport a/b , mais aussi des valeurs de a et de b . La Fig. 3.21 montre les valeurs de H_x calculées en fonction de a et de b . Pour des domaines dont la largeur est supérieure à $2 \mu\text{m}$, le rapport d'anisotropie a/b n'influence plus H_x qui tend alors vers 0. En prenant en compte cette remarque, on note que l'augmentation de H_x avec l'épaisseur de MnAs montrée précédemment n'est vraie que dans une certaine limite. En effet, pour une couche de MnAs de 400 nm d'épaisseur par exemple, les domaines α , dont la largeur est de plus de $2 \mu\text{m}$ (à la température ambiante), généreront un champ de fuite presque nul quelque soit la longueur du domaine. La Fig. 3.21 donne une cartographie complète de l'évolution du champ en fonction des dimensions latérales d'un domaine. Cela nous permettra de discuter des couplages Fe/MnAs observés expérimentalement, en fonction de la dimension des domaines de MnAs.

Après avoir calculé la composante x du champ de fuite généré par un seul domaine, l'influence des domaines premiers voisins est maintenant considérée.

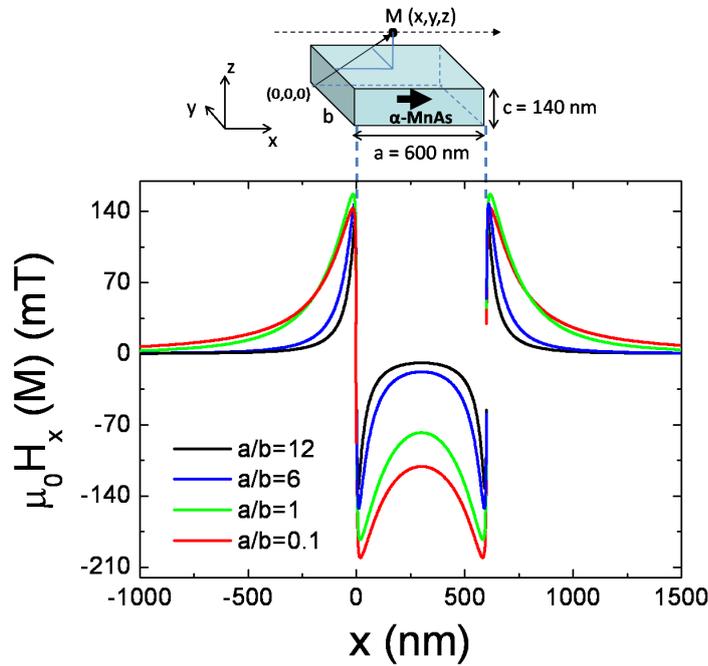


FIGURE 3.20 – Champ de fuite H_x calculé en des points situés selon l'axe x , à 2 nm au-dessus d'un domaine FM. Ce calcul est réalisé pour $a/b = 12, 6, 1$ et $0,1$, avec $c = 140$ nm et $a = 600$ nm.

3.4.3 Champ magnétique produit par plusieurs domaines α -MnAs

Les domaines magnétiques de MnAs sont auto-organisés sous forme de bandes α . Suivant l'histoire thermique et magnétique des échantillons, chaque bande α peut être monodomaine ou être composée d'une alternance de domaines d'aimantation de sens opposés selon la direction de facile aimantation (Fig. 3.16). En considérant le deuxième cas, illustré dans la Fig. 3.22, le champ magnétique créé en un point situé au-dessus d'un domaine dépend du champ généré par les domaines premiers voisins. H_x est alors la somme de la contribution de trois domaines : le domaine au-dessus duquel H_x est calculé ($H_{x,1}$) et les deux domaines adjacents ($H_{x,2}$). On a alors : $H_x = H_{x,1} - 2H_{x,2}$, puisque les aimantations des domaines voisins sont de signe opposé à l'aimantation du domaine central. Afin de simplifier le problème, on considère deux domaines voisins de même longueur, notée b_2 , prenant en sandwich un domaine central de longueur b_1 .

Pour des domaines premiers voisins longs par rapport au domaine central ($b_1/b_2 < 0,57$ pour $b_2 = 560$ nm), le champ de fuite calculé au-dessus du domaine central est principalement généré par les domaines voisins. Dans ce cas, H_x est positif et donc parallèle à l'aimantation du domaine central [Fig. 3.22(a)]. Par contre, lorsque b_1/b_2 augmente, la contribution du domaine central à H_x dépasse celle des

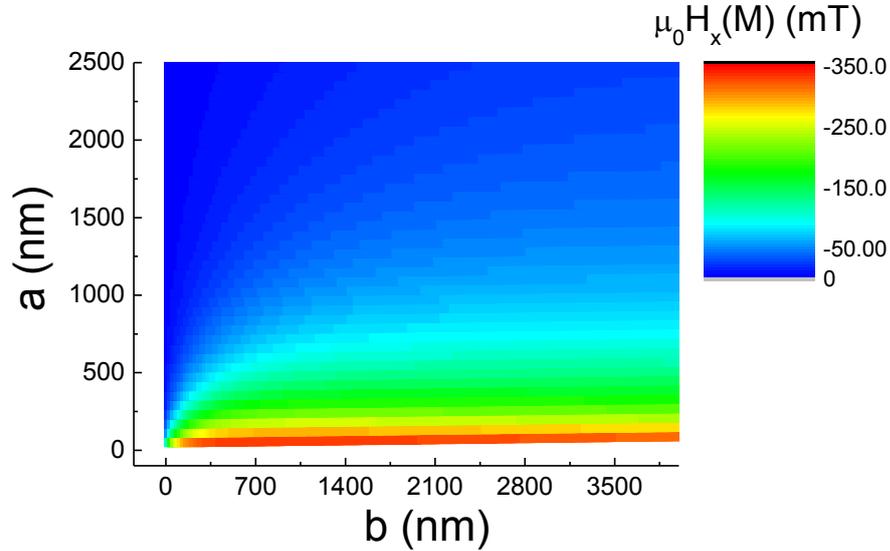


FIGURE 3.21 – Calcul de H_x en un point M centré à 2 nm au-dessus de α -MnAs en fonction de ses dimensions latérales a et b .

domaines voisins. On calcule alors des valeurs de champ négatives : l'aimantation est alors antiparallèle à celle du domaine central. Pour des valeurs particulières de b_1 et de b_2 , les contributions des trois domaines se compensent localement : par exemple, $H_x = 0$ pour $b_1/b_2 = 0,57$ ($b_2 = 560$ nm) et $H_x = 0$ pour $b_1/b_2 = 0,75$ ($b_1 = 300$ nm) [Fig. 3.22(a)].

La Fig. 3.22(b) indique les valeurs de H_x en fonction de la longueur de ces domaines, en un point situé à 2 nm au-dessus du domaine central ($c = 140$ nm et $a = 600$ nm). On remarque tout d'abord que H_x dépend principalement de la longueur b_1 de ce domaine : H_x peut varier d'environ +100 mT à environ -120 mT en fonction de b_1 (avec b_2 constant). Notons que l'influence des domaines premiers voisins se fait ressentir principalement pour les domaines de faibles dimensions ($b_1 < 1 \mu\text{m}$). Pour les faibles valeurs de b_1 , H_x change de signe, ce qui pourrait changer l'alignement antiparallèle et parallèle entre les aimantations du fer et de MnAs.

3.5 Conclusions

Dans le but d'utiliser le système MnAs/GaAs(001) comme gabarit pour déposer une couche mince magnétique, il était nécessaire de caractériser sa surface et ses propriétés magnétiques. Nous avons étudié l'évolution de la modulation des phases α et β avec l'épaisseur et la température, montrant ainsi la possibilité de contrôler plusieurs paramètres de la surface. En effet, la période ainsi que l'amplitude de cette modulation sont ajustables en fonction de l'épaisseur des couches

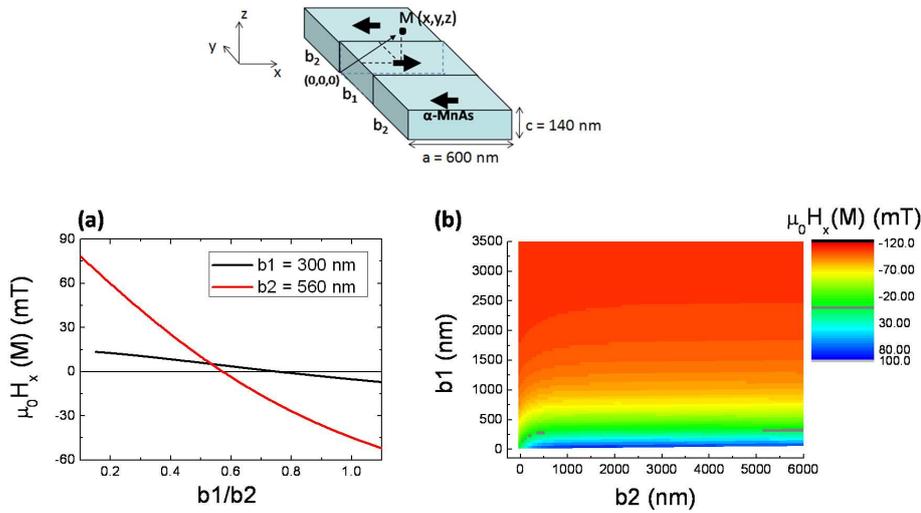


FIGURE 3.22 – Calcul du champ de fuite H_x en un point M centré à 2 nm au-dessus de α -MnAs, pour $c = 140$ nm et $a = 600$ nm et en prenant en compte l’influence des domaines α -MnAs premiers voisins : (a) H_x en fonction de b_1/b_2 ; (b) H_x en fonction de b_1 et b_2 .

minces ($T \approx 5e$ et $h = 1\%e$). De plus, la largeur relative des bandes α/β est contrôlable par la température du système. MnAs/GaAs(001) est donc un gabarit permettant d’obtenir une surface auto-organisée de dimensions variables.

De plus, d’autres propriétés remarquables ont été observées telles que :

- L’absence de déplacement de matière lors de la transition de phase α/β .
- La présence d’une structure périodique (selon $[001]$ MnAs) et allongée (selon $[100]$ MnAs), attribuée à un phénomène de cinétique de croissance. La taille et la forme des monticules composant cette structure peuvent être modifiées selon la température de croissance ou la température de recuit. Nous verrons l’influence de cette propriété de la surface de MnAs sur l’anisotropie magnétique d’une couche mince de fer dans le chapitre suivant.

L’auto-organisation de la phase α sous forme de bandes et de domaines FM en forme de parallélépipèdes nous a amenés à calculer le champ de fuite généré par un tel gabarit, prévoyant la possibilité d’utiliser ce champ pour agir sur l’aimantation d’une couche FM épitaxiée. Ces calculs nous ont permis d’estimer l’efficacité de notre gabarit en terme de champ magnétique de fuite. Les principales conclusions tirées de ces calculs sont :

- H_x peut atteindre plusieurs centaines de mT, dépassant ainsi le champ coercitif du fer (≈ 10 mT à la température ambiante).

- L'intensité du champ de fuite augmente avec la température (a/b diminue), tant que $a > 3c$ (sans composante de l'aimantation hors plan de croissance).
- La possibilité d'obtenir un champ de fuite de signe opposé en un point situé au-dessus d'un domaine α ou β .
- L'influence des domaines premiers voisins sur le champ.

Chapitre 4

Fe/MnAs/GaAs(001) : résultats expérimentaux

4.1 Propriétés structurales

4.1.1 Croissance épitaxiale de Fe/MnAs

La croissance du fer sur le substrat MnAs/GaAs(001) est réalisée par MBE dans le bâti II-VI (Fig. 2.2). Le fer est évaporé à partir d'une cellule de Knudsen, à 1420 °C. L'épitaxie du fer est effectuée sur le substrat MnAs porté à 150 °C, à une vitesse de croissance d'environ 2 Å/min. A cette température, MnAs est dans sa phase γ ; le fer est donc déposé sur une surface de MnAs sans bandes α - β .

Afin d'étudier les propriétés structurales du fer, nous avons effectué des mesures par TEM. Les mesures de diffraction électronique ont permis de mettre en évidence l'épitaxie du fer sur MnAs. Les figures de diffraction du fer et de MnAs, présentées dans la Fig. 4.1, ont été obtenues pour l'échantillon Fe-5-MnAs-140, selon l'axe de zone [001] MnAs. Les taches de diffraction de MnAs, indiquées en rouge, décrivent un hexagone correspondant à la diffraction des électrons par la famille de plans {100}. La comparaison des figures de diffraction du fer (indiquée en blanc) et de MnAs montre des orientations épitaxiales originales. On remarque que les taches de diffraction du fer décrivent un hexagone coïncidant presque avec les taches de MnAs. La figure de diffraction du fer correspond à celle calculée selon l'axe de zone [11 $\bar{1}$]. La distance inter-réticulaire d , déduite de la tache de diffraction alignée avec celle correspondant au plan (010) de MnAs, est de 1,17 Å. Cette distance correspond à la distance inter-réticulaire des plans (211), en considérant le fer dans sa structure cristallographique cubique centrée (bcc), avec un paramètre de maille de 2,87 Å. Les relations épitaxiales ainsi obtenues sont : [11 $\bar{1}$] Fe || [001] MnAs et Fe (2 $\bar{1}$ 1) || MnAs (010).

Des mesures de diffraction de rayons X (XRD) sur une couche plus épaisse de fer [Fe (40 nm)/MnAs (90 nm)/GaAs(001)] nous ont permis de confirmer les relations épitaxiales déterminées par TEM pour Fe-5-MnAs-140. Le diagramme de

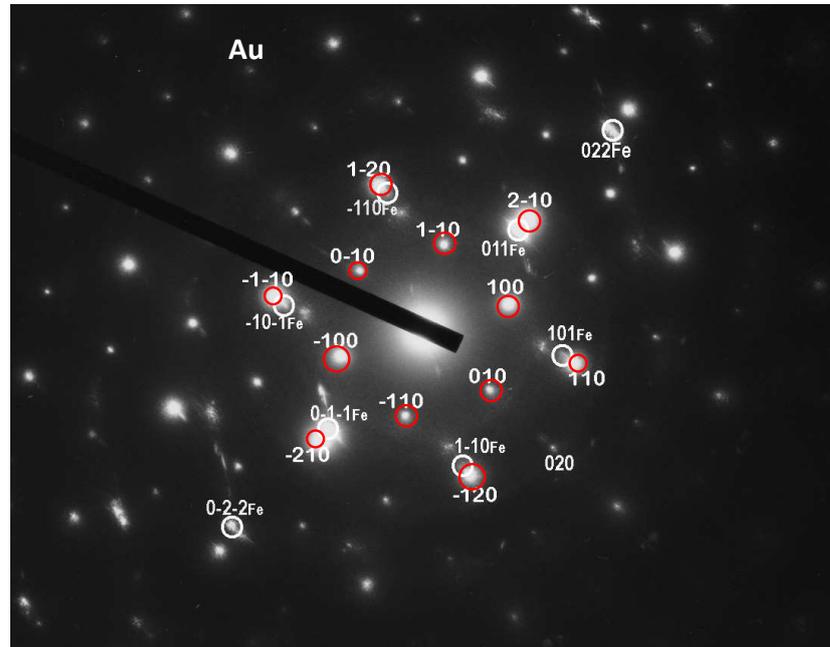


FIGURE 4.1 – Figures de diffraction du fer (cercles blancs) et de MnAs (cercles rouges), obtenues selon l’axe de zone $[001]$ MnAs (échantillon Fe-5-MnAs-140).

diffraction (Fig. 4.2), obtenu en géométrie $\theta/2\theta$, montre les pics correspondant aux réflexions des plans GaAs (002) et MnAs (010). Un pic de diffraction est mesuré à $2\theta = 82,3^\circ$, correspondant à $d = 1,16 \text{ \AA}$. Ce résultat est en bon accord avec la distance inter-réticulaire déterminée d’après la figure de diffraction obtenue par TEM et indique que les plans Fe(211) et MnAs(010) sont parallèles. La Fig. 4.3 schématise l’épitaxie de Fe/MnAs déduite de ces observations.

Notons que le diagramme de diffraction montre aussi la présence d’un pic à $2\theta \approx 51,1^\circ$, correspondant à un composé de type (Fe, Mn)As qui sera commenté par la suite (paragr. 4.1.2).

4.1.2 Interface Fe/MnAs : zone d’interdiffusion

L’élaboration d’hétéro-structures peut donner lieu à des phénomènes d’interdiffusion suivant la réactivité d’interface entre les différents matériaux. Il est alors possible d’obtenir des composés d’interface présentant des propriétés magnétiques différentes de celles des matériaux d’origine.

Généralement, l’interdiffusion dans des systèmes multi-couches est à éviter car elle provoque une perte de la polarisation des électrons à l’interface et diminue certains effets recherchés tels que la GMR ou encore la TMR. La formation de composés d’interface peut toutefois être utile pour les propriétés de magnéto-transport de certains systèmes. Par exemple, la croissance du cobalt sur un substrat

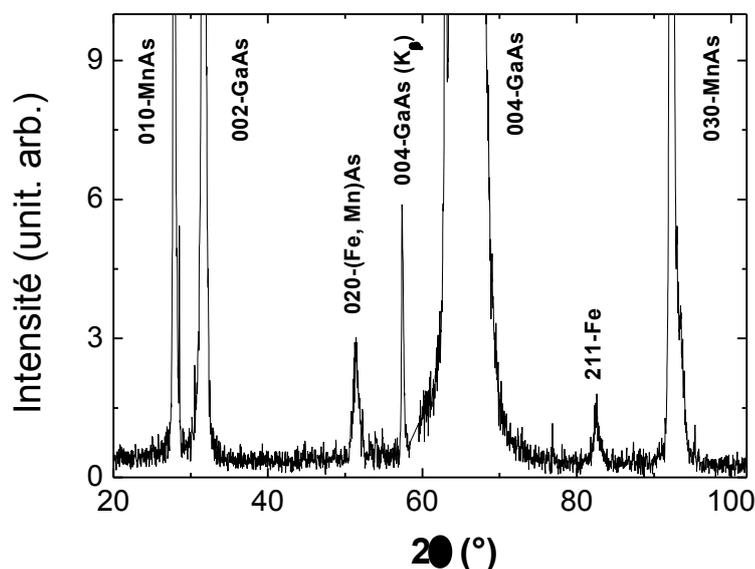


FIGURE 4.2 – Diagramme de diffraction de rayons X ($\lambda = 1,54 \text{ \AA}$), mesuré en géométrie $\theta/2\theta$ (échantillon Fe-40-MnAs-90).

Al/Co(1120) a montré la formation d'une zone d'interdiffusion non magnétique à l'interface Co/Al. Dans ce cas, la couche intermédiaire CoAl permet d'obtenir une structure Co/CoAl/Co qui présente une GMR [57].

Dans notre cas, l'action du champ de fuite des domaines α -MnAs sur l'aimantation du fer (paragr. 4.2.3) est possible puisqu'aucun couplage d'échange direct n'a été observé entre ces deux couches FM (paragr. 4.2.2). Cette caractéristique du système pourrait être due à la formation d'un composé d'interface non magnétique ayant le rôle de découpler (au sens de l'échange direct) Fe et MnAs. Ceci nous a donc amené à étudier la structure de l'interface Fe/MnAs par XPS et EFTEM.

Etude par spectroscopie de photoélectrons induits par rayons X

Les résultats présentés dans ce paragraphe ont été obtenus par spectroscopie de photoélectrons XPS, pour un échantillon de Fe/MnAs (50 nm)/GaAs (001) (échantillon Fe-MnAs-50). Nous avons réalisé des mesures XPS pour différentes épaisseurs nominales de fer (2 nm, 5 nm et 8 nm) pour caractériser la réactivité entre le fer et MnAs lors des premiers stades de la croissance.

Préalablement, des spectres de référence Mn $2p$ et As $2p$ ont été enregistrés avant le dépôt du fer. La Fig. 4.4(a) montre l'augmentation de l'intensité des pics Fe $2p$ lors du recouvrement de MnAs par le fer. La comparaison des spectres normalisés n'indique pas de changement de forme ou de décalage en énergie des pics [Fig. 4.4(b)]. On peut noter que les spectres mesurés sont semblables au spectre du fer massif [58] pour les trois épaisseurs.

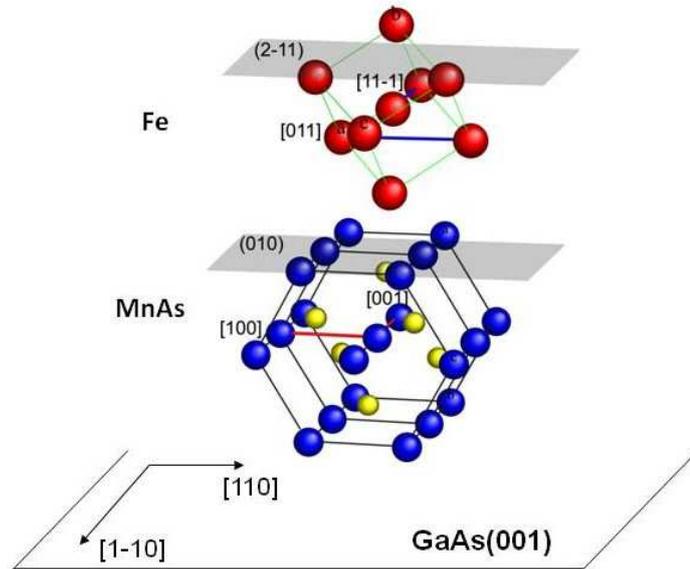


FIGURE 4.3 – Schéma montrant l'épitaxie Fe/MnAs/GaAs (001) avec les relations épitaxiales $[11\bar{1}] \text{ Fe} \parallel [001] \text{ MnAs}$ et $\text{Fe}(2\bar{1}1) \parallel \text{MnAs}(010)$.

Les spectres Mn $2p$ sont présentés dans la Fig. 4.5(a). On observe l'atténuation des pics lorsque l'épaisseur de la couche de fer augmente. De plus, le pic $2p_{3/2}$ est déformé du côté des grandes énergies de liaison et ce, dès le premier recouvrement soit pour 2 nm de fer [Fig. 4.5(b)]. Cette caractéristique de MnAs indique que l'environnement chimique des atomes Mn a probablement changé lors du dépôt du fer.

L'évolution des spectres As $2p$ avec l'épaisseur de fer a été suivie simultanément. Les résultats obtenus montrent que contrairement aux spectres Mn $2p$, l'atténuation des pics As $2p$ ne s'accompagne pas d'un changement de forme [Figs. 4.6(a) et (b)]. L'arsenic ne change pas d'environnement chimique. On remarque aussi que l'intensité des pics devient constante à partir du deuxième recouvrement soit pour 5 nm de fer.

Par ailleurs, on observe que l'intensité des pics du substrat MnAs n'est pas complètement atténuée après avoir déposé 8 nm de fer. Cela pourrait signifier que la couche de fer ne recouvre pas la surface de MnAs de manière homogène et/ou que le fer et MnAs interdiffusent. En effet, dans le cas idéal d'une croissance couche par couche homogène, sans interdiffusion et en considérant les libres parcours moyens $\lambda_{\text{Mn}} \approx 14 \text{ \AA}$ ($E_c \approx 784 \text{ eV}$) et $\lambda_{\text{As}} \approx 7 \text{ \AA}$ ($E_c \approx 196 \text{ eV}$) [59], l'intensité des pics Mn $2p_{3/2}$ et As $2p_{3/2}$ devrait être complètement atténuée puisque la longueur d'échappement des photoélectrons serait inférieure à l'épaisseur nominale de la couche de fer : $3\lambda_{\text{Mn,As}} < 80 \text{ \AA}$. L'interdiffusion entre le fer et MnAs est donc envisageable.

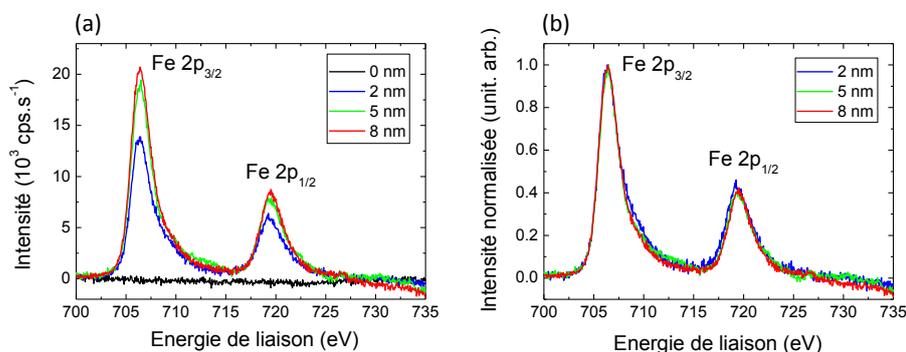


FIGURE 4.4 – Spectres XPS Fe 2*p* pour différents recouvrements du fer : 0, 2, 5 et 8 nm (échantillon Fe-MnAs-50).

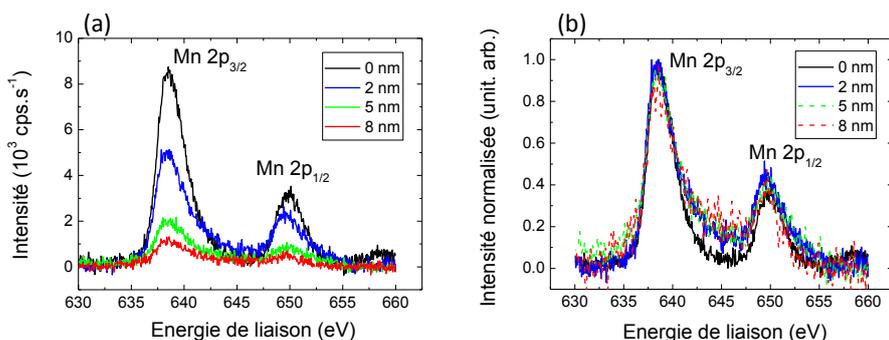


FIGURE 4.5 – (a) Spectres XPS Mn 2*p* en fonction des recouvrements de fer. (b) Spectres XPS normalisés Mn 2*p* sans fer et pour un recouvrement de 2 nm de fer, montrant un changement de forme à environ 642 eV (échantillon Fe-MnAs-50).

Afin de mieux comprendre le phénomène produit lors de la croissance de Fe/MnAs, l'intensité des pics $2p_{3/2}$ de Fe, Mn et As est tracée en fonction de l'épaisseur nominale du fer (Fig. 4.7). Les courbes obtenues pour Fe et Mn suivent une évolution exponentielle, ce qui suggère une croissance de type couche par couche de Fe/MnAs. La courbe d'ajustement de l'intensité des pics de fer est donc tracée en utilisant la fonction $[1 - \exp(-d/\lambda)]$ alors que la fonction $\exp(-d/\lambda)$ est utilisée pour ajuster l'évolution de l'intensité des pics Mn $2p_{3/2}$, où d est l'épaisseur nominale de la couche de fer et λ le libre parcours moyen (traits de la Fig. 4.7). La courbe d'ajustement obtenue pour Mn ne montre pas un comportement asymptotique de l'intensité en fonction de l'épaisseur, ce qui signifie que les atomes Mn ne ségrègent pas et ne flottent pas à la surface du fer. En revanche, l'intensité des

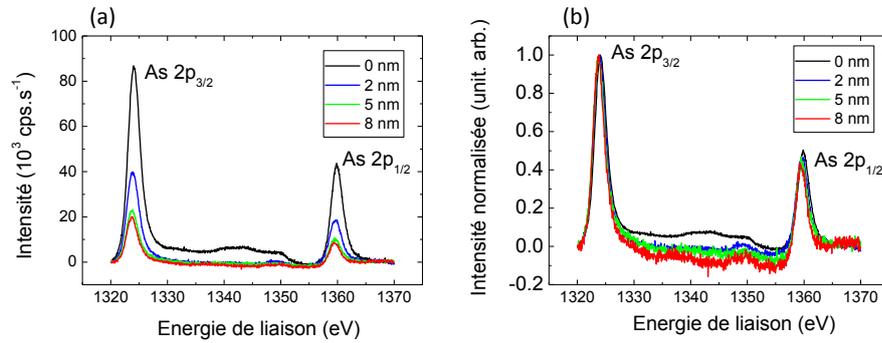


FIGURE 4.6 – Spectres XPS As 2*p* pour 0, 2, 5 et 8 nm d'épaisseur de fer (échantillon Fe-MnAs-50).

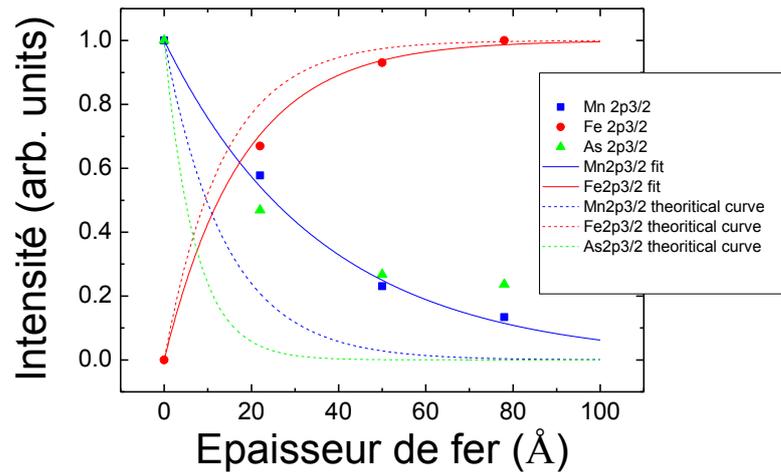


FIGURE 4.7 – Evolution de l'intensité des pics $2p_{3/2}$ de Fe (ronds), Mn (carrés) et As (triangles) avec le recouvrement en fer [courbes d'ajustement exponentiel (traits) et courbes "théoriques" (pointillés)].

pics de As est saturée à $I \approx I_0/4$, à partir de 5 nm d'épaisseur nominale de fer (épaisseur au-delà de laquelle les intensités des pics du fer et de Mn continuent de varier de manière exponentielle). L'interprétation la plus probable est qu'une certaine quantité d'arsenic flotte à la surface de la couche de fer. Une telle ségrégation des atomes As à travers une couche de fer a déjà été observée pour Fe/GaAs [60] et Fe/InAs [61]. Une monocouche de sélénium flottant à la surface d'une couche de fer pour le système Fe/ZnSe a aussi été observée [62]. La courbe d'ajustement des intensités des pics Mn $2p_{3/2}$ a été obtenue pour un libre parcours moyen $\lambda' \approx 36 \text{ \AA}$,

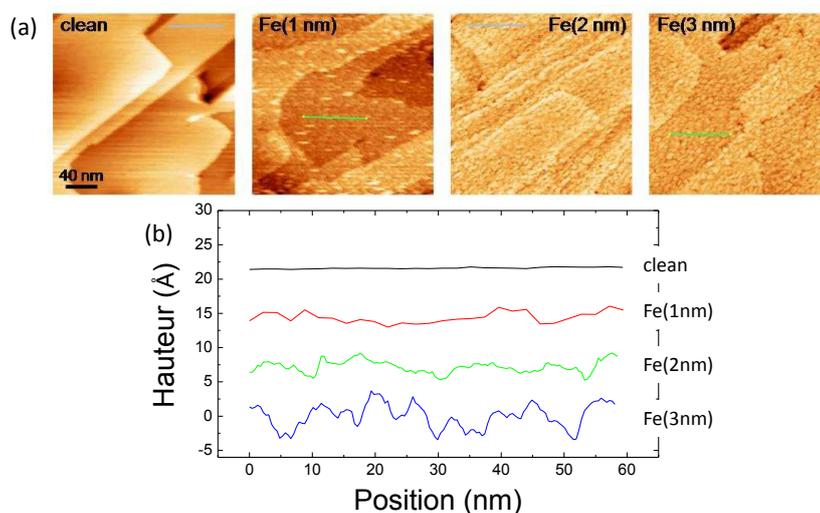


FIGURE 4.8 – (a) Images STM obtenues pour différents recouvrement de fer (0, 1, 2 et 3 nm). (b) Profils tracés avec le logiciel WSxM, à partir de (a) (échantillon Fe-MnAs-100).

au lieu de $\lambda \approx 14 \text{ \AA}$ [59]. Cet écart entre la longueur d'échappement attendue et celle déduite de nos mesures peut s'expliquer soit par la croissance d'une couche non homogène de fer, soit par un phénomène d'interdiffusion. Les images STM montrent que la couche de fer recouvre uniformément la surface de MnAs et ne croît pas en îlots [Fig. 4.8(a)]. Les profils réalisés à partir de ces images montrent des variations de hauteur de 1 à 5 Å, pour 0 et 3 nm d'épaisseur de fer respectivement [Fig. 4.8(b)]. Pour ces mêmes épaisseurs, la rugosité RMS de la surface varie de 1 à 2,4 Å. La différence de longueur d'échappement entre nos expériences et les calculs est donc probablement liée à l'interdiffusion entre le fer et MnAs.

Bien que l'analyse des spectres mesurés par spectroscopie XPS ne donne pas d'informations quantitatives, celle-ci nous a permis de mettre en évidence un phénomène d'interdiffusion entre le fer et MnAs. Afin de caractériser et de visualiser la zone d'interdiffusion, une étude de l'interface a été réalisée par TEM.

Interface Fe/MnAs : zone d'interdiffusion étudiée par TEM

Des images EFTEM (filtrées en énergie) ont été mesurées pour caractériser la zone d'interdiffusion entre les couches de fer et de MnAs. Les Figs. 4.9(a-c) montrent les images obtenues pour une couche de fer de 5 nm d'épaisseur, épitaxiée sur une couche de MnAs de 140 nm d'épaisseur (échantillon Fe-5-MnAs-140). La comparaison des images mesurées dans la même région de l'échantillon, pour des pertes d'énergie aux seuils d'absorption L_3 de Fe et de Mn, ne montre pas d'interdiffusion entre les deux couches : les zones claires et foncées de la Fig. 4.9(b), cor-

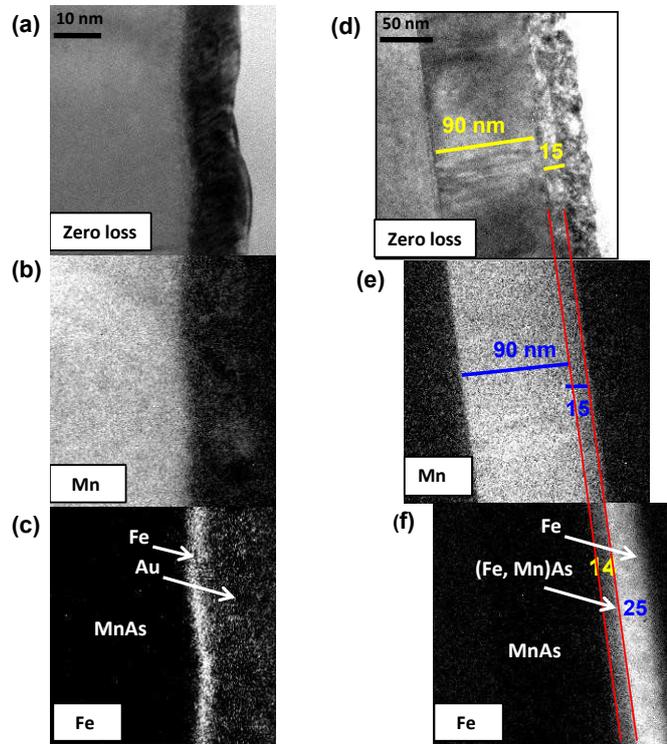


FIGURE 4.9 – A gauche : images EFTEM obtenues pour une couche fine de fer (échantillon Fe-5-MnAs-140). A droite : images obtenues pour une couche plus épaisse de fer (échantillon Fe-40-MnAs-90). Ces images ont été mesurées : (a)(d) sans perte d'énergie ; (b)(e) et (c)(f) pour des pertes d'énergie aux seuils d'absorption L_3 de Mn et de Fe respectivement.

respondant aux couches de MnAs et de Fe respectivement, indiquent une frontière abrupte entre les deux couches. Cette remarque est aussi valable pour la Fig. 4.9(c), montrant une image obtenue au seuil d'absorption L_3 de Fe où les contrastes sont inversés par rapport à la Fig. 4.9(b). Contrairement aux résultats obtenus par XPS, les images EFTEM ne montrent donc pas d'interdiffusion et ce, pour des épaisseurs de fer comparables. Du fait de la faible quantité de fer déposée, la possibilité d'une faible interdiffusion, sur quelques monocouches seulement est envisageable et pourrait ne pas être détectée par EFTEM. Les observations faites à partir de ces images ne permettent donc pas d'écarter le phénomène d'interdiffusion. Afin de trancher définitivement la question de l'interdiffusion entre Fe et MnAs, nous avons tenté d'amplifier le phénomène en déposant une couche de fer plus épaisse.

Des images EFTEM de l'interface entre une couche de fer de 40 nm d'épaisseur et MnAs (échantillon Fe-40-MnAs-90) ont été obtenues. Les Figs. 4.9(d-f) montrent trois images EFTEM : la première mesurée sans perte d'énergie

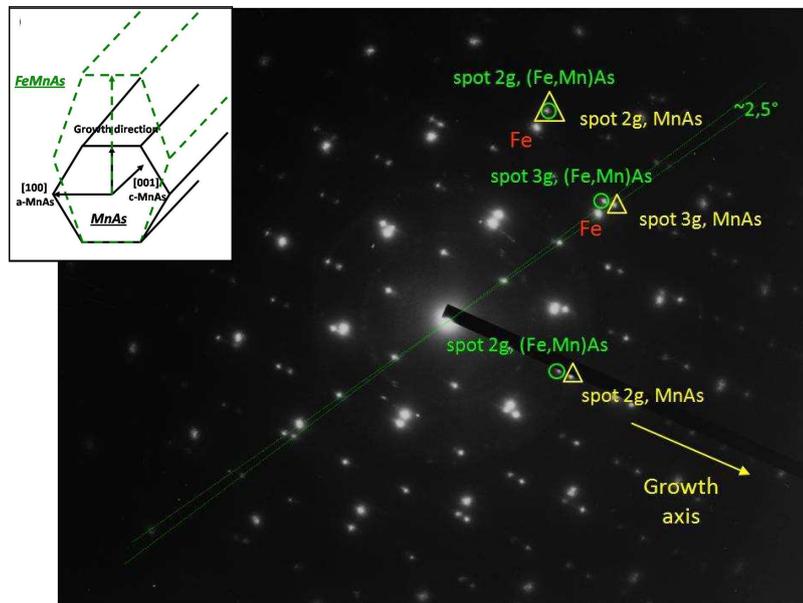


FIGURE 4.10 – Figures de diffraction obtenues dans une région de l'échantillon comprenant les couches de fer seul (rouges), de MnAs (triangles jaunes) et de la zone d'interdiffusion (cercles verts). Encadré en haut à gauche : schéma de la maille primitive de MnAs (noir) et du composé interfacial (Fe, Mn)As (vert), ce dernier montrant une maille proche de celle de MnAs, étirée selon la direction de croissance (échantillon Fe-40-MnAs-90).

[Fig. 4.9(d)] et les deux suivantes pour des pertes d'énergie aux seuils d'absorption L_3 de Mn et de Fe [Figs. 4.9(e) et (f) respectivement]. La Fig. 4.9(e) indique une zone claire correspondant à la couche de MnAs et une zone foncée correspondant à la couche de fer. On observe aussi une zone grise à l'interface, correspondant à une région d'interdiffusion composée de fer et de Mn. On peut préciser ici qu'une telle image ne donne pas d'information sur la présence ou non d'arsenic. L'épaisseur de cette couche d'interdiffusion est estimée à environ 15 nm. Dans la Fig. 4.9(f), les contrastes sont inversés par rapport à l'image 4.9(e) et nous pouvons aussi constater la présence d'une zone grise correspondant à la région d'interdiffusion décrite précédemment.

Afin d'étudier en détail la structure de l'interface, des mesures de diffraction d'électrons ont été réalisées dans une large zone de l'échantillon, incluant les couches de MnAs et de fer. La Fig. 4.10 montre trois figures de diffraction. La figure de diffraction de MnAs est composée de taches organisées selon un réseau hexagonal (taches indiquées en jaune). Les taches de diffraction de la couche de fer pur (indiquées en rouge) décrivent aussi un hexagone, comme cela a été précisé précédemment (paragr. 4.1.1). La présence d'autres taches est clairement

visible (en vert) et ne peut correspondre qu'à la zone d'interdiffusion. Cette région est caractérisée par des taches décrivant un hexagone, proche de celui de MnAs. Ainsi, en combinant les informations concernant la chimie (EFTEM) et la structure (figures de diffraction) de l'interface, on peut conclure que le fer et MnAs interdiffusent, menant à la formation d'un composé interfacial (Fe, Mn)As dont la maille est proche de celle de MnAs. Cependant, alors que les distances inter-réticulaires sont proches de celles de MnAs dans le plan de croissance, les distances mesurées selon l'axe de croissance sont plus grandes pour (Fe, Mn)As que pour MnAs. Ces mesures peuvent être interprétées en considérant les relations épitaxiales de MnAs/GaAs(001). En effet, alors que les distances inter-réticulaires de (Fe, Mn)As dans le plan de croissance sont figées par le substrat, les plans sont libres de toute contrainte dans la direction de croissance. De plus, la simple considération géométrique de cette maille de type MnAs, mais étirée selon l'axe de croissance, devrait s'accompagner d'une légère inclinaison des plans $\{110\}$ et $\{100\}$ (Fig. 4.10-encadré en haut à gauche). Cette remarque est confirmée par les mesures de diffraction puisque les taches de diffraction des plans (110) et (100) mesurées pour (Fe, Mn)As sont décalées de $2,5^\circ$ par rapport aux taches mesurées pour MnAs.

La figure de diffraction TEM de (Fe, Mn)As a été confirmée par des mesures de diffraction de rayons X ($\theta/2\theta$). Le diagramme indique la présence d'un pic à $2\theta \approx 51,1^\circ$ (Fig. 4.2), correspondant à la diffraction des plans (020) de (Fe, Mn)As soit à une distance inter-réticulaire $d = 1,8 \text{ \AA}$. Cette valeur correspond à la distance inter-réticulaire mesurée en TEM, d'après les taches de diffraction obtenues dans la direction de croissance (Fig. 4.10).

D'après certaines publications, le composé (Fe, Mn)As peut présenter un ordre AFM avec une température de Néel de 190 K [63]. La caractérisation magnétique de la couche de (Fe, Mn)As n'a pas encore été effectuée mais des mesures réalisées avec un SQUID, pour l'échantillon Fe-40-MnAs-90, ont montré certains indices quant à l'aimantation de cette couche. La Fig. 4.11 montre un cycle d'hystérésis mesuré et une aimantation à saturation d'environ 750 kA/m, ce qui est nettement inférieur à l'aimantation du fer bcc massif ($\approx 1700 \text{ kA/m}$ à la température ambiante [64]). En faisant l'hypothèse que l'aimantation de la couche de fer est celle du fer massif, l'aimantation mesurée pourrait provenir d'une couche de 25 nm d'épaisseur seulement. Par conséquent, la couche de fer serait NFM sur 15 nm d'épaisseur, ce qui correspond à l'épaisseur de (Fe, Mn)As mesurée par EFTEM. Cela pourrait signifier que la zone d'interdiffusion est NFM.

Les résultats présentés dans ce paragraphe ont montré une zone d'interdiffusion s'étendant sur 15 nm entre une couche de fer de 40 nm d'épaisseur et MnAs. Bien que les mesures XPS aient montré des signes d'interdiffusion pour des couches fines de quelques nanomètres, les images EFTEM n'ont pas permis de visualiser la région d'interdiffusion pour une couche de fer de 5 nm. En comparant les observations EFTEM faites pour les couches fine et épaisse de fer, nous en déduisons qu'il s'agit d'un effet cinétique d'interdiffusion, dépendant du temps de dépôt du fer et donc du temps pendant lequel le substrat de MnAs est porté à 150°C . En

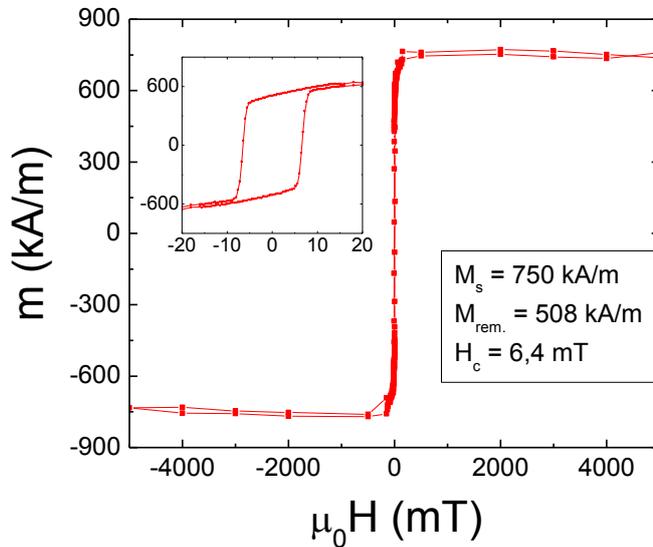


FIGURE 4.11 – Cycle d’hystérésis mesuré avec un SQUID pour le système Fe/MnAs/GaAs(001), avec $H_{\text{appl.}}$ appliqué selon [100] MnAs. Ces mesures ont été effectuées à 77°C , température à laquelle MnAs est NFM et où le signal magnétique provient donc uniquement du fer (échantillon Fe-40-MnAs-90).

considérant que le fer et MnAs interdiffusent de manière constante en fonction du temps, le dépôt de 5 nm de fer donnerait lieu approximativement à la formation d’une couche d’interdiffusion de moins de 2 nm d’épaisseur. Cette zone serait donc difficilement observable par EFTEM du fait de la résolution des images (environ 1 nm). Notons que l’interdiffusion observée pourrait expliquer l’absence ou le faible couplage d’échange magnétique entre le fer et MnAs (paragr. 4.2.2).

4.1.3 Surface du fer caractérisée par STM

MnAs/GaAs(001) est utilisé comme gabarit pour déposer une fine couche de fer. Comme cela a été montré dans le Chap. 3, la morphologie de la surface de MnAs présente deux structures périodiques d’origine différente : selon [100] (Fig. 3.2) et [001] (Fig. 3.3). Il est donc nécessaire d’observer sous quelle forme le fer croît sur un tel gabarit. De plus, ces deux structures induisent des propriétés magnétiques particulières : anisotropie magnétique du fer pour la première (Fig. 4.2.2) et génération d’un champ de fuite pour la seconde (4.2.3). Il est important d’observer d’éventuelles modifications de la surface de MnAs après le dépôt du fer.

Des images STM ont été obtenues pour différentes épaisseurs de fer. La Fig. 4.12 montre les images de la surface de couches de 1 nm, 2 nm, puis 3 nm de fer, déposées sur une couche de MnAs de 100 nm d’épaisseur (échantillon Fe-MnAs-100). Alors que les images STM de $100 \times 100 \text{ nm}^2$ montrent une augmenta-

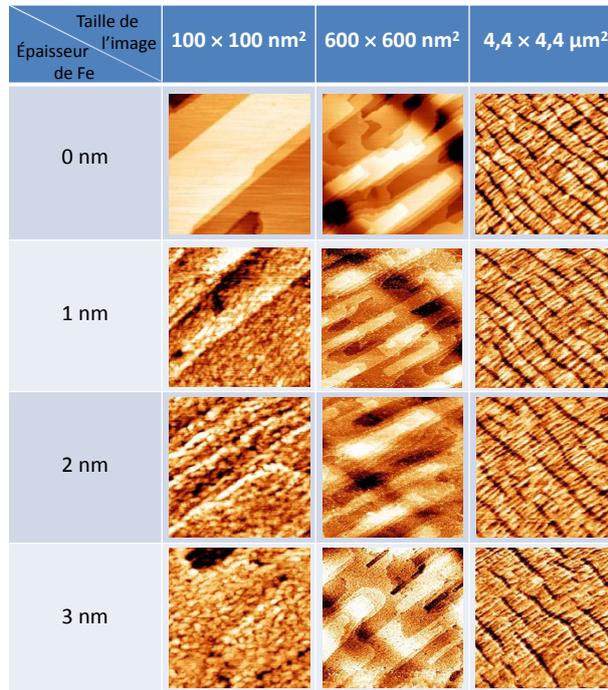


FIGURE 4.12 – Images STM de la surface du fer de Fe/MnAs(100 nm)/GaAs(001), montrant l'évolution de cette surface avec l'épaisseur de fer. Ces images ont été obtenues à la température ambiante, à différentes échelles et pour des épaisseurs de fer de 0, 1, 2 et 3 nm (échantillon Fe-MnAs-100).

tion de la rugosité de la surface avec l'épaisseur de fer, les images de $600 \times 600 \text{ nm}^2$ indiquent que la couche de fer ne modifie pas la structure et la forme des monticules présents à la surface de MnAs, mais au contraire épouse cette forme. L'évolution de la rugosité avec l'épaisseur de fer a été calculée [40], à partir des images STM de $4,4 \times 4,4 \mu\text{m}^2$ [Fig. 4.13(a)]. On remarque que la rugosité augmente de manière exponentielle avec l'épaisseur, d'environ 4,2 Å (sans fer) à 8,0 Å (3 nm de fer).

Les images de $4,4 \times 4,4 \mu\text{m}^2$ (Fig. 4.12) montrent que la modulation α/β -MnAs est perturbée après le dépôt du fer. On remarque notamment une augmentation de la période lorsque l'épaisseur de la couche de fer augmente. D'après l'image STM de la surface de fer pour une couche de 3 nm d'épaisseur, la périodicité des bandes α/β devient difficilement observable car le champ de mesure devient trop petit comparé à la largeur des bandes. L'analyse par FFT de la quasi-périodicité des bandes montre des densités spectrales très diffuses et par conséquent une grande incertitude (100 nm) sur la période T .

Pour la détermination de la période des bandes, nous avons fait appel à un logiciel de traitement d'images [40] qui permet le calcul de la fonction d'auto-

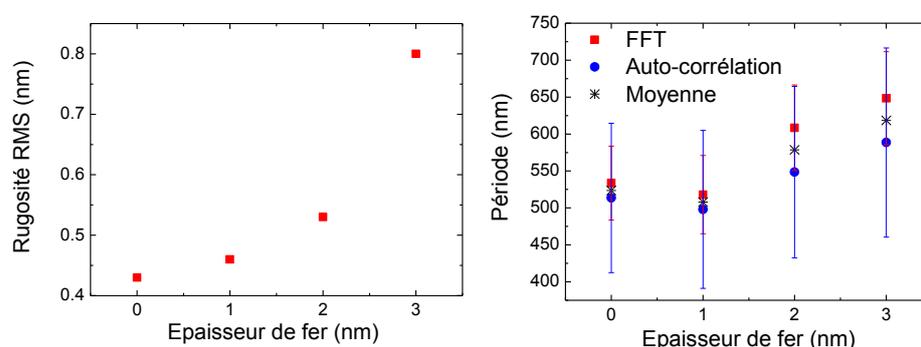


FIGURE 4.13 – Evolution avec l'épaisseur de fer de (a) la rugosité RMS et (b) la période. Ces calculs et mesures ont été réalisés à partir des images STM ($4,4 \times 4,4 \mu\text{m}^2$) de la Fig. 4.12, à la température ambiante, pour des épaisseurs de fer de 0,1 nm, 2 nm et 3 nm (échantillon Fe-MnAs-100).

corrélation, fonction correspondant à la corrélation croisée du signal par lui-même, ce signal étant calculé (ligne par ligne) à partir des contrastes répétés sur toute l'image. La fonction d'auto-corrélation est donnée par : $(1/T) \int_{-\infty}^{+\infty} x(t)x(t-\tau)dt$, où x est ici la position sur une ligne de l'image et T la période. La période mesurée par FFT (dans l'espace réciproque) et par fonction d'auto-corrélation donne des résultats différents bien que leur évolution avec l'épaisseur de fer est semblable : la valeur obtenue par FFT est systématiquement plus grande [Fig. 4.13(b)]. De plus, on remarque que l'incertitude liée à ces mesures augmente avec l'épaisseur de fer du fait de l'augmentation de la période pour un champ de mesure constant ($4,4 \times 4,4 \text{ nm}^2$). La perturbation de la périodicité des bandes est aussi visible par la dispersion entre les périodes calculées par FFT et par auto-corrélation. Cette dispersion augmente avec l'épaisseur de fer, variant de 20 nm (sans fer) à 60 nm (pour 3 nm d'épaisseur de fer). En considérant la période des bandes comme la moyenne des valeurs obtenues par les deux méthodes [Fig. 4.13(b)-étoiles], on observe que celle-ci augmente avec l'épaisseur de fer : variation de 523 nm sans fer à 618 nm après le dépôt de 3 nm de fer.

Cette analyse par STM est confirmée par des images X-PEEM obtenues pour un échantillon dont la composition est Fe (2 nm)/MnAs (70 nm)/GaAs (001) (échantillon Fe-2-MnAs-70). La Fig. 4.14, obtenue à la température ambiante, montre des bandes périodiques de couleur grise (verticales), correspondant aux bandes β -MnAs. la période des bandes α/β mesurée à partir de cette image est de (526 ± 50) nm, pour un échantillon de 70 nm d'épaisseur. Cette valeur est nettement supérieure à la période des bandes mesurée avant le dépôt du fer ($4,8e = 336$ nm). Cette observation corrobore les mesures obtenues par XRMS de la période des bandes α/β montrant des valeurs supérieures à celles mesurées par STM avant le dépôt du fer (paragr. 4.2.3).

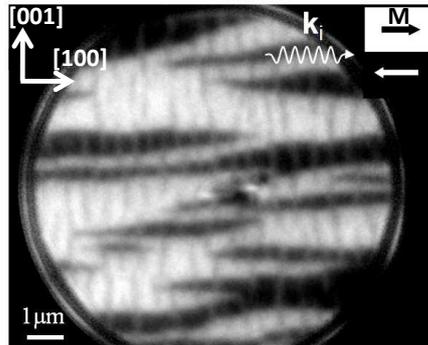


FIGURE 4.14 – Image X-PEEM obtenue au seuil d’absorption L_3 de Mn, à la température ambiante, avec un plan d’incidence contenant l’axe de facile aimantation de MnAs, selon $[100]$ MnAs (échantillon Fe-2-MnAs-70).

4.2 Propriétés magnétiques

Les grandeurs physiques relatives aux propriétés magnétiques (taux d’asymétrie, champ coercitif, champ saturant) ont été mesurées par XRMS (paragr. 2.3.4), technique “tout photons” permettant l’application d’un champ magnétique sans perturber les mesures. La XRMS, sensible à l’élément, a permis de discriminer la contribution magnétique des différentes couches. Cette technique est parfaitement adaptée à l’étude de Fe/MnAs/GaAs (001) car, outre les propriétés magnétiques, il est possible de sonder les structures ordonnées de l’auto-organisation des bandes α - β et des monticules. Le phénomène recherché et prédit par nos calculs (paragr. 3.4.2) concerne l’action du champ de fuite des domaines α -MnAs sur une couche de fer et ce, à l’échelle des dimensions d’un domaine (quelques centaines de nanomètres). La XRMS n’étant sensible qu’à l’aimantation moyennée sur les dimensions latérales de l’échantillon, nous avons aussi eu recours à la X-PEEM pour imager les domaines magnétiques avec une résolution pouvant atteindre environ 50 nm.

Les grandeurs magnétiques caractérisant chacune des deux couches de fer et de MnAs seront tout d’abord présentées : des mesures XRMS montreront notamment l’anisotropie magnétique de ces deux couches. Puis l’action locale du champ de fuite (généralisé par les domaines α -MnAs) sur l’aimantation du fer sera présentée en deux temps : l’orientation de l’aimantation du fer sur la phase α -MnAs puis sur la phase β . Les résultats seront présentés dans l’ordre suivant :

- Des mesures XRMS, permettant de comprendre l’origine du phénomène en comparant les propriétés structurales et magnétiques de MnAs aux propriétés magnétiques du fer.
- Des images X-PEEM montrant l’effet du champ magnétique de fuite à l’échelle d’un domaine.

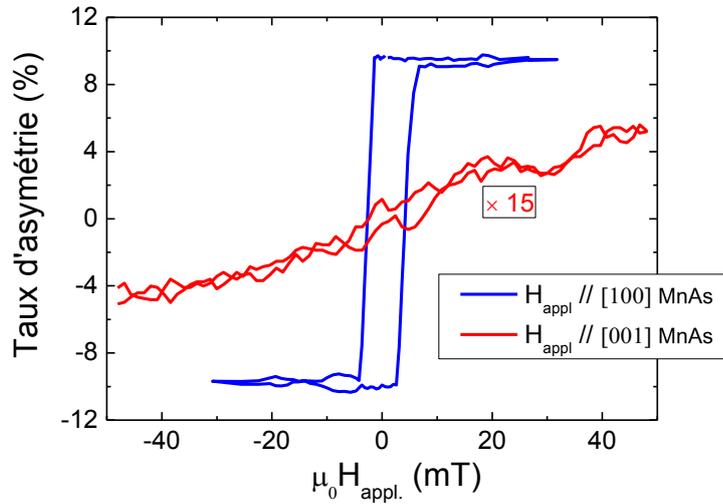


FIGURE 4.15 – Evolution du taux d’asymétrie (réflectivité spéculaire) avec le champ magnétique, selon [100] MnAs (bleu) et selon [001] MnAs (rouge), à -2°C , au seuil d’absorption L_3 de Mn (échantillon Fe-5-MnAs-130).

- La comparaison entre les calculs et les expériences pour une analyse quantitative.

Enfin, nous verrons comment l’action locale du champ de fuite peut mener au renversement de l’aimantation totale du fer et ce, sans appliquer de champ magnétique.

4.2.1 Anisotropie magnétique uniaxiale de MnAs

Les cycles d’hystérésis présentés ici ont été réalisés en géométrie coplanaire, c’est-à-dire avec le plan de diffusion en coïncidence avec le plan d’incidence. Les cycles d’hystérésis ont été mesurés avec un champ magnétique appliqué dans le plan d’incidence. Dans notre cas, les mesures magnétiques sont sensibles à l’aimantation de la couche de fer ou de MnAs moyennée sur les dimensions latérales de l’échantillon.

Les principales propriétés magnétiques discutées ici sont relatives au système Fe (5 nm)/MnAs (130 nm)/GaAs (001), recouvert d’une couche protectrice de ZnSe (échantillon Fe-5-MnAs-130). Les mesures XRMS ont été réalisées en accordant l’énergie des rayons X au seuil d’absorption L_3 de Mn (640 eV), permettant ainsi de sonder uniquement les propriétés magnétiques de la couche de MnAs. La Fig. 4.15 montre le signal dichroïque mesuré en fonction du champ magnétique selon [001] MnAs et [100] MnAs, à -2°C . Dans le cas où le plan d’incidence est parallèle à la direction [100] MnAs, un cycle carré est mesuré avec un champ coercitif H_c et un champ saturant H_s de 3 mT. En revanche, le cycle d’hystérésis mesuré avec le plan d’incidence parallèle à la direction [001] MnAs ne montre pas

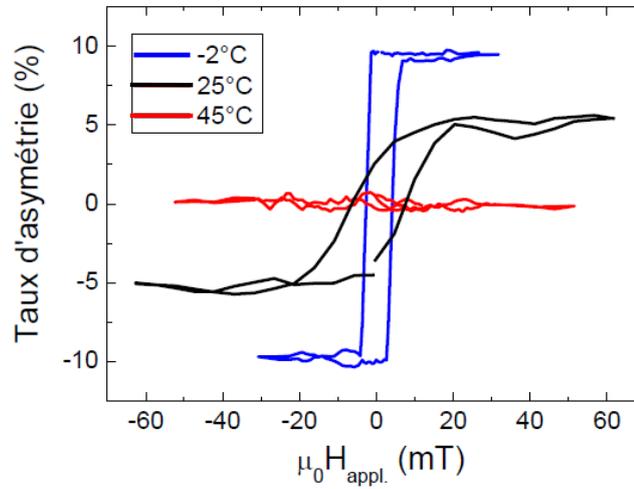


FIGURE 4.16 – Evolution du taux d’asymétrie (réflectivité spéculaire) avec le champ magnétique, à -2°C (phase α seule), 25°C (coexistence des phases α/β) et 45°C (phase β seule), selon l’axe de facile aimantation $[100]\text{MnAs}$, au seuil d’absorption L_3 de Mn (échantillon Fe-5-MnAs-130).

de rémanence et dans ce cas, un champ magnétique de 50 mT n’est pas suffisant pour saturer l’aimantation. Ces mesures confirment que la direction $[001]$ de MnAs est un axe de difficile aimantation alors que la direction de facile aimantation est selon $[100]$.

L’évolution des cycles d’hystérésis avec la température nous a permis de caractériser les propriétés magnétiques du gabarit MnAs/GaAs(001) pendant la coexistence des phases α et β (Fig. 4.16). On remarque tout d’abord que les cycles d’hystérésis mesurés à -2°C et à 25°C sont ouverts et montrent une aimantation rémanente : respectivement 100% et 45% de l’aimantation à saturation. Ces cycles sont caractéristiques de l’état FM (phase α) de MnAs. Le cycle mesuré à 45°C , indique quant à lui un taux d’asymétrie presque nul, caractéristique de la phase PM β . On observe que la forme carrée du cycle mesuré à -2°C (dans la phase α seule) évolue avec la température, montrant un retournement plus doux de l’aimantation à partir d’environ 20°C . En plus du changement de forme des cycles, la coexistence de phases donne lieu à une importante diminution du taux d’asymétrie, qui varie d’environ 10% à -2°C à 5% à 25°C (Fig. 4.16). Cette évolution de l’aimantation avec la température est liée à la diminution de l’aimantation de la phase α avec la température, à la diminution de la fraction de phase α due à l’apparition prématurée de la phase β (coexistence de phases), et aussi à l’apparition de la composante hors plan de l’aimantation [37] (voir paragr. 1.3.3). La mesure de ces cycles d’hystérésis nous a permis aussi de rendre compte quantitativement de l’évolution de H_c et de H_s en fonction de la température (Fig. 4.17-ronds bleus). Habituellement,

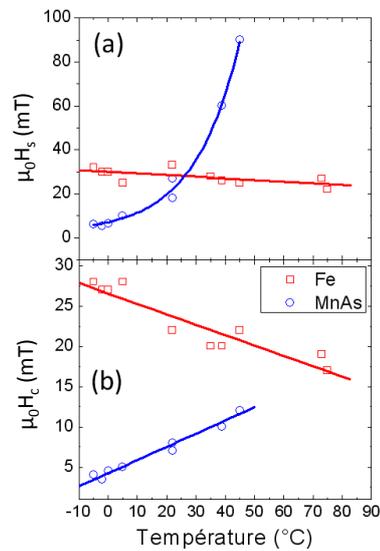


FIGURE 4.17 – Dépendance en température (a) du champ coercitif H_c et (b) du champ saturant H_s de MnAs (symboles ronds) et du fer (symboles carrés), selon l'axe de facile aimantation $[100]$ MnAs (échantillon Fe-5-MnAs-130).

les matériaux magnétiques montrent une diminution de H_c lorsque la température augmente. Au contraire, on observe ici son augmentation avec la température, passant linéairement d'environ 3 mT à -2°C à environ 10 mT à 40°C . Cette évolution de H_c est due à la coexistence de phases α/β , donnant lieu à la fragmentation des domaines de MnAs dont l'aimantation est alors plus dure à renverser. H_s augmente aussi avec la température mais de manière exponentielle, variant de 5 mT à -2°C à environ 90 mT à 45°C .

4.2.2 Anisotropie magnétique uniaxiale du fer

Les propriétés de la couche de fer ont été sondées en accordant l'énergie des rayons X au seuil d'absorption L_3 du fer (707 eV). Des cycles d'hystérésis, mesurés à 70°C , montrent l'évolution du signal dichroïque avec le champ magnétique (Fig. 4.18). Toujours en géométrie coplanaire, lorsque le plan d'incidence contient la direction de facile aimantation $[100]$ MnAs et la normale à la surface, l'aimantation du fer est saturée à partir d'un champ d'environ 25 mT et l'on observe une rémanence de 100%. Pour un plan d'incidence parallèle aux bandes (selon $[001]$ MnAs), l'application d'un champ de 30 mT n'est pas suffisant pour saturer l'aimantation. De plus, aucune rémanence n'est mesurée. La comparaison des cycles d'hystérésis obtenus dans ces deux directions révèle une anisotropie magnétique, avec un axe de facile aimantation selon $[100]$ MnAs, c'est-à-dire selon la direction perpendiculaire aux bandes.

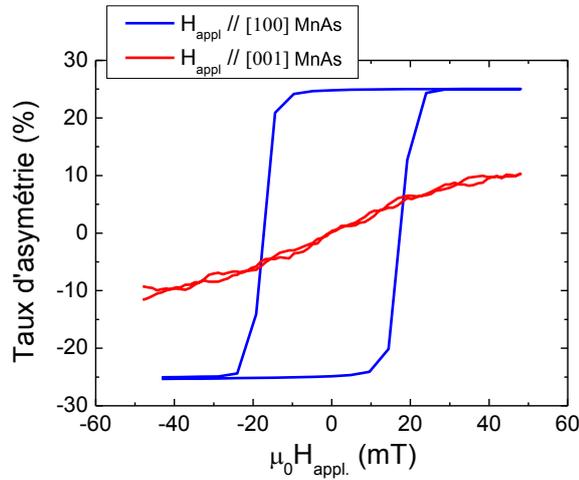


FIGURE 4.18 – Evolution du taux d’asymétrie (réflectivité spéculaire) avec le champ magnétique, selon [100] MnAs (bleu) et selon [001] MnAs (rouge), à 70 °C, au seuil d’absorption L_3 de Fe (échantillon Fe-5-MnAs-130).

Analyse de l’aimantation du fer selon son axe difficile [001] MnAs

La mesure de l’intensité diffusée, pour un plan d’incidence parallèle aux bandes et en variant l’angle θ_{in} avec 2θ fixe (rocking scan, paragr. 2.3.4), a permis un balayage en q_y (avec $q_x = 0$ et $q_z = 0,625 \text{ nm}^{-1}$). Ces mesures obtenues pour $h\nu = 707 \text{ eV}$ montrent un pic de diffraction large et centré à $q_y = \pm 0,055 \text{ nm}^{-1}$ [Fig. 4.19(a)]. Ce pic correspond à un paramètre d’ordre de 116 nm et provient de la structure périodique des monticules présents à la surface de MnAs (paragr. 3.3). La détection de ce pic au seuil d’absorption L_3 de Fe indique donc que le fer épouse cette morphologie de surface comme cela a été observé par STM (Fig. 4.12). Le même résultat a été obtenu au seuil d’absorption L_3 de Mn ($h\nu = 640 \text{ eV}$) mais aussi pour une énergie de rayons X hors résonance ($h\nu = 600 \text{ eV}$). La périodicité de cette structure ne dépend pas de la température car aucun décalage des pics de Bragg n’est mesuré [Fig. 4.19(a)]. Ceci est en bon accord avec les images STM obtenues en fonction de la température (Fig. 3.7).

La Fig. 4.19(b) montre l’évolution des cycles d’hystérésis selon l’axe de difficile aimantation, à trois températures caractéristiques de MnAs/GaAs(001) : 0 °C (phase FM α seule), 22 °C (coexistence des phases α et β) et 70 °C (phase β seule). Ces mesures indiquent que la direction [001] MnAs reste un axe de difficile aimantation pour le fer quelque soit la température.

Cette anisotropie magnétique de la couche mince de fer peut avoir plusieurs origines. En plus de l’anisotropie magnétocristalline, il est connu que la croissance de couches minces sur des substrats monocristallins peut donner lieu à des effets d’anisotropie magnétiques dans les couches minces. L’anisotropie de forme peut

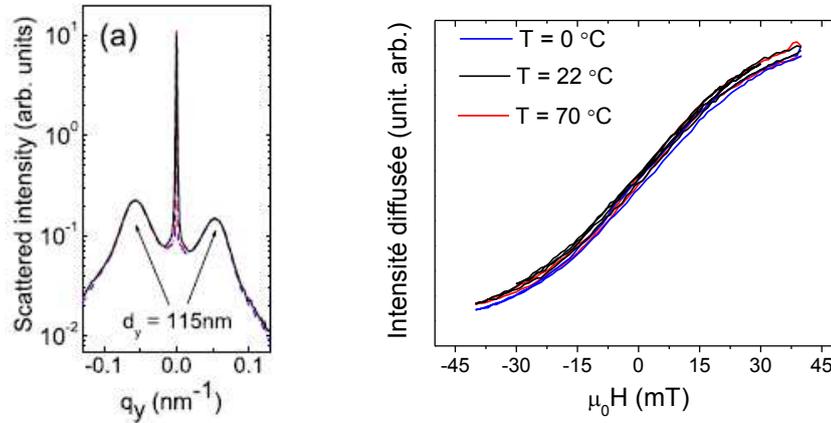


FIGURE 4.19 – Intensité diffusée selon [001] MnAs au seuil L_3 de Fe, à trois températures caractéristiques : 0°C (phase α seule), 22°C (coexistence α/β), 70°C (phase β seule) : (a) diagramme en q_y ($q_x = 0 \text{ nm}^{-1}$, $q_z = 625 \text{ nm}^{-1}$) ; (b) réflectivité spéculaire en fonction du champ magnétique (échantillon Fe-5-MnAs-130).

aussi induire de l'anisotropie magnétique. Dans notre cas, l'anisotropie magnétique du fer ne varie pas avec la température et ne dépend pas des phases α et β . Celle-ci pourrait donc aussi provenir d'une anisotropie de forme liée à la forme des monticules. Le calcul de la l'anisotropie magnétique de forme (via le calcul du champ démagnétisant [65]) donne des valeurs du même ordre de grandeur que l'anisotropie magnétocristalline du fer, soit $4,2 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ en considérant une maille cubique centrée [66].

Finalement, ces trois sources d'anisotropie magnétique peuvent être d'intensités relativement proches et donc contribuer à l'anisotropie magnétique de la couche de fer. Remarquons que la possible contribution de l'anisotropie de forme pourrait permettre d'agir sur l'anisotropie magnétique uniaxiale du fer en modifiant la forme des monticules selon les paramètres de croissance ou par un recuit (Fig. 3.15).

Analyse de l'aimantation du fer selon son axe facile [100] MnAs

Des cycles d'hystérésis ont été mesurés à différentes températures, avec un plan d'incidence orienté selon l'axe facile [100] MnAs (Fig. 4.20). Les résultats obtenus nous ont permis d'observer les propriétés suivantes :

- Les mesures de H_c et H_s montrent une décroissance linéaire entre 0°C et 80°C , passant respectivement de 27,5 à 17,5 mT [Fig. 4.17(b)-symboles carrés], et d'environ 30 à 25 mT [Fig. 4.17(a)-symboles carrés]. Il est important de souligner que les valeurs de ces grandeurs ainsi que leur dépendance en température sont nettement différentes pour MnAs (Fig. 4.17-symboles

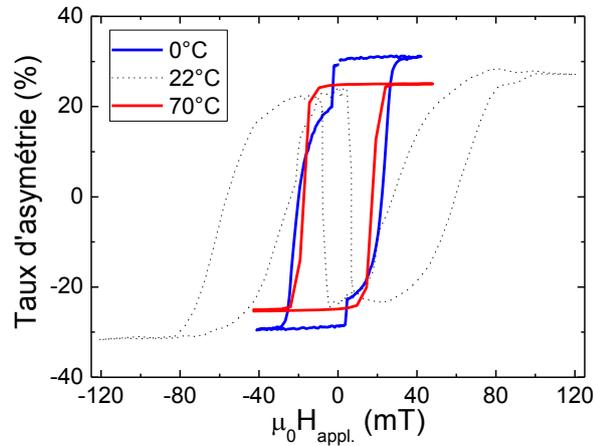


FIGURE 4.20 – Intensité diffusée (réflectivité spéculaire) en fonction du champ magnétique, selon [100] MnAs, à plusieurs températures caractéristiques : 0 °C (phase α -MnAs seule), 22 °C (coexistence α / β -MnAs), 70 °C (phase β -MnAs seule), au seuil d'absorption L_3 de Fe (échantillon Fe-5-MnAs-130).

ronds). Cela indique donc que si un couplage d'échange direct existe entre les couches de fer et de MnAs, celui est très faible.

- Nous disposons donc d'un système Fe/MnAs où les deux couches FM sont découplées magnétiquement, au sens de l'échange direct, sans introduire de couche séparatrice non magnétique. La Fig. 4.21(a) montre qu'à 0 °C, une configuration antiparallèle entre les aimantations des deux couches est obtenue et ce, pour des champs magnétiques compris entre 5 et 20 mT environ. L'application d'un champ supérieur à 20 mT aligne parallèlement les aimantations des deux couches. Ainsi, Fe/MnAs montre un comportement magnétique de type vanne de spin.
- Le cycle d'hystérésis mesuré à 0 °C selon l'axe de facile aimantation du fer montre un retournement de l'aimantation en deux temps. Un premier saut est détecté à 2,4 mT et correspond au retournement de 27% de l'aimantation. Puis les 73 % restant de l'aimantation se retournent à 33,6 mT [Fig. 4.21(a)]. Les cycles mesurés permettent d'observer l'évolution de l'aimantation de chaque couche et, par leur comparaison, de bien comprendre l'interaction magnétique entre ces couches. Dans notre cas, les mesures XRMS nous indiquent que le champ de 2,4 mT correspond au champ coercitif de MnAs, ce qui signifie qu'une petite partie de l'aimantation du fer suit le retournement de l'aimantation de MnAs [Fig. 4.21(a)]. Il s'agit du retournement de l'aimantation du fer dans la couche d'interdiffusion (Fe, Mn) As (paragr. 4.1.2). De plus, en mesurant avec une très bonne statistique le cycle d'hystérésis à

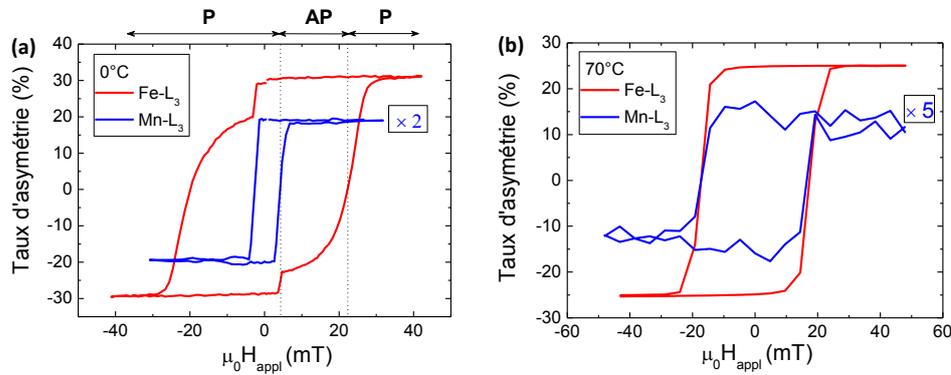


FIGURE 4.21 – Evolution de la réflectivité spéculaire avec le champ magnétique, mesurée aux seuils d'absorption L_3 de Mn (bleu) et Fe (rouge), selon [100] MnAs : (a) à 0 °C ; (b) à 70 °C (échantillon Fe-5-MnAs-130).

70 °C au seuil L_3 de Mn, on obtient un signal magnétique bien que MnAs soit dans la phase β à cette température. Le champ coercitif correspondant au retournement de cette aimantation est égal à celui du fer [Fig. 4.21(b)] et vaut 17 mT. Ainsi, une partie de l'aimantation de MnAs suit le retournement de l'aimantation du fer, montrant la signature magnétique de la zone d'interdiffusion (Fe, Mn) As.

- A 22 °C, l'évolution de la réflectivité spéculaire avec le champ magnétique montre un cycle d'hystérésis complexe (Fig. 4.20). Trois retournements successifs de l'aimantation de la couche de fer sont observés à -32 mT, 7 mT et 60 mT.

Cette dernière observation est au coeur du phénomène étudié ici. Ce cycle d'hystérésis est observé à la température ambiante, pendant la coexistence de phases α/β de MnAs. La suite de ce chapitre est consacrée à l'étude du phénomène qui est à l'origine de ce cycle d'hystérésis singulier et qui permettra d'obtenir les propriétés originales du système Fe/MnAs/GaAs (001).

4.2.3 Contrôle de l'aimantation du fer à l'échelle sub-micrométrique

D'après nos calculs (paragr. 3.4.2 et 3.4.3), la forme des domaines magnétiques de MnAs devrait produire un champ de fuite suffisant pour renverser l'aimantation d'une couche FM, à condition que ce champ soit supérieur au champ coercitif de la couche magnétique considérée et que le couplage d'échange à l'interface soit faible. Comme cela a été montré précédemment, nous avons mesuré un champ coercitif du fer d'environ 20 mT pendant la coexistence de phases α/β . Cette valeur est inférieure à H_x calculé pendant la coexistence des phases, suggérant que ce

champ de fuite généré par les domaines α -MnAs pourrait renverser l'aimantation du fer dans une gamme de température couvrant la transition de phase de MnAs. De plus, nous avons mesuré des champs coercitifs et saturants nettement différents pour les deux couches, montrant que si il existe un couplage d'échange direct entre Fe et MnAs, celui-ci est faible.

Dans la suite de ce chapitre, nous comparons les configurations magnétiques observées par X-PEEM et XRMS, pour la couche de fer et la couche de MnAs.

Alignement antiparallèle $M(\text{Fe})/M(\alpha\text{-MnAs})$

Corrélation entre la coexistence des phases α/β et l'aimantation du fer, observée par XRMS Les mesures de réflectivité pour l'échantillon Fe-5-MnAs-130 ont été réalisées en géométrie coplanaire avec les bandes α/β perpendiculaires au plan d'incidence. Les photons sont polarisés elliptiquement et leur énergie est accordée au seuil d'absorption L_3 de Fe. En faisant varier θ_{in} avec 2θ constant, l'intensité diffusée a été mesurée en fonction de q_x (avec $q_y = 0$ et $q_z = 1,85 \text{ nm}^{-1}$) afin de détecter le paramètre d'ordre correspondant à la périodicité des bandes (paragr. 2.3.4). La Fig. 4.22(a) montre l'évolution de la modulation de la surface à différentes températures. Lorsque la température passe de 38°C à 26°C , on remarque une forte diminution de l'intensité spéculaire et la formation de pics de diffraction pour $q_x = \pm 0,0068 \text{ nm}^{-1}$, correspondant à une période des bandes α/β de 924 nm. Cette valeur de la période est supérieure à celle attendue (4,8 fois l'épaisseur de MnAs soit 624 nm). Cette différence a aussi été détectée par des mesures XRMS réalisées au seuil L_3 de Mn, montrant une augmentation de la période des bandes α/β -MnAs induite par le dépôt du fer. Cette observation est en bon accord avec les mesures STM présentées dans le paragr. 4.1.3.

La Fig. 4.22(b) montre la dépendance en température de la réflectivité, mesurée aux seuils d'absorption L_3 de Fe (rouge) et de Mn (bleu). Les symboles pleins et vides correspondent respectivement à l'échauffement et au refroidissement de l'échantillon. Chaque point correspond à une mesure en rémanence après l'application d'un champ magnétique de 60 mT orienté parallèlement ou antiparallèlement à l'hélicité des photons. Les courbes de la Fig. 4.22(b-haut) sont la moyenne de ces deux mesures et représentent la réflectivité moyenne des rayons X par les couches de fer et de MnAs. On observe que l'évolution de ce signal avec la température est très similaire pour les deux couches : la réflectivité diminue lorsque la rugosité augmente, correspondant ici à la modulation en hauteur de la surface en bandes α et β entre environ 13 et 40°C . Le minimum de réflectivité est atteint à environ 28°C et correspond au système lorsqu'il présente une fraction de phases α et β identique. On note aussi une hystérésis en température d'environ 2°C , entre 15 et 20°C .

La Fig. 4.22(b-bas) montre l'évolution du taux d'asymétrie avec la température. Le taux d'asymétrie est la différence divisée par la somme des deux mesures effectuées après application du champ dans les deux directions opposées (paragr. 2.3.4). On mesure alors une diminution importante du signal magnétique de Mn lors de

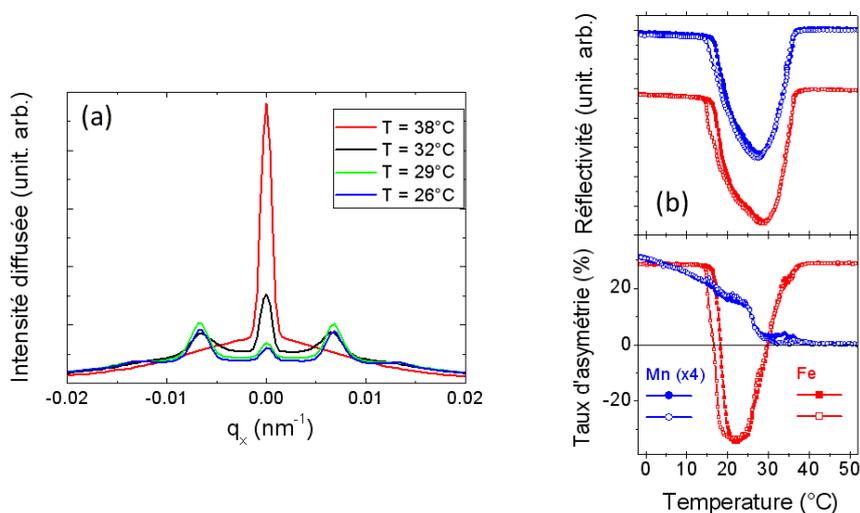


FIGURE 4.22 – (a) Diagramme en q_x ($q_y = 0 \text{ nm}^{-1}$ et $q_z = 1,85 \text{ nm}^{-1}$), en fonction de la température (en refroidissant), au seuil L_3 de Fe. (b) Evolution avec la température : (b-haut) de la valeur moyenne de la diffusion spéculaire mesurée en rémanence après l'application d'un champ magnétique de $\pm 60 \text{ mT}$; (b-bas) du taux d'asymétrie correspondant. Ces mesures ont été obtenues avec ($\theta_{sc} = 15^\circ$), $h\nu = 640 \text{ eV}$ (bleu) et $h\nu = 707 \text{ eV}$ (rouge). Les symboles vides et pleins correspondent respectivement au refroidissement et à l'échauffement de l'échantillon (échantillon Fe-5-MnAs-130).

l'échauffement de l'échantillon, comme cela a déjà été évoqué dans le paragr. 1.3.3. Dans le même temps, le signal magnétique du fer montre une évolution complexe avec la température. Les aimantations des couches de fer et de MnAs sont dans une configuration parallèle à basse température ($< 18^\circ\text{C}$). Puis lorsque la température augmente jusqu'à l'apparition des bandes, le signal du fer diminue rapidement et change de signe. L'aimantation rémanente du fer après une impulsion se retrouve renversée à environ 18°C . Un second changement de signe a lieu à 30°C , puis l'aimantation retrouve sa valeur initiale à 40°C , soit à la fin de la coexistence de phases de MnAs (lorsque les bandes α et β disparaissent). On remarque donc que, après l'application d'un champ magnétique externe, les aimantations des couches de fer et de MnAs sont dans une configuration antiparallèle dans une gamme de température d'environ 10°C correspondant à la coexistence des phases α et β .

Afin de mieux comprendre le couplage magnétique entre les couches de fer et de MnAs, des cycles d'hystérésis ont été mesurés à des températures correspondant à la coexistence de phases. La Fig. 4.23 montre un cycle mesuré à 22°C , aux seuils L_3 de Fe et de Mn. On peut alors suivre l'évolution de l'aimantation de chacune des deux couches avec le champ appliqué. La couche de MnAs se caractérise par un cycle d'hystérésis carré comme cela a déjà été

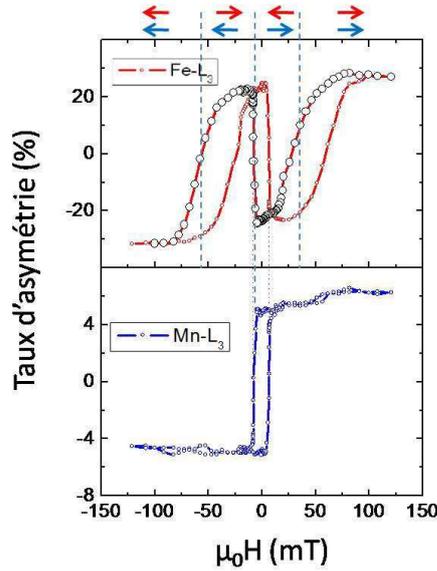


FIGURE 4.23 – Intensité diffusée (spéculaire) en fonction du champ magnétique, selon $[100]$ MnAs, à $22\text{ }^{\circ}\text{C}$, pour les seuils L_3 de Mn (bleu) et L_3 de Fe (rouge) (échantillon Fe-5-MnAs-130).

rapporté (paragr. 4.2.1), avec $H_c = 7,5\text{ mT}$. La couche de fer quant à elle montre un cycle d'hystérésis complexe. Si on lit le cycle de droite à gauche (ronds noirs) :

- Pour $H_{\text{appl.}} > 31,5\text{ mT}$, les aimantations du fer et de MnAs sont alignées par le champ extérieur et sont donc dans une configuration parallèle.
- Pour $-7,5 < H_{\text{appl.}} < 31,5\text{ mT}$, $M(\text{Fe})$ se retourne progressivement et le couplage antiparallèle entre $M(\text{Fe})$ et $M(\text{MnAs})$ est presque complet pour $-7,5 < H_{\text{appl.}} < 0\text{ mT}$.
- Pour $H_{\text{appl.}} = -7,5\text{ mT}$ [$H_c(\text{MnAs})$], l'aimantation de MnAs se retourne et l'aimantation du fer se retourne aussi à exactement la valeur de $H_c(\text{MnAs})$ (Fig. 4.23-pointillés). Le système garde ainsi sa configuration magnétique antiparallèle après inversion de l'aimantation de chacune des couches pointant dans la direction opposée à la précédente.
- Pour $H_{\text{appl.}} < -62\text{ mT}$, le champ extérieur retourne progressivement l'aimantation du fer et une configuration parallèle est retrouvée entre l'aimantation du fer et celle de MnAs..

On peut remarquer que deux retournements successifs de l'aimantation du fer ne correspondent pas à 100% mais à 88% de l'aimantation totale. On peut alors anticiper les résultats obtenus en X-PEEM et considérer que les 12% de l'aimantation

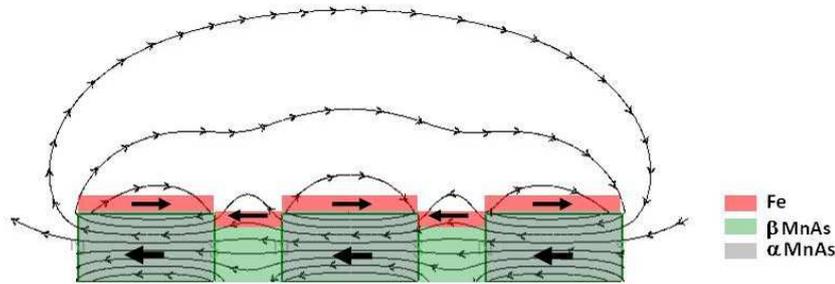


FIGURE 4.24 – Schéma du système Fe/MnAs faisant figurer les bandes α et β ainsi que les lignes de champ de fuite générées par les domaines α -MnAs, agissant sur l'aimantation de la couche de fer. Les flèches noires représentent l'aimantation des couches minces. Notons que ces lignes de champs ne sont que schématiques et qu'elles ne représentent pas les valeurs physiques réelles de MnAs et de Fe.

ne se retournant pas correspondent à l'aimantation du fer sur la phase β -MnAs, que l'on note Fe_β .

En résumé, les mesures XRMS des propriétés magnétiques de l'échantillon Fe-5-MnAs-130 nous ont permis de montrer, d'une part, la dépendance en température des configurations parallèle ou antiparallèle entre les aimantations rémanentes des deux couches (après l'application d'un champ magnétique de ± 60 mT) et, d'autre part, l'évolution de ces configurations avec le champ magnétique.

En considérant les signes discutés précédemment d'un faible couplage d'échange (paragr. 4.2.2), le renversement de l'aimantation du fer pendant la coexistence de phases α/β est attribué à l'action du champ de fuite généré par les bandes FM α -MnAs sur la partie du fer située juste au-dessus, noté Fe_α [67]. A environ 15°C , le MnAs est organisé sous la forme de larges domaines α , séparés par de très fines et longues bandes NFM β . Le champ de fuite dû à la forme finie et allongée des domaines apporte une contribution supplémentaire (en plus de $H_{\text{appl.}}$) au champ magnétique effectif agissant sur l'aimantation du fer (Fig. 4.24). Le champ effectif agissant sur le fer est alors : $H_{\text{eff.}} = H_{\text{appl.}} - H_x$, où H_x est le champ de fuite généré par les domaines α -MnAs. Pour un domaine de dimensions $c = 140$ nm, $b = 1000$ nm, $a = 700$ nm et une aimantation de MnAs dans le plan de 640 kA/m [36], le calcul de H_x d'après l'Eq. (3.11) donne une valeur de 75 mT (Fig. 3.21). Même si les domaines de l'échantillon Fe-5-MnAs-130 n'ont pas été observés par X-PEEM, ces dimensions sont choisies d'après des images X-PEEM (Fig. 4.28) obtenues pour un échantillon similaire dont la composition est Fe (4 nm)/MnAs (140 nm)/GaAs(001) (échantillon Fe-4-MnAs-140). En première approximation, le champ de fuite calculé est en bon accord avec les données expérimentales et le décalage de 45 mT du cycle d'hystérésis du fer [Fig. 4.23(haut)].

Ce modèle d'interaction dipolaire entre les couches de MnAs et de fer corrobore la différence de pente du taux d'asymétrie mesuré en fonction de la tempéra-

ture [Fig. 4.22(b-bas)]. Alors que le premier renversement de l'aimantation du fer à 15 °C est abrupt, le second changement de signe est atteint après une évolution plus lente de l'aimantation en augmentant la température à partir de 23 °C. Si le champ de fuite est responsable du retournement de l'aimantation de Fe_α , l'apparition des bandes et la division des domaines de MnAs sont suffisantes pour provoquer le phénomène qui a alors lieu dans une gamme de température de 2-3 °C autour de 15 °C. En revanche, le second changement de signe de $M(Fe)$ s'explique en considérant l'aimantation de Fe_β alignée par le champ magnétique appliqué avant chaque mesure. Ainsi, ce changement de signe de $M(Fe)$ est dû à l'élargissement continu de la phase β au détriment de la phase α et se produit sur une gamme de température d'environ 15 °C [Fig. 4.22(b-bas)]. En accord avec cette interprétation, l'aimantation du fer devrait s'annuler pour des bandes α et β de même largeur. Cette propriété est en effet confirmée par nos mesures puisque l'aimantation totale du fer est nulle à 30 °C [Fig. 4.22(b-bas)]; cette température correspondant au minimum de réflectivité [Fig. 4.22(b-haut)] et au maximum du pic de diffraction du premier ordre [Fig. 4.22(a)], c'est-à-dire à des bandes α et β de même largeur.

Ainsi, les mesures XRMS révèlent un couplage antiparallèle entre les aimantations du fer et de MnAs pendant la coexistence des phases α et β . A partir de ces mesures, nous avons proposé un modèle d'interaction dipolaire entre les domaines α -MnAs et Fe_α afin d'expliquer ce phénomène. Ce modèle suppose que le couplage est présent pour chaque domaine, alors que les mesures XRMS ne renseignent que sur l'aimantation moyennée sur les dimensions latérales de l'échantillon. Afin de tester notre modèle, il convient donc de sonder l'aimantation à une échelle plus locale et notamment à l'échelle d'un domaine.

Images X-PEEM des domaines du fer sur α -MnAs. Des images X-PEEM ont été obtenues pour l'échantillon Fe (2 nm)/MnAs (70 nm)/GaAs (001), recouvert d'une couche de 2 nm d'aluminium afin de protéger l'échantillon de toute oxydation (échantillon Fe-2-MnAs-70), 1 nm de ZnSe étant intercalé entre la couche de fer et celle d'aluminium afin d'éviter toute réactivité entre les couches. Malgré les 3 nm de couches protectrices et l'épaisseur de fer, il a été possible de détecter les photoélectrons issus du seuil L_3 de Mn, permettant ainsi d'imager les domaines de MnAs en plus de ceux du fer.

Les images obtenues (Fig. 4.25) indiquent l'orientation des domaines magnétiques à 22 °C. L'énergie des rayons X polarisés circulairement est accordée aux seuils d'absorption L_3 de Mn [Fig. 4.25(a)] et de Fe [Fig. 4.25(b)]. Dans ces images, les bandes α/β sont verticales. Les mesures ont été réalisées pour un plan d'incidence perpendiculaire aux bandes et avec un angle d'incidence entre k_{in} et le plan de la surface de 16°. Le contraste obtenu est donc principalement lié à la composante x de l'aimantation (dans le plan), selon les axes de facile aimantation de MnAs et du fer ([100] MnAs). Les zones claires et foncées correspondent aux domaines dont l'aimantation est respectivement parallèle et antiparallèle au vecteur d'onde des photons. L'image de la Fig. 4.25(a) montre l'organisation des domaines

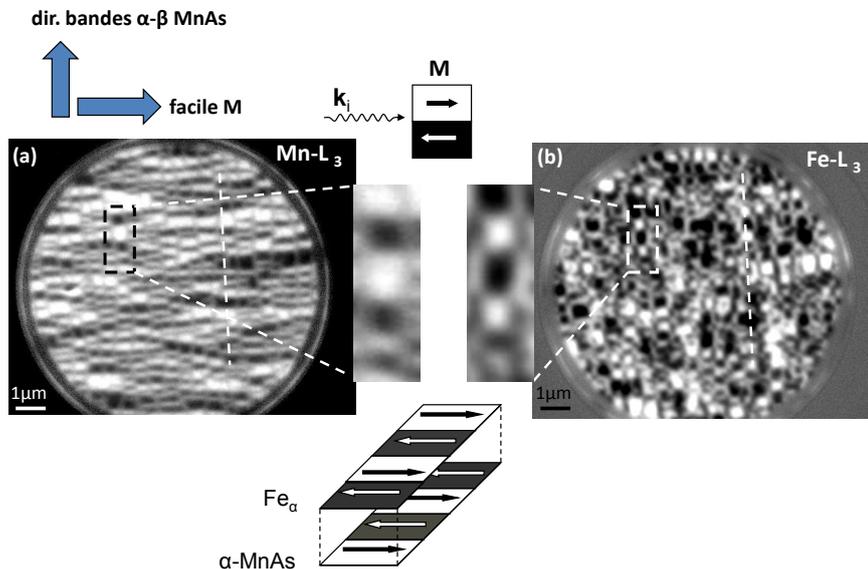


FIGURE 4.25 – Images X-PEEM obtenues à 22 °C, aux seuils d'absorption L_3 de (a) Mn et (b) Fe. Les zones délimitées en pointillé montrent un agrandissement sur une bande α -MnAs. Les lignes en pointillé correspondent au profil présenté dans la Fig. 4.26 (échantillon Fe-2-MnAs-70).

FM de MnAs, séparés par des domaines gris correspondant aux bandes NFM β . La comparaison de cette image avec celle obtenue au seuil d'absorption L_3 de Fe [Fig. 4.25(b)] montre clairement une corrélation entre l'orientation des domaines magnétiques des deux couches puisque les contrastes entre les deux images sont inversés (voir zooms) [68]. L'alignement majoritairement antiparallèle entre l'aimantation des domaines de MnAs et l'aimantation des domaines de Fe_α est alors confirmé localement, ce qui est en faveur du modèle d'interaction dipolaire entre les deux couches. La comparaison d'un profil réalisé le long d'une bande α avec un profil réalisé dans la même région mais à partir de l'image des domaines du fer rend compte de l'alignement antiparallèle des aimantations [Fig. 4.26(a)].

Afin de réaliser une étude quantitative de la corrélation des domaines, le taux de couplage antiparallèle Δ a été analysé visuellement en observant la coïncidence entre les zones claires et foncées des domaines du fer et de MnAs : $\Delta = 100\%$ signifie donc que tous les domaines de Fe_α sont antiparallèles aux domaines α -MnAs sous-jacents et $\Delta = 0\%$ correspond au cas opposé où tous les domaines sont dans une configuration parallèle. L'analyse de l'image entière de la Fig. 4.25 donne $\Delta = 82\%$.

Une étude plus détaillée a été réalisée en évaluant Δ en fonction de la taille des domaines α -MnAs. L'histogramme de la Fig. 4.26(b) montre que Δ augmente

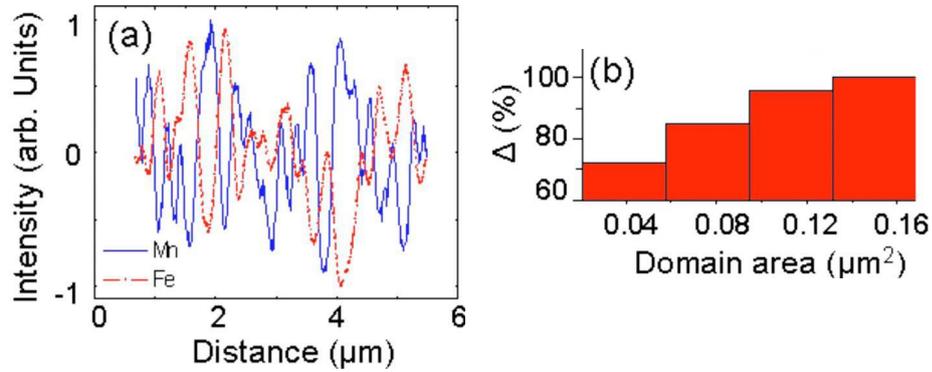


FIGURE 4.26 – A partir de la Fig. 4.25 : (a) Profils d'intensité réalisés le long d'une bande α (Fig. 4.25-lignes pointillées), au seuil L_3 de Mn (bleu) et de Fe (rouge). (b) Pourcentage de domaines du fer dont l'aimantation est antiparallèle à l'aimantation des domaines de MnAs sous-jacents (noté Δ), en fonction de la taille des domaines.

avec la taille des domaines. Ces images X-PEEM montrent un fort degré d'alignement antiparallèle, soit $\Delta > 96\%$ pour les plus grands domaines, dont l'aire est supérieure à $0,1 \mu\text{m}^2$. En revanche, les domaines dont l'aire est inférieure à $0,06 \mu\text{m}^2$ montrent un taux d'alignement antiparallèle de 70% [68]. Comme le montre la Fig. 4.27, des domaines beaucoup plus grands peuvent être obtenus à la température ambiante, sans appliquer de champ magnétique mais en réalisant un recuit *in situ* à 65°C . Dans ce cas, les domaines présentent une aimantation alignée dans la même direction à travers une dizaine de bandes (selon $[100]$ MnAs) et ces domaines sont plus longs (b augmente). On remarque que cette augmentation de la taille des domaines s'accompagne d'un taux de couplage antiparallèle Δ supérieur à 96% , confirmant ainsi la relation entre Δ et la taille des domaines.

Soulignons que les tailles des domaines ont été mesurées à une température donnée (soit pour a fixe). L'augmentation de celles-ci ne correspond qu'à l'augmentation de b et c'est donc le rapport d'anisotropie b/a qui est le paramètre pertinent pour décrire l'évolution du champ de fuite. Cependant, l'augmentation du champ de fuite avec le rapport b/a n'est vraie que dans une certaine limite. En effet, les calculs présentés dans le Chap. 3 montrent que H_x tend vers zéro pour a et b supérieurs à des valeurs critiques d'environ $2 \mu\text{m}$ (pour $c = 140 \text{ nm}$) et ce, quel que soit le rapport b/a (paragr. 3.4.2). La comparaison entre les calculs du champ de fuite et les configurations magnétiques observées par X-PEEM vont être présentées ci-dessous.

Etude comparative entre les mesures X-PEEM et les calculs du champ de fuite

L'étude comparative entre les mesures X-PEEM et les calculs du champ de fuite généré par les domaines α -MnAs est réalisée pour un échantillon dont la composi-

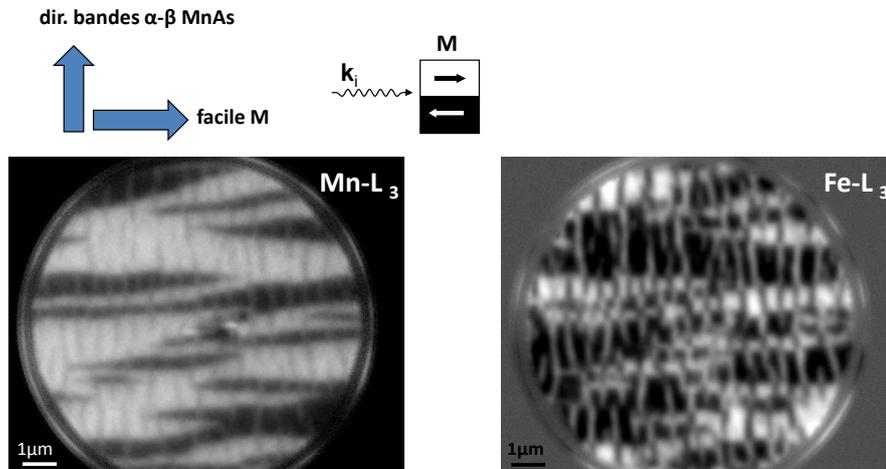


FIGURE 4.27 – Images X-PEEM obtenues aux seuils d’absorption L_3 de Mn (à gauche) et de Fe (à droite), à 22 °C, après la réalisation d’un recuit *in situ* à 65 °C (échantillon Fe-5-MnAs-130).

tion est Fe (4 nm)/MnAs (140 nm)/GaAs (001) et recouvert par une couche protectrice d’aluminium (échantillon Fe-4-MnAs-140). Cet échantillon est bien adapté à cette étude puisqu’il présente un taux de couplage antiparallèle Δ inférieur à celui observé pour l’échantillon Fe-2-MnAs-70. Il est donc plus aisé de comparer les calculs de H_x à l’alignement antiparallèle mais aussi parallèle observé par X-PEEM, montrant alors tous les cas de figure.

Les images X-PEEM de la Fig. 4.28 montrent les domaines magnétiques de MnAs [Fig. 4.28(a)] et de Fe [Fig. 4.28(b)]. Certains domaines présentent un alignement antiparallèle (en vert) et d’autres un alignement parallèle (en rouge). Afin de corréliser les calculs du champ de fuite aux mesures X-PEEM, il convient dans un premier temps de considérer le rapport d’anisotropie a/b . Pour a fixé, soit pour une température constante de 22 °C, le couplage antiparallèle entre les domaines n’est pas obtenu pour les domaines les moins longs (b petit), soit pour a/b grand [Fig. 4.28(a)]. Cette observation corrobore qualitativement le calcul de la composante x du champ de fuite puisque H_x diminue quand a/b augmente (Fig. 3.19). Une analyse quantitative est réalisée en comparant calcul et expérience pour trois domaines α -MnAs caractéristiques, montrant des couplages parallèles et antiparallèles avec les domaines du fer en fonction de leurs dimensions. Les domaines dont les dimensions latérales $a \times b$ sont $800 \times 800 \text{ nm}^2$ (domaine 1, rond vert) et $600 \times 300 \text{ nm}^2$ (domaine 2, étoile verte) montrent un alignement antiparallèle. Le champ de fuite calculé pour ces dimensions donne $H_x = -62 \text{ mT}$ et $H_x = -50 \text{ mT}$ respectivement. Ces valeurs sont bien supérieures au champ coercitif du fer, ce dernier étant particulièrement faible (4,7 mT) [Fig. 4.29(a)]. En revanche, un domaine de dimensions latérales $700 \times 200 \text{ nm}^2$ (domaine 3) montre

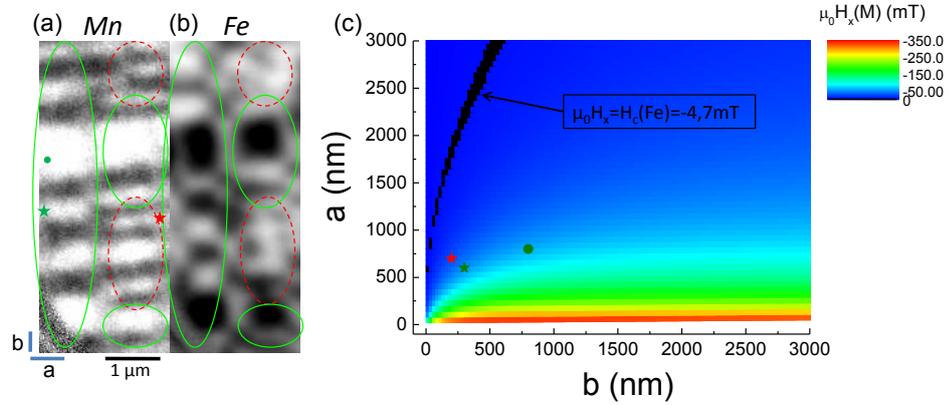


FIGURE 4.28 – Images X-PEEM obtenues aux seuils d’absorption L_3 (a) de Mn et (b) de Fe, à 22 °C, montrant des zones où les alignements des domaines sont antiparallèles (vert) et parallèles (rouge) (échantillon Fe-4-MnAs-140). (c) H_x calculé à 2 nm au-dessus d’un domaine α -MnAs avec $c = 140$ nm, en fonction de ses dimensions latérales b et a .

un alignement parallèle entre les aimantations de Fe et de MnAs [Fig. 4.28(a)-(b)-étoiles rouges]. Le calcul correspondant à ces dimensions donne $H_x = -25$ mT. Ce champ de fuite étant supérieur à $H_c(\text{Fe})$ [Fig. 4.28(c)-étoile rouge], on devrait observer un alignement antiparallèle entre les aimantations des deux couches (ce qui n’est pas le cas).

Pour comprendre ce désaccord apparent entre les calculs et les observations X-PEEM, il convient de considérer le modèle à trois domaines (paragr. 3.4.3) : configuration composée de trois domaines α adjacents le long d’une même bande, alternant des domaines d’aimantation de sens opposés [Fig. 4.29(b)]. En effet, la contribution des domaines premiers voisins au champ de fuite considéré au-dessus du domaine 3 n’est pas négligeable puisque les longueurs des trois domaines sont inférieures à une certaine valeur critique : la Fig. 4.29(c) rend compte de cette remarque puisque l’on observe que pour $b_1 = 800$ nm (domaine 1), la variation du champ de fuite avec b_2 est négligeable. En revanche, pour $b_1 < 300$ nm (domaine 2 et 3), la variation de b_2 peut modifier le champ de fuite de manière non négligeable, notamment pour $b_2 < 800$ nm. L’utilisation de ce modèle à trois domaines est donc nécessaire pour les domaines 2 et 3 analysés et dont les dimensions $\{a \times b_1, b_2\}$ sont, en nanomètre $\{600 \times 300, 300\}$ (étoile verte) et $\{700 \times 200, 200\}$ (étoile rouge). Les calculs réalisés pour ces dimensions donnent respectivement $H_x = -5$ mT et $H_x = +9$ mT. Autrement dit, le calcul rend compte d’un champ de fuite provoquant un alignement Fe/MnAs antiparallèle pour le domaine 2 et parallèle pour le domaine 3, ce qui corrobore les observations faites à partir des images X-PEEM de la Fig. 4.28(a).

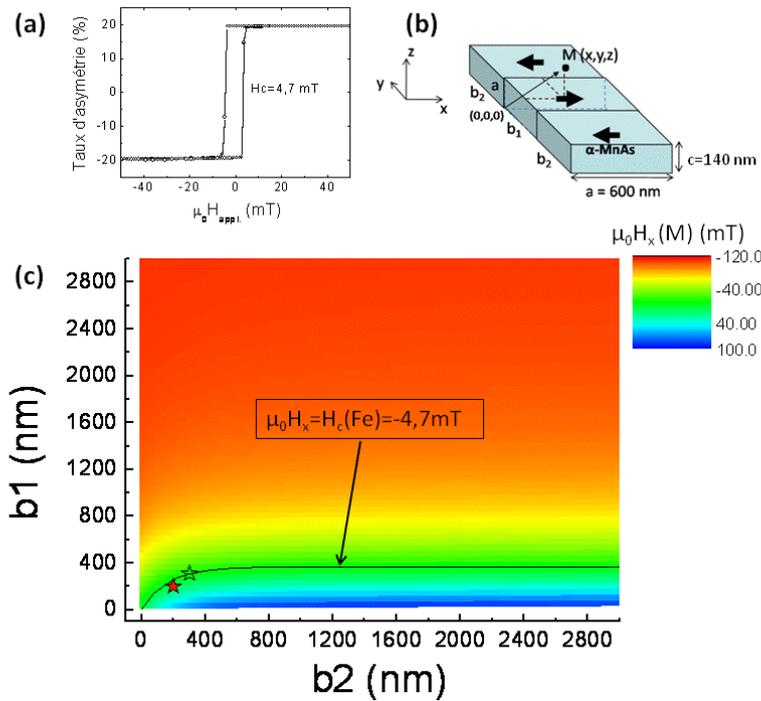


FIGURE 4.29 – (a) Evolution du taux d’asymétrie (réflectivité spéculaire) avec le champ magnétique, à 0°C , au seuil d’absorption L_3 de Fe (échantillon Fe-4-MnAs-140). (b) Schéma du modèle à trois domaines. (c) Calcul de H_x à 2 nm au-dessus d’un domaine central (de longueur b_1) en tenant compte de la contribution du champ de fuite des domaines premiers voisins (de longueur b_2), en fonction de b_1 et b_2 , avec $c = 140 \text{ nm}$ et $a = 600 \text{ nm}$. Les étoiles indiquent les dimensions des domaines 2 et 3 de la Fig. 4.28(a).

Cet accord quantitatif entre expérience et calcul conforte notre modèle. Cependant, la diminution du rapport a/b en augmentant la température, c’est-à-dire en diminuant la largeur des domaines $\alpha\text{-MnAs}$ pour une longueur constante, ne nous a pas permis de corrélérer les observations expérimentales avec les calculs du champ de fuite. En effet, des images X-PEEM enregistrées à 35°C [Fig. 4.30(a)] ne montrent pas une augmentation de Δ alors que le calcul indique une augmentation de H_x . Ce désaccord est compréhensible si l’on prend en considération l’augmentation de la composante hors plan de l’aimantation de MnAs avec la température [37]. La Fig. 4.30(b) permet de comparer les composantes x et z (dans le plan et hors plan resp.) du champ de fuite en fonction de a , avec $c = 140 \text{ nm}$ et $b = 600 \text{ nm}$. On remarque que pour une largeur de domaine inférieure à 80 nm , H_z devient supérieur à H_x . Pour des domaines fins de $2\text{-}3 \text{ nm}$, H_z peut même atteindre jusqu’à 1 T au lieu d’environ 350 mT pour H_x . Ce phénomène pourrait expliquer l’alignement

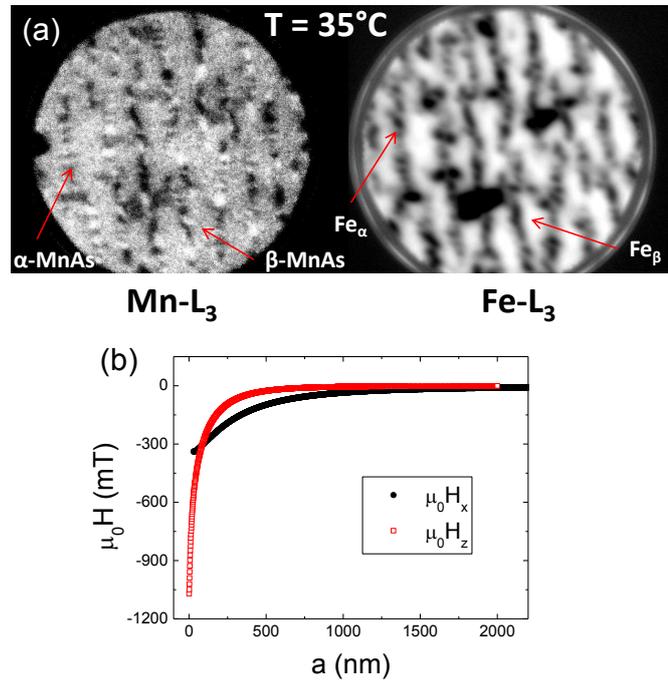


FIGURE 4.30 – (a) Images X-PEEM obtenues à 35°C , aux seuils d'absorption L_3 de Mn (à gauche) et de Fe (à droite) (échantillon Fe-4-MnAs-140). (b) Calculs de H_x et H_z à 2 nm au-dessus d'un domaine $\alpha\text{-MnAs}$ (pour $c = 140$ nm et $b = 600$ nm), en fonction de la largeur a du domaine.

non colinéaire de l'aimantation du fer. Il est important de mentionner que la résolution spatiale du microscope est d'environ 50 nm et pourrait être une des origines des nuances de gris observées sur les images.

Les images X-PEEM ont donc permis de mettre en évidence un alignement majoritairement antiparallèle entre l'aimantation des couches de fer et de MnAs, à l'échelle d'un domaine. Ces observations sont en accord avec le modèle d'interaction dipolaire. De plus, l'analyse détaillée de l'aimantation de chaque domaine a permis de révéler une forte dépendance du couplage avec la taille des domaines et plus particulièrement avec l'anisotropie de forme a/b . Par ailleurs, le calcul de la composante x du champ de fuite (dans le plan) pour différentes dimensions latérales de domaines $\alpha\text{-MnAs}$ est en accord avec l'observation par X-PEEM des différentes configurations, parallèles et antiparallèles. On peut noter toutefois que les champs coercitifs peuvent être différents d'un échantillon à l'autre et dépendent de leur qualité cristalline. Néanmoins, les champs coercitifs du fer pour nos échantillons n'ont jamais excédé 30 mT (dans la gamme de température correspondant à la coexistence des phases α et β de MnAs) et n'a donc jamais compromis le renversement de l'aimantation du fer dans sa globalité. Cependant, l'efficacité de ce

renversement dépend de la valeur de H_c , comparé au champ de fuite qui varie avec la dimension des domaines de MnAs.

Par la suite, les mesures X-PEEM, XRMS ainsi que les calculs seront présentés conjointement afin de les comparer et de comprendre les phénomènes observés.

Alignement parallèle entre $M(\alpha\text{-MnAs})$ et $M(\text{Fe})/\beta - \text{MnAs}$

Images X-PEEM des domaines magnétiques du fer sur $\beta\text{-MnAs}$ Les calculs présentés dans le paragr. 3.4.2 indiquent un changement de signe de H_x en fonction de la position en x , c'est-à-dire suivant que l'on considère un point situé au-dessus d'un domaine $\alpha\text{-MnAs}$ ou bien un point situé au-dessus de la phase β voisine (Fig. 4.32). Ceci nous a amené à étudier expérimentalement le comportement de l'aimantation de Fe_β .

Afin d'observer les domaines magnétiques de Fe_β ainsi que les domaines $\alpha\text{-MnAs}$ voisins, des images X-PEEM ont été prises à 30°C , c'est-à-dire lorsque les bandes $\beta\text{-MnAs}$ sont aussi larges que les bandes α . La Fig. 4.31 montre des images obtenues pour l'échantillon Fe-2-MnAs-70, aux seuils d'absorption L_3 de Mn et de Fe, afin de comparer l'orientation de l'aimantation des deux couches. On observe alors une mosaïque de domaines du fer, alternant des directions d'aimantation orientées tête-bêche entre Fe_β et Fe_α . Un agrandissement effectué à partir de chacune des images permet de mieux se rendre compte de l'orientation de l'aimantation du fer sur une bande $\alpha\text{-MnAs}$ ainsi que sur les deux bandes β voisines (couleur grise). Cette organisation des domaines du fer est due à l'orientation des domaines $\alpha\text{-MnAs}$ sous-jacents ; non seulement $M(\text{Fe}_\alpha)$ est antiparallèle à $M(\text{MnAs})$ comme cela a été montré précédemment, mais on observe aussi que $M(\text{Fe}_\beta)$ est alignée avec $M(\text{MnAs})$ des domaines voisins, comme cela est schématisé dans la Fig. 4.31.

Des calculs ont été faits en considérant des domaines dont les dimensions correspondent à cet échantillon soit : $c = 70$ nm, $b = 560$ nm et $a = 280$ nm (Fig. 4.32). L'évolution de H_x (calculé à 1 nm au-dessus de la surface) en fonction de la position en x montre un changement de signe à la frontière des domaines α . Dans ce cas, la valeur absolue maximale de H_x atteint 200 mT (resp. 150 mT) au-dessus des domaines $\alpha\text{-MnAs}$ (resp. au-dessus de la phase β voisine). Les images X-PEEM sont qualitativement en bon accord avec les calculs. Notons que le champ coercitif de cet échantillon n'a pas été mesuré. Cela ne nous a donc pas permis de réaliser une étude comparative similaire à celle effectuée pour l'analyse des configurations entre les aimantations de Fe_α et de $\alpha\text{-MnAs}$. Cependant, les images de la Fig. 4.31 indiquent un fort taux de couplage antiparallèle malgré la présence de certaines zones montrant des domaines du fer décorrélés de ceux de MnAs (Fig. 4.31-cercles rouges). Ces zones pourraient s'expliquer par l'apparition d'une composante de l'aimantation de MnAs hors du plan de la couche, selon [120].

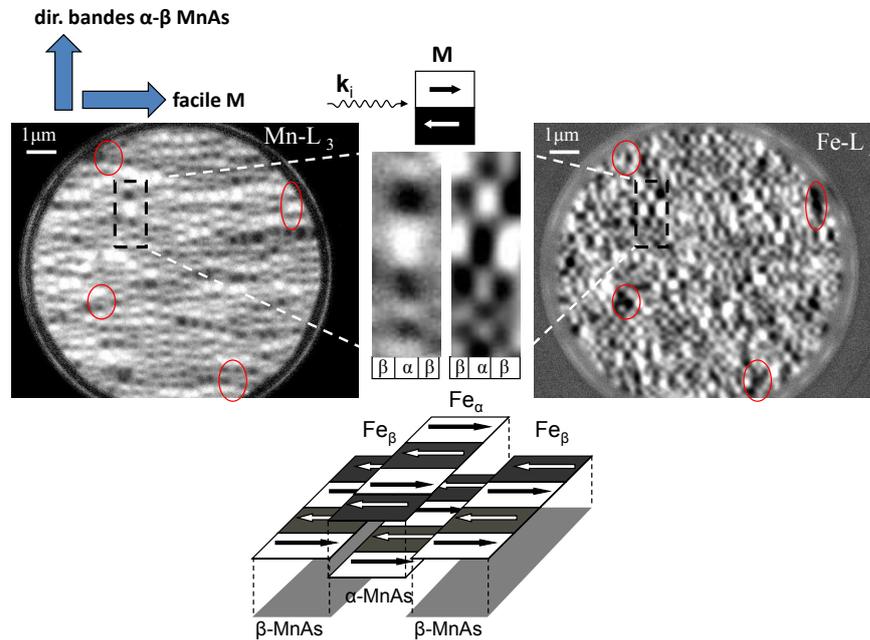


FIGURE 4.31 – Images X-PEEM obtenues à 30 °C, aux seuils d’absorption L_3 de Mn (à gauche) et de Fe (à droite) (échantillon Fe-4-MnAs-140). Les zones délimitées en pointillé montrent un agrandissement sur une bande α -MnAs entourée de deux bandes β .

Corrélation entre les images X-PEEM et les mesures XRMS Un échantillon composé de Fe (5 nm)/MnAs (140 nm)/GaAs (001), recouvert d’une couche protectrice d’or (échantillon Fe-5-MnAs-140) a fait l’objet d’une étude par XRMS de l’aimantation du fer et de MnAs. Nous avons mesuré l’évolution du taux d’asymétrie avec la température [Fig. 4.33(a)], permettant de suivre l’aimantation rémanente de Fe_β et de Fe_α depuis la phase α seule jusqu’à la phase β , au travers de la coexistence de phases. Après l’application d’un champ magnétique de 60 mT à -5°C (phase α -MnAs seule), les aimantations des deux couches sont dans une configuration initiale parallèle. Puis l’échantillon est chauffé jusqu’à 60°C (phase β -MnAs seule). On peut alors décrire l’évolution de $M(\text{Fe})$ en fonction de la température en quatre étapes (Fig. 4.33) :

- $T < 13^\circ\text{C}$: alignement parallèle entre les aimantations rémanentes des couches de fer et de MnAs, dû à l’application du champ magnétique initial (puis relâché).
- $13^\circ\text{C} < T < 16^\circ\text{C}$: retournement quasi-total de $M(Fe_\alpha)$ dû à la formation des domaines de α -MnAs sous forme de bandes (apparition des bandes β). A ces températures, les domaines α -MnAs sont larges et les bandes β fines.

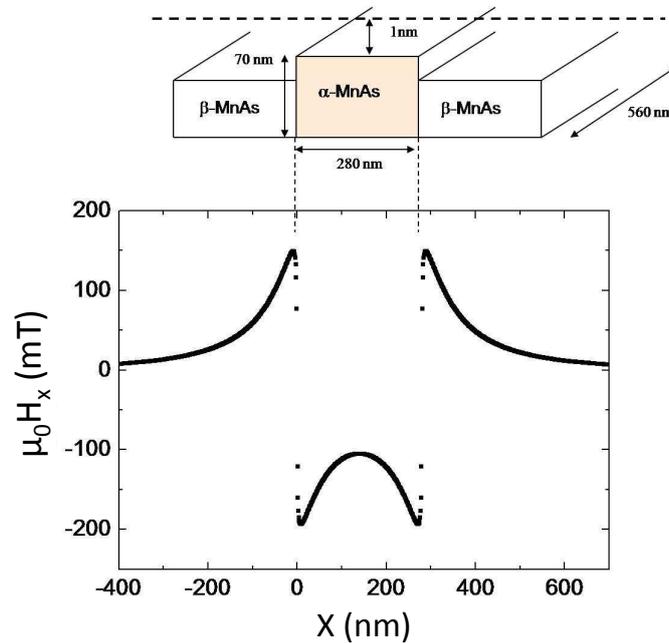


FIGURE 4.32 – Calcul de H_x en fonction de la position en x de points situés à 1 nm au-dessus des domaines de MnAs, dont les dimensions sont : $c = 70$ nm, $b = 560$ nm et $a = 280$ nm.

Ce changement de signe correspond à l'alignement antiparallèle de $M(\text{Fe}_\alpha)$ avec les domaines α -MnAs. Le taux d'asymétrie varie de 15,5% à -12,5% entre 13 °C et 16 °C respectivement. Les 20% de $M(\text{Fe})$ ne se retournant pas correspondent à l'alignement parallèle de $M(\text{Fe}_\beta)$.

- $16^\circ\text{C} < T < 38^\circ\text{C}$: nouveau changement de signe de $M(\text{Fe})$, dû à l'élargissement continu des bandes β -MnAs au détriment de la phase α . Ainsi la contribution de $M(\text{Fe}_\beta)$ à l'aimantation totale du fer augmente à partir de 16 °C. A $T = 26^\circ\text{C}$, la proportion de phases α et β est la même ce qui implique une contribution égale de $M(\text{Fe}_\alpha)$ et de $M(\text{Fe}_\beta)$ menant à une aimantation totale du fer nulle.
- $T > 38^\circ\text{C}$: MnAs n'est plus que dans sa phase NFM β et l'aimantation du fer correspond à $M(\text{Fe}_\beta)$.

De plus, nous avons obtenu des images X-PEEM au seuil L_3 de Fe, pour l'échantillon Fe-5-MnAs-140 en chauffant celui-ci à partir de -20°C (phase α seule), jusqu'à 27°C (coexistence de phases). Les mesures ont été effectuées après l'application d'un champ magnétique de 20 mT à -20°C . Les mesures X-PEEM et

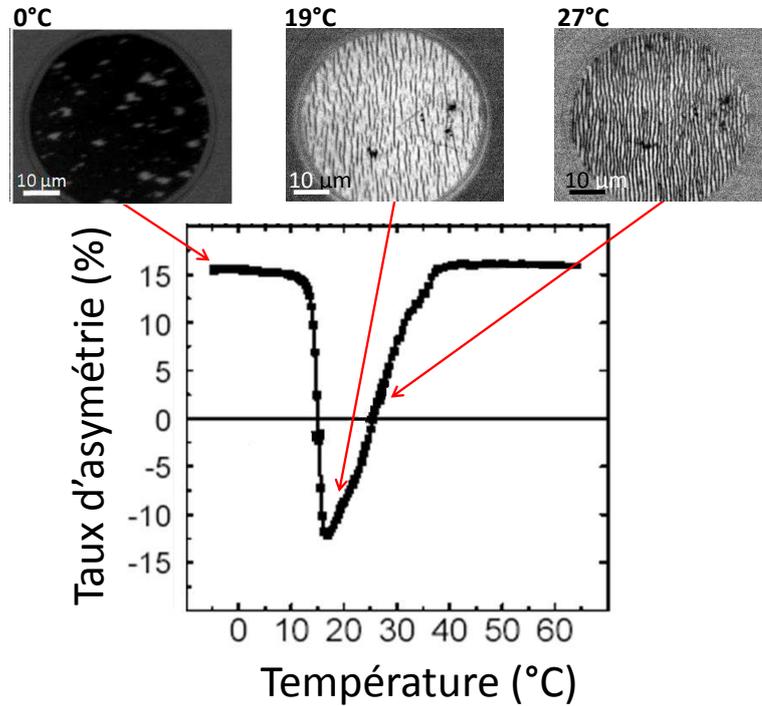


FIGURE 4.33 – Evolution du taux d’asymétrie mesuré en rémanence (après l’application de ± 100 mT) au seuil d’absorption L_3 du fer, pendant l’échauffement de l’échantillon (échantillon Fe-5-MnAs-140). Images X-PEEM obtenues au seuil d’absorption L_3 du fer, lors de l’échauffement du même échantillon, après avoir appliqué puis relâché un champ magnétique de 20 mT à -20 °C.

XRMS portent sur le même échantillon, après avoir appliqué puis relâché un champ magnétique (supérieur à H_c des deux couches) lorsque MnAs est dans sa phase α seule. La comparaison des résultats obtenus par les deux techniques est montrée dans la Fig. 4.33. Lorsque la température augmente, les images montrent clairement le retournement de $M(\text{Fe}_\alpha)$ à 16 °C (bandes blanches) et l’élargissement des bandes Fe_β entre 19 °C et 27 °C (bandes noires). On peut noter qu’à 27 °C, l’image des domaines du fer indique à priori une fraction approximativement similaire des phases α et β , correspondant à environ la température à laquelle l’aimantation du fer mesurée par XRMS s’annule (26 °C). Les principales étapes de l’évolution de $M(\text{Fe})$ sont donc bien comprises puisqu’elles montrent un bon accord entre les calculs, les mesures XRMS et les images X-PEEM.

Les calculs de H_x correspondant à cet échantillon ont été effectués en considérant des domaines α -MnAs très allongés ($b = 6 \mu\text{m}$), d’après les observations X-PEEM. La forme allongée des domaines observés ici est très différente des domaines morcelés observés pour l’échantillon Fe-4-MnAs-140 (paragr. 4.2.3). Cela

est dû à l'application du champ magnétique de 20 mT dans la phase α -MnAs seule. Les aimantations du fer et de MnAs se trouvent alors alignées parallèlement, chaque couche montrant une configuration magnétique de type monodomaine. Ces domaines, dont la taille ($a \times b$) peut atteindre plusieurs centaines de μm^2 , sont alors divisés par l'apparition des bandes β lors de la coexistence de phases, donnant lieu à des bandes de plus de 50 μm de long (images X-PEEM de la Fig. 4.33). Le calcul du champ de fuite généré par des domaines de cette longueur ne montre pas d'augmentation significative comparé au champ calculé pour des domaines moins longs. En effet, alors que le champ de fuite peut varier de quelques mT à une centaine de mT pour des domaines α dont la longueur varie de quelques nm à plusieurs centaines de nm respectivement, H_x devient quasi-constant pour des domaines de plus de 5 μm de long [Fig. 4.28(c)].

4.2.4 Renversement de l'aimantation totale du fer

Nous avons montré précédemment que la direction de l'aimantation du fer peut être renversée localement par la seule utilisation d'un gabarit auto-organisé et magnétiquement actif : MnAs/GaAs(001). La taille des domaines du fer ainsi orientés est déterminée par la taille des domaines α -MnAs sous-jacents et peut ainsi varier de quelques dizaines de nanomètres à plusieurs micromètres.

Par la suite, la possibilité ou non d'obtenir un retournement de l'aimantation totale du fer sans appliquer de champ magnétique extérieur va être considérée. Pour mener cette étude, des mesures XRMS ont été réalisées en rémanence pour l'échantillon Fe-5-MnAs-140. La Fig. 4.34 montre l'évolution du taux d'asymétrie, relatif à l'aimantation moyenne de chaque couche, lors de la réalisation d'un cycle thermique : $8^\circ\text{C} \rightarrow 18^\circ\text{C} \rightarrow 8^\circ\text{C}$. L'aimantation rémanente a été mesurée après l'application d'un champ magnétique de 100 mT à 8°C , saturant les aimantations des couches de fer et de MnAs dans une configuration parallèle. En effet cette valeur de 100 mT est amplement suffisante pour saturer l'aimantation des couches puisque les cycles d'hystérésis de la Fig. 4.35(a) montrent des champs coercitifs de 3 mT pour Fe et de 6 mT pour MnAs. A partir de 8°C , l'échantillon est chauffé et l'aimantation du fer chute à 13°C , c'est-à-dire à la température correspondant à l'apparition des bandes β -MnAs. A 16°C soit seulement 3°C au-dessus de la température d'apparition des bandes, le champ de fuite des domaines α -MnAs (désormais fractionnés) peut renverser la quasi-totalité de l'aimantation de Fe_α et un changement de signe est alors observé. La mesure de diagrammes en q_x et l'analyse de l'intensité des pics de Bragg ont permis de suivre l'évolution en température de la fraction de la phase β [69]. Ainsi, à 16°C , MnAs est composé de seulement 5% de phase β [Fig. 4.35(b)], ce qui est suffisant pour obtenir le renversement de l'aimantation du fer. En refroidissant jusqu'à la température initiale, les bandes β -MnAs disparaissent et les domaines de Fe_β minoritaires sont alignés par les larges domaines Fe_α permettant d'atteindre un renversement total de l'aimantation du fer à 8°C et de stabiliser la nouvelle configuration, antiparallèle, entre $M(\text{MnAs})$ et $M(\text{Fe})$.

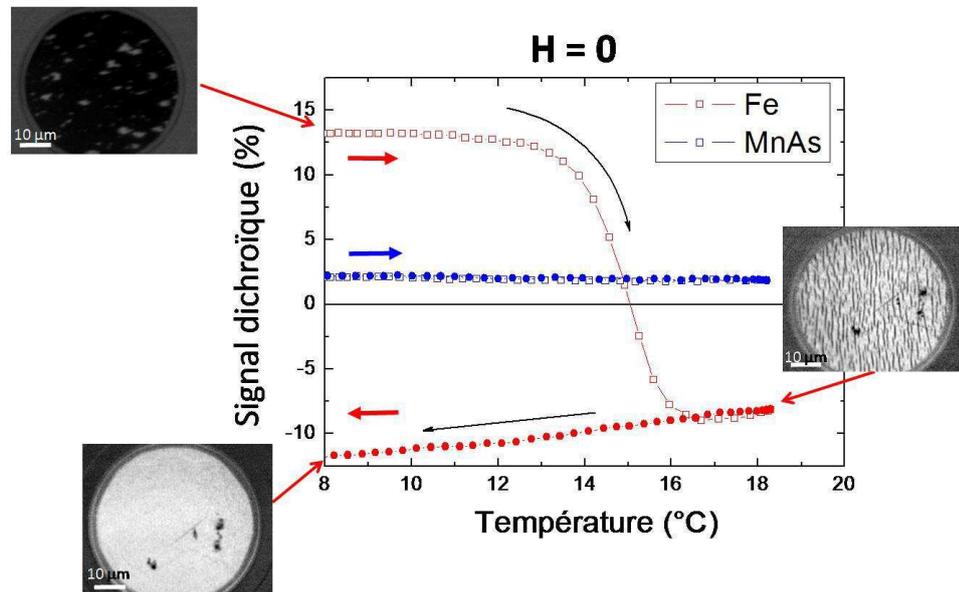


FIGURE 4.34 – Evolution, pendant un cycle thermique (8-18-8 °C) du taux d'asymétrie mesuré en rémanence, aux seuils d'absorption L_3 de Mn (bleu) et de Fe (rouge) (échantillon Fe-5-MnAs-140). Les symboles vides (resp. pleins) représentent l'aller (resp. le retour) du cycle. Images X-PEEM obtenues pour le même échantillon, au seuil L_3 de Fe (en rémanence après $H_{\text{appl.}} = 20$ mT), durant un cycle thermique de -20 °C à 27 °C.

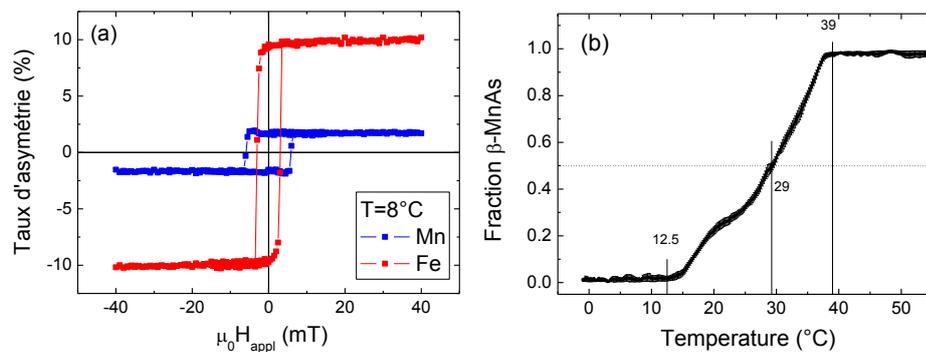


FIGURE 4.35 – (a) Evolution de la réflectivité spéculaire avec le champ magnétique selon $[100]$ MnAs, à 0 °C (phase α -MnAs seule), aux seuils d'absorption L_3 de Mn et de Fe. (b) Evolution de la fraction de la phase β -MnAs avec la température (échantillon Fe-5-MnAs-140).

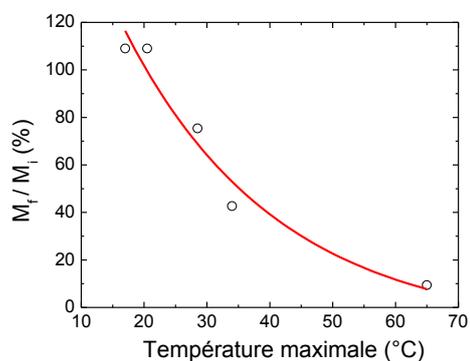


FIGURE 4.36 – Rapport entre les aimantations du fer mesurées en début (M_i) et fin (M_f) de cycles (d'après 4.37), pour différentes températures maximales atteintes lors de chaque cycle.

Il est donc possible de passer d'une configuration initiale parallèle à une configuration antiparallèle en réalisant un cycle thermique de quelques degrés seulement aux alentours de la température ambiante. Le résultat principal de ces mesures est que la réalisation de ce cycle thermique permet de renverser la totalité de l'aimantation du fer sans appliquer de champ magnétique extérieur.

Des cycles en température ont aussi été réalisés pour différentes températures maximales (Fig. 4.37), augmentant ainsi la proportion de Fe_β . L'augmentation de

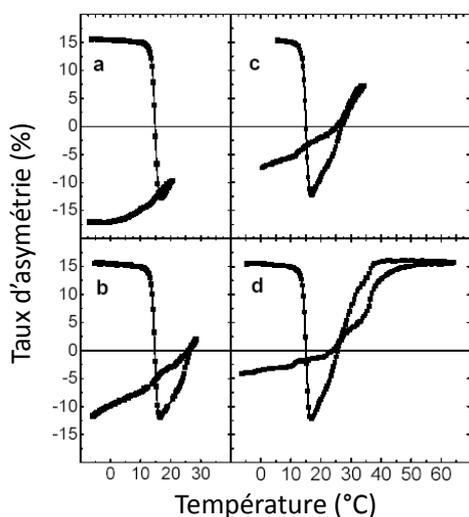


FIGURE 4.37 – Dépendance en température du taux d'asymétrie, au seuil d'absorption L_3 du fer, pour différentes températures maximales : (a) 17 °C ; (b) 28,5 °C ; (c) 34 °C ; (d) 65 °C (échantillon Fe-5-MnAs-140).

la température maximale des cycles s'accompagne d'une diminution de l'aimantation moyenne du fer, mesurée à la fin de chaque cycle (Fig. 4.36). Il est même possible d'annuler presque totalement $M(\text{Fe})$ après avoir chauffé l'échantillon jusqu'à 65°C . A cette température, MnAs se trouve dans la phase NFM β seule et donc démagnétisé. Lors du refroidissement, les domaines magnétiques de MnAs se forment à nouveau, de manière aléatoire, de telle sorte que l'aimantation moyenne de MnAs est presque nulle. Durant la coexistence des phases α/β -MnAs, les domaines du fer suivent la reconfiguration des domaines de MnAs suivant le modèle établi précédemment : l'aimantation des domaines Fe_α (resp. Fe_β) est antiparallèle (resp. parallèle) à l'aimantation des domaines de MnAs, ce qui mène à une aimantation moyenne de la couche de fer presque nulle. Le renversement de l'aimantation totale du fer est donc observé lors de la réalisation de cycle en température, dont la température maximale ne dépasse pas 20°C .

Conclusions

Dans ce travail, MnAs/GaAs(001) a été utilisé comme un gabarit magnétiquement actif pour contrôler la direction de l'aimantation de couches minces FM sans appliquer de champ magnétique extérieur. Une telle propriété est obtenue en faisant varier la température du système de quelques degrés seulement, au voisinage de la température ambiante. L'origine du renversement de l'aimantation observé est essentiellement dû à la coexistence de phases FM/PM dans MnAs/GaAs(001), montrant l'alternance des deux phases auto-organisées sous forme de bandes périodiques.

Cette étude a nécessité dans un premier temps la caractérisation de MnAs/GaAs(001). Pour cela, l'évolution de la coexistence de phases α/β avec l'épaisseur des couches de MnAs et la température a été observée. La présence de monticules à la surface de MnAs, indépendants de la coexistence des phases, a été aussi observée et discuté.

Le système MnAs/GaAs(001), grâce à la forme des domaines magnétiques α -MnAs pendant la coexistence des phases, a pu être utilisé pour renverser l'aimantation d'une couche ultra-mince de fer. Ce renversement est attribué au champ de fuite généré par les domaines α -MnAs, l'intensité de ce champ dépendant des dimensions des domaines. Notons que l'intensité du champ de fuite dépend de l'anisotropie de forme largeur/longueur des domaines α et par conséquent de l'épaisseur de la couche de MnAs et de la température. Ainsi, l'ajustement de ces paramètres permet d'optimiser le renversement de l'aimantation de la couche de fer.

Après avoir montré l'épitaxie du fer sur MnAs et détecté une zone d'interdiffusion à l'interface Fe/MnAs, les techniques synchrotron de XRMS et de X-PEEM nous ont permis de mesurer l'aimantation de chaque couche et de les corrélérer. Les principales propriétés observées pour Fe/MnAs sont :

- Une anisotropie magnétique uniaxiale dans le plan, avec la direction [100] MnAs comme axe facile et ce, pour Fe et MnAs.
- Un faible couplage d'échange à l'interface.
- Une configuration magnétique entre les deux couches de type vanne de spin : en diminuant le champ magnétique appliqué, l'alignement entre les aimantations de MnAs et du fer passe d'une configuration parallèle à une configuration antiparallèle.

- Le renversement de l'aimantation d'une couche FM, sans appliquer de champ magnétique, mais en utilisant le champ de fuite issu des domaines magnétiques du gabarit MnAs/GaAs(001), lors de la coexistence des phases α et β ($15^\circ\text{C} < T < 45^\circ\text{C}$).

Le renversement de l'aimantation du fer a été obtenu localement, soit pour des domaines dont la taille correspond à celle des domaines α de MnAs sous-jacents. Les dimensions latérales de ces domaines peuvent varier de quelques dizaines de nanomètres à quelques microns, ces dimensions dépendant de l'épaisseur de MnAs, de la température, ainsi que de l'histoire magnétique et thermique des échantillons.

Par ailleurs, le renversement de l'aimantation totale du fer a été observé suite à la réalisation d'un cycle thermique entre environ 10°C (phase α seule) et 20°C (coexistence de phases).

Ces propriétés observées pour Fe/MnAs ont pour origine l'absence ou le faible couplage d'échange direct entre les deux couches FM. Ce phénomène est attribué à l'interdiffusion entre les deux couches.

Le système Fe/MnAs pourrait être utilisé afin de réaliser de l'écriture d'informations magnétiques, sans appliquer de champ magnétique extérieur, puisqu'il est possible de renverser l'aimantation d'un domaine magnétique d'une couche FM simplement en changeant la température du système de quelques degrés. Etant donnée la gamme étroite de température concernée, les cycles thermiques permettant de renverser l'aimantation pourraient être réalisés localement par l'utilisation d'un laser. L'aimantation serait alors renversée dans certaines zones de l'échantillon, dont la taille serait essentiellement déterminée par la taille du spot du laser. Notons que l'utilisation d'une source laser de 400 nm de longueur d'onde serait bien adaptée au projet puisque MnAs présente une bande d'absorption à environ 3 eV [70].

Une autre perspective est envisageable : reproduire artificiellement l'auto-organisation des domaines α de MnAs, en remplaçant MnAs par un substrat FM présentant l'alternance de deux types de domaines FM, de températures de Curie (T_C) différentes. Le contrôle de la T_C d'un matériau FM peut être obtenu par irradiation par un faisceau d'ions [71] ou encore par dopage chimique [72, 73]. Une couche mince pourrait être structurée magnétiquement afin d'obtenir des régions de différentes T_C , donnant lieu à une couche FM homogène (sans champ de fuite) ou inhomogène (alternant des phases FM et PM \rightarrow champ de fuite) en fonction de la température du système. Ainsi, de la même manière que pour MnAs/GaAs(001), et si les dimensions des domaines du substrat le permettent, le champ de fuite issu de ceux-ci devrait renverser l'aimantation d'une couche mince FM.

Annexe A

Calcul du champ de fuite généré par les domaines FM α -MnAs

Le champ magnétique peut être décrit par un potentiel scalaire :

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\nabla\phi(\mathbf{r}) \quad (\text{A.1})$$

Cette équation mène à l'équation de Poisson, dont la solution est :

$$\phi(\mathbf{r}) = -\frac{1}{4\pi} \int \frac{\nabla\mathbf{M}_{\mathbf{r}_i}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|} d^3\mathbf{r}_i \quad (\text{A.2})$$

M étant localisé dans le volume du parallélépipède, le théorème de Gauss permet de simplifier cette équation :

$$\phi(\mathbf{r}) = -\frac{1}{4\pi} \nabla \int \frac{\mathbf{M}_{\mathbf{r}_i}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|} d^3\mathbf{r}_i \quad (\text{A.3})$$

La symétrie du système considéré nous amène à calculer cette intégrale en coordonnées cartésiennes :

$$\begin{aligned} \phi(x, y, z) &= -\frac{M_0}{4\pi} \frac{\partial}{\partial x} \\ &\times \int_0^a \int_0^b \int_0^c \frac{1}{\sqrt{(x-x_i)^2 + (y-y_i)^2 + (z-z_i)^2}} dx_i dy_i dz_i \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

En considérant $\frac{\partial}{\partial x} \rightarrow \frac{\partial}{\partial x_i}$, puis en intégrant par rapport à x_i , on obtient :

$$\begin{aligned} \phi(x, y, z) &= -\frac{M_0}{4\pi} \int_0^b \int_0^c \left[\frac{1}{\sqrt{(x-a)^2 + (y-y_i)^2 + (z-z_i)^2}} \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{\sqrt{x^2 + (y-y_i)^2 + (z-z_i)^2}} \right] dy_i dz_i \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

D'apr s l'Eq. (A.1) et en consid rant l'aimantation selon l'axe x , on a :

$$H_x(x, y, z) = -\frac{\partial}{\partial x}\phi(x, y, z) \quad (\text{A.6})$$

D'apr s la formule :

$$\left[\frac{1}{u^n(x)}\right]' = -\frac{nu'(x)}{u^{n+1}(x)}$$

et en posant

$$u = \sqrt{(x - x_i)^2 + (y - y_i)^2 + (z - z_i)^2}$$

on obtient :

$$H_x(x, y, z) = -\frac{M_0}{4\pi} \int_0^b \int_0^c \left[\frac{x - a}{[(x - a)^2 + (y - y_i)^2 + (z - z_i)^2]^{\frac{3}{2}}} - \frac{x}{[x^2 + (y - y_i)^2 + (z - z_i)^2]^{\frac{3}{2}}} \right] dy_i dz_i \quad (\text{A.7})$$

Puis en int grant par rapport   y_i , on obtient :

$$H_x(x, y, z) = \frac{M_0}{4\pi} (\mathcal{A} + \mathcal{B} + \mathcal{C} + \mathcal{D})$$

avec

$$\mathcal{A} = \int_0^c \frac{(x - a)(y - b)}{(x - a)^2 + (z - z_i)^2} \times \frac{1}{[(x - a)^2 + (y - b)^2 + (z - z_i)^2]^{\frac{1}{2}}} dz_i \quad (\text{A.8})$$

$$\mathcal{B} = \int_0^c \frac{-(x - a)y}{(x - a)^2 + (z - z_i)^2} \times \frac{1}{[(x - a)^2 + y^2 + (z - z_i)^2]^{\frac{1}{2}}} dz_i \quad (\text{A.9})$$

$$\mathcal{C} = \int_0^c \frac{-x(y + b)}{x^2 + (z - z_i)^2} \times \frac{1}{[x^2 + (y - b)^2 + (z - z_i)^2]^{\frac{1}{2}}} dz_i \quad (\text{A.10})$$

$$\mathcal{D} = \int_0^c \frac{x \cdot y}{x^2 + (z - z_i)^2} \times \frac{1}{[x^2 + y^2 + (z - z_i)^2]^{\frac{1}{2}}} dz_i \quad (\text{A.11})$$

Puisque x et y sont constants, l'int grale \mathcal{A} par rapport   z_i devient   une constante pr s :

$$\mathcal{A}' = \int_0^c \left[\frac{1}{[(x - a)^2 + (z - z_i)^2][(x - a)^2 + (y - b)^2 + (z - z_i)^2]^{\frac{1}{2}}} \right] dz_i \quad (\text{A.12})$$

D'après [74], on a :

$$\int \frac{Ax + B}{(p + R)R^{\frac{1}{2}}} dx = \frac{A}{C} I_1 + \frac{2Bc - Ab}{[c^2 p(b^2 - 4(a + p)c)]^{\frac{1}{2}}} I_2 \quad (\text{A.13})$$

où

$$\begin{aligned} R &= a + bx + cx^2 \\ I_1 &= \frac{1}{\sqrt{p}} \arctan \sqrt{\frac{R}{p}} \\ I_2 &= -\arctan \sqrt{\frac{p}{b^2 - 4(a + p)c}} \frac{b + 2cx}{\sqrt{R}} \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

Par analogie avec l'Eq. (A.12), on a :

$$x = z_i, A = 0, B = 1, R = (x - a)^2 + (y - b)^2 + (z - z_i)^2$$

d'où

$$\begin{aligned} a &= (x - a)^2 + (y - b)^2 + z^2 \\ b &= -2z \\ c &= 1 \\ p &= -(y - b)^2 \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

Ainsi, en substituant ces termes dans l'Eq. (A.13), on obtient :

$$\begin{aligned} \mathcal{A}' &= \frac{1}{(x - a)(y - b)} \left[\arctan \frac{(y - b)(z - c)}{(x - a)[(x - a)^2 + (y - b)^2 + (z - c)^2]^{\frac{1}{2}}} \right. \\ &\quad \left. - \arctan \frac{(y - b)z}{(x - a)[(x - a)^2 + (y - b)^2 + z^2]^{\frac{1}{2}}} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.16})$$

soit :

$$\begin{aligned} \mathcal{A} &= \arctan \frac{(y - b)(z - c)}{(x - a)[(x - a)^2 + (y - b)^2 + (z - c)^2]^{\frac{1}{2}}} \\ &\quad - \arctan \frac{(y - b)z}{(x - a)[(x - a)^2 + (y - b)^2 + z^2]^{\frac{1}{2}}} \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

En faisant de m me pour les int grales \mathcal{B} , \mathcal{C} et \mathcal{D} , on trouve que la composante x du champ magn tique d'un barreau uniform ment aimant  selon l'axe x [56] est donn e par :

$$H_x(x, y, z) = \frac{M_0}{4\pi} \left[\arctan \frac{vw}{(x-a)[(x-a)^2 + v^2 + w^2]^{\frac{1}{2}}} - \arctan \frac{vw}{x[x^2 + v^2 + w^2]^{\frac{1}{2}}} \right] \Big|_{v=y-b}^{v=y} \Big|_{w=z-c}^{w=z} \quad (\text{A.18})$$

Cette expression se d veloppe en la somme de quatre termes, en consid rant $v = y$ et $w = z$, $v = y - b$ et $w = z - c$, ainsi que les deux termes crois s (n gatifs) calcul s pour $v = y - b$ et $w = z$ ainsi que pour $v = y$ et $w = z - c$.

Annexe B

Tableaux récapitulatifs des échantillons

N° échantillon	Composition	Techniques	Mesures
MnAs-70 (mbe818)	MnAs(70 nm)/GaAs(001)	STM	Cycle thermique (RT→50°C→RT)
MnAs-140 (mbe818)	MnAs(140 nm)/GaAs(001)	STM	Cycle thermique (RT→50°C→RT)
MnAs-280 (mbe818)	MnAs(280 nm)/GaAs(001)	STM	<ul style="list-style-type: none"> ➤ Cycle thermique (-100°C→50°C→RT) ➤ STS
Fe-5-MnAs-130 (mbe745)	ZnSe/Fe(5 nm)/MnAs(130 nm)/GaAs(001)	STM	RT
		XRMS	<ul style="list-style-type: none"> ➤ M(H) à différentes températures, selon [100] et [001] ➤ rocking scan selon [100] et [001] ➤ M(T)
Fe-40-MnAs-90 (mbe865)	ZnSe/Fe(40 nm)/MnAs(90 nm)/GaAs(001)	TEM	<ul style="list-style-type: none"> ➤ diffraction selon [100] et [001] ➤ EFTEM
		XRD	<ul style="list-style-type: none"> ➤ $\theta/2\theta$ ➤ ϕ scan
		SQUID	<ul style="list-style-type: none"> ➤ M(H) selon [100] et [001], à différentes températures ➤ M(T) zfc

N° échantillon	Composition	Techniques	Mesures
Fe-MnAs-50 (mbe852)	Fe(0,2,5,8 nm)/MnAs(50 nm)/GaAs(001)	XPS	➤ Mn, Fe et As 2p
		XRD	➤ $\theta/2\theta$ ➤ ϕ scan
		TEM	➤ diffraction selon [100] et [001]
Fe-MnAs-100 (mbe866)	Fe(0,1,2,3 nm)/MnAs(100 nm)/GaAs(001)	STM	RT < T < 50°C
Fe-4-MnAs-140 (mbe874)	Al/Fe(4 nm)/MnAs(140 nm)/GaAs(001)	X-PEEM	➤ Selon [100] et [001] ➤ cycle thermique (RT → 50°C → -20°C → 40°C)
		XRMS	➤ M(H) ➤ M(T) en rémanence
		SQUID	➤ M(H) selon [100] et [001], à différentes températures ➤ M(T) en rémanence
		TEM	➤ diffraction selon [100] et [001] ➤ EFTEM
Fe-2-MnAs-70 (mbe875)	Al/ZnSe/Fe(2 nm)/MnAs(70 nm)/GaAs(001)	STM	RT
		SQUID	➤ M(H) selon [100] et [001], à différentes températures ➤ M(T) en rémanence (270K → 300K → 270K)
Fe-5-MnAs-140 (mbe963)	Au/Fe(6 nm)/MnAs(140 nm)/GaAs(001)	XRMS	➤ M(H) ➤ M(T) en rémanence
		X-PEEM	➤ Selon [100] et [001] à RT ➤ cycle thermique, $M_{rem.}(T)$ (-20 → 24 → -20°C)
		SQUID	➤ M(H) selon [100], à RT ➤ M(T) en rémanence
		MR	

Annexe C

Caractéristiques des lignes de lumière synchrotron

Certaines des mesures effectuées dans le cadre de ce travail ont nécessité l'utilisation du rayonnement synchrotron.

Les images X-PEEM ont été obtenues au synchrotron Swiss Light Source (Villigen, Suisse), à la ligne de lumière X11MA, Surfaces/Interfaces Microscopy. Les principales caractéristiques de cette ligne figurent ci-dessous :

Energy range	90-2000 eV
Flux (10 keV)	1×10^{15} ph/s/0.1%BW/0.4 A
Focused spot size	30 μm x 100 μm (VxH)
Spectral resolution	>5000
Polarization	Linear (0 deg/horizontal to 90 deg/vertical) Circular (right/left)
End-station ES1	Photoemission electron microscope with spatial resolution = 100 nm, variable sample temperature : 120-1800 K

Les mesures XRMS ont été réalisées au synchrotron Elettra (Trieste, Italie), sur la ligne de lumière Circular Polarized Beamline dont les caractéristiques sont :

Light source

Type	Electromagnetic Elliptical Wiggler
Polarization switch frequency	0.1 Hz; attempts are running in order to improve it up to 100 Hz
Critical energy	1.33 keV
Source size	$\sigma_x=0.24(\text{mm})$ $\sigma_y=0.043(\text{mm})$ $\sigma'_x=0.030(\text{mrad})$ $\sigma'_y=0.017(\text{mrad})$

Photon beam characteristics

Energy range	5-1000 eV
Energy resolution	$\Delta E/E = 10^{-5}$ at 48eV (Ne-L ₁) $\Delta E/E=10^{-4}$ at 850eV (Ne-K)
Photon fluxes	10^{12} ph/sec (200mA ring current, at 100 eV)
Beam size	exit slits height x 500 μm

Bibliographie

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. *Phys. Rev. Lett.*, 61 :2472, (1988).
- [2] M. A. Ruderman and C. Kittel. *Phys. Rev.*, 96 :99, (1954).
- [3] M. Jullière. *Phys. Lett. A*, 54 :225, (1975).
- [4] J. S. Moodera, L. R. Kinder, J. Nowak, P. LeClair, and R. Meservey. *Appl. Phys. Lett.*, 69 :708, (1996).
- [5] A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, and Th. Rasing. *Nature*, 435 :655, (2005).
- [6] M. Yamanouchi, D. Chiba, F. Matsukura, and H. Ohno. *Nature*, 428 :539, (2004).
- [7] S. Sahoo, S. Polisetty, C. Duan, S. S. Jaswal, E. Y. Tsybal, and C. Binek. *Phys. Rev. B*, 76 :092108, (2007).
- [8] S. Kim, J. Lee, S. Shin, H. W. Song, C. H. Lee, and K. No. *J. Magn. Magn. Mater.*, 267 :127, (2003).
- [9] N. Menyuk, J. A. Kafalas, K. Dwight, and J. B. Goodenough. *Phys. Rev.*, 177 :942, (1969).
- [10] K. Akeura, M. Tanaka, M. Ueki, and T. Nishinaga. *Appl. Phys. Lett.*, 67 :3349, (1995).
- [11] D. Nakamura, J. Yuhara, and K. Morita. *Appl. Surf. Science*, 130 :72, (1998).
- [12] A. K. Das, C. Pampuch, A. Ney, T. Hesjedal, L. Däweritz, R. Koch, and K. H. Ploog. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :087203, (2003).
- [13] V. Garcia, M. Marangolo, M. Eddrief, H. Jaffrès, J.-M. George, and V. H. Etgens. *Phys. Rev. Lett.*, 73 :035308, (2006).
- [14] M. Ramsteiner, H. Y. Hao, A. Kawaharazuka, H. J. Zhu, M. Kästner, R. Hey, L. Däweritz, H. T. Grahn, and K. H. Ploog. *Phys. Rev. B*, 66 :081304, (2002).

- [15] V. Garcia, H. Jaffrès, J.-M. George, M. Marangolo, M. Eddrief, and V. H. Etgens. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :246802, (2006).
- [16] F. Iikawa, M. J. S. P. Brasil, C. Adriano, O. D. D. Couto, C. Giles, P. V. Santos, L. Däweritz, I. Rungger, and S. Sanvito. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :077203, (2005).
- [17] V. M. Kaganer, B. Jenichen, F. Schippan, W. Braun, L. Däweritz, and K. H. Ploog. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :341, (2000).
- [18] J. Mira, F. Rivadulla, J. Rivas, A. Fondado, T. Guidi, R. Caciuffo, F. Carsughi, P. G. Radaelli, and J. B. Goodenough. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :097203, (2003).
- [19] K.-U Neumann, K. R. A. Ziebeck, F. Jewiss, L. Däweritz, K. H. Ploog, and A. Murani. *Physica B*, 335 :34, (2003).
- [20] M. K. Niranjana, B. R. Sahu, and L. Kleinman. *Phys. Rev. B*, 70 :180406, (2004).
- [21] T. Suzuki and H. Ido. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 51 :3149, (1982).
- [22] C. P. Bean and D. S. Rodbell. *Phys. Rev.*, 126 :104, (1962).
- [23] R. W. De Blois and D. S. Rodbell. *Phys. Rev.*, 130 :1347, (1963).
- [24] J. B. Goodenough and J. A. Kafalas. *Phys. Rev.*, 157 :389, (1967).
- [25] I. Rungger and S. Sanvito. *Phys. Rev. B*, 74 :024429, (2006).
- [26] F. Schippan, A. Trampert, L. Däweritz, and K. H. Ploog. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 17 :1716, (1999).
- [27] L. Däweritz. *Rep. Prog. Phys.*, 69 :2581, (2006).
- [28] D. K. Biegelsen, R. D. Brigans, J. E. Northrup, and L. E. Swartz. *Phys. Rev. B*, 41 :5701, (1990).
- [29] N. Mattoso, M. Eddrief, J. Varalda, A. Ouerghi, D. Demaille, V. H. Etgens, and Y. Garreau. *Phys. Rev. B*, 70 :115324, (2004).
- [30] V. Garcia. *Structures hybrides MnAs/GaAs : de la croissance aux propriétés de transport tunnel polarisé en spin*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, Paris, 2006.
- [31] C. Adriano, C. Giles, O. D. D. Couto, M. J. S. P. Brasil, F. Iikawa, and L. Däweritz. *Appl. Phys. Lett.*, 88 :151906, (2006).
- [32] V. Garcia, Y. Sidis, M. Marangolo, F. Vidal, M. Eddrief, P. Bourges, F. Maccherozzi, F. Ott, G. Panaccione, and V. H. Etgens. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :117205, (2007).

- [33] M. Kästner, C. Herrmann, L. Däweritz, and K. H. Ploog. *J. Appl. Phys.*, 92 :5711, (2002).
- [34] V. M. Kaganer, B. Jenichen, F. Schippan, W. Braun, L. Däweritz, and K. H. Ploog. *Phys. Rev. B*, 66 :045305, (2002).
- [35] T. Manago, H. Kuramochi, and H. Akinaga. *Surf. Science*, 600 :4155, (2006).
- [36] A. Ney, T. Hesjedal, C. Pampuch, J. Mohanty, A. K. Das, L. Däweritz, R. Koch, and K. H. Ploog. *Appl. Phys. Lett.*, 83 :2820, (2003).
- [37] L. N. Coelho, B. R. A. Neves, R. Magalhães-Paniagoa, F. C. Vicentin, H. Westfahl, Jr., R. M. Fernandes, F. Iikawa, L. Däweritz, C. Spezzani, and M. Sacchi. *J. Appl. Phys.*, 100 :083906, (2006).
- [38] J. Kim, Y. Lee, K.-S. Ryu, S.-C. Shin, H. Akinaga, and J. Y. Rhee. *Ultramicroscopy*, 108 :1066, (2008).
- [39] R. Engel-Herbert, A. Locatelli, S. Cherifi, D. M. Schaadt, J. Mohanty, K. H. Ploog, E. Bauer, R. Belkhou, S. Heun, A. Pavlovska, T. Leo, and T. Hesjedal. *Appl. Phys. A*, 84 :231, (2006).
- [40] WSxM SPM software. Nanotec Electronica S. L., Madrid, Spain.
- [41] T. G. A. Heijmen, M. Kremers, and H. Meekes. *Phil. Mag. B*, 71 :1083, (1995).
- [42] D. A. Shirley. *Phys. Rev. B*, 5 :4709, (1972).
- [43] S. Pizzini. *Magnétisme des systèmes nanoscopiques et structures hybrides*, chapter : X-ray Magnetic Circular Dichroism (XMCD) : basic concepts and theory for rare earths and 3d metals. Ecole Franco-Roumaine : Magnétisme des systèmes nanoscopiques et structures hybrides, Brasov, (2003).
- [44] J. Vogel and M. Sacchi. *Magnetic Properties of Antiferromagnetic Oxide Materials : Surfaces, Interfaces, and Thin Films*, chapter : Dichroism in X-ray Absorption for the Study of Antiferromagnetic Materials. Wiley and Weinheim, (2010).
- [45] Y. S. Dedkov. *Phys. J. B*, 47 :315, (2005).
- [46] K. Namikawa, M. Ando, T. Nakajima, and H. Kawata. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 54 :4099, (1985).
- [47] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Blume, and D. Gibbs. *Phys. Rev. Lett.*, 61 :1245, (1988).
- [48] J. Luo, G. T. Trammell, and J. Hannon. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :287, (1993).

- [49] M. Sacchi, C. Spezzani, P. Torelli, A. Avila, R. Delaunay, and C. F. Hague. *Rev. Sci. Instrum.*, 74 :2791, (2003).
- [50] T. Arai, M. Suzuki, Y. Ueno, J. Okabayashi, and J. Yoshino. *J. Cryst. Growth*, 301 :22, (2007).
- [51] L. Wan, J. Shangguan, H. Luo, Y. Huang, and N.-H. Tong. *Phys. Lett. A*, 367 :373, (2007).
- [52] R. Breitwieser, F. Vidal, I. L. Graff, M. Marangolo, M. Eddrief, J.-C. Boul-liard, and V. H. Etgens. *Phys. Rev. B.*, 80 :045403, (2009).
- [53] R. L. Schwoebel and E. J. Shipsey. *J. Appl. Phys.*, 37 :3682, (1966).
- [54] T. Michely and J. Krug. *Islands, Mounds, and Atoms : Patterns and Processes in Crystal Growth Far from Equilibrium*, volume 42 of *Springer Series in Surface Science*. Springer, (2004).
- [55] I. Elkinani and J. Villain. *Solid State Commun.*, 87 :105, (1993).
- [56] J. Norpoth. *J. Phys. D Appl. Phys.*, 41 :025001, (2008).
- [57] Sang-Pil Kim, Yong-Chae Chung, Seung-Cheol Lee, Kwang-Ryeol Lee, and Deok-Soo Kim. *Materials Science and Engineering B*, 135 :25, (2006).
- [58] M. Oku and K. Hirokawa. *J. Appl. Phys.*, 50 :6303, (1979).
- [59] S. Tanuma, C. J. Powell, and D. R. Penn. *Surf. Inter. Anal.*, 51 :577, (1998).
- [60] T. L. Monchesky, B. Heinrich, R. Urban, K. Myrtle, M. Klaua, and J. Kirschner. *Phys. Rev. B.*, 60 :10242, (1999).
- [61] L. Ruppel, G. Witte, Ch. Wöll, T. Last, S. F. Fischer, and U. Kunze. *Phys. Rev. B*, 66 :245307, (2002).
- [62] M. Eddrief, M. Marangolo, V. H. Etgens, S. Ustaze, F. Sirotti, M. Mulazzi, G. Panaccione, D. H. Mosca, B. Lepine, and P. Schieffer. *Phys. Rev. B*, 73 :115315, (2006).
- [63] S. Yoshii and H. Katsuraki. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 21 :205, (1966).
- [64] C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. J. Wiley and Sons, (1996).
- [65] Ch. Bourgognon. *Épitaxie et caractérisations structurales et magnétiques de structures hybrides : métaux ferromagnétiques sur semiconducteurs II-VI*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble, 2001.
- [66] R. Zuberek, K. Fronc, W. Paszkowicz, and H. Szymczak. *J. Magn. Magn. Mater.*, 283 :28, (2004).

- [67] M. Sacchi, M. Marangolo, C. Spezzani, L. Coelho, R. Breitwieser, J. Milano, and V. H. Etgens. *Phys. Rev. B*, 77 :165317, (2008).
- [68] R. Breitwieser, M. Marangolo, J. Lüning, N. Jaouen, L. Joly, M. Eddrief, V. H. Etgens, and M. Sacchi. *Appl. Phys. Lett.*, 93 :122508, (2008).
- [69] R. Magalhães-Paniago, L. N. Coelho, B. R. A. Neves, H. Westfahl, F. Iikawa, L. Däweritz, C. Spezzani, and M. Sacchi. *Appl. Phys. Lett.*, 86 :053112, (1979).
- [70] B. Gallas, J. Rivory, H. Arwin, F. Vidal, and V. H. Etgens. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 205 :863, (2008).
- [71] H. Kato, K. Hamaya, Y. Kitamoto, T. Taniyama, and H. Munekata. *J. Appl. Phys.*, 97 :10D302, (2005).
- [72] Kh. Khazen, H. J. von Bardeleben, J. L. Cantin, L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, and A. Lemaître. *Phys. Rev. B*, 77 :165204, (2008).
- [73] L. Thevenard, L. Largeau, O. Mauguin, A. Lemaître, and B. Theys. *Appl. Phys. Lett.*, 87 :182506, (2005).
- [74] I. M. Ryzhik I. S. Gradshteyn. *Table of Integrals, Series, and Products*. Academic Press, 4th edition, (1965).