

Microscopie à émission d'électrons balistiques : du magnétotransport d'électrons chauds à l'imagerie magnétique

Marie Hervé

► To cite this version:

Marie Hervé. Microscopie à émission d'électrons balistiques : du magnétotransport d'électrons chauds à l'imagerie magnétique. Autre [cond-mat.other]. Université de Rennes, 2013. Français. NNT : 2013REN1S057 . tel-00881055

HAL Id: tel-00881055 https://theses.hal.science/tel-00881055

Submitted on 7 Nov 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.





THÈSE / UNIVERSITÉ DE RENNES 1 sous le sceau de l'Université Européenne de Bretagne

pour le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE RENNES 1

Mention : Physique

Ecole doctorale « Sciences de la Matière »

présentée par

Marie Hervé

préparée à l'unité de recherche UMR 6251, IPR Institut de Physique de Rennes Département Matériaux Nanosciences UFR Sciences et Propriétés de la Matière

Microscopie à émission d'électrons balistiques : du magnétotransport d'électrons chauds à l'imagerie magnétique

Thèse soutenue à Rennes le 12 juillet 2013

devant le jury composé de :

Massimiliano MARANGOLO PR, INSP Paris / Président du jury

Olivier FRUCHART DR, Institut Néel Grenoble / *rapporteur*

Michel HEHN PR, IJL Nancy /rapporteur

André THIAVILLE DR, LPS Orsay / examinateur

Pascal TURBAN MC, IPR Rennes / directeur de thèse

Philippe SCHIEFFER PR, IPR Rennes / directeur de thèse

Remerciements

Je souhaiterais tout d'abord remercier Olivier Fruchart et Michel Hehn d'avoir accepté de rapporter ce travail de thèse. Je remercie également André Thiaville et Massimiliano Marangolo d'avoir participé au jury.

Ces trois dernières années, j'ai passé beaucoup de temps dans les couloirs de l'Institut de Physique de Rennes et je souhaite remercier Anne Renault et Jean-Pierre Landesman de m'y avoir accueillie. Merci également à Francine Solal et Denis Morineau de m'avoir si chaleureusement intégrée tout d'abord au sein de l'ex « équipe de Surfaces et Interfaces » lorsque je suis arrivée en stage de master 2 puis au sein du département Matériaux-Nanosciences. Je remercie aussi la région Bretagne pour avoir financé ce projet de thèse.

Durant ces trois années j'ai eu la chance de bénéficier d'un encadrement d'une rare qualité avec Pascal Turban et Philippe Schieffer. Je leur suis reconnaissante de la formation scientifique en physique du solide, physique des surfaces et électronique de spin que j'ai acquise en travaillant à leurs côtés. Je remercie Pascal Turban pour la formation expérimentale de haut niveau qu'il a su me transmettre toujours avec beaucoup de pédagogie sur la microscopie champ proche et l'environnement ultra-vide. Merci d'avoir toujours su me guider quand il le fallait, tout en me laissant travailler avec une grande autonomie. Maintenant je peux le dire, le projet scientifique dans lequel tu m'as embarquée il y a trois ans n'était pas des moins ambitieux et la mesure en BEEM d'un magnétocourant d'électrons n'était vraiment pas gagnée d'avance. J'ai eu beaucoup de moments de doutes pendant la première année mais tu as toujours su trouver les mots pour me rassurer et m'encourager. Mais après tout, pour reprendre l'expression de Philippe, « dans toute mauvaise période, il y a toujours quelque chose de bien à en tirer » et cette première année difficile a été très formatrice. Mais je dois tout de même dire que le travail devient bien plus excitant lorsque ca marche et que l'on peut enfin commencer à faire de la physique. Philippe, je me souviendrais toujours de cette soirée du 19 juillet 2011 où tu es resté avec moi au labo jusqu'à une heure pas possible et que pour la première fois nous avons enfin pu mesurer ce P••••• de magnétocourant d'électrons chauds. C'est à partir de ce jour-là que l'horizon s'est vraiment dégagé. Pascal et Philippe, vous avez toujours fait preuve de disponibilité, patience et écoute. Je vous remercie de la rigueur scientifique et de l'exigence intellectuelle que vous m'avez inculquées et je vous suis reconnaissante pour cette formation à la recherche. J'ai vraiment apprécié travailler à vos côtés tant sur le plan scientifique que humain.

Je tiens très particulièrement à remercier deux personnes sans qui tout ce travail n'aurait vraisemblablement pas été possible : Sylvain Tricot et Gabriel Delhaye. Tous les travaux présentés dans ce manuscrit sont le fruit d'un travail d'équipe et sans les indéniables talents de Sylvain en terme de développement instrumental, d'expérimentations et de programmation informatique, ni l'étude du magnétotransport d'électrons chauds, ni les simulations micromagnétiques n'auraient pu aboutir. Sylvain, tu t'es toujours montré extrêmement disponible et patient lorsque j'en avais besoin. On a vraiment formé un duo de choc pendant ces trois années. A la fin, même plus besoin de parler, rien qu'un signe de ma part et tu savais qu'il fallait sortir le papier et le crayon..... C'était vraiment génial de travailler avec toi. Ta bonne humeur, ton humour et les horoscopes du midi vont vraiment me manquer. Le second pilier de ce travail ce fut Gabriel, toujours désireux de vouloir se rendre utile. A tel point d'ailleurs qu'il en est même allé jusqu'à se lever aux aurores pour me préparer des substrats.

Grace à toi je n'ai jamais eu à me soucier d'un éventuel manque d'échantillons de GaAs. Je te remercie énormément pour ton implication dans tout ce travail. Plus qu'une relation de travail tu es devenu un ami et je te remercie également pour ton soutien dans les périodes les plus stressantes de cette thèse. Je compte sur toi pour me tenir au courant des « potins » du labo par la suite.

Un grand merci à Bruno Lépine pour les connaissances sur le RHEED et la croissance qu'il a su me transmettre toujours avec beaucoup de pédagogie. Je te remercie Bruno pour ton savoir-faire en termes de croissance épitaxiale qui a permis de rendre presque « facile » les mesures en BEEM. Merci également d'avoir pris en charge toute l'organisation du déménagement qui fut très loin d'être une tâche facile. Chapeau Bruno pour avoir su gérer tout cela !!!!!

Je tiens à adresser mes sincères remerciements à Arnaud Le Pottier pour son soutien technique et son investissement dans la prise en charge du déménagement de septembre à mars. Pareil, je te tire mon chapeau Arnaud. Un grand merci également à Ludovic Frein et Steeve Bouhier, toujours présent au moindre souci électronique ou informatique. Je vous remercie aussi pour les barbeuc (et les after) que vous avez organisés tous les ans au sein de l'unité de recherche. J'exprime également ma reconnaissance aux personnels de l'atelier mécanique, en particulier Didier Biet et Guy Pécheul qui ont toujours été d'une grande aide.

Merci également aux théoriciens du groupe, Sergio Di Matteo et Yann Claveau pour les calculs de structures électroniques et les discussions scientifiques autour des données expérimentales ayant permis de progresser sur l'interprétation des résultats. Je remercie aussi Andrey Umerski pour ses éclaircissements sur les effets de filtrage en symétrie.

Un grand merci aux filles du pôle administratif : les 3 Nathalie, Magalie et Annie pour leur aide précieuse lors de l'organisation des missions.

Bien évidement je remercie tous les membres de l'ex-équipe EPSI. L'ambiance qui y règne est vraiment familiale et chaleureuse. J'espère vraiment retrouver cela plus tard dans les autres groupes de recherche que j'expérimenterai. Je vous remercie pour tous les moments conviviaux que nous avons passés tous ensemble à discuter sur les temps du midi ou parfois en soirée autour d'un verre de vin. Un grand merci à Francine, toujours pleine d'attentions (presque une seconde maman). Ça a toujours été un plaisir d'organiser les divers événements sociaux de l'équipe avec toi, de partager un verre de vin avec un bon morceau de fromage ou bien la clope de fin de repas. Merci également à Sophie, on peut dire qu'on l'aura parcouru la France ensemble : LES DEUX BEEMEUSES SORTENT EN CONF (St-Jacut-de-la-mer, Paris, Montpelier), ATTENTION, PREPAREZ VOS FOIES !!!! Je crois que notre capacité hépatique en aura étonné quelques-uns.... J'espère te voir en Allemagne avec Jimmy (si je ne lui ai pas trop fait peur). Je remercie J-C pour sa bonne humeur, son humour, mais également pour les corrections d'anglais (un conseil, prochain colloque Louis Néel, pense au portefeuille). Je remercie Soraya et Christian pour leur gentillesse et pour m'avoir donné le goût pour la recherche lors de mon stage de L3. Promis Soraya, le prochain pot, je n'oublierai pas le jus d'orange. Un grand merci à Didier pour ses précieux conseils quant à l'écriture de projets Européens ainsi que pour m'avoir fait découvrir de très bon vins. Je remercie également Cristelle de nous faire rêver tous les midis en nous racontant ses aventures de kayakiste. Je tiens tout particulièrement à remercier Guy, le père fondateur de cette équipe de recherche et le possesseur d'une extraordinaire cave à vin que l'on pourrait qualifier (à mon sens) de caverne d'Ali Baba. Si tu as besoin d'y faire le vide, surtout n'hésite pas à me solliciter...

Un grand merci également aux « jeuns » de l'équipe et de l'institut. Tout d'abord je tiens à remercier Thomas pour toutes les discussions scientifiques ou non que l'on a pu avoir lors des pauses

clopes. Il faut avouer que ça m'a mis la pression de soutenir après toi... Je te souhaite bonne chance avec ta petite famille pour la suite. Merci aussi à Alex pour ta bonne humeur constante, ta patience à toute épreuve et ta gentillesse. Je te fais confiance pour prendre mon relais quant à l'organisation d'événements sociaux dans l'équipe... Bon courage à toi pour la thèse, je suis persuadée que tu vas gérer!!!!!! Je remercie également Sylvain, le brestois, le vrai. Merci pour tes conseils d'ancien et pour les bons moments que l'on a passé lors de « sobres » soirées. Merci aussi Mahmoud, Alain-Bruno, Romain, Benoît, Marie, Céline, David ainsi qu'aux « gars » du département optique, Antoine, Nico, Rigo et John pour toutes les bonnes soirées et le baptême du dejazey.

Merci aux nombreux enseignants de physique qui ont su me transmettre le goût pour cette discipline. En particulier, je souhaite remercier Ronan Lefort qui en plus d'avoir été un enseignant remarquable a très scrupuleusement assumé son rôle de parrain de thèse (merci pour les briquets qui m'ont à plusieurs reprises sauvée la mise ainsi que pour le délicieux kouign amann). Je remercie aussi Bruno Bêche (même si tu n'as même pas daigné participer à un seul des nombreux pots que j'ai organisés au cours de ces 3 années !!!) et Brice Arnaud. Merci également à toute l'équipe pédagogique avec laquelle j'ai pu expérimenter le métier d'enseignant. Merci à Véronique Vié, Jean-René Thébault et Hervé Lhermite.

Je tiens à remercier chaleureusement mes amis et ma famille pour m'avoir soutenue et accompagné durant ces trois années. Tout d'abord une pensée très particulière pour François qui nous a quittés en mai dernier. Merci à Alex, Nisrine, Besio, Dédé, Greg, Caro, Vinz, Agathe, la colloc du manoir, Charlotte, Antoine, Christine, Bernard, Vincent, Aurélien, Elizabeth, Tunch et Marie-Françoise. Merci également à toutes les personnes avec qui j'ai passé des soirées « mémorables » en conf (bien que les souvenirs que j'en ai soient un peu troubles), merci à Martin, Bertrand, Dan, Laurent, Carlos, Guillaume... Enfin un immense merci à mes parents et en particulier à ma mère qui a eu le courage de relire tout ce manuscrit pour en extraire les nombreuses fautes d'orthographes.

Résumé

Au cours de ces travaux de thèse, nous avons étudié par microscopie magnétique à émission d'électrons balistiques (BEMM) les propriétés de magnétotransport d'électrons chauds de la vanne de spin Fe/Au/Fe épitaxiée sur GaAs(001). Dans ces expériences, la pointe d'un microscope à effet tunnel (STM) injecte localement un courant d'électrons chauds à la surface de la vanne de spin. La mesure sous champ magnétique du courant d'électrons balistiques collecté à l'arrière de l'échantillon donne accès aux propriétés locales de magnétoconductance de l'échantillon.

Nous avons dans un premier temps étudié les propriétés de magnétotransport de vannes de spin planaires. Les mesures BEMM démontrent un magnétocourant d'électrons chauds pouvant atteindre 500 % à température ambiante. Ces forts effets de magnétoconductance ne sont que très faiblement dépendants des épaisseurs des électrodes de fer et ne peuvent donc être dus à l'asymétrie en spin de la longueur d'atténuation des électrons chauds dans les couches de fer. Dans cette structure épitaxiée, la polarisation en spin du faisceau d'électrons chauds s'acquiert principalement aux interfaces via des effets de structure électronique. L'électron traversant les couches minces métalliques se propage comme un état de Bloch. Sa transmission aux différentes interfaces se fait en conservant d'une part la composante transverse k_l du vecteur d'onde électronique, et d'autre part, la symétrie de la fonction d'onde. Au-dessus de la barrière Schottky, les électrons chauds sont collectés dans la vallée Γ du GaAs se projetant à l'interface dans la direction k_{||}=0. Dans cette direction k_{||}=0, la conservation de la symétrie de la fonction d'onde à l'interface Fe/Au conduit au filtrage des états de Bloch de symétrie Δ_1 du fer. Ces états de symétrie Δ_1 , totalement polarisés en spin, sont responsables des forts magnétocourants d'électrons chauds observés. Cette analyse est confirmée expérimentalement par l'observation d'une corrélation entre amplitude du magnétocourant et masse effective du substrat semiconducteur. En augmentant la masse effective du semiconducteur, on ouvre le collimateur filtrant le courant d'électrons chauds autour de la direction k_{ll}=0, et le magnétocourant diminue sans modifier la vanne de spin.

Dans un second temps, tirant partie de la résolution latérale du microscope et de sa sensibilité au magnétisme, des microstructures de fer préparées sous ultra-vide par évaporation à travers un masque (méthode du nanostencil) ont été étudiées. Dans ces structures, la modulation du courant collecté par la structure locale en domaines magnétiques a permis la réalisation d'images magnétiques avec une haute résolution spatiale. Les contrastes observés sur ces microstructures sont en excellent accord avec les images BEMM calculées à partir de simulations micromagnétiques ouvrant la voie à une microscopie magnétique quantitative à forte sensibilité et résolution latérale nanométrique.

Mots-clès

Electrons chauds, structure électronique, magnétorésistance géante, imagerie magnétique, micromagnétisme

Table des matières

INTRODUCTION GENERALE	1
CHAPITRE I : INTRODUCTION A LA MICROSCOPIE MAGNETIQUE A EMISSION D'ELECTRONS BALISTIQUES	5
I - 1 – LA MICROSCOPIE A EMISSION D'ELECTRONS BALISTIQUES	6
I - 1.1 – Description de la technique	6
I - 1.1.1 – Principe de fonctionnement du BEEM	6
I - 1.1.2 – Formation d'une barrière Schottky	8
I - 1.2 – Description théorique du courant BEEM dans l'approximation des électrons libres	11
I - 1.2.1 – Expression Générale du courant BEEM	11
I - 1.2.2 – Modèle de Ludeke et Prietsch	12
I - 1.2.3 – Résolution latérale du BEEM	13
I - 1.3 – Cas des systèmes épitaxiés : électrons de Bloch	14
I - 1.3.1 – Cas d'une interface métal/Silicium (001) et (111)	15
I - 1.3.2 – Cas de l'interface métal/GaAs(001)	17
I - 2 – LA MICROSCOPIE MAGNETIQUE A EMISSION D'ELECTRONS BALISTIQUES	20
I - 2.1 – Principe de fonctionnement du BEMM	20
I - 2.2 – Origine de la polarisation en spin des électrons chauds dans ces hétérostructures	23
I - 2.2.1 – Polarisation en spin en volume	24
I - 2.2.2 - Polarisation en spin par des effets de filtrages en spin aux interfaces	28
I - 3 –Montage experimental	31
CHAPITRE II : CROISSANCE ET PROPRIETES MAGNETIQUES DE VANNES DE SPIN FE/AU/FE SUR GAAS(001).	33
II - 1 – CROISSANCE	34
II - 1 1 – Préparation du GaAs	34
II - 1 2 – Croissance des films minces métalliques	35
II = 1, 2, 2 = Croissance d'un film mince de fer sur GaAs(001)	36
II - 1.2.2 – Croissance d'un film minee de lei sul Gu/S(GOT).	37
II - 1.2.3 – Croissance d'un film mince de fer sur Au(001)/Fe(001)/GaAs(001)	39
II - 1.2.4 – Croissance d'une couche protectrice d'or	39
II - 1.2.5 – Bilan sur la croissance de vanne de spin	39
II - 2 – Proprietes magnetiques individuelles des electrodes de fer	40
II - 2.1 – Propriétés magnétiques de l'électrode de fer en contact avec le GaAs	41
II - 2 2 – Propriétés magnétiques de l'électrode supérieure de fer	44
II - 2 3 - Bilan : propriétés magnétiques des électrodes de fer	17
$II_{-3} = DPODPIETES MAGNETICHES DE LA VANNE DE SDIN FE/ALL/FE/GAAs(001)$	
II - 3 - PROPRIETES MAGNETIQUES DE LA VAINNE DE SPINTE/AU/TE/GAAS(001)	40
II - 3.1 – Origine du Couplage dans des vannes de spin	48
II - 3.2 – Mesures de GMR quatre pointes	53
II - 3.2.1 – Dispositif experimental	53
II - 3.2.2 – Determination de l'espaceur d'or permettant un couplage antirerromagnetique	54
II - 5.2.5 - Determination des unections des annantations sous champ	57 63
	03
FE/AU/FE/GAAS(001)	65
III - 1 – MESURES DE MAGNETOTRANSPORT : MISE EN ŒUVRE EXPERIMENTALE	66
III - 1.1 – Définition des notions de magnétocourant et magnétocourant effectif	66

III - 2 – Etude du magnetocourant en fonction de l'epaisseur de Fe ₂	69
III - 2.1 – Résultats expérimentaux	70
III - 2.2 – Corrections angulaires	72
III - 2.3 – Effets de volume ou effets d'interfaces ?	
III - 3 – ORIGINE DU FILTRAGE EN SPIN AUX INTERFACES	
III - 3.1 – Rôle de l'interface Fe/Au	75
III - 3.1.1 – Structure de bandes du semiconducteur	
III - 3.1.2 – Structure de bandes de la vanne de spin	
III - 3.1.3 – Evolution du magnétocourant en fonction de l'énergie	82
III - 3.2 - Rôle de l'interface métal/semiconducteur : Effet de collimation	85
III - 3.2.1 – Description de la structure de bandes de l'alliage AlGaAs	85
III - 3.2.2 – Préparation des substrats d'AlGaAs	87
III - 3.2.3 – Mesures de magnétotransport d'électrons chauds	87
III - 4 – BILAN ET CONCLUSION	
CHAPITRE IV : IMAGERIE MAGNETIQUE	
IV - 1 – Imagerie magnetique : mise en œuvre experimentale	
IV - 2 – CROISSANCE DE PLOTS DE FER DE DIMENSION SUB-MICROMETRIQUE	
IV - 2.1 – Caractéristiques géométriques des masques	
IV - 2.2 – Problématique liée aux effets d'ombrages	
IV - 2.3 – Caractérisation des plots de fer déposés à travers les masques	100
IV - 3 – Microstructuration de l'electrode inferieure Fe ₁	
IV - 4 – MICROSTRUCTURATION DE L'ELECTRODE SUPERIEURE FE ₂	105
IV - 4.1 – Plots en forme de « aélules » déposés avec un arand axe parallèle à la direction	[110] _{Gals} :
Structure A	
IV - 4.2 – Plots en forme de « aélules » déposés avec un arand axe parallèle à la direction	[1-10] _{Cate} 107
IV - 4.2.1 – Résultats expérimentaux obtenus sur la structure B	
IV - 4.2.2 – Résultats expérimentaux obtenus sur la structure C	
IV - 5 – Bilan : Imagerie magnetique	117
IV - 6 – Perspectives de l'etude	
IV - 6.1 – Détermination de la résolution du microscope : le vortex	
IV - 6.2 – Etude des processus de renversement d'aimantation sous champ magnétique ou	ı sous impulsion
de courant	
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES	123
ANNEXE : PRINCIPE DES SIMULATIONS MICROMAGNETIQUES	127
BIBLIOGRAPHIE	131

Introduction Générale

En 1988, la découverte conjointe de l'effet de magnétorésistance géante (GMR : Giant Magneto Resistance) par Albert Fert [1] et Peter Gründberg [2] dans des multicouches magnétiques a permis l'introduction d'un nouveau degré de liberté dans le domaine de l'électronique : le spin de l'électron. Cette découverte, récompensée par le prix Nobel en 2007, fut le point de départ d'une nouvelle discipline, l'électronique de spin. Cette discipline a très rapidement pris de l'essor, notamment avec la mise en place dès 1997, dans les disques durs de nos ordinateurs des têtes de lecture utilisant la GMR, permettant d'augmenter considérablement leur capacité de stockage.

La seconde percée importante dans le domaine de l'électronique de spin fut la redécouverte de la magnétorésistance tunnel (TMR : Tunneling Magneto Resistance) en 1995 [3] par Moodera *et al.* dans des jonctions tunnel magnétiques. Le comportement magnétorésistif de telles hétérostructures avait déjà été mis en évidence par Jullière vingt ans auparavant [4] mais il aura fallu attendre les progrès dans l'élaboration de ces jonctions pour que leur étude soit développée de façon extensive.



<u>Figure 1</u>: Diagramme du potentiel vu par un électron dans le cas : (a) d'un transistor à vanne de spin -(b) d'un transistor tunnel magnétique avec un émetteur ferromagnétique (MTT de type 1) -(c) d'un transistor tunnel magnétique avec un émetteur non ferromagnétique (MTT de type 2).

L'un des enjeux de la magnétoélectronique défini au milieu des années 90 était de combiner ces deux découvertes (GMR et TMR) avec des semiconducteurs afin d'y maîtriser l'injection d'un courant polarisé en spin. C'est dans ce contexte que les dispositifs à électrons chauds ont été introduits. Ces dispositifs présentent une structure à trois terminaux : Emetteur / Base / Collecteur. Leur principe de fonctionnement est le suivant : un courant

d'électrons chauds (électrons avec une énergie au-dessus du niveau de Fermi) est émis vers une base métallique en contact avec un semiconducteur. Un faible pourcentage des électrons injectés se propage de façon balistique (sans perte d'énergie) dans la base métallique. Si leur énergie est suffisante, ils vont pouvoir franchir la barrière Schottky et ainsi être collectés à l'arrière du semiconducteur (le collecteur). En particulier, deux transistors de ce type ont été développés à partir de la fin des années 90 :

- Le transistor à vanne de spin (SVT : Spin-Valve Transistor) en 1995 démontré par (i) Monsma et al. [5]. La géométrie de ce dispositif est la suivante : Semiconducteur (Emetteur) / Vanne de spin (Base métallique constituée de deux couches ferromagnétiques séparées par un espaceur non magnétique) / Semiconducteur (Collecteur) (Figure 1(a)). Le courant collecté à l'arrière du second semiconducteur sera modulé par les effets de magnétorésistance géante à la traversée de la base métallique. Cela conférera au transistor un état passant et un état bloquant. La variation relative du courant collecté entre les deux configurations magnétiques de la vanne de spin peut alors atteindre des valeurs de l'ordre de plusieurs centaines de pourcents à température ambiante [6].
- (ii) Le transistor tunnel magnétique (MTT : Magnetic Tunnel Transistor) démontré en 1997 par Mizushima *et al.* [7]. Les Figure 1(b) et (c) représentent les deux géométries possibles pour ce dispositif. L'émission du courant d'électrons chauds se fait à travers une barrière tunnel soit par un métal ferromagnétique vers une base ferromagnétique (MTT de type 1), soit par un métal non magnétique vers une base structurée en vanne de spin (MTT de type 2). Dans le cas du transistor de type 1, les variations relatives du courant collecté reportées dans la littérature sont de l'ordre de la centaine de pourcents [8-10]. Pour le transistor de type 2, des effets pouvant aller jusqu'à plusieurs milliers de pourcents sont observés dans des hétérostructures : Cu/Al₂O₃/NiFe/Cu/CoFe/GaAs [11, 12].

En dépit des très forts effets de magnétoconductance reportés dans ces structures, leur intégration dans des dispositifs électroniques reste difficile. En effet, ces transistors à électrons chauds présentent des efficacités (ratio entre le courant émis et collecté) médiocres :

 $\frac{Ie}{Ic}\approx 10^{-4}.$

Au-delà des enjeux de la magnétoélectronique, les travaux réalisés sur ces dispositifs ont permis la compréhension des mécanismes de polarisation en spin pour des électrons chauds dans la gamme 1-2 eV. Les très forts ratios de magnétoconductance dans ces hétérostructures s'expliquent par différents mécanismes:

 (i) Tout d'abord, la polarisation en spin dans ces hétérostructures peut prendre place dans le volume des électrodes ferromagnétiques. Le processus mis en jeu est alors la dépendance en spin du libre parcours moyen d'un électron dans un matériau ferromagnétique (Interactions électrons – électrons et électrons – magnons [9, 13, 14]).

- (ii) Des effets aux interfaces peuvent également permettre d'expliquer les mécanismes de transport mis en jeu dans ces dispositifs :
 - Un électron peut interagir élastiquement à la rencontre d'impuretés ou bien de défauts du réseau cristallin. S. Van Dijken *et al.* [10, 15] ont démontré que ces effets pouvaient être dépendants du spin à l'interface métal/semiconducteur et contribuaient à diminuer les effets magnétorésistifs.
 - Le raccord des structures de bandes des différents matériaux constituant ces hétérostructures pourrait induire une polarisation en spin aux interfaces (filtrage en spin aux interfaces) [16]. La mise en évidence expérimentale de tels effets est très délicate puisqu'elle exige une très bonne qualité structurale de l'hétérostructure afin de s'affranchir au maximum des effets de transport non cohérent (diffusions élastiques) cités précédemment.

La compréhension de l'influence des effets de la structure électronique dans une hétérostructure épitaxiée sur le magnétocourant d'électrons chauds passe donc par la réalisation d'un système "modèle", et c'est dans ce contexte expérimental que se situe cette thèse.

L'axe Surface du département Matériaux – Nanosciences de l'Institut de Physique de Rennes dispose d'un microscope à émission d'électrons balistiques (BEEM : Ballistic Electron Emission Microscopy), outil qui s'avère idéal pour l'étude locale des propriétés de magnétotransport d'électrons chauds dans des hétérostructures de type vanne de spin / semiconducteur. Il avait déjà été démontré au cours de la thèse de Sophie Guézo [17, 18] que dans le cas de jonctions Schottky simples épitaxiées Fe/GaAs et Au/GaAs, le transport des électrons chauds était conditionné par la structure électronique des hétérojonctions. Dans la continuité de ce travail et puisque la croissance et les propriétés physico-chimiques du contact Schottky Fe/GaAs sont maîtrisées au sein de l'équipe [17, 19, 20], nous avons fait le choix d'étudier le système Fe/Au/Fe/GaAs(001).

Le manuscrit s'organise de la façon suivante : tout d'abord, dans le chapitre I sera présenté le principe de fonctionnement de la microscopie magnétique par émission d'électrons balistiques (BEMM : Ballistic Electron Magnetic Microscopy). La seconde partie sera consacrée à la croissance des hétérostructures utilisées au cours de ce travail de thèse ainsi qu'à leurs propriétés magnétiques analysées par effet Kerr magnéto-optique et par mesures de magnétotransport diffusif quatre pointes. Les résultats obtenus en magnétotransport d'électrons chauds feront l'objet du troisième chapitre. Enfin, dans un dernier chapitre, tirant partie de la résolution latérale du microscope, nous présenterons des résultats d'imagerie magnétique obtenus sur des plots de fer de dimension sub-micrométrique.

Chapitre I : Introduction à la microscopie magnétique à émission d'électrons balistiques

La microscopie magnétique à émission d'électrons balistiques (BEMM : Ballistic Electron Magnetic Microscopy) est une technique développée par Rippard et Buhrman à la fin des années 90 [21, 22] permettant d'étudier les propriétés locales du magnétotransport d'électrons chauds dans des vannes de spin déposées sur un substrat semiconducteur. Cette technique est une extension de la microscopie à émission d'électrons balistiques (BEEM : Ballistic Electron Emission Microscopy) [23, 24]. Le BEEM est une technique de choix permettant de sonder les propriétés électroniques locales d'interfaces enterrées telles que des jonctions Schottky [17, 18, 25-27], des barrières isolantes métal/oxyde/semiconducteur [28-31] et métal/molécules organiques/semiconducteur [32, 33]. Dans ce chapitre sera présenté dans un premier temps le principe du BEEM dans le cas d'un contact métal/semiconducteur. Puis nous nous intéresserons au cas du BEMM pour lequel la simple couche mince métallique en contact avec le semiconducteur est remplacée par une vanne de spin. Finalement nous présenterons le montage expérimental utilisé au cours de cette thèse.

I - 1 – La microscopie à émission d'électrons balistiques

I - 1.1 – Description de la technique

I - 1.1.1 – Principe de fonctionnement du BEEM

La microscopie à émission d'électrons balistiques est une extension du microscope à effet tunnel développée en 1988 par Kaiser et Bell [23, 24]. Cet instrument est un outil de choix permettant de caractériser les propriétés électroniques locales d'interfaces dans des hétérostructures. Considérons le cas d'un contact Schottky métal-semiconducteur : des électrons chauds sont injectés à partir d'une pointe STM (courant tunnel I_t) à la surface d'une base métallique (Figure I.1). Le potentiel de ces électrons est défini par la tension tunnel U_{gap} appliquée entre la pointe et l'échantillon. Un faible pourcentage des électrons chauds injectés va se propager de façon balistique (sans perte d'énergie) dans la couche mince métallique. Si leur énergie (eU_{gap}) est suffisante, ils vont alors pouvoir franchir la barrière de potentiel définie par l'interface métal-semiconducteur. Ils seront ainsi collectés à l'arrière de l'échantillon, définissant le courant BEEM noté I_c .

Lors d'une expérience BEEM, la tension tunnel U_{gap} peut varier typiquement entre 0 et 10 V, le courant tunnel I_t est de l'ordre de la dizaine de nanoampères et le courant BEEM collecté à l'arrière de l'échantillon I_c de l'ordre de quelques picoampères.



<u>Figure I.1</u>: (a) Schéma électronique de fonctionnement du BEEM – (b) Schéma du potentiel vu par les électrons dans le cas d'une expérience BEEM sur un simple contact Schottky.

Ce microscope présente deux modes de fonctionnement : le mode imagerie, et le mode spectroscopie.

- En imagerie, la pointe balaie la surface de l'échantillon à courant tunnel constant. Le courant BEEM est alors mesuré en tous points (X,Y) de la surface balayée. Il est ainsi possible de cartographier avec une résolution latérale de l'ordre du nanomètre la transparence de l'échantillon. La Figure I.2(a) présente la topographie STM (en haut) et la cartographie en courant BEEM (en bas) d'une jonction Schottky Au(5 nm)/GaAs(001). L'image du courant BEEM a été réalisée pour différentes valeurs de la tension tunnel : dans la première et la dernière partie de l'image les électrons sont injectés avec une énergie de 1.4eV au-dessus de niveau de Fermi. Cette énergie est supérieure à la hauteur de barrière Schottky du système Au/GaAs. Une partie des électrons injectés peut passer l'interface métalsemiconducteur et être collectée à l'arrière de l'échantillon. La transparence de la barrière Schottky est ainsi imagée. La seconde partie de l'image est réalisée pour une énergie de 0.5eV au-dessus du niveau de Fermi du métal. Cette énergie est inférieure à la hauteur de barrière Schottky, aucun électron balistique ne peut donc traverser l'interface métal-semiconducteur : aucun signal n'apparaît sur l'image.
- En mode spectroscopie, la position de la pointe est fixée dans le plan (XY). La tension tunnel U_{gap} est balayée. Le courant tunnel est gardé constant et les variations du courant BEEM sont enregistrées. La Figure I.2 (b) présente une courbe de spectroscopie BEEM réalisée sur une jonction Au/GaAs(001). Le courant BEEM normalisé par rapport au courant tunnel est tracé en fonction de la tension tunnel (de 0 à 1.5 V). Pour de faibles valeurs de la tension tunnel (inférieures à la barrière Schottky), le courant BEEM est constant et presque nul. Lorsque l'énergie des électrons injectés est supérieure à la hauteur de barrière Schottky, les électrons peuvent traverser l'interface métal-semiconducteur et le courant BEEM augmente avec la tension tunnel. Une mesure de la tension seuil permet donc de déterminer localement la hauteur de barrière Schottky. La forme mathématique de ce type de spectre sera explicitée un peu plus loin dans ce manuscrit.



<u>Figure I.2</u>: Etude BEEM d'une jonction Schottky Au(5 nm)/GaAs(001), tirée de [17]: (a) Topographie STM ($250 \times 150 \text{ nm}^2$) et cartographie en courant BEEM réalisée simultanément pour différentes valeurs de tension tunnel (U_{gap} =1.4 V puis 0.5 V puis 1.4 V) – (b) Moyenne de 6400 spectres BEEM enregistrés sur une surface de 50×50 nm².

I - 1.1.2 – Formation d'une barrière Schottky

L'élément de base de ce microscope est donc la barrière Schottky formée spontanément lors de la mise en contact d'un métal et d'un semiconducteur [34]. Celle-ci joue le rôle de filtre en énergie et permet de sélectionner uniquement les électrons chauds dont l'énergie est supérieure à la hauteur de barrière Schottky.

La Figure I.3 présente le mécanisme de formation de cette barrière de potentiel à l'interface métal/semiconducteur dans le cas d'un semiconducteur dopé n dont le travail de sortie (Φ_S) est inférieur à celui du métal (Φ_M). Le travail de sortie est défini comme la différence d'énergie entre le niveau de Fermi et le niveau du vide du semiconducteur ou du métal. Dans le cas où les deux matériaux ne sont pas en contact (Figure I.3(a)), le niveau du vide est défini comme référence des énergies. Lors de leur mise en contact, à l'équilibre thermodynamique, les niveaux de Fermi du métal E_{FM} et du semiconducteur E_{FS} vont s'aligner et provoquant ainsi une courbure des bandes de conduction et de valence du semiconducteur afin d'assurer la continuité du niveau du vide (Figure I.3(b)). Il se forme donc une barrière de potentiel à l'interface nommée barrière Schottky Φ_{SB} définie par la relation suivante :

$$(I.1) \Phi_{SB} = \Phi_M - e\chi,$$

avec $e\chi$, l'affinité électronique du semiconducteur (grandeur intrinsèque définie comme la différence d'énergie entre le bas de bande de conduction et le niveau du vide du semiconducteur).



<u>Figure I.3</u>: Diagramme de potentiel expliquant la formation d'une barrière Schottky : (a) avant la mise en contact du métal et du semiconducteur – (b) après la mise en contact du métal et du semiconducteur.

Influence de la largeur de la zone de charge d'espace sur une expérience BEEM

La courbure des bandes de conduction et de valence du semiconducteur s'étend sur une largeur *W* appelée zone de charge d'espace ou de déplétion qui s'exprime de la façon suivante [34]:

(I.2)
$$W = \sqrt{\frac{2\varepsilon_s}{e^2 N_D} (\Phi_M - \Phi_S)},$$

avec ε_S la permittivité du semiconducteur et N_D la concentration de porteurs dans le semiconducteur et *e*, la charge élémentaire de l'électron.

Dans le cas d'une expérience BEEM, la jonction Schottky joue un rôle de filtrage en énergie des électrons chauds. Afin d'éviter tout processus tunnel à travers la barrière de potentiel, il est donc essentiel que la zone de charge d'espace soit suffisamment large. Ainsi, pour les échantillons étudiés au cours de cette thèse, la croissance d'une couche tampon de GaAs(001) modérément dopée ($N_D = 4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) sur une épaisseur typique de 1.5 µm sur les substrats commerciaux de GaAs(001) permet d'élargir la zone de déplétion dans le semiconducteur comme l'illustre le tableau suivant :

	N_D	Φ_M - Φ_S	\mathcal{E}_S	W
Substrats commerciaux	10^{18} cm^{-3}	0.5 eV	12.9 ε ₀	27 nm
Substrats BEEM	$10^{16} \mathrm{cm}^{-3}$	0.5 eV	12.9 ε ₀	133 nm

<u>Tableau I.1</u>: Calcul de la largeur de la zone de charge d'espace dans le cas de contact Schottky formée à l'interface d'un semiconducteur fortement dopé (substrats commerciaux) et modérément dopé (substrats utilisés pour l'étude BEEM).

Influence de la résistance de la jonction Schottky sur une expérience BEEM

Dans une expérience BEEM réalisée à température ambiante, le courant collecté en face arrière du substrat de GaAs n'est pas nul, même lorsque l'énergie des électrons injectés est inférieure à la hauteur de barrière Schottky. Ce faible signal correspond principalement à un courant diffusif traversant l'interface métal-semiconducteur : du fait de la légère tension d'entrée sur le préamplificateur du circuit de mesure BEEM, la jonction Schottky est faiblement polarisée et un courant de fuite la traverse. Afin de limiter l'amplitude de ce courant de fuite il est important d'augmenter la résistance de la jonction Schottky à polarisation nulle. Celle-ci s'exprime de la façon suivante [35]:

(I.3)
$$R_0 = \frac{k_B}{eA^*TS} \exp\left(\frac{\Phi_{SB}}{k_BT}\right),$$

avec *T*, la température, k_B , la constante de boltzmann, *S* la surface de la jonction Schottky et A^* est la constante de Richardson qui s'exprime :

(I.4)
$$A^* = \frac{4\pi em^* k_B^2}{h^3}$$
,

où, *h* est la constante de Planck et m^* , la masse effective du semiconducteur. Pour une surface Schottky de 1 cm² (taille typique d'un échantillon étudié en BEEM), à 300 K et pour $\Phi_{SB}=0.8 \ eV$ (Au/GaAs), la résistance associée est de l'ordre de 10⁵ Ω . Considérant des tensions de décalage de quelques μV sur les entrées des préamplificateurs de mesure, cela donne un courant de fuite de l'ordre de quelques dizaines de nanoampères. Les courants d'électrons chauds mesurés en BEEM étant de quelques picoampères, il est impossible de travailler avec une résistance aussi faible. Au regard de l'équation (I .3) l'augmentation de la résistance de la jonction à température ambiante passe par une diminution de la surface du contact métal-semiconducteur S. Au cours de ce travail de thèse, les films minces métalliques définissant la surface de la jonction Schottky sont évaporés à travers un masque permettant de définir des plots d'environ 500 µm de diamètre. La résistance de la jonction associée est alors de l'ordre de 10⁸ Ω (pour $\Phi_{SB}=0.8 \ eV$), soit un courant de fuite de quelques picoampères.

I - 1.2 – Description théorique du courant BEEM dans l'approximation des électrons libres

Plusieurs modèles théoriques de transport du courant BEEM ont été élaborés. Le premier développé par Kaiser et Bell [23, 24] puis amélioré par Ludeke et Prietsch [36-38] se base sur l'hypothèse des électrons libres. Le second prend en compte la structure périodique des cristaux métalliques en se basant sur le modèle des électrons de Bloch, ce modèle a été élaboré par le groupe de F. Flores et P.L. Andres [39, 40]. Dans cette partie du document, nous nous intéressons au modèle basé sur l'hypothèse des électrons libres.

I - 1.2.1 – Expression Générale du courant BEEM

L'expression du courant BEEM a été évaluée par Ludeke et Prietsch [36-38] en considérant plusieurs étapes décrivant le transport des électrons chauds :

- Le courant est émis de la pointe vers la surface métallique par effet tunnel.
- Les électrons se propagent dans la couche mince métallique, certains subissent des diffusions. Ce courant est alors atténué de façon exponentielle en fonction de l'épaisseur de la couche métallique traversée.
- La dernière étape est le passage de l'interface métal-semiconducteur qui est considérée comme abrupte. Au passage de cette interface, la composante parallèle à l'interface du vecteur d'onde est conservée.

La Figure I.4 présente le diagramme énergétique du dispositif BEEM : l'origine des énergies est définie par le bas de bande de la pointe STM (dispersion parabolique). E_0 représente l'énergie du bas de bande de la couche mince métallique. L'énergie des électrons injectés à partir de la pointe STM est notée E^{Tip} .



<u>Figure I.4</u> : Diagramme énergétique du dispositif BEEM vu par des électrons d'énergie E^{Tip} dans le cas d'une barrière Schottky. Le bas de bande de la pointe est défini comme référence des énergies et celui de la couche mince métallique vaut E_0 (Figure tirée de [17]).

Ludeke et Prietsch ont déterminé l'expression générale du courant BEEM [36-38] en faisant intervenir les différentes contributions citées précédemment :

(I.5)
$$I_C \propto \int_{E_{BC}^{SC}}^{eU_{gap}} \int_{0}^{k_{\parallel max}} F(E^{Tip} - U_{gap}, T) D(E^{Tip}, U_{gap}) e^{-\frac{d}{\lambda(E^{Tip})}} k_{\parallel} T(E^{Tip}, k_{\parallel}) dk_{\parallel} dE^{Tip}$$

Dans l'équation (I .5), $F(E^{Tip}-U_{gap}, T)$ représente la fonction de Fermi des électrons de la pointe à la température T, $D(E^{Tip}-U_{gap})$ est la probabilité de tunneler des électrons de la pointe vers le métal, k_{\parallel} est la composante transverse du vecteur d'onde des électrons, $T(E^{Tip}, k_{\parallel})$ est la probabilité de transmission des électrons à travers l'interface métal-semiconducteur. Le terme exponentiel représente l'atténuation des électrons balistiques dans la couche mince métallique [41] avec λ la longueur d'atténuation des électrons dans le métal, d l'épaisseur de la couche mince. Ces termes sont intégrés sur une gamme d'énergie allant du minimum de la bande de conduction du semiconducteur jusqu'au niveau de Fermi de la pointe STM.

I - 1.2.2 – Modèle de Ludeke et Prietsch

Ludeke et Prietsch [36-38] ont calculé l'intégrale (I .5). Pour se faire, il faut commencer par calculer le coefficient de transmission à l'interface métal-semiconducteur qui est supposée abrupte. Le vecteur d'onde k des électrons injectés est défini par deux composantes, une transverse k_{\parallel} et une normale à la surface k_{\perp} . Dans l'hypothèse d'une interface parfaite, la composante transverse du vecteur d'onde est conservée à l'interface Schottky. Ainsi, $k_{\parallel} = k_{\parallel}^{N} = k_{\parallel}^{SC}$ où, $k_{\parallel}^{M} et k_{\parallel}^{SC}$ sont respectivement définis comme les composantes parallèles des vecteurs d'onde dans le métal et dans le semiconducteur.

Le coefficient de transmission quantique à l'interface métal-semiconducteur s'exprime alors en fonction des composantes normales des vecteurs d'onde de la façon suivante :

(I.6)
$$T(k_{\perp}^{M}, k_{\perp}^{SC}) = \frac{4k_{\perp}^{M}k_{\perp}^{SC}}{[k_{\perp}^{M} + k_{\perp}^{SC}]^{2}}.$$

Pour calculer l'intégrale (I .5), il est nécessaire d'exprimer cette probabilité de transmission en fonction des variables d'intégration : E^{Tip} et k_{\parallel} . Pour se faire, il suffit d'écrire la condition de conservation de l'énergie en fonction des différentes composantes des vecteurs d'onde des électrons à l'interface métal-semiconducteur. Le calcul du coefficient de transmission se simplifie alors de la façon suivante :

(I.7)
$$T \propto \sqrt{\frac{2m^*}{\hbar^2} [E^{Tip} - E^{SC}_{BC}] - k_{\parallel}^{SC^2}}$$
.

L'expression (I .7) est injectée dans l'équation (I .5) du courant BEEM. Le calcul de cette intégrale se fait dans une limite basse température (c'est-à-dire que la fonction de Fermi vaut 1 en dessous de E_F^{Tip}) et en considérant que $D(E^{Tip}, U_{gap})$ et $\lambda(E^{Tip})$ varient lentement dans la gamme d'énergie considérée. Ainsi, il est possible de montrer que le courant BEEM varie de la façon suivante :

(I.8)
$$I_c \propto [eU_{gap} - \Phi_{SB}]^{5/2}$$
.

Le courant BEEM est donc une fonction en puissance 5/2 de l'énergie des électrons.

I - 1.2.3 – Résolution latérale du BEEM

La conservation de la composante transverse du vecteur d'onde électronique à l'interface métal-semiconducteur permet une analogie avec l'optique géométrique. De la même manière qu'une onde lumineuse peut-être réfléchie ou réfractée à une interface, les électrons chauds arrivant à la jonction métal-semiconducteur sous un angle d'incidence θ peuvent subir ces mêmes phénomènes physiques. La Figure I.5 présente de façon schématique la réfraction des électrons à l'interface métal-semiconducteur : seuls les électrons arrivant à l'interface métal-semiconducteur : seuls les électrons arrivant à l'interface avec une incidence θ inférieure à un angle critique θ_c seront transmis dans le semiconducteur. Les électrons présentant un angle d'incidence supérieur à θ_c seront totalement réfléchis dans le métal. Le calcul de cet angle critique a été effectué par Kaiser et Bell [23, 24].



Figure I.5: *Réfraction des électrons à l'interface métal-semiconducteur. (tirée de [17]).*

D'après la Figure I.5, l'angle d'incidence critique est défini par :

(I.9)
$$\sin^2(\theta_c) = \frac{k_{\parallel}^2}{k^{M^2}}.$$

Les composantes des vecteurs d'onde des électrons dans le métal et le semiconducteur se retrouvent facilement en écrivant la condition de conservation de l'énergie à l'interface métal-semiconducteur du dispositif :

(I.10)
$$k_{\parallel}^{M} = \sqrt{k_{\perp}^{M^{2}} - \frac{2m}{\hbar^{2}} [E^{Tip} - E_{0}]},$$

(I.11) $k_{\parallel}^{SC} = \sqrt{k_{\perp}^{SC^{2}} - \frac{2m^{*}}{\hbar^{2}} [E^{Tip} - E_{BC}^{SC}]}.$

Dans le cas où θ vaut θ_c , $k\perp^{SC}$ est nul. Sur la Figure I.5 est tracé en rouge le trajet d'un électron arrivant à l'interface sous l'incidence critique, la composante normale du vecteur d'onde n'est pas transmise à l'interface. L'équation (I.9) devient :

(I.12)
$$\sin^2(\theta_c) = \frac{m^*}{m} \frac{E^{Tip} - E_{BC}^{SC}}{E^{Tip} - E_0}.$$

On peut ainsi définir un cône d'acceptance d'angle θ_c pour les électrons à l'interface métal semiconducteur. La largeur de ce cône d'acceptance dépend de l'énergie des électrons injectés dans la base métallique, et cette énergie est comprise entre le niveau de Fermi du métal et celui de la pointe. Cet angle est nul si l'énergie des électrons injectés vaut le minimum de bande de conduction du semiconducteur : aucun électron n'est accepté à l'interface. Cet angle est maximal si l'énergie des électrons chauds vaut le niveau de Fermi de la pointe :

(I.13)
$$\sin^2(\theta_c^{Max}) = \frac{m^*}{m} \frac{E_F^{Tip} - E_{BC}^{SC}}{E_F^{Tip} - E_0} = \frac{m^*}{m} \frac{eU_{gap} - \Phi_{SB}}{eU_{gap} + E_F}.$$

Pour le système standard Au/GaAs et pour une tension tunnel de 1 V ($m^*=0.067 m_0$ d'après [42]), $\theta_c=2.1$ °, les électrons balistiques passant l'interface sont donc confinés au voisinage de la normale.

L'expression du cône d'acceptance maximal permet de définir la résolution latérale du BEEM à une interface métal-semiconducteur pour une couche métallique d'épaisseur *d*:

(I.14)
$$\triangle x = 2d \tan \theta^{Max}$$

Pour le système Au(5 nm)/GaAs, l'application numérique donne une résolution latérale de 0.36 nm.

I - 1.3 – Cas des systèmes épitaxiés : électrons de Bloch

La description du courant BEEM dans le cas d'une interface métal-semiconducteur par un simple modèle électrons libres ne permet pas d'expliquer certains résultats expérimentaux témoignant d'une injection des électrons chauds à travers la barrière Schottky pour des vecteurs d'ondes situés en dehors du cône d'acceptance [18, 23, 24, 43-46]. Dans le cas d'interfaces diffuses et polycristallines, de tels effets peuvent se comprendre par des diffusions élastiques des électrons à l'interface métal-semiconducteur remettant ainsi en cause la conservation de la composante transverse du vecteur d'onde k_{||}. Mais une telle explication ne paraît pas adaptée au cas de systèmes épitaxiés présentant un ordre atomique à longue distance et une interface métal-semiconducteur abrupte. Ainsi, une description théorique plus adaptée à ce type d'hétérostructures prenant en compte la propagation de l'électron comme un état de Bloch dans le métal a été développée vers la fin des années 90 par le groupe de F. Flores et P.L. de Andres [39, 40, 47, 48]. Dans ce modèle, on s'intéresse à la propagation du courant d'électrons chauds à partir de la pointe STM jusque l'interface métal-semiconducteur. A la traversée de la couche mince métallique, le courant d'électrons chauds est diffusé élastiquement par le potentiel périodique du cristal. Les états propagatifs sont après quelques plans atomiques des états de Bloch de la structure de bandes du métal. Le milieu pouvant être fortement anisotrope, le vecteur d'onde électronique peut rapidement acquérir une forte composante transverse. L'électron pourra alors traverser l'interface métal-semiconducteur et accéder à des vallées transverses dans le semiconducteur. Ces dernières années, quelques travaux expérimentaux ont permis de démontrer dans des systèmes épitaxiés la conservation de k_{\parallel} lors de l'injection d'électrons à travers un contact Schottky pour des vecteurs d'ondes situés en dehors du cône d'acceptance défini par le modèle des électrons libres [18, 46].

I - 1.3.1 – Cas d'une interface métal/Silicium (001) et (111)

Problématique liée au silicium dans l'approximation électrons libres

La Figure I.6 présente les projections des zones de Brillouin sur une surface de silicium dans les directions (001) (à gauche) et (111) (à droite). Les positions des différents minima des bandes de conduction du silicium sont repérées par une croix (+). Il apparait que le silicium orienté (111), ne présente pas d'état disponible autour du centre de zone $\overline{\Gamma}$ contrairement à l'orientation (001). Ainsi, dans l'hypothèse électrons libres pour une interface métal/Si(111), aucun état disponible du silicium se trouve dans le cône d'acceptance des électrons. Dans une hypothèse électrons libres, la transmission du courant d'électrons chauds devrait donc se trouver fortement réduite par rapport à une interface métal/Si(001). Or expérimentalement il a été observé que la transmission du courant BEEM restait presque insensible à l'orientation du silicium [45, 46, 49, 50]. Ceci démontre les limites des modèles à électrons libres.



<u>Figure I.6</u> : Zone de Brillouin 3D du silicium et ses projections dans les directions (001) à gauche et (111) à droite (tirée de [39]).

Conservation de la composante transverse du vecteur d'onde lors de l'injection des électrons dans les vallées transverses du silicium orienté (111)

En 2009, C.A. Bobicsh et al. ont démontré que dans le cas d'hétérostructures parfaitement épitaxiées Bi(111)/Si(001) et Bi(111)/Si(111), la transmission du courant d'électrons chauds à travers les barrières Schottky se faisait avec conservation de la composante transverse du vecteur d'onde [46]. Les expériences BEEM réalisées sur ces deux hétérostructures démontrent des valeurs de « hauteur de barrière Schottky » différentes : dans le cas de Bi(111)/Si(001), $\Phi_{SB}=0.58 \text{ eV}$, alors que pour l'hétérostructure Bi(111)/Si(111) $\Phi_{SB}=0.68 \ eV$. Cette différence d'énergie seuil s'explique par une propagation du courant d'électrons chauds comme des états de Bloch dans le bismuth et par la conservation de k_{ll} à l'interface métal/semiconducteur. La Figure I.7(a) présente la structure de bandes du bismuth dans des directions d'intérêt. Les positions des deux valeurs d'énergie seuil sont repérées en rouge (Bi/Si(001)) et en bleu (Bi/Si(111)). Les projections des zones de Brillouin Bi(111)/Si(111) et Bi(111)/Si(001) pour les deux énergies seuils sont représentées à droite de cette figure. Il apparaît très clairement l'absence d'état vide dans le bismuth au point \overline{M} se projetant sur les minima de la bande de conduction du silicium orienté (111) à 0.58 eV audessus du niveau de Fermi (Figure I.7 (b)). Dans le cas de Si(001), des états du bismuth se projettent au point $\overline{\Gamma}$ (minimum de la bande de conduction du semiconducteur) (Figure I.7 (c)). Ainsi dans l'hypothèse de conservation de la composante transverse du vecteur d'onde à l'interface métal-semiconducteur, à cette énergie définissant la hauteur de barrière Schottky Bi/Si, seule l'orientation (001) du silicium permet la transmission du courant d'électrons chauds à l'interface. Cette analyse permet d'expliquer les différences d'énergies seuils

mesurées en BEEM pour les deux orientations du silicium et démontre très clairement la non validité du modèle à électrons libres et la conservation de k_{\parallel} à l'interface métal-semiconducteur dans le cas d'hétérostructures épitaxiées.



<u>Figure I.7</u>: Structure de bandes du bismuth, les hauteurs de barrière Schottky sont repérées en rouge pour l'interface Bi(111)/Si(001) (Φ_{SB} =0.58 eV) et en bleu pour l'interface Bi(111)/Si(111) (Φ_{SB} =0.67 eV) (a) – projection de la zone de Brillouin du Bi(111) sur celle du Si(111) et (001) à 0.58 eV (b) et (c) – à 0.67 eV (d) et (e). (tirée de [46])

I - 1.3.2 – Cas de l'interface métal/GaAs(001)

Les échantillons étudiés au cours de cette thèse sont des hétérostructures épitaxiées Fe/Au/Fe/GaAs(001). Avant toute étude sur des structures aussi complexes, il fut important de s'assurer de la conservation de k_{\parallel} à l'interface métal-semiconducteur. Ce travail a été effectué au cours de la thèse de Sophie Guézo [17, 18] où par comparaison entre les systèmes épitaxiés Fe(001)/GaAs(001) et Au(110)/GaAs(001) il a été démontré la conservation de la composante transverse du vecteur d'onde associé à l'électron à l'interface métal-semiconducteur.



<u>Figure I.8</u>: Structure de bandes de GaAs (à gauche) et la projection de sa zone de Brillouin dans la direction (001) (à droite).

La Figure I.8 présente à gauche, la structure de bandes du GaAs. Dans sa bande de conduction sont repérés par des cercles, trois minima. Le premier (en gris) est la vallée Γ du semiconducteur qui définit le contact Schottky avec le métal. Cette vallée se projette dans la direction k_{||}=0, en centre de zone comme représenté à droite de la Figure I.8. Le second minimum est la vallée L (en orange) qui apparait 0.33 eV au-dessus de Γ . Celle-ci se projette dans une direction transverse de la zone de Brillouin du GaAs (au point \overline{X}). Le dernier correspondant à la vallée X (jaune), 0.48 eV au-dessus de Γ , se projette également en centre de zone ainsi que dans une direction transverse (au point \overline{M}). Ainsi, si la structure électronique du métal en contact avec le GaAs le permet, les électrons chauds pourront être injectés dans la vallée Γ à basse énergie, puis dans la vallée L et enfin à plus haute énergie dans la vallée X.

Les spectres BEEM obtenus sur les hétérostructures Au(110)/GaAs(001) et Fe(001)/GaAs(001) (Figure I.9 (a) et (b)) ont été ajustés avec le modèle de Ludeke et Prietsch (équation (I .8)). Afin de déterminer le poids spectral lié à la contribution des différentes vallées, trois seuils énergétiques décrivant la structure de bandes de GaAs ont été introduits :

(I.15)
$$I_c \propto a_0 + a_{\Gamma} (U_{gap} - \Phi_{\Gamma})^{5/2} + a_L (U_{gap} - \Phi_L)^{5/2} + a_X (U_{gap} - \Phi_X)^{5/2}$$

Sur les deux graphiques de la Figure I.9 (en haut), les points expérimentaux sont présentés en noir et le résultat total de l'ajustement en rouge. Le spectre BEEM obtenu sur l'hétérostructure Au(110)/GaAs(001) (Figure I.9(a)) témoigne d'une injection des électrons chauds dans les vallées Γ (contribution présentée en pointillés verts) et L (contribution présentée en pointillés bleus) du semiconducteur. Dans le cas du contact Schottky Fe(001)/GaAs(001), une seule contribution correspondant à la vallée Γ permet d'ajuster la courbe expérimentale (Figure I.9(b)).



<u>Figure 1.9</u>: (a) et (b) Spectres BEEM réalisés sur les jonctions Schottky Au(110)/GaAs(001) et Fe(001)/GaAs(001) ajustés par le modèle de Ludeke et Prietsch – Projection des états propagatifs calculés dans l'Au(110) (c) et le Fe(001) (d) sur la zone de Brillouin de surface du GaAs(001) (tirée de [17, 18]).

Une approche théorique par la méthode des liaisons fortes a permis d'expliquer ces résultats expérimentaux par la propagation des électrons chauds en ondes de Bloch dans le métal et par la conservation de la composante transverse associée au vecteur d'onde de l'électron. Ces résultats sont synthétisés sur la Figure I.9 (c) et (d). Sur ces deux schémas, le

carré noir grisé représente la zone de Brillouin du GaAs projetée dans la direction (001). Les états disponibles dans le semiconducteur sont repérés tout comme sur le Figure I.8 en gris (vallée Γ en centre de zone), en orange (vallée L au point \overline{X}) et en jaune (vallée X aux points $\overline{\Gamma}$ et \overline{M}).

- Considérons dans un premier temps le cas du contact Au(110)/GaAs(001) (Figure I.9(c)). En violet est représentée la zone de Brillouin de l'or projetée dans la direction (110) sur celle du GaAs(001). Les états propagatifs calculés dans ce film métallique apparaissent en vert pour des énergies situées au-dessus du seuil de la vallée Γ et en bleu pour des énergies situées au-dessus de la vallée L. Pour des énergies comprises entre le niveau de Fermi du métal et *E_f+1 eV*, des états se propageant dans le métal se projettent en centre de zone de Brillouin. Ceux-ci accèdent à la vallée Γ du GaAs et expliquent le premier seuil introduit pour ajuster le spectre BEEM expérimental. A plus haute énergie, au-delà du seuil de la vallée L, des états propagatifs de l'or se projettent au point *X* (vallée L) de la zone de Brillouin du GaAs. Ces états accédant à cette seconde vallée expliquent le second seuil introduit pour ajuster la courbe de spectroscopie BEEM.
- Dans le cas de la structure Fe(001)/GaAs(001) (Figure I.9(d)), la zone de Brillouin du métal projetée sur celle du semiconducteur est représentée par un carré vert. Les états propagatifs calculés dans le fer pour des énergies situées au-delà du niveau de Fermi du métal apparaissent en violet. Ces états se projettent uniquement sur les états disponibles du GaAs situés en centre de zone de Brillouin. Seule la vallée Γ se projetant dans la direction k_{||}=0 est accessible au courant d'électrons chauds expliquant ainsi l'ajustement du spectre BEEM par une unique contribution.

Ces travaux ont donc permis de démontrer la conservation de la composante transverse du vecteur d'onde à l'interface métal-semiconducteur dans les hétérostructures qui seront mentionnées dans la suite de ce manuscrit.

I - 2 – La microscopie magnétique à émission d'électrons balistiques

I - 2.1 – Principe de fonctionnement du BEMM

Nous avons vu dans la partie précédente de ce chapitre le principe de fonctionnement du BEEM dans le cas d'un contact métal/semiconducteur. En remplaçant dans cette hétérostructure le simple film mince magnétique par une vanne de spin (métal ferromagnétique/métal non magnétique/métal ferromagnétique), le courant BEEM sera sensible aux effets magnétorésistifs. L'intensité du courant collecté dépendra de l'orientation relative de l'aimantation entre les deux électrodes ferromagnétiques (Figure I.10). En effet, le courant d'électrons chauds se polarise en spin à la traversée de la première électrode ferromagnétique (polariseur) puis est analysé par la seconde électrode (analyseur). Cette technique développée par Rippard et Buhrmann [21, 22] vers la fin des années 90 porte le nouveau nom de microscopie magnétique à émission d'électrons balistiques (BEMM : Ballistic Electron Magnetic Microscopy).



<u>Figure I.10</u> : Principe de fonctionnement du microscope magnétique à émission d'électrons balistiques.

Ce microscope permet donc d'étudier localement le magnétotransport des électrons chauds dans des vannes de spin déposées sur un substrat semiconducteur. Il est alors possible de travailler avec les différents modes de fonctionnement du microscope : la spectroscopie et la microscopie.

Spectroscopie magnétique

La Figure I.11 présente un exemple des deux types d'acquisition BEMM pouvant être réalisés sur une hétérostructure de type vanne de spin sur semiconducteur. A gauche, deux spectres I_c - U_{gap} enregistrés sur l'hétérostructure Au(0.4 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) dans la configuration parallèle (courbe rouge) et antiparallèle (courbe noire) de la vanne de spin. La variation relative du

courant collecté entre ces deux configurations magnétiques est de l'ordre de 500% à 1 eV audessus du niveau de Fermi. A droite est représenté un cycle de magnétocourant *Ic-B*. Pour réaliser ce type de cycle, la position de la pointe est fixée en X, Y et Z et un balayage du champ magnétique est effectué de -2.5 mT à +2.5 mT (en noir) puis de +2.5 mT a -2.5 mT (en rouge). Ce cycle d'hystérésis permet de démontrer le comportement magnétorésistif des hétérostructures étudiées.



<u>Figure I.11</u>: Spectres I_c-U_{gap} réalisés sur l'hétérostructure Au(0.4 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) dans la configuration parallèle et antiparallèle de la vanne de spin (It=20 nA – moyenne de 2000 spectres) (gauche) – Cycle de magnétocourant Ic-B (It=20 nA – U_{gap}=1.4 V – moyenne de 5 cycles) (droite)

Imagerie magnétique

Dans ces hétérostructures, le courant BEEM est localement modulé par ces effets magnétorésistifs. Il est donc possible d'imager la structure en domaines magnétiques de l'échantillon avec une résolution latérale de l'ordre du nanomètre. La Figure I.12 présente à gauche une image de la topographie STM réalisée à la surface d'une hétérostructure de type vanne de spin sur un substrat semiconducteur. Au milieu, (Figure I.12(a)) est représentée la cartographie en courant BEEM enregistrée simultanément avec la topographie STM. Sur cette zone de 1 µm², il apparaît localement deux configurations magnétiques différentes pour la vanne de spin. En effet, dans les coins de l'image, en haut à gauche et en bas à droite apparaissent des zones de faible courant BEEM (zones sombres) révélant un fort désalignement de l'aimantation entre les deux électrodes ferromagnétiques. Au centre de l'image, apparait une zone de fort courant BEEM (zone claire) révélant un faible désalignement relatif de l'aimantation entre les deux électrodes ferromagnétiques. Par application d'un champ magnétique de 8 mT dans l'axe [110]_{GaAs}, les deux électrodes ferromagnétiques sont amenées dans une configuration parallèle provoquant ainsi la disparition du contraste d'origine magnétique sur la cartographie en courant BEEM (Figure I.12(b)) (la topographie STM enregistrée simultanément avec cette image BEEM sous champ magnétique ne révèle aucune dérive de la pointe STM, par commodité celle-ci n'est pas présentée sur cette figure).



Cartographie en courant BEEM U_{gap} = 2.25 V

0.5nm 0nm 200nm

Figure I.12 : A gauche, topographie STM réalisée sur l'hétérostructure $Au(2 \text{ nm})/Fe(1 \text{ nm})/Au(3 \text{ nm})/Fe(1 \text{ nm})/GaAs(4 \text{ MC})/Al_{0.4}Ga_{0.6}As(25 \text{ nm})/GaAs(001) (1\mu m^2) - a$ droite, (a) cartographie en courant BEEM réalisée simultanément avec l'image STM à champ nul – (b) puis après application d'un champ magnétique de 8 mT dans la direction [110]_{GAAs}. (tirée de [17])

Courant BEEM en fonction de l'angle $\Phi_{1,2}$: analyse quantitative

Dans ce type de structure, le courant BEEM collecté dépend de l'orientation relative de l'aimantation entre les deux électrodes ferromagnétiques. Si la configuration de la vanne de spin est strictement parallèle, la valeur du courant BEEM collecté sera notée : I_c^P . Si la vanne de spin est dans une configuration strictement antiparallèle, la valeur du courant BEEM collecté sera noté I_c^{AP} . Le magnétocourant qui permet d'évaluer les effets de magnétotransport d'électrons chauds sera noté MC180 et défini comme la variation relative du courant BEEM entre les états parallèle et antiparallèle de la vanne de spin :

(I.16)
$$MC_{180} = \frac{I_c^P - I_c^{AP}}{I_c^{AP}}$$

Nous verrons par la suite dans ce manuscrit que nous ne nous intéresserons pas toujours à des systèmes colinéaires : la vanne de spin ne sera pas forcément dans une configuration parallèle ou antiparallèle. Nous considérerons également des cas où les aimantations des deux électrodes forment un angle $\Phi_{1,2}$, le courant BEEM collecté sera alors noté $I_c^{\phi l,2}$. Dans la littérature, la dépendance angulaire de la résistance dans une vanne de spin en fonction de l'angle que forment les aimantations des électrodes ferromagnétiques est très discutée. De récents travaux expérimentaux ont permis de s'accorder sur la loi générale suivante :

(I.17)
$$R(\Phi_{1,2}) = R^{P} + \left[\frac{R^{AP} - R^{P}}{2 + \chi \left(1 + \cos(\Phi_{1,2})\right)}\right] \left[1 - \cos(\Phi_{1,2})\right],$$

où χ est un paramètre ajustable dépendant de la structure et des processus de transport considérés [51-53]. Dans cette équation, si χ vaut 0, la résistivité de la structure varie linéairement avec le cosinus de l'angle $\Phi_{1,2}$:

(I.18)
$$R(\Phi_{1,2}) = R^{P} + \left[\frac{R^{AP} - R^{P}}{2}\right] \left[1 - \cos(\Phi_{1,2})\right].$$

Si χ tend vers MC_{180} , c'est la conductance de la structure qui dépend presque linéairement du cosinus de l'angle $\Phi_{1,2}$. L'équation (I.17) peut alors être approchée comme suit :

(I.19)
$$I_c(\Phi_{1,2}) = I_c^{AP} + \left[\frac{I_c^P - I_c^{AP}}{2}\right] \left[1 + \cos(\Phi_{1,2})\right].$$

L'étude menée au cours de ce travail de thèse ne permet pas de déterminer précisément la valeur du paramètre χ pour le structure Fe/Au/Fe/GaAs et pour des électrons balistiques. Par la suite nous considérerons que χ vaut 0, soit une dépendance linéaire de la résistivité de la structure avec le cosinus de l'angle $\Phi_{1,2}$. Cette hypothèse sera validée a posteriori dans le chapitre IV du manuscrit, dans lequel les images BEMM expérimentales obtenues sur des microstructures de fer sont en accord quantitatif avec les images BEMM calculées à partir de simulations micromagnétiques en utilisant une telle dépendance angulaire.

Convertissant cette expression (I .18) en conductivité, nous obtenons l'expression de $I_c^{\Phi_{l,2}}$ en fonction de l'angle $\Phi_{l,2}$:

(I.20)
$$I_{c}^{\Phi_{1,2}} = \frac{I_{c}^{P}}{1 + \frac{1}{2} \left[\frac{I_{c}^{P} - I_{c}^{AP}}{I_{c}^{AP}} \right] \left[1 - \cos(\Phi_{1,2}) \right]}.$$

Nous retrouvons bien ici que lorsque $\Phi_{1,2}$ vaut 0, nous avons $I_c^{\Phi_{1,2}} = I_c^P$ et lorsque $\Phi_{1,2}$ vaut 180 °, $I_c^{\Phi_{1,2}} = I_c^{AP}$ [54].

I - 2.2 – Origine de la polarisation en spin des électrons chauds dans ces hétérostructures

La modulation locale du courant BEEM par les effets magnétorésistifs dans ces hétérostructures révèle une très forte polarisation en spin des électrons chauds. En effet, les mesures de magnétotransport mettent en évidence des magnétocontrastes pouvant atteindre 500 % à température ambiante (Figure I.11).

La question qui se pose ici est la suivante : comment une telle polarisation en spin peut s'établir dans ces hétérostructures? Deux éléments permettent de répondre à cette question : le filtrage en spin peut s'établir d'une part dans le volume des électrodes ferromagnétiques et d'autre part aux interfaces de l'hétérostructure.

I - 2.2.1 – Polarisation en spin en volume

Dans un métal ferromagnétique, le libre parcours moyen de l'électron dépend du spin : $\Lambda^{\uparrow} > \Lambda^{\downarrow}$. Ainsi, un électron de type down (spin antiparallèle à l'aimantation du métal) subira beaucoup plus de diffusions inélastiques qu'un électron de type up (spin parallèle à l'aimantation du métal) (Figure I.13). Une diffusion inelastique engendrant une perte d'énergie, dans un dispositif à électrons chauds tel que le BEEM, le signal des électrons de type down sera donc largement plus atténué que celui des électrons de type up dans la mesure où l'épaisseur de métal ferromagnétique est très supérieure à Λ_{\downarrow} . Ainsi, lors d'une expérience BEMM, un courant non polarisé en spin est injecté à partir de la pointe STM vers la vanne de spin. Ce courant se polarise en spin à la traversée de la première électrode ferromagnétique puis est analysé dans la seconde électrode donnant ainsi lieu à de très forts effets magnétorésistifs.



<u>Figure I.13</u> : Schéma expliquant la polarisation en spin dans le volume d'un métal ferromagnétique (tiré de [13]).

Origine de l'atténuation du signal des électrons chauds

A la traversée du film mince métallique, le courant d'électrons chauds sera fortement atténué par la mise en jeu de mécanismes de diffusions électroniques : diffusions inélastiques (électron-électron, électron-magnon), diffusions quasi-élastiques (électron-phonon) et diffusions élastiques (électron-impureté, électron-défaut).

Le libre parcours moyen de l'électron dépend de ces différents types de processus de diffusions et s'exprime de la façon suivante [55]:

(I.21)
$$\frac{1}{\Lambda} = \frac{1}{\Lambda_{e-e}} + \frac{1}{\Lambda_{e-ph}} + \frac{1}{\Lambda_{e-m}} + \frac{1}{\Lambda_{el}}.$$

Parmi ces termes rentrant en compte dans l'expression du libre parcours moyen de l'électron, seules les interactions électron-électron et électron-magnon contribuant à la dépendance en spin du transport des électrons chauds permettent d'expliquer l'atténuation préférentielle des électrons de spin minoritaire.

(i) <u>Diffusion électron-électron</u> : L'énergie d'un électron (dit primaire) subissant ce type d'interaction se retrouve diminuée engendrant ainsi l'excitation d'un nouvel électron

(dit secondaire) qui pourra participer au courant d'électrons chauds si son énergie le permet. Dans les métaux ferromagnétiques de transition 3d, la forte asymétrie de diffusion des électrons \uparrow et \downarrow est en grande partie attribuée à ces interactions électronélectron. En effet, dans ces métaux, la bande d est très largement occupée pour les électrons de spin majoritaire et très largement inoccupée pour les électrons de spin minoritaire. Les électrons \downarrow qui présentent donc plus d'états vides dans lesquels ils peuvent être diffusés seront donc atténués préférentiellement (Figure I.14). Ce type d'interaction conserve le spin de l'électron incident, mais l'électron secondaire excité peut-être de spin opposé à l'électron primaire. Les temps caractéristiques de ce type de diffusion sont de l'ordre de quelques femtosecondes dans un métal ferromagnétique. La fréquence de ces interactions électron-électron sera donc importante dans la mesure où un électron se déplaçant à une vitesse de groupe de 0.5×10^6 m.s⁻¹, mettra 8 fs à traverser 4 nm de base métallique.

(ii) <u>Diffusion électron-magnon</u>: Les magnons sont des modes fondamentaux d'excitations collectives des spins dans un matériau ferromagnétique. L'interaction électron-magnon entraîne une perte d'énergie pour l'électron de l'ordre de la centaine de mili-électronvolt ainsi qu'un renversement de son spin. Ce type de diffusion est donc dépendant du spin mais son influence sur le magnétotransport des électrons chauds dans des bases métalliques de quelques nanomètres d'épaisseur reste très discutable [56]. En effet la génération d'ondes de spin dans un matériau ferromagnétique est connue comme étant un processus très lent. La probabilité pour un électron de subir une interaction électron-magnon sera beaucoup plus faible que celle de subir une interaction électron.



<u>Figure I.14</u> : Interaction de type électron-électron dans le cas d'un métal ferromagnétique de transition 3d (tirée de [57]).

Atténuation exponentielle du signal d'électrons chauds

Un modèle phénoménologique tenant compte de l'atténuation exponentielle du courant d'électrons chauds dans un film mince métallique permet d'expliquer les très forts
effets magnétorésistifs observés dans ce type d'hétérostructures [22]. Considérons tout d'abord le cas d'un simple contact Schottky, le courant d'électrons chauds sera atténué de façon exponentielle dans le volume du film mince métallique sur une longueur caractéristique appelée longueur d'atténuation et notée λ . La transmission du courant d'électrons chauds peut alors s'écrire :

(I.22)
$$T = \Gamma_{in} \exp\left[-\frac{d}{\lambda}\right] \Gamma_{out}$$
,

avec Γ_{in} et Γ_{out} , respectivement des coefficients de transmission à l'interface vide/métal et métal/semiconducteur, d, l'épaisseur du film mince métallique.

Dans le cas d'un métal ferromagnétique, en se basant sur le modèle de transport à deux courants proposés par Mott en 1964 [58], nous pouvons définir de façon indépendante une transmission pour chacune des directions de spin :

(I.23)
$$T_{FM}^{\uparrow} = \Gamma_{in}^{\uparrow} \exp\left[-\frac{d}{\lambda^{\uparrow}}\right] \Gamma_{out}^{\uparrow}$$
 et $T_{FM}^{\downarrow} = \Gamma_{in}^{\downarrow} \exp\left[-\frac{d}{\lambda^{\downarrow}}\right] \Gamma_{out}^{\downarrow}$.

La transmission totale du courant à travers cette hétérostructure (métal ferromagnétique/semiconducteur) s'exprime donc comme la somme de ces deux contributions $T_{FM}^{\uparrow}+T_{FM}^{\downarrow}$.

Cette expression peut se généraliser au cas de l'hétérostructure plus complexe vanne de spin/semiconducteur. Dans une configuration parallèle de la vanne de spin, les électrons de type \uparrow (\downarrow) de la première électrode ferromagnétique (FM1) resteront les électrons majoritaires (minoritaires) dans la seconde électrode ferromagnétique (FM2), le courant collecté s'écrit alors :

(I.24)
$$I_C^{P} \propto T_{FM1}^{\uparrow} T_{FM2}^{\uparrow} + T_{FM1}^{\downarrow} T_{FM2}^{\downarrow}$$
.

Dans la configuration antiparallèle de la vanne de spin, les électrons de type \uparrow (\downarrow) de la première électrode ferromagnétique (FM1) deviendront les électrons minoritaires (majoritaires) dans la seconde électrode ferromagnétique (FM2), le courant collecté s'exprime alors de la façon suivante:

(I.25)
$$I_C^{AP} \propto T_{FM1}^{\uparrow} T_{FM2}^{\downarrow} + T_{FM1}^{\downarrow} T_{FM2}^{\downarrow}$$
.

Dans la configuration parallèle de la vanne de spin, dans le cas où les deux électrodes ferromagnétiques sont constituées du même métal, l'équation (I .24) devient :

(I.26)
$$I_{C}^{P} \propto \Gamma_{in1}^{\uparrow} \Gamma_{in2}^{\uparrow} \exp\left[-\frac{d_{FM1} + d_{FM2}}{\lambda^{\uparrow}}\right] \Gamma_{out1}^{\uparrow} \Gamma_{out2}^{\uparrow} + \Gamma_{in1}^{\downarrow} \Gamma_{in2}^{\downarrow} \exp\left[-\frac{d_{FM1} + d_{FM2}}{\lambda^{\downarrow}}\right] \Gamma_{out1}^{\downarrow} \Gamma_{out2}^{\downarrow}.$$

Dans l'hypothèse où l'épaisseur des électrodes ferromagnétiques est grande devant λ^{\downarrow} , le second terme de l'équation (I .26) peut être négligé, ainsi l'expression du courant dans l'état parallèle se simplifie :

(I.27)
$$I_C^P \propto \Gamma_{in1}^{\uparrow} \Gamma_{in2}^{\uparrow} \exp\left[-\frac{d_{FM1} + d_{FM2}}{\lambda^{\uparrow}}\right] \Gamma_{out1}^{\uparrow} \Gamma_{out2}^{\uparrow}.$$

Dans la configuration antiparallèle de la vanne de spin, nous pouvons réécrire l'équation (I.25) de la façon suivante :

(I.28)
$$I_C^{AP} \propto \Gamma_{in1}^{\uparrow} \Gamma_{in2}^{\downarrow} \exp\left[-\frac{d_{FM1}}{\lambda^{\uparrow}} - \frac{d_{FM2}}{\lambda^{\downarrow}}\right] \Gamma_{out1}^{\uparrow} \Gamma_{out2}^{\downarrow} + \Gamma_{in1}^{\downarrow} \Gamma_{in2}^{\uparrow} \exp\left[-\frac{d_{FM1}}{\lambda^{\downarrow}} - \frac{d_{FM2}}{\lambda^{\uparrow}}\right] \Gamma_{out1}^{\downarrow} \Gamma_{out2}^{\uparrow}.$$

Le magnétocourant défini comme la variation relative du courant collecté entre l'état parallèle et antiparallèle se calcule à partir des équations précédentes :

(I.29)
$$MC = \frac{I_c^{P} - I_c^{AP}}{I_c^{AP}} = \frac{1 + \alpha\beta \exp\left[-\frac{d_{FM1} + d_{FM2}}{\lambda^{-}}\right]}{\alpha \exp\left[-\frac{d_{FM1}}{\lambda^{-}}\right] + \beta \exp\left[-\frac{d_{FM2}}{\lambda^{-}}\right]} - 1$$

où α et β sont des paramètres définissant la transmission dépendante du spin aux interfaces : $\alpha = \frac{\Gamma_{in1}^{}\Gamma_{out1}^{}}{\Gamma_{in1}^{}\Gamma_{out1}^{}}, \quad \beta = \frac{\Gamma_{in2}^{}\Gamma_{out2}^{}}{\Gamma_{in2}^{}\Gamma_{out2}^{}}.$ Le troisième paramètre λ^{-} définit la transmission dépendante

du spin dans le volume des électrodes ferromagnétiques et s'écrit : $\frac{1}{\lambda^-} = \frac{1}{\lambda^{\downarrow}} - \frac{1}{\lambda^{\uparrow}}$.

La Figure I.15 tirée de [9] présente une courbe du magnétocourant en fonction de l'épaisseur de métal ferromagnétique pour un MTT de type FeCo/Al₂O₃/FeCo. Cette expérience démontre l'effet de polarisation en spin d'un courant d'électrons chauds dans le volume d'un métal ferromagnétique. En effet, le magnétocourant augmente avec l'épaisseur de FeCo jusqu'à une valeur maximale d'environ MC=70 % (polarisation en spin maximale). L'ajustement de cette courbe expérimentale avec un modèle d'atténuation exponentielle du courant d'électrons chauds dans le volume de la base métallique permet d'extraire les paramètres de longueur d'atténuation et de transmission aux interfaces dépendantes du spin. La courbe apparaissant en trait plein est le résultat de l'ajustement négligeant tout effet interfacial. La seconde courbe (en pointillé) présente l'ajustement des points expérimentaux laissant tous les paramètres (transmission aux interfaces et longueur d'atténuation dépendante du spin) libres. Cet ajustement donne une forte polarisation en spin du courant d'électrons chauds à l'interface, le magnétocourant extrapolé à épaisseur nulle du ferromagnétique valant 40 %. Un problème important de méthodologie est posé par ces expériences : les deux ajustements sont de qualité comparable et ne permettent pas de quantifier le poids relatif des effets de volumes et d'interfaces.



<u>Figure I.15</u> : Courbe du magnétocourant en fonction de l'épaisseur de métal ferromagnétique réalisée sur un MTT (FeCo/Al₂O₃/FeCo/GaAs) (tirée de [9]).

I - 2.2.2 - Polarisation en spin par des effets de filtrages en spin aux interfaces

Dans quelques études expérimentales, il a été proposé une possible polarisation en spin du courant par les interfaces (Figure I.15) dans ce type d'hétérostructures mais l'origine de celle-ci n'a jamais vraiment été discutée [9]. Dans les travaux précédemment effectués dans la littérature étudiant le magnétotransport des électrons chauds, la gamme d'épaisseur (plusieurs nanomètres pour le polariseur ferromagnétique) sondée ne permet pas de mettre clairement en évidence et a fortiori d'étudier spécifiquement de tels effets aux interfaces. Un des objectifs de ces travaux de thèse est donc d'étudier le début de la courbe du magnétocourant en fonction de l'épaisseur dans la limite ultra-mince afin de s'affranchir des effets de polarisation en spin dans le volume du métal ferromagnétique. Dans le cas de nos systèmes épitaxiés, le raccord des structures de bandes aux différentes interfaces de l'hétérostructure peut induire un effet de filtrage en spin aux interfaces [16]. De tels effets ont déjà été démontrés à la fois théoriquement et expérimentalement dans des jonctions tunnel magnétiques telles que Fe/MgO/Fe.

Filtrage en spin aux interfaces dans des jonctions tunnel magnétiques : Fe/MgO/Fe

Ces dix dernières années beaucoup de travaux expérimentaux ont permis de démontrer de très fortes magnétorésistances tunnel (TMR : Tunnel Magneto Resistance) dans des hétérostructures de type Fe/MgO/Fe [59-65]. L'origine de ces effets s'explique par un filtrage en spin à l'interface Fe/MgO.

L'atténuation d'une fonction d'onde électronique à travers une barrière tunnel est caractérisée par un coefficient nommé κ . J. Mathon et A. Umerski ont calculé cette atténuation dans le MgO [66]. A gauche de la Figure I.16 est représentée une cartographie du taux d'atténuation pour un électron à l'énergie de Fermi dans la première de zone de Brillouin de MgO projetée dans la direction [001] (en clair : faible atténuation – en sombre : forte atténuation). Il apparait clairement que les fonctions d'ondes seront très faiblement atténuées en centre de zone (autour de $\overline{\Gamma}$), soit dans la direction [001] perpendiculaire à l'interface. Ainsi la barrière tunnel de MgO jouera dans un premier temps un rôle de filtrage des fonctions d'ondes dans l'espace des k et sélectionnera préférentiellement les états se propageant autour de la direction k_{||}=0.



<u>Figure I.16</u>: A gauche, cartographie du taux d'atténuation tunnel pour des électrons au niveau de Fermi dans la zone de Brillouin du MgO projetée dans la direction [001] (tirée de [66]) – A droite, structure de bandes du fer dans la direction Δ (direction [001]) pour les deux directions de spin (calcul par la méthode des liaisons fortes)

A droite de la Figure I.16, sont représentées les structures de bandes du fer pour les deux canaux de spin (\uparrow en rouge et \downarrow en noir) dans la direction [001] qui, compte-tenu de la relation d'épitaxie entre ces deux matériaux, se projettent au point $\overline{\Gamma}$ de la zone de Brillouin de MgO. Pour une structure cristalline cubique telle que le fer, cette direction [001] est également nommée la direction Δ de l'espace réciproque. A l'énergie de Fermi, dans la direction Δ du fer, différents états électroniques existent. Pour les spins majoritaires sont disponibles des états de symétries Δ_1 , Δ_2 et Δ_5 . En ce qui concerne les spins minoritaires, il existe des états de symétries Δ_2 , Δ_2 et Δ_5 . Le fer présente donc au niveau de Fermi un comportement demi-métallique au regard des états de symétries Δ_1 (spin up) et Δ_2 (spin down). Butler *et al.* [67, 68] ont démontré par une approche LKKR (Layer Korringa Kohn Rostoker) que l'atténuation des fonctions d'onde dans la barrière de MgO était beaucoup plus efficace pour les états de symétries Δ_2 , Δ_2 , et Δ_5 que pour les états Δ_1 (Figure I.17). Ainsi, la barrière tunnel de MgO filtre préférentiellement les états de symétries Δ_1 du fer. La demimétallicité du fer pour ces états électroniques permet donc d'expliquer les très fortes TMR observées dans ces jonctions.

Insérant dans ces jonctions tunnel magnétiques épitaxiées une fine couche de chrome, les expériences menées par Greullet *et al.* [69] ont permis de valider ce modèle de filtrage en spin par les interfaces. Dans la structure étudiée, Fe/Cr/Fe/MgO/Fe(001), pour des énergies proches du niveau de Fermi, le chrome est un isolant au regard des états de symétrie Δ_1 . Ces états Δ_1 restent confinés dans la couche de fer entre le chrome et le MgO, subissant des réflexions multiples aux interfaces Cr/Fe et Fe/MgO. Le film mince de fer joue donc le rôle d'un puits quantique, rôle mis en évidence expérimentalement par l'apparition de pics de conductance à des énergies dépendant de l'épaisseur du puits de fer considéré.



<u>Figure I.17</u> : Densité d'état calculée dans une jonction tunnel magnétique Fe/MgO/Fe pour les états majoritaires (à gauche) et minoritaires (à droite) (tirée de [68]).

Filtrage en spin aux interfaces dans des vannes de spin : Fe/Ag/Fe/InAs

Très récemment Autès *et al.* [16], ont prédit de très forts effets magnétoresistifs dans une hétérostructure épitaxiée du type Fe/Ag/Fe/InAs(001). En effet, comme le démontre la Figure I.18, le raccord des structures de bandes du fer, de l'argent et d'InAs permet de s'attendre à une réflexion totale des électrons de spins minoritaires aux interfaces de ces hétérostructures. A l'interface Fe/InAs, le niveau de Fermi est ancré en bas de bande de conduction du semiconducteur, définissant un contact ohmique. Dans le semiconducteur (InAs), les états électroniques disponibles se situent dans la direction Δ (soit k \parallel =0). Dans cette même direction, à l'énergie de Fermi, la structure de bandes de l'argent ne présente que des états de type Δ_1 . Comme cela a été expliqué dans le paragraphe précédent, ces états de symétrie Δ_1 sont totalement polarisés en spin dans le fer au niveau de Fermi. Ainsi, dans l'hypothèse du transport cohérent, seuls les états Δ_1^{\uparrow} du fer pourront traverser l'interface Fe/Ag. Un important filtrage en spin dans ces hétérostructures doit donc intervenir aux interfaces.

De tels effets n'ont à notre connaissance jamais été démontrés expérimentalement. C'est donc sur ce point que ce situe la problématique de ce travail de thèse : dans des hétérostructures épitaxiées de type vanne de spin/semiconducteur peut-on observer dans la limite des faibles épaisseurs une polarisation en spin aux interfaces liée au raccordement des structures de bandes ?



Figure I.18 : Structure de bandes du fer, de l'argent et de InAs dans la direction Δ (tirée de [16]).

I-3-Mn tg ep érimenth

Toutes les hétérostructures étudiées au cours de ces travaux de thèse ont été élaborées et analysées dans une enceinte ultra-vide ($P<10^{-10}$ mbar). La Figure I.19(a) présente deux photos du dispositif expérimental.

L'enceinte se compose de quatre chambres :

- (i) La chambre d'introduction est isolée par une vanne du reste du dispositif. Un pompage primaire puis turbomoléculaire permet d'atteindre un vide secondaire (10⁻⁸ mbar) dans ce sas.
- (ii) La chambre de croissance des films métalliques est composée de deux cellules d'évaporation de Knudsen permettant de déposer sur les substrats de GaAs des films de fer et d'or. Les vitesses de dépôt de ces deux cellules sont calibrées par une microbalance à quartz. La croissance des films minces métalliques peut être réalisée sous forme de plots de 500 µm de diamètre en plaçant un masque en bronze-Béryllium développé au laboratoire devant l'échantillon. L'utilisation de ce masque est nécessaire pour effectuer les mesures BEEM. En effet, comme nous l'avons expliqué précédemment (paragraphe I - 1.1.2), plus la surface définissant le contact Schottky est faible, plus le courant de fuite intrinsèque à l'interface métal/semiconducteur sera faible. Cette chambre comporte également un four permettant de préparer des surfaces propres de GaAs(001) ou de réaliser des recuits sur des échantillons.
- (iii) Les pointes STM en tungstène sont élaborées au laboratoire par attaque électrochimique. Une fois introduites dans l'enceinte ultra-vide, celles-ci sont désoxydées dans la chambre de préparation des pointes : la mise en contact d'un filament de tantale chauffé à environ 800 °C avec les pointes STM permet de sublimer l'oxyde de tungstène (WO₃).
- (iv) La chambre de microscopie STM/BEEM est constituée d'un microscope STM OMICRON modifié pour effectuer des mesures BEEM à température ambiante. Lors du fonctionnement en mode STM classique, le porte échantillon est mis à la masse.

Pour effectuer les mesures BEEM il a été nécessaire de modifier le schéma électronique du dispositif, afin de mettre à la masse individuellement les plots métalliques flottant électriquement sur le substrat semiconducteur (Figure I.1(a)). Pour se faire, un fil d'or est amené au contact de la couche mince métallique formant la barrière Schottky avec le semiconducteur à l'aide d'un translateur et d'un tilteur. Le substrat est fixé sur son porte échantillon par un collage à l'indium permettant un bon contact ohmique. Le courant BEEM est alors collecté sur le côté du porte échantillon par une ailette (Figure I.19(b)). Ce STM a également été modifié pour réaliser des mesures sous champ magnétique. Un électroaimant développé au laboratoire a été placé au-dessus de la tête du STM (Figure I.19(c)). Celui-ci permet l'application d'un champ magnétique unidirectionnel dans le plan de l'échantillon allant jusqu'à 70 mT.

Pour une description plus détaillée de ce dispositif expérimental, le lecteur pourra se référer au manuscrit de thèse de Sophie Guézo [17].



<u>Figure I.19</u>: (a) Photos de l'enceinte ultra-vide utilisée pour l'élaboration et la caractérisation des hététérostructures étudiées au cours de ces travaux de thèse – (b) Schéma présentant la prise de contact en BEEM sur un échantillon inséré dans la tête STM – (c) Schéma de la tête STM modifiée par la mise en place d'un électro-aimant

Chapitre II : Croissance et propriétés magnétiques de vannes de spin Fe/Au/Fe sur GaAs(001)

Dans ce chapitre, nous présentons des études réalisées en amont des mesures BEEM sur la vanne de spin Fe/Au/Fe/GaAs(001). Sa croissance épitaxiale sera d'abord étudiée. Puis, une étude par effet Kerr magnéto-optique (MOKE) permettra la détermination des propriétés d'anisotropie magnétocristalline de chacune des électrodes de fer. Compte tenu de la contrainte du BEEM sur les épaisseurs des couches métalliques faibles pour un meilleur rapport signal sur bruit, la gamme d'épaisseur d'espaceur d'or avec laquelle nous avons choisi de travailler est très fine (quelques nm). De ce fait, les hétérostructures sur lesquelles nous travaillons sont couplées magnétiquement. Nous avons au préalable de l'étude BEEM réalisé des mesures de magnétotransport diffusif sur cette hétérostructure afin, d'une part, de déterminer l'épaisseur de l'espaceur d'or permettant un couplage antiferromagnétique entre les deux électrodes de fer, et d'autre part, de déterminer l'angle entre les aimantations des deux électrodes ferromagnétiques dans la gamme de champ magnétique de l'étude BEEM.

II - 1 – Croissance

II - 1.1 – Préparation du GaAs

Deux types de substrats ont été préparés dans le bâti d'épitaxie par jets moléculaires du laboratoire [70].

Pour les mesures de magnétotransport diffusif (mesures GMR 4 pointes), des substrats commerciaux de GaAs(001) semi-isolants ont été utilisés afin d'empêcher d'éventuels canaux de conduction via le semiconducteur. L'oxyde natif protecteur est d'abord désorbé à 620 °C sous flux d'arsenic (10^{-7} mbar). Afin de lisser la surface, la désoxydation est suivie par l'homoépitaxie de 200 nm de GaAs non dopé à 570 °C. Enfin, la descente en température réalisée de façon contrôlée sous flux d'arsenic permet la stabilisation de la surface riche en arsenic et reconstruite As_(2×4).

Pour les mesures BEEM, nous utilisons au contraire des substrats de GaAs(001) fortement dopés n (10^{18} cm⁻³). Ceci permet d'obtenir un contact ohmique de bonne qualité en face arrière de l'échantillon par collage du substrat à l'indium afin de collecter le courant BEEM. Après désoxydation sous flux d'arsenic, une couche tampon d'épaisseur 1,5µm modérément dopée n-Si (4×10^{16} cm⁻³) est homoépitaxiée à 570 °C afin de définir une zone de charge d'espace étendue et une courbure de bandes favorable à la collection du courant d'électrons chauds. L'échantillon est finalement recouvert à basse température d'un épais cap d'arsenic amorphe permettant de le protéger lors du transfert à l'air vers l'enceinte STM/BEEM. Une fois introduit dans la chambre STM/BEEM, le substrat de GaAs est placé dans le four. Afin d'éliminer la couche d'arsenic amorphe, celui-ci est chauffé jusqu'à 470 °C avec une rampe de température d'environ 2 °C/min. Le contrôle de la température est réalisé par des mesures au pyromètre optique. La désorption du cap d'arsenic amorphe à 470 °C permet de stabiliser une surface riche en arsenic et reconstruite As_(2×4).

La Figure II.1(a) présente à gauche une image STM d'une surface de GaAs reconstruite As_ (2×4) [71-74]. Une demi-monocouche d'arsenic est présente en surface et afin de minimiser l'énergie de cette surface, les atomes d'arsenic se sont réorganisés en se liant deux à deux formant ainsi des dimères alignés dans la direction [1-10]_{GaAs}. Il apparait

donc en surface des lignes de dimères orientées parallèlement à la direction [1-10]GaAs, séparées par des lignes de dimères manquant. La maille élémentaire de surface repérée par un rectangle blanc sur l'image STM est donc 2 fois plus grande que la maille de volume dans la direction [1-10]_{GaAs} et 4 fois plus grande dans la direction [110]_{GaAs}. Les clichés RHEED réalisés après croissance de la couche tampon de GaAs (Figure II.1(b)) permettent d'attester de cette reconstruction. Le cliché présenté en haut de cette figure a été réalisé avec un faisceau d'électrons parallèle à la direction [1-10]_{GaAs}. La périodicité sondée ici est donc la périodicité entre les rangées atomiques alignées parallèlement à cette direction [1-10]GaAs. Le cliché présenté en bas a été réalisé avec le faisceau d'électrons dirigé parallèlement à la direction [110]_{GaAs}. Les traits jaunes pleins repèrent les raies principales de diffraction. Celles-ci présentent la même périodicité dans les deux directions azimutales, signe de la structure cubique du GaAs(001). Les raies de surstructures repérées par des traits pointillés présentent une périodicité différente dans chacune de ces deux directions. Dans le réseau réciproque, Le paramètre a* définissant la distance entre les raies principales est divisé respectivement par 4 et 2 lorsque le faisceau d'électrons est aligné parallèlement aux directions [1-10]GaAs et [110]_{GaAs}. Dans le réseau réel, le paramètre de maille de surface est donc bien multiplié respectivement par 4 et 2 dans les directions [110]_{GaAs} et [1-10]_{GaAs} par rapport à celui de volume.



<u>Figure II.1</u>: (a) Topographie STM d'une surface de GaAs(001) reconstruite As_(2×4) et schéma de la structure cubique faces centrées du GaAs – (b) Cliché RHEED d'une surface de GaAs(001) pour le faisceau d'électrons parallèle à [1-10]_{GaAs} (en haut) et [110]_{GaAs} (en bas) (tiré de [17]).

II - 1.2 – Croissance des films minces métalliques

Les films minces d'or et de fer sont alors évaporés à température ambiante à partir de charges de haute pureté placées dans des cellules de Knudsen. Ces dépôts ont été réalisés dans le bâti MBE, directement après la préparation du GaAs, pour les échantillons dédiés à l'étude de GMR quatre pointes, ou dans le bâti STM/BEEM après désencapsulation de la couche d'arsenic amorphe, pour les échantillons BEEM. Dans ce dernier cas, le dépôt se fait sous masque afin de définir des plots métalliques de 450 μ m de diamètre. Les vitesses de dépôts sont calibrées par une microbalance à quartz et sont respectivement de 4.3 Å.min⁻¹ et

1.83 Å.min⁻¹ pour l'or et le fer [17]. La croissance des hétérostructures étudiées se fera en quatre étapes : tout d'abord la première électrode ferromagnétique sera évaporée sur le substrat de GaAs, puis l'espaceur d'or, la seconde électrode de fer, et finalement la croissance se terminera par le dépôt d'une couche protectrice d'or prévenant toute oxydation de surface lors de son étude à l'air.

II - 1.2.1 – Croissance d'un film mince de fer sur GaAs(001)

Le fer est un matériau cubique centré de paramètre de maille $a_{Fe}=0.287$ nm. Le GaAs présente une phase de type cubique faces centrées avec un paramètre de maille presque deux fois plus grand que celui du fer. Il y a donc deux mailles de fer pour une maille de GaAs. Le désaccord de maille entre ces deux matériaux est faible : -1.4 %.

La Figure II.2(a) présente des clichés RHEED réalisés après dépôt d'un film mince de fer sur GaAs(001) de 1.2 nm, soit environ 8 monocouches. La monocouche notée ML est définie comme un plan atomique de fer avec la densité surfacique du Fe(001). A gauche apparaissent les clichés obtenus dans le cas où le faisceau d'électrons est parallèle aux directions $[1-10]_{GaAs}$ et $[110]_{GaAs}$. Ces deux clichés sont identiques, ce qui permet de mettre en évidence la symétrie 4 de la maille de fer en surface. Le fer s'oriente donc (001) sur le GaAs(001). Les diagrammes RHEED de la Figure II.2(a) montrent que l'on a bien une croissance épitaxiale du fer du type cube sur cube. La relation d'épitaxie est la suivante: Fe(001)[100]//GaAs(001)[001].

Notons que la largeur et le caractère pointé des raies de diffraction obtenues sur ces clichés RHEED met en avant une certaine rugosité de la couche de fer à l'échelle de la longueur de cohérence du faisceau d'électrons (quelques nanomètres). En effet, comme le montre l'image STM (Figure II.2(b)) réalisée après le dépôt de 1nm de fer sur un substrat de GaAs(001), le métal présente un mode de croissance 3D. La surface est donc constituée d'ilôts de fer dont les dimensions latérales vont de 2 à 10 nm. La rugosité pic à pic est faible, de l'ordre de 0.5 nm pour une surface de $1 \times 1 \mu m^2$ [75, 76]. Pour une étude plus approfondie de la morphologie de ces films minces, le lecteur pourra se référer au manuscrit de thèse de Sophie Guézo [17].



<u>Figure II.2</u>: (a) Clichés RHEED obtenus après dépôt de 1.2 nm (8 ML) de Fe sur un substrat de GaAs(001) pour un faisceau d'électrons parallèle aux directions $[1-10]_{Fe}$, $[110]_{Fe}$ et $[100]_{Fe} - (b)$ A gauche, topographie STM réalisée sur l'hétérostructure Fe(1 nm – 7 ML)/GaAs(001) (100×75 nm² – $I_t=1.93$ nA – $U_{gap}=0.286$ V) (tirée de [17]) et à droite, représentation de la maille cubique centrée du fer.

Des études de spectroscopie de photoémission X (XPS) et de diffraction de photoélectrons (XPD) précédemment menées au laboratoire ont permis de déterminer les caractéristiques chimiques et structurales de l'interface Fe/GaAs(001) [19, 75]. Lors des premiers stades de croissance, le fer, le gallium et l'arsenic interdiffusent légèrement formant ainsi sur les trois premières monocouches un alliage substitutionnel cubique centré de composition moyenne Fe_{0.77}Ga_{0.15}As_{0.08}. Au-delà de cette couche d'interface le gallium et l'arsenic n'interdiffusent plus dans le film mince métallique et l'interface Fe/GaAs est formée dès le quatrième plan atomique déposé. Cette interface est donc relativement abrupte. Des analyses par microscopie électronique en transmission (TEM) [75, 77] permettent de confirmer ce dernier point.

II - 1.2.2 – Croissance d'un film mince d'or sur Fe(001)/GaAs(001)

L'or présente dans les conditions normales une phase cubique faces centrées avec un paramètre de maille a_{Au} =0.408 nm, soit, environ $\sqrt{2}$ fois plus grand que celui du fer. Nous pouvons donc nous attendre à ce que l'or s'oriente (001) sur le fer (001) avec une maille tournée de 45 ° par rapport à celle du fer [17, 78], c'est bien ce que nous observons expérimentalement. Les diagrammes RHEED, ainsi qu'une image STM d'un dépôt de Au(3 nm)/Fe(1 nm)/GaAs(001) sont présentés sur la Figure II.3. La relation d'épitaxie est la suivante : Au(001)[100]//GaAs(001)[110].



<u>Figure II.3</u>: Clichés RHEED obtenus après dépôt de 1.2 nm (soit 8 ML) de fer sur GaAs (a) – puis après dépôt de 2.6 nm (13 ML) d'or (b) pour un faisceau d'électrons parallèle à [1-10]_{GaAs} (haut) et [100]_{GaAs} (bas) – (c) En haut, cartographie de l'erreur en courant tunnel réalisée à la surface de l'hétérostructure Au(3 nm)/Fe(1 nm)/GaAs(001) (tirée [17]) et en bas, schéma représentant la maille cubique faces centrées de l'or.

On note sur les clichés RHEED enregistrés sur la surface de l'or la présence de raies de surstructures en $\frac{1}{2}$ dans les deux azimuths d'observation : la maille de surface de l'or présente une reconstruction (2×2). Des mesures XPD précédemment réalisées au laboratoire ont permis de mettre en évidence la ségrégation d'atomes d'arsenic en surface formant un alliage de surface et expliquant cette reconstruction.

Notons qu'après le dépôt d'or, les taches de diffraction observées en RHEED se retrouvent affinées et allongées attestant d'une croissance 2D du film mince métallique. Ceci est confirmé sur l'image STM en courant tunnel présentée sur la Figure II.3(c). Après le dépôt de 3 nm d'or sur la structure Fe(1 nm)/GaAs(001) la surface est plane atomiquement avec des bords de terrasses orientés le long des directions $[110]_{Au}$ et $[1-10]_{Au}$. L'arrangement atomique observé permet d'attester de la relation d'épitaxie Au(001)/Fe(001) de type cube sur cube avec une maille d'or tournée de 45 ° par rapport à celle de fer et de la reconstruction de surface (2×2) .

II - 1.2.3 – Croissance d'un film mince de fer sur Au(001)/Fe(001)/GaAs(001)

L'analyse des clichés RHEED présentés sur la Figure II.4(a) démontre que la seconde électrode de fer s'oriente (001) avec une maille tournée de 45 ° par rapport à celle de l'espaceur d'or : Fe(001)[110]//Au(001)[100] [79, 80]. Les raies de diffraction sont affinées par rapport aux clichés obtenus sur la première électrode de fer. La surface de la seconde électrode de fer est donc moins rugueuse que celle de la première.



<u>Figure II.4</u>: (a) Clichés RHEED réalisés après dépôt de la seconde électrode de 1.7nm (12ML) fer – (b) Topographie STM réalisée sur l'hétérostructure Fe(1 nm)/Au(3 nm)Fe(1 nm)/GaAs(001) (100×100 nm² - I_t=3.78 nA – U_{gap}=0.058 V) (tirée de [17]).

II - 1.2.4 – Croissance d'une couche protectrice d'or

Afin de prévenir l'oxydation du fer lors des mesures magnétiques et de transport à l'air, une couche protectrice d'or de 2.2 nm est déposée sur l'hétérostructure précédente. Les clichés RHEED non présentés ici s'avérèrent être strictement identiques à ceux obtenus après le dépôt de l'espaceur d'or (Figure II.3(a)), attestant de la même relation d'épitaxie.

II - 1.2.5 – Bilan sur la croissance de vanne de spin

Pour résumer toutes les étapes de croissance de l'hétérostructure Fe/Au/Fe/GaAs(001) un schéma bilan est présenté sur la Figure II.5.



<u>Figure II.5</u> : Schéma représentant les relations d'épitaxies entre les différents éléments de la vanne de spin.

II - 2 – Propriétés magnétiques individuelles des électrodes de fer

Afin de déterminer les propriétés d'anisotropies magnétocristallines de chacune des électrodes ferromagnétiques, des mesures par effet Kerr magnéto-optiques (MOKE : Magneto-Optical Kerr Effect) ont été réalisées en géométrie longitudinale. Cette technique est basée sur la modification de l'état de polarisation d'une onde lumineuse après réflexion sur un échantillon magnétique. Le signal mesuré est proportionnel à l'aimantation longitudinale (projection de l'aimantation sur l'axe du champ magnétique) du matériau ferromagnétique. Ainsi, au cours d'une acquisition, en faisant varier le champ magnétique, il est possible d'obtenir le cycle d'aimantation du système considéré.

Le montage expérimental utilisé pour réaliser cette étude a été développé au laboratoire. Un laser hélium-néon (λ =633 nm) permet d'émettre une onde lumineuse vers l'échantillon. Son état de polarisation est défini à la traversée d'un polariseur placé entre le laser et l'échantillon. L'onde est ensuite réfléchie à la surface de l'échantillon sur lequel est appliqué le champ magnétique et est envoyée vers un modulateur photoélastique puis vers un analyseur. Le signal est finalement détecté par une photodiode (Figure II.6).



Figure II.6 : Schéma du dispositif expérimental MOKE [81].

Pour plus de détail sur le dispositif expérimental et sur le principe de fonctionnement de la technique, le lecteur pourra se référer aux deux documents suivants [75, 81].

II - 2.1 – Propriétés magnétiques de l'électrode de fer en contact avec le GaAs

Dans un matériau ferromagnétique présentant une structure parfaitement cristallisée, la symétrie de l'environnement local des atomes induit une anisotropie magnétique : l'anisotropie magnétocristalline. Ainsi dans ces structures il existera des axes dits de facile aimantation, il sera alors favorable énergétiquement pour l'aimantation de s'orienter dans ces directions. Inversement, il existera des directions dites de difficile aimantation dans lesquelles il sera énergétiquement défavorable pour l'aimantation de s'orienter. La contribution à l'énergie magnétique dépendante des axes cristallins est appelée énergie d'anisotropie magnétocristalline. Considérant les symétries du système et que l'aimantation est dans le plan des films, la densité d'énergie magnétique sans champ appliqué pourra s'exprimer comme la somme d'une composante uniaxiale, W_{mu} (symétrie d'ordre 2) et biaxiale, W_{mb} (symétrie d'ordre 4) :

(II.1)
$$W_m = W_{mu} + W_{mb} = -K_u \cos^2(\varphi) - \frac{1}{4} K_1^{eff} \sin^2(2\varphi)$$
,

où φ est l'angle défini entre la direction [110]_{GaAs} et l'axe dans lequel est orientée l'aimantation du matériau ferromagnétique (Figure II.7). K_u et K_1^{eff} sont respectivement les constantes d'anisotropies effectives uniaxiale et biaxiale. Ces deux termes englobent une contribution de volume mais également de surface et d'interface. En effet, la brisure de symétrie liée à la création d'une surface peut induire un changement des propriétés d'anisotropies magnétocristallines par rapport au volume. Ces effets doivent être pris en compte dans la limite des films ultraminces. La constante d'anisotropie effective s'exprime de la façon suivante :

(II.2)
$$K_{u(1)}^{eff} = K_{u(1)}^{V} + \frac{K_{u(1)}^{i}}{d_{FM}},$$

où $K_{u(1)}^{V}$ et $K_{u(1)}^{i}$ sont les constantes d'anisotropies uniaxiales (biaxiales) respectivement associées au volume et aux surfaces (ou interfaces) et d_{FM} est l'épaisseur du film mince ferromagnétique.



<u>Figure II.7</u> : Définition des angles θ et φ

Caractérisation des directions de facile et difficile aimantation de Fe₁

Les propriétés magnétiques de l'hétérostructure Fe/GaAs(001) ont beaucoup été étudiées ces vingt dernières années [20, 82-87]. Il apparaît que l'anisotropie des liaisons pendantes à la surface du semiconducteur induit à l'interface Fe/GaAs(001) une très forte anisotropie magnétocristalline uniaxiale $K_u^{Fe/GaAs}=0.12 \text{ mJ.m}^{-2}$ [84]. Ainsi, pour des films minces de fer dont l'épaisseur est inférieure à 1.5nm la composante uniaxiale à l'interface de l'anisotropie magnétocristalline sera dominante, et la direction [110]_{GaAs} sera un axe de facile aimantation. Pour des épaisseurs plus importantes l'anisotropie magnétocristalline biaxiale du fer volumique deviendra prépondérante et les directions de type <001>_{GaAs} deviendront des axes de facile aimantation.

Dans le but de favoriser une anisotropie uniaxiale pour la première électrode de fer, l'épaisseur choisie pour notre étude est 1.2 nm. La Figure II.8 présente des cycles MOKE réalisés sur l'hétérostructure Au(2 nm)/Fe(1.2 nm – 8 ML)/GaAs(001) permettant d'étudier les propriétés d'anisotropie magnétocristalline de la couche de fer en contact avec le GaAs. Sont représentés sur cette figure, deux cycles d'aimantation enregistrés lorsque le champ magnétique est appliqué le long de la direction $[110]_{GaAs}$ (à gauche) et le long de la direction $[1-10]_{GaAs}$ (à droite). Il apparaît clairement que la direction $[110]_{GaAs}$ est l'axe de facile aimantation du film mince de fer. Son champ coercitif est très faible (quelques dixièmes de mT). Notons que le retournement d'aimantation se produit sur une gamme de champ magnétique très étroite témoignant de la très bonne qualité structurale du film mince. La direction $[1-10]_{GaAs}$ est un axe de difficile aimantation pour le film. Le champ d'anisotropie (champ magnétique nécessaire pour saturer l'aimantation dans la direction difficile) mesuré sur ce cycle est très important : 150 mT.



<u>Figure II.8</u> : Cycles d'aimantation Kerr réalisés sur l'hétérostructure Au(2 nm)/Fe(1.2 nm – 8 ML)/GaAs(001) dans les directions facile [110]_{GaAs} (gauche) et difficile [1-10]_{GaAs} (droite).

Détermination de la constante d'anisotropie effective de Fe₁

Dans l'hypothèse de rotation cohérente de l'aimantation de Stoner et Wolfarth il est possible par un ajustement numérique des cycles d'aimantation, de déterminer les valeurs des constantes d'anisotropie effectives K_u et K_1^{eff} de la première électrode de fer. La densité d'énergie magnétique totale d'un film mince à aimantation dans le plan s'écrit comme la somme des énergies associées à l'anisotropie magnétocristalline (équation (II .1)) et à l'énergie Zeemann :

(II.3)
$$W = -K_u \cos^2(\varphi) - \frac{1}{4} K_u^{eff} \sin^2(2\varphi) - \mu_0 H M_s \cos(\theta - \varphi)$$
,

où θ est l'angle défini entre la direction d'application du champ magnétique et la direction de facile aimantation du film mince soit [110]_{GaAs} (Figure II.7), $\mu_0 H$, la valeur du champ magnétique appliqué et M_s , l'aimantation à saturation. La minimisation de cette équation permet d'obtenir dans les directions de haute symétrie une expression simple du champ magnétique appliqué en fonction de l'aimantation réduite. En particulier, dans la direction de difficile aimantation [1-10]_{GaAs}, nous pouvons écrire :

(II.4)
$$\mu_0 H = 2 \frac{K_1^{eff}}{M_s} (\alpha + 2m^2 - 1)m \text{ avec } \alpha = \frac{K_u}{K_1^{eff}},$$

où *m* est l'aimantation réduite du film de fer. Un ajustement par l'équation (II .4) du cycle d'aimantation obtenu dans la direction [1-10]_{GaAs} permet de déterminer les deux paramètres K_1 et α . La Figure II.9 à gauche représente le graphique du champ magnétique appliqué dans la direction [1-10]_{GaAs} en fonction de l'aimantation réduite du fer (courbe noire). L'ajustement numérique de cette courbe par l'équation précédente (courbe rouge) donne : $K_1^{eff}=19.03 \text{ kJ.m}^{-3}$, $\alpha=5.63$ donc, $K_u=107.1 \text{ kJ.m}^{-3}$. Ces résultats sont en très bon accord avec les valeurs de la littérature [84].



<u>Figure II.9</u> : A gauche, ajustement numérique par le modèle de Stoner et Wolfarth du cycle d'aimantation obtenu dans la direction de difficile aimantation du film de fer – Diagramme polaire calculé de la densité d'énergie magnétique d'anisotropie de la première électrode de fer.

Les valeurs de K_u et K_1^{eff} obtenues par cet ajustement numérique sont ensuite réinjectées dans l'expression de la densité d'énergie magnétique d'anisotropie (équation (II .1)). Ceci permet de calculer W_m en fonction de φ , l'angle entre direction de facile aimantation du cristal et l'axe dans lequel est orientée l'aimantation du fer. Un diagramme polaire de $W_m(\varphi)$ est ainsi représenté à droite de la Figure II.9. Dans cette hétérostructure Fe(1.2 nm – 8 ML)/GaAs(001), la composante uniaxiale de l'anisotropie magnétocristalline essentiellement liée à l'interface est donc dominante.

II - 2.2 – Propriétés magnétiques de l'électrode supérieure de fer

Une étude très complète des propriétés magnétiques d'un film mince de fer entre deux couches d'or a été réalisée il y a une quinzaine d'année par Brockmann *et al.* [88]. La couche de fer sondée présente une anisotropie magnétocristalline biaxiale dominante dans le volume et aux interfaces. Les constantes d'anisotropie magnétocristalline associées ont été mesurées et valent respectivement : $K_1^{V}=37 kJ.m^{-3}$ et $K_1^{i}=-1.95 \times 10^{-2} mJ.m^{-2}$. La Figure II.10 présente l'évolution de la constante d'anisotropie magnétocristalline effective biaxiale (K_1^{eff}) pour différentes épaisseurs de fer (tirée de [88]).

Cette figure met en évidence la compétition des deux termes (volume et interface) sur K^{eff}_{l} en fonction de l'épaisseur. Deux cas se distinguent suivant le signe de K_{l}^{eff} :

- 1) Pour des épaisseurs plus importantes que 1 nm (7 ML), $K_I^{eff} > 0$ et les axes de facile aimantation s'orientent suivant des directions de type $<001>_{Fe}$.
- 2) Pour des couches plus fines que 1 nm (7 ML), $K_I^{eff} < 0$ et les axes de facile aimantation tournent de 45 ° par rapport au cas précédent, ils s'orientent selon des directions de type $<110>_{\text{Fe}}$.



<u>Figure II.10</u>: Evolution de la constante d'anisotropie magnétocristalline effective biaxiale du fer avec l'épaisseur de fer – Pour des épaisseurs supérieures à 7 ML, K_1^{eff} est positif, les axes de facile aimantation du fer sont parallèles aux directions de type $<100>_{Fe}$ – Pour des épaisseurs inférieures à 7 ML, K_1^{eff} est négatif, les axes de facile aimantation du fer sont parallèles aux directions de type $<110>_{Fe}$ (tiré de [88])(Les données apparaissant sur ce graphique sont données dans l'unité de 10^5 erg.cm⁻³ – Notons que 10^5 erg.cm⁻³=10 kJ.m⁻³)

Echantillon étudié

Dans cette partie on considère l'hétérostructure suivante :

Au(2.2 nm)/Fe(1.7 nm - 12 ML)/Au(30 nm)/Fe(0.6 nm - 4 ML)/GaAs(001)

Une couche ultramince de fer préalablement déposée sur le substrat de GaAs permet d'assurer la relation d'épitaxie Au(001)[100]//GaAs(001)[110]. Le dépôt d'une couche épaisse d'or (30 nm) permet de s'affranchir d'une éventuelle perturbation des mesures MOKE par ce premier film de fer. Finalement la couche mince de fer (1.7 nm – 12 ML) dont les propriétés magnétiques seront sondées et une couche protectrice d'or ont été déposées.

Caractérisation par effet Kerr Magnéto-Optique

L'analyse MOKE réalisée sur cette hétérostructure met en évidence, une caractéristique de type couche épaisse de fer. En effet, elle présente des propriétés d'anisotropie magnétocristalline biaxiale, les axes de difficile aimantation sont orientés le long des directions de type $<110>_{GaAs}$ et $<1-10>_{GaAs}$. La Figure II.11 présente en haut deux cycles d'aimantation obtenus lorsque le champ magnétique est appliqué dans les directions $[100]_{GaAs}$ (à gauche) et $[110]_{GaAs}$ (à droite). Le premier cycle est caractérisé par un saut d'aimantation amenant l'aimantation de la couche de $-M_s$ à $+M_s$. La direction $[100]_{GaAs}$ est donc un axe de facile aimantation pour l'électrode supérieure de fer, son champ coercitif est de l'ordre du mT. Les axes de type $<110>_{GaAs}$ et $<1-10>_{GaAs}$ sont des axes de difficile aimantation. Les cycles d'aimantation permettant d'atteindre 75 % de l'aimantation à saturation et d'autre part, par une rotation uniforme de l'aimantation. Les cycles obtenus dans ces directions

présentent respectivement des champs d'anisotropie de 20 mT et 25 mT dans les axes $[110]_{GaAs}$ et $[1-10]_{GaAs}$ (par commodité, le cycle obtenu dans cette direction $[1-10]_{GaAs}$ n'est pas représenté ici). Nous pouvons d'ores et déjà noter que les champs d'anisotropie mesurés sur Fe₂ sont presque d'un ordre de grandeur inférieurs à celui mesuré sur Fe₁. La densité d'énergie magnétocristalline de l'électrode supérieure de fer est donc beaucoup plus faible que celle de l'électrode en contact avec le GaAs.



<u>Figure II.11</u>: En haut, cycles Kerr obtenus sur l'électrode supérieure Fe₂ (épaisseur 1.7nm) lorsque le champ magnétique est appliqué dans les directions [100]_{GaAs} (à gauche) et [110]_{GaAs} (à droite) – En bas, diagramme polaire calculé de la densité d'énergie magnétique d'anisotropie de la seconde électrode de fer

Afin de déterminer les constantes d'anisotropie magnétocristalline de cette seconde électrode de fer, les cycles d'aimantation obtenus dans les directions de difficile aimantation ont été ajustés numériquement par la méthode décrite dans le paragraphe précédent (seules les parties des cycles caractérisées par une rotation uniforme de l'aimantation ont été ajustées). Les valeurs des constantes d'anisotropie magnétocristalline effective résultant de cet ajustement numérique sont les suivantes : $K_u=2.73 \ kJ.m^{-3}$ et $K_1^{eff}=21.01 \ kJ.m^{-3}$. La constante d'anisotropie magnétocritalline effective biaxiale est ainsi en très bon accord avec les données de la littérature [88] (ce point expérimental a été rajouté en rouge sur la courbe tirée de la

littérature présentée Figure II.10). Les valeurs de ces deux paramètres ont ensuite été réinjectés dans l'expression de la densité d'énergie magnétique (équation (II .1)). Le diagramme polaire calculé de $W_m(\varphi)$ est représenté en bas de la Figure II.11. Celui-ci montre quatre lobes pointant dans les directions de type $<110>_{GaAs}$, démontrant ainsi la prédominance du caractère biaxial du film de fer.

II - 2.3 – Bilan : propriétés magnétiques des électrodes de fer

Dans cette seconde partie de ce chapitre II, les propriétés magnétiques individuelles de chacune des électrodes ferromagnétiques de la vanne de spin Au/Fe(1.7 nm – 12 ML)/Au/Fe(1.2 nm – 8 ML)/GaAs(001) ont été déterminées par des mesures MOKE. Le tableau II.1 dresse un bilan de leurs propriétés magnétiques.



<u>Tableau II.1</u> : Bilan des propriétés d'anisotropie magnétocristaline de Fe_1 et Fe_2 .

Notons que pour l'électrode de fer supérieure, la constante d'anisotropie magnétocristalline biaxiale se décompose en deux termes de signe opposé associés au volume et aux interfaces Fe/Au. Ainsi, comme le montre Brockmann *et al.* [88] (Figure II.10), la constante K_I^{eff} doit s'annuler, voire prendre un signe négatif lorsque l'épaisseur de fer est inférieure ou égale à 7 ML. La direction [110]_{GaAs} sera un axe de facile aimantation.

II - 3 – Propriétés magnétiques de la vanne de spin Fe/Au/Fe/GaAs(001)

II - 3.1 – Origine du couplage dans des vannes de spin

Dans des hétérostructures telles que des vannes de spin, lorsque l'épaisseur de l'espaceur non magnétique est faible (1 à 3 nm), les deux films minces ferromagnétiques peuvent interagir entre eux. Différents mécanismes peuvent être à l'origine de ce phénomène de couplage :

Couplage par trou d'épingle

Certains défauts structuraux dans l'empilement de ces multicouches peuvent par endroits induire un contact direct en les deux couches minces ferromagnétiques engendrant ainsi un couplage ferromagnétique de la structure. A champ magnétique nul les deux électrodes ferromagnétiques seront aimantées parallèlement.

Couplage de Néel ou couplage peau d'orange

La rugosité des couches minces magnétiques fait apparaitre des charges magnétostatiques aux interfaces. L'interaction d'une interface à l'autre de ces charges magnétostatiques a tendance à favoriser un couplage ferromagnétique (Figure II.12) (ou éventuellement antiferromagnétique selon la corrélation de la rugosité entre les couches magnétiques). L'énergie surfacique qui y est associée s'exprime de la façon suivante dans le cas d'une rugosité de forme sinusoïdale d'amplitude *h* et de période λ [89]:

(II.5)
$$J_{N} = \frac{\pi}{\sqrt{2}} \frac{h^{2}}{\lambda} \mu_{0} M_{s}^{2} \exp\left[-2\pi\sqrt{2} \frac{t_{NM}}{\lambda}\right] \left[1 - \exp\left[-2\pi\sqrt{2} \frac{t_{M1}}{\lambda}\right]\right] \left[1 - \exp\left[-2\pi\sqrt{2} \frac{t_{M2}}{\lambda}\right]\right],$$

où T_{NM} , T_{M1} et T_{M2} sont respectivement les épaisseurs de l'espaceur et des deux films minces magnétiques.

Les paramètres de la rugosité des films de fer étudiés au cours de cette thèse, λ et *h* déterminés par l'analyse des images STM sont les suivants : h=0.5 nm et $\lambda=3 nm$. Ainsi dans le cas de la vanne de spin Fe(1 nm – 7 ML)/Au(2.6 nm – 13 ML)/Fe(1.2 nm – 8 ML), la constante de couplage associée à cette interaction magnétostatique vaut $J_N=1\times10^{-6} J.m^{-2}$ (avec $Ms=1720 \ kA.m^{-1}$).



<u>Figure II.12</u> : Schéma décrivant l'effet de couplage par peau d'orange dans une vanne de spin (tiré de [89]).

Couplage RKKY (Ruderman Kittel Kasuya Yosida) [90, 91]

Ce troisième type d'interaction peut, pour de faibles épaisseurs d'espaceur, favoriser tantôt l'apparition d'un couplage antiferromagnétique (alignement relatif antiparallèle de l'aimantation des couches minces ferromagnétiques à champ nul), tantôt d'un couplage ferromagnétique (alignement relatif parallèle de l'aimantation des couches minces ferromagnétiques à champ nul).

Ce type d'interaction est lié à un échange indirect entre les moments magnétiques des atomes situés aux deux interfaces de la vanne de spin. Pour comprendre cette interaction, considérons tout d'abord le cas d'une impureté métallique non magnétique placée dans une matrice métallique. A l'équilibre thermodynamique, l'interférence d'une onde électronique incidente et réfléchie sur cette impureté (e^{ikr} et Re^{-ikr}) va donner naissance localement à une oscillation de la densité de charge. Cette oscillation est appelée oscillation de Friedel et le potentiel qui y est associé peut s'exprimer sous la forme suivante [92]:

(II.6)
$$\Phi(r) \propto \frac{1}{r^3} \cos(2k_f r)$$
,

où k_f est le vecteur d'onde de Fermi et r est la distance à l'impureté. L'amplitude de ce potentiel décroît rapidement avec la distance à l'impureté en $1/r^3$.

Si maintenant cette impureté porte un moment magnétique (m_1) , l'amplitude de l'onde réfléchie sera dépendante du spin de l'électron. Il en résultera donc l'apparition de deux ondes de densité de charge associée au spin \uparrow et \downarrow . La différence des deux donnera une onde de densité de spin. Et si une seconde impureté magnétique m_2 est présente dans cette matrice métallique, l'onde de densité de spin générée par m_1 influencera l'orientation du moment magnétique de la seconde impureté m_2 (Figure II.13).



<u>Figure II.13</u> : Interaction d'échange indirect entre deux impuretés magnétiques placées à une distance r l'une de l'autre dans une matrice métallique. En traits continus sont représentées les ondes de densité de charge associées à chaque direction de spin générées par l'interférence d'une onde incidente et réfléchie sur l'impureté m₁. En pointillés est représentée l'onde de densité de spin $s=q_{\uparrow}-q_{\downarrow}$. (tiré de [93]).

Ainsi, dans le cas d'une vanne de spin, les atomes magnétiques formant les interfaces métal ferromagnétique/métal non magnétique peuvent être vus comme des impuretés. Les deux électrodes ferromagnétiques seront respectivement notées FM1 et FM2 et les spins associés à chaque impureté magnétique seront appelés S_i et S_j , les indices i et j référant respectivement aux interfaces 1 et 2. L'hamiltonien RKKY (dans l'approximation d'une perturbation du second ordre) associé à l'interaction entre deux spin S_i et S_j distants de r_{ij} a été formulé par Ruderman et Kittel [90] (Figure II.14 à gauche):

(II.7)
$$H_{ij} = J(r_{ij})S_iS_j$$
,

où $J(r_{ij})$ est la constante d'interaction d'échange entre ces deux spins. Elle s'exprime comme une oscillation de Friedel [90] :

(II.8)
$$J(r_{ij}) \propto \frac{\cos(2k_f r_{ij})}{(2k_f r_{ij})^3}$$

Cette constante d'interaction oscille donc autour de 0 avec une période $\Lambda = \lambda_f/2$, λ_f étant la longueur d'onde de Fermi.

Du point de vue macroscopique, l'énergie surfacique associée au couplage RKKY entre les deux électrodes FM1 et FM2 s'écrit :

(II.9)
$$E_{1,2} = -I_{1,2} \frac{M_1 \bullet M_2}{M_1 M_2} = -I_{1,2} \cos(\Phi_{1,2}),$$

où M_1 et M_2 sont respectivement les aimantations des couches FM1 et FM2, $\Phi_{1,2}$ est l'angle entre les aimantations de FM1 et FM2. $I_{1,2}$ est la constante de couplage bilinéaire associée à l'interaction RKKY. Cette constante résulte de la somme des termes d'interaction $J(r_{ij})$ entre un spin S_0 de l'interface 1 et tous les spin *j* de l'interface 2 (Figure II.14 à gauche). Son expression dans l'approximation des électrons libres est :

(II.10)
$$I_{1,2}(z) \propto \frac{\sin(2k_f z)}{z^2}$$
,

où z est l'épaisseur de l'espaceur non magnétique. La constante de couplage bilinéaire oscille donc autour de zéro en fonction de z et passe de valeur positive à négative (Figure II.14 à droite). La minimisation de l'expression de $E_{1,2}$ (équation (II .9)) conduit à la détermination des équilibres stables pour la configuration magnétique de la vanne de spin. Ainsi, lorsque $I_{1,2}$ est négatif (partie supérieure de la courbe présentée à droite de la Figure II.14), $\Phi_{1,2}$ vaut π et le couplage est antiferromagnétique ; lorsque $I_{1,2}$ est positif (partie inférieure de la courbe présentée à droite de la Figure II.14), $\Phi_{1,2}$ vaut 0 et le couplage est ferromagnétique.



<u>Figure II.14</u> : A gauche, schéma expliquant les interactions considérées dans le modèle RKKY – A droite, oscillation RKKY de la constante de couplage bilinéaire en fonction de l'épaisseur z de l'espaceur non magnétique

Notons que dans l'approximation des électrons libres, la constante de couplage oscille selon une période définie par la surface de Fermi représentée par une sphère de rayon: $\Lambda = \lambda_f/2$. Or expérimentalement, sur certains systèmes, plusieurs périodes d'oscillation du couplage ont été observées. En particulier, Fuss puis plus tard Unguris [94, 95] ont mis en évidence sur des structures de type Fe/Au/Fe(001) une longue période de couplage $\Lambda_I = 7-8 ML$ et une période plus courte $\Lambda_2 = 2 ML$. En effet, dans ce cas, l'approximation des électrons libres n'est pas valable, la surface de Fermi de l'or est plus complexe qu'une simple sphère. Bruno et Chappert [96, 97] ont alors ré-exprimé la constante de couplage bilinéaire $I_{1,2}$ associée à l'interaction RKKY sous la forme suivante :

(II.11)
$$I_{1,2}(z) \propto \sum_{\alpha} \frac{A^{\alpha} \sin(q_f^{\alpha} z + \phi^{\alpha})}{z^2},$$

où q_f^{α} sont les vecteurs parallèles à la normale du film reliant deux points de la surface de Fermi dont les vitesses correspondantes sont antiparallèles. Ainsi, dans le cas de l'or orienté (001) deux vecteurs q_f^{α} existent, les périodes de couplage théoriques qui y sont associées sont $\Lambda_1=8.6 ML$ et $\Lambda_2=2.51 ML$, ces deux oscillations de couplage sont déphasées de $\pi/2$ l'une par rapport à l'autre [96].

Etat de l'art sur les oscillations de couplage dans Fe/Au/Fe

Deux études fondatrices menées dans les années 90 par Fuss *et al.* [94] et Unguris *et al.* [95] ont permis la mise en évidence expérimentale des oscillations de couplage dans des vannes de spin de type Fe/Au/Fe(001).

Sur la Figure II.15, à gauche sont représentées les oscillations de la constante de couplage en fonction de l'épaisseur d'or mesurées par Fuss *et al.* [94] dans le cas d'une vanne de spin déposée sur GaAs. Ces travaux ont permis la mise en évidence expérimentale d'une double période de couplage : Λ_1 =7-8 *ML* et Λ_2 =2 *ML*. Ces observations sont en très bon accord avec le modèle proposé par Bruno et Chappert [96]. Les valeurs des constantes de couplage mesurées sur cette structure sont très faibles en valeur absolue, de l'ordre de quelques 10⁻³ mJ.m⁻². La rugosité des interfaces de la vanne de spin étudiée est assez importante et dans la mesure où l'espaceur est continu, le couplage par trous d'épingle peut être négligé. La constante de couplage bilinéaire mesurée expérimentalement résulte donc des deux effets suivants :

- (i) Le couplage peau d'orange. La constante associée à cet effet, J_N (équation (II .5)) est considéré positive et favorise donc un alignement ferromagnétique des deux électrodes de fer¹. Celle-ci diminue exponentiellement lorsque l'épaisseur de l'espaceur d'or augmente.
- (ii) L'interaction RKKY. La constante $I_{1,2}$ qui y est associée (équation (II .11)) oscille entre des valeurs positives et négatives lorsque l'épaisseur d'or varie. Elle favorise donc un alignement ferromagnétique si $I_{1,2}>0$ ou un alignement antiferromagnétique si $I_{1,2}<0$. L'amplitude de l'enveloppe oscillante diminue en $1/z^2$ avec l'épaisseur d'or.

La constante de couplage bilinéaire est donc la somme de ces deux termes J_N et $I_{1,2}$. Lorsque la rugosité de la structure est importante, J_N sera important devant $I_{1,2}$. Puisque J_N est toujours positive, l'alignement ferromagnétique sera alors favorisé. C'est pourquoi, Fuss *et al.* [94] ne mesurent des périodes d'oscillations que pour des épaisseurs d'espaceur d'or déjà importantes (à partir de 8 à 9 ML). Pour des épaisseurs de l'espaceur d'or plus importantes, la constante $I_{1,2}$ associée à l'interaction RKKY devient alors prépondérante par rapport à J_N . Lorsqu'elle est négative, elle favorise donc un alignement antiferromagnétique des électrodes de fer mais cet effet est très largement affaibli par la rugosité de la structure.



Figure II.15 : Constantes de couplage mesurées sur des vannes de spin de type Fe/Au/Fe(001) (tirées de à gauche [94]et à droite [95]).

¹ On considère que la rugosité des deux films magnétiques est corrélée comme représenté sur la Figure II.12.

Afin de s'affranchir des effets de couplage par peau d'orange et donc de mesurer plus finement l'effet de l'interaction RKKY dans ces structures, Unguris *et al.* [95] ont travaillé sur des structures réalisées à partir d'un whisker de fer (monocristal de fer atomiquement plan à grande échelle). La très faible rugosité des interfaces leur a ainsi permis d'observer des oscillations de couplage pour des épaisseurs d'espaceur d'or de 4 ML (Figure II.15 à droite). Les constantes de couplage bilinéaires mesurées sur ces structures sont de l'ordre de quelques dixièmes de millijoule par mètre carré, soit deux ordres de grandeur plus importants que les valeurs relevées par Fuss *et al.* [94].

Notons que dans le cas de l'étude réalisée au cours de cette thèse, de par le mode croissance du fer en ilôts, les interfaces sont assez rugueuses et les vannes de spin étudiées présentent des caractéristiques assez proches de celles observées par Fuss *et al.* [94].

II - 3.2 – Mesures de GMR quatre pointes

II - 3.2.1 – **Dispositif expérimental**

Les expériences de magnétotransport diffusif effectuées au cours de ce travail de thèse ont été réalisées dans une géométrie CIP (Current In Plane). Un courant est donc injecté parallèlement au plan des films minces constituant la vanne de spin permettant ainsi la mesure de la résistivité de la structure. Afin de réaliser cette étude, un montage de magnétotransport quatre pointes a été développé au laboratoire. Quatre contacts électriques espacés de un millimètre sont placés sur l'échantillon (Figure II.16). Les deux contacts extérieurs (1 et 4) sont utilisés pour injecter un courant dans le plan de l'échantillon. Les deux contacts intérieurs (2 et 3) permettent la mesure de la différence de potentiel ΔU via un nanovoltmètre. Cette méthode de mesure quatre pointes permet ainsi la détermination de la résistivité dans le plan de la vanne de spin tout en s'affranchissant de la résistance des contacts électriques. L'échantillon est positionné au cœur d'un entrefer qui sépare deux bobines délivrant un champ magnétique de 0 à 45 mT.



<u>Figure II.16</u> : A gauche, schéma de principe d'une mesure de résistivité quatre pointes – A droite, photographie du dispositif expérimental.

Avant de commencer à présenter les résultats expérimentaux, nous allons tout d'abord poser une définition importante pour la compréhension de la suite de ce chapitre.

Le ratio de magnétorésistance géante (*GMR*) est défini comme la variation relative de la résistance de la structure entre l'état strictement parallèle et l'état où les aimantations des deux électrodes forment un angle $\Phi_{1,2}$ (paragraphe I - 2.1 – équation (I.18)):

(II.12)
$$GMR = \frac{\rho_p - \rho(\Phi_{1,2})}{\rho_p}$$

Notons que lorsque la structure passera d'une configuration où l'angle entre les aimantations de deux électrodes passe de $\Phi_{1,2}^{i}$ à $\Phi_{1,2}^{f}$ (avec $\Phi_{1,2}^{i} < \Phi_{1,2}^{f}$ et $\neq 0^{\circ}$), on définira un ratio noté GMR^{*} :

(II.13)
$$GMR^* = \frac{\rho(\Phi_{1,2}^i) - \rho(\Phi_{1,2}^f)}{\rho(\Phi_{1,2}^i)}.$$

II - 3.2.2 – Détermination de l'espaceur d'or permettant un couplage antiferromagnétique

L'objectif de ces mesures de magnétotransport quatre pointes est de déterminer l'épaisseur d'un espaceur d'or permettant l'obtention d'un couplage antiferromagnétique entre les deux électrodes de fer. La structure de base qui a été choisie dans le cadre de cette étude est la suivante :

```
Au(2.2 nm)/Fe(1.7 nm – 12ML)/Au(x nm)/Fe(1.2 nm – 8 ML)/GaAs(001) (structure 1)
```

L'épaisseur de l'espaceur d'or de cette structure est une variable *x* allant de 1.5 nm à 3.7 nm (soit de 7 ML à 18 ML). Selon la valeur de l'épaisseur de l'espaceur d'or *x*, deux types

de cycles de GMR ont été observés pour un champ magnétique appliqué dans la direction [110]_{GaAs} (soit direction facile pour l'électrode de fer en contact avec le GaAs). Ceux-ci sont présentés sur la Figure II.17.

Ces deux types de cycles démontrent des ratios de GMR très différents sur une gamme de champ magnétique allant de -45 mT à +45 mT : soit 0.2 % pour le cycle que l'on appellera de type 1 (Figure II.17(a)) et 0.95 % pour le cycle que l'on nommera de type 2 (Figure II.17(b)). Les deux courbes peuvent se superposer presque parfaitement sur une gamme de champ magnétique allant de 1 à 45 mT (et respectivement de -1 à -45 mT). Pour le cycle de type 2, une forte augmentation de GMR pour des champs proches de 0 T est observée. Ceci démontre l'existence d'un saut de l'aimantation dans la gamme de champ magnétique [-1 mT ; 1 mT] (Insert Figure II.17(b)). Le cycle de type 1 est relatif à un couplage ferromagnétique entre les deux couches, tandis que le cycle de type 2 est relatif à un couplage antiferromagnétique.



<u>Figure II.17</u>: Cycles de GMR obtenus lorsque le champ magnétique est appliqué dans la direction [110]_{GaAs} dans le cas où la vanne de spin est couplée ferromagnétiquement (cycle de type 1) (a) – et antiferromagnétiquement (cycle de type 2) (b)

Cycle de GMR relatif à un couplage ferromagnétique

Une analyse qualitative des diagrammes d'énergie magnétique des deux électrodes de fer (Figure II.18) permet de comprendre la forme du cycle de GMR obtenue dans le cas d'une vanne de spin couplée ferromagnétiquement.

Comme cela a été expliqué précédemment (paragraphe II - 3.1), compte tenu de la rugosité assez importante dans nos structures, le couplage est très faible (I_{1.2}, de l'ordre quelques 10⁻³ mJ.m⁻²). Dans cette hypothèse, les axes selon lesquels s'alignent l'aimantation dans chacune des électrodes de fer seront donc proches de leurs axes de facile aimantation. Sur la Figure II.18(a) est représenté le diagramme d'énergie magnétique de chacune des électrodes de fer (notons que par souci de clarté, les deux courbes représentées sur ce même diagramme ont été normalisées). Nous pouvons réaliser à partir de cette figure une étude qualitative permettant l'interprétation du cycle expérimental. Leurs axes de facile aimantation flèches. Pour une vanne de spin faiblement sont repérés par des couplée ferromagnétiquement, l'aimantation des électrodes de fer s'alignera dans des directions proches des axes faciles en champ nul. Les deux électrodes ferromagnétiques seront donc désorientées d'environ 45 ° l'une par rapport à l'autre. Par application d'un champ magnétique de 45 mT dans la direction $[110]_{GaAs}$, l'aimantation de l'électrode en contact avec le GaAs n'évoluera pas puisque le champ magnétique est appliqué dans sa direction facile. L'aimantation de l'électrode supérieure de fer s'alignera elle progressivement selon $[110]_{GaAs}$ diminuant ainsi la résistivité de la structure.



<u>Figure II.18</u> : Diagrammes polaires de la densité d'énergie magnétique (normalisée) des électrodes inférieure (vert) supérieure (orange) de fer – Les flèches en trait plein indiquent (de façon approximative) l'orientation de l'aimantation de la vanne de spin à champ nul dans le cas d'un faible couplage ferromagnétique (a) et antiferromagnétique (b).

Cycle de GMR relatif à un couplage antiferromagnétique

Pour une vanne de spin faiblement couplée antiferromagnétiquement, l'aimantation des électrodes de fer s'alignera également dans des directions proches des axes faciles en champ nul. Dans ce cas, le couplage favorisera un fort désalignement entre les deux électrodes de fer à champ nul. Elles seront désorientées d'environ 135 ° l'une par rapport à l'autre (flèches en trait plein Figure II.18(b)). L'application d'un faible champ magnétique (1 mT) provoquera le retournement d'aimantation de l'électrode supérieure de fer vers son axe de facile aimantation situé à 45 ° de la direction [110]_{GaAs} (flèche en trait pointillé Figure II.18(b)). Ce retournement d'aimantation entraine une forte variation de la résistivité de la structure (pic de GMR observé sur la Figure II.17(b)). La vanne de spin se retrouve ensuite dans une configuration magnétique très similaire à celle obtenue dans le cas d'un couplage ferromagnétique. Lorsque le champ magnétique passe de 1 à 45 mT, l'électrode supérieure de fer s'aligne ensuite progressivement selon l'axe [110]_{GaAs}, la résistivité continuant ainsi à diminuer.

GMR en fonction de l'épaisseur de l'espaceur d'or

Le graphique de la Figure II.19 présente les mesures de GMR réalisées sur la structure Au(2.2 nm)/Fe(1.7 nm – 12 ML)/Au(x nm)/Fe(1.2 nm – 8 ML)/GaAs(001) pour différentes épaisseurs d'or. Parmi tous les espaceurs d'or testés, un seul couplage antiferromagnétique apparait à 13 ML soit 2.6 nm. Afin d'observer les forts effets de GMR dans nos vannes de spin, il est donc crucial de contrôler l'épaisseur d'or déposée avec une précision meilleure qu'une monocouche. Ainsi, sur un échantillon de surface 1 cm², nous avons pu observer la

présence de zones couplées antiferromagnétiquement coexistant avec des zones couplées ferromagnétiquement. Cet effet est dû à un gradient d'épaisseur d'or sur l'échantillon lié à la géométrie de dépôt avec une variation d'épaisseur supérieure à la monocouche. Cette sensibilité critique des propriétés de couplage dans cette vanne de spin a été la grande difficulté expérimentale de ce travail.

Le champ de couplage de cette structure a été estimé à partir du cycle Kerr obtenu sur cette structure. Celui-ci est de l'ordre de 1 mT, la constante de couplage associée à un tel champ vaut $I_{1,2} \approx 0.0025 \text{ mJ.m}^{-2}$.



<u>Figure II.19</u> : GMR mesurée pour différents espaceurs d'or – un couplage antiferromagnétique apparait pour un espaceur d'or de 13 ML (soit 2.6 nm)

II - 3.2.3 – Détermination des directions des aimantations sous champ

Comme il a été expliqué au paragraphe précédent, les films ferromagnétiques des structures analysées sont couplés entre eux de manière bilinéaire. Le désalignement relatif entre les deux électrodes de fer à champ nul est d'environ 45° pour les structures couplées ferromagnétiquement et d'environ 135° pour les structures couplées antiferromagnétiquement. Les valeurs de ces angles ont été déterminées de façon approximative : stipulant que le couplage dans ces structures était faible (quelques 10^{-3} mJ.m⁻²), les axes selon lesquels l'aimantation va s'orienter seront proches des axes faciles de chacune des couches minces prises indépendamment l'une de l'autre.

Afin de déterminer de façon précise les axes selon lesquels s'orientent les deux aimantations dans ces structures nous pouvons dans un premier temps écrire l'expression de l'énergie magnétique par unité de surface de cette structure (à champ nul) :

(II.14)
$$E_m^s = t_1 W_m^{Fe_1} + t_2 W_m^{Fe_2} + E_{1,2}$$
,

où t_1 et t_2 sont respectivement les épaisseurs des électrodes de fer Fe₁ et Fe₂, W_m la densité d'énergie magnétocristalline (équation (II .1)) et $E_{1,2}$, l'énergie surfacique associée au couplage bilinéaire entre les deux électrodes de fer (équation (II .9)). Cette équation (II .14) peut alors se réécrire de la façon suivante [98]:

(II.15)
$$E_m^s = -t_1 K_u^{Fe_1} \cos^2(\varphi_1) - \frac{1}{4} t_1 K_1^{eff - Fe_1} \sin^2(2\varphi_1) - t_2 K_u^{Fe_2} \cos^2(\varphi_2) - \frac{1}{4} t_2 K_1^{eff - Fe_2} \sin^2(2\varphi_2) - I_{1,2} \cos(\varphi_2 - \varphi_1),$$

où $\varphi_{I(2)}$ est l'angle défini entre l'axe d'aimantation de Fe₁₍₂₎ et la direction [110]_{GaAs}. La minimisation de cette équation permet alors la détermination des positions d'équilibre pour les deux aimantations dans cette structure. La résolution de cette équation a été réalisée numériquement par un programme de minimisation. Les paramètres pris en compte dans le calcul sont les suivants :

- $t_1 = 1.2 \ nm$
- $t_2 = 1.7 \ nm$
- $K_u^{Fel} = 107.1 \ kJ.m^{-3}$
- $K_1^{eff-Fel} = 19.03 \text{ kJ.m}^{-3}$
- $K_u^{Fe2} = 2.73 \ kJ.m^{-3}$
- $K_1^{eff-Fe2} = 21 \ kJ.m^{-3}$
- $I_{1,2}=\pm 0.0025 \text{ mJ.m}^{-2}$ (dans la convention utilisée ici, si $I_{1,2}$ est positif, le couplage est ferromagnétique et si $I_{1,2}$ est négatif, le couplage est antiferromagnétique)

Ainsi, pour la structure analysée dans le cadre de cette étude :

- Lorsque la vanne de spin est couplée ferromagnétiquement $(I_{1,2}=+0.0025 \text{ mJ.m}^{-2})$, $\varphi_1=0.5^\circ - \varphi_2=40^\circ$ et $|\varphi_1-\varphi_2| = \Phi_{1,2}=39.5^\circ$ (Figure II.20(a))
- Lorsque la vanne de spin est couplée antiferromagnétiquement ($I_{1,2}$ =-0.0025 mJ.m⁻²), $\varphi_1=0.5^{\circ} - \varphi_2=140^{\circ}$ et $|\varphi_1-\varphi_2| = \Phi_{1,2}=139.5^{\circ}$ (Figure II.20(b))



<u>Figure II.20</u> : Représentation de l'angle $\Phi_{1,2}$ en champ nul lorsque la vanne de spin est couplée ferromagnétiquement (a) – et lorsque la vanne de spin est couplée antiferromagnétiquement (b).

La minimisation de l'équation (II .15) permet la détermination des angles φ_1 et φ_2 lorsqu'aucun champ magnétique n'est appliqué. Afin de suivre l'évolution de l'aimantation sous champ, il suffit alors d'introduire dans cette équation le terme relatif à l'énergie Zeeman qui s'exprime de la façon suivante :

(II.16)
$$E_z = -\mu_0 H M_s [t_1 \cos(\theta - \varphi_1) + t_2 \cos(\theta - \varphi_2)],$$

où nous rappelons que θ l'angle défini entre la direction d'application du champ magnétique et l'axe [110]_{GaAs}. L'équation (II .15) devient alors :

(II.17)
$$E_{m}^{s} = -t_{1}K_{u}^{Fe_{1}}\cos^{2}(\varphi_{1}) - \frac{1}{4}t_{1}K_{1}^{eff-Fe_{1}}\sin^{2}(2\varphi_{1}) - t_{2}K_{u}^{Fe_{2}}\cos^{2}(\varphi_{2}) - \frac{1}{4}t_{2}K_{1}^{eff-Fe_{2}}\sin^{2}(2\varphi_{2}) - I_{1,2}\cos(\varphi_{2}-\varphi_{1}) - \mu_{0}HM_{s}[t_{1}\cos(\theta-\varphi_{1}) + t_{2}\cos(\theta-\varphi_{2})].$$

La minimisation de cette équation permet alors de déterminer l'évolution des angles φ_1, φ_2 et $\Phi_{1,2}$ en fonction du champ magnétique appliqué dans une direction donnée.

Dans une vanne de spin, l'évolution du ratio de magnétorésistance géante avec $\Phi_{1,2}$ est donnée par la relation suivante [99] :

(II.18)
$$GMR(\Phi_{1,2}) = GMR_{180^{\circ}} \sin^2(\frac{\Phi_{1,2}}{2}).$$

Il est donc possible, connaissant $\Phi_{1,2}(\mu_0 H)$ de simuler (à un facteur d'échelle près) l'évolution d'un cycle de GMR anhystérétique avec le champ magnétique. La Figure II.21 présente les courbes de GMR simulées dans le cas d'un couplage antiferromagnétique (courbe noire) et ferromagnétique (courbe verte) lorsque le champ magnétique est appliqué dans l'axe [110]_{GaAs}. L'amplitude des cycles simulés a été corrigée d'un facteur d'échelle par ajustement sur la valeur de GMR expérimentale obtenue dans le cas d'un couplage antiferromagnétique à champ nul. Nous pouvons constater par comparaison avec la Figure II.17 que les courbes simulées reproduisent très bien les courbes expérimentales. Les diagrammes d'énergie magnétique représentés sur ce graphique permettent à chaque étape importante de visualiser l'orientation de l'aimantation de chacune des électrodes ferromagnétiques. Cette évolution des angles φ_1 et φ_2 avec le champ magnétique est en très bon accord avec l'analyse qualitative réalisée au paragraphe II - 3.2.2.



<u>Figure II.21</u> : Courbes de GMR simulées pour la structure 1 dans le cas d'un couplage antiferromagnétique (courbe noire) et ferromagnétique (courbe verte) – L'orientation de l'aimantation à chaque étape importante du cycle est schématisée sur les diagrammes d'énergie magnétique.

Certains travaux de la littérature reportent dans ces hétérostructures Fe/Au/Fe l'apparition d'un faible couplage biquadratique (couplage à 90 °) [100, 101]. L'introduction de ce terme dans notre programme de minimisation n'influe pas de façon importante sur la forme du cycle et sur l'orientation de l'aimantation. Nous n'en tiendrons donc pas compte par la suite.

Cas d'une vanne de spin avec Fe₂=1nm – 7ML (structure 2)

Nous avons vu précédemment dans ce chapitre (paragraphe II - 2.2) que les propriétés d'anisotropie magnétocristaline de l'électrode supérieure de fer étaient - dans la limite ultramince - fortement dépendantes de l'épaisseur. En effet, en diminuant l'épaisseur de celleci à 1 nm, soit 7 ML, la constante d'anisotropie magnétocristalline biaxiale devient presque nulle (K_1^{eff} =-2 kJ.m⁻³). Or dans nos échantillons, nous avons constaté que ce film mince de fer Fe₂ présentait une très légère anisotropie magnétocristalline uniaxiale (K_u =2.73 kJ.m⁻³). Celleci deviendra donc dominante pour un film de fer de 1 nm d'épaisseur. La Figure II.22 présente le diagramme polaire de la densité d'énergie magnétocristalline d'une couche de fer présentant les caractéristiques suivantes : K_1^{eff} =-2 $kJ.m^{-3}$ et K_u =2.73 $kJ.m^{-3}$. Cette électrode ferromagnétique présente un caractère uniaxial dominant avec un axe facile orienté dans la direction [110]_{GaAs} coïncidant avec l'axe facile de Fe₁.



<u>Figure II.22</u> : Diagramme polaire de la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline d'une électrode de fer Fe₂ de 1 nm

Afin de voir l'influence d'un tel changement d'anisotropie, une étude de magnétotransport a été menée sur la structure suivante :

structure 2

Au(2.2 nm)/Fe(1 nm - 7 ML)/Au(2.6 nm - 13 ML)/Fe(1.2 nm - 8ML)/GaAs(001)

Nous verrons par la suite que l'étude d'une telle structure s'avère importante pour la compréhension de certains résultats expérimentaux observés en magnétotransport balistique.

La Figure II.23 présente à droite, en noir la courbe de GMR expérimentale obtenue sur cette structure lorsque le champ magnétique est appliqué parallèlement à l'axe facile commun aux deux électrodes, soit la direction [110]_{GaAs}. Ce cycle est caractérisé par un saut de l'aimantation relatif au passage d'un état strictement parallèle à antiparallèle. En effet, ceci se comprend très bien intuitivement puisque, dans cette structure, le couplage antiferromagnétique et les propriétés d'anisotropie magnétocristalline de chacune des deux électrodes ferromagnétiques auront tendance à champ nul à favoriser un désalignement relatif de l'aimantation entre Fe₁ et Fe₂, $\Phi_{1,2}$ de 180 °. Ceci est confirmé numériquement par la minimisation de l'équation (II .15). L'application d'un champ magnétique dans l'axe [110]_{GaAs} provoque alors le retournement de l'aimantation de l'électrode supérieure de fer. La vanne de spin passe alors dans une configuration parallèle et sa résistivité diminue drastiquement. L'amplitude de GMR observée sur cette structure est de 1.15 %. La courbe rouge représentée sur ce même graphique est le résultat obtenu par le calcul de minimisation (corrigé d'un facteur d'échelle). Elle est en très bon accord avec la courbe expérimentale.


<u>Figure II.23</u> : A gauche, diagramme polaire de la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline de la vanne de spin Au(2.2 nm)/Fe(1 nm – 7 ML)/Au(2.6 nm – 13 ML)/Fe(1.2 nm – 8 ML)/GaAs(001) – A droite, superposition de la courbe de GMR expérimentale (noire) obtenue sur cette structure et de la courbe simulée (rouge).

Cas d'une vanne de spin avec Fe₂=0.75 nm – 5 ML (structure 3)

Diminuant l'épaisseur de Fe₂ à 5 ML, soit 0.75 nm, la constante d'anisotropie magnétocristalline biaxiale devient fortement négative (K_1^{eff} =-18 kJ.m⁻³) (Figure II.10). Celleci devient biaxiale avec un axe facile orienté dans la direction [110]_{GaAs}, confondu avec l'axe facile de Fe₁ et un axe facile – difficile orienté selon la direction [1-10]_{GaAs} (Figure II.24). Des mesures de GMR quatre pointes ont également été effectuées sur la structure suivante :

Structure 3

Au(2.2 nm)/Fe(0.75 nm - 5 ML)/Au(2.6 nm - 13 ML)/Fe(1.2 nm - 8 ML)/GaAs(001)

Celles-ci révèlent tout comme dans la structure 2 un angle entre aimantations des deux électrodes variant de 180 ° au cours d'un cycle de magnétorésistance. Le ratio de GMR mesuré dans cette structure est de 1 %. Notons que cette diminution de la GMR par rapport à la structure 2 peut être attribuée à des effets thermiques : la température de Curie d'un film de fer de 5 ML peut-être sensiblement abaissée, conduisant à des fluctuations thermiques d'aimantation non négligeables.



<u>Figure II.24</u> : Diagramme polaire de la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline calculée pour une électrode supérieur de fer de 0.75 nm, soit 5 ML – Son axe de facile aimantation est orienté dans la direction [110]_{GaAs} et est confondu avec l'axe facile de Fe₁.

II - 3.3 - Bilan sur les propriétés de magnétotransport de la structure

Dans cette dernière partie du chapitre II, des mesures de magnétotransport quatre pointes nous ont permis de démontrer l'existence d'un couplage antiferromagnétique dans la structure Fe/Au/Fe/GaAs(001) pour un espaceur d'or de 2.6 nm. De par la rugosité des films minces de fer, le couplage observé est très faible : $I_{1,2}\approx 0.0025 \text{ mJ.m}^{-3}$. De ce fait, les axes dans lesquels s'oriente l'aimantation à champ nul sont très proches des axes de facile aimantation de chacune des électrodes de fer prise indépendamment l'une de l'autre.

Trois structures ont ainsi été étudiées :

Structure 1 : Au(2.2 nm)/Fe(1.7 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)

Structure 2 : Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)

Structure 3 : Au(2.2 nm)/Fe(0.75 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)

	Epaisseur Fe ₂	GMR	Angle parcouru
Structure 1	1.7 nm – 12 ML	0.95 %	139.5 °
Structure 2	1 nm – 7 ML	1.15 %	180 °
Structure 3	0.75 nm – 5 ML	1 %	180 °

<u>Tableau II.2</u> : Tableau bilan résumant les résultats de GMR diffusives sur les structures 1 et 2.

Chapitre III : Magnétotransport d'électrons chauds dans des vannes de spin épitaxiées Fe/Au/Fe/GaAs(001)

Dans le chapitre précédent, il a été démontré que les hétérostructures épitaxiées Fe/Au/Fe/GaAs(001) présentaient un comportement magnétorésistif en régime diffusif. Dans le but d'étudier leurs propriétés de magnétotransport d'électrons chauds, ces structures ont été reproduites dans l'enceinte STM/BEEM. Des effets de magnétoconductance très importants sont alors attendus. En effet, dans ce type de structures des magnétocourants d'électrons chauds de plusieurs centaines de pourcents ont déjà été démontrés [11, 12, 57, 102-104]. L'origine de tels effets s'explique de la manière suivante : pour des épaisseurs d'électrodes ferromagnétiques très supérieures au libre parcours moyen des électrons, les spins minoritaires seront préférentiellement diffusés par des processus inélastiques. La barrière de potentiel formée à l'interface métal/semiconducteur filtre alors préférentiellement les électrons peu ou pas diffusés, à savoir les spins majoritaires. Ainsi dans ce type d'étude, le filtrage en spin a été très largement attribué à des effets de volume. Si certains travaux avaient évoqué la possibilité d'un filtrage en spin aux interfaces [9], la démonstration expérimentale de tels effets n'a jamais été clairement réalisée. Pour étudier ce point nous avons fait le choix de travailler sur des hétérostructures présentant des électrodes ferromagnétiques constituées de quelques plans atomiques seulement (de 5 à 12 monocouches - ML). Dans ces structures totalement épitaxiées, nous pouvons en particulier nous attendre à ce que le raccord des structures de bandes aux différentes interfaces influence le magnétotransport des électrons chauds [16].

Dans ce troisième chapitre, il sera présenté dans un premier temps la méthodologie utilisée pour les mesures de magnétotransport réalisées dans le microscope BEEM. Puis nous discuterons l'origine des effets observés. Finalement nous présenterons le rôle que joue l'interface métal/semiconducteur sur le magnétotransport d'électrons chauds.

III - 1 – Mesures de magnétotransport : mise en œuvre expérimentale

III - 1.1 – Définition des notions de magnétocourant et magnétocourant effectif

Au chapitre précédent nous avons défini deux grandeurs :

La **GMR** qui est, dans une vanne de spin la variation relative de la résistance de la structure entre l'état strictement parallèle et l'état où les aimantations des deux électrodes forment un angle $\Phi_{1,2}$. (Équation (II .12))

La **GMR*** qui est, la variation relative de la résistance de la structure lorsque celle-ci passera d'une configuration où les aimantations des deux électrodes forment un angle $\Phi_{1,2}{}^i$ à une configuration où les aimantations des deux électrodes forment un angle $\Phi_{1,2}{}^f$ (avec $\Phi_{1,2}{}^i < \Phi_{1,2}{}^f$ et $\neq 0^\circ$) (Équation (II .13)).

Par analogie, dans ce chapitre les effets de magnétotransport d'électrons chauds seront évalués par deux grandeurs que l'on appellera magnétocourant (MC) et magnétocourant effectif (MC^*).

Le magnétocourant **MC** est défini comme la variation relative du courant BEEM entre l'état strictement parallèle de la vanne de spin et l'état défini par un angle $\Phi_{1,2}$ entre les deux aimantations :

(III.1)
$$MC(\Phi_{1,2}) = \frac{I_c^p - I_c(\Phi_{1,2})}{I_c(\Phi_{1,2})}.$$

Le magnétocourant effectif **MC*** est défini comme la variation relative du courant BEEM dans une vanne de spin, lorsque celle-ci passera d'une configuration caractérisée par un angle $\Phi_{1,2}{}^i$ à une configuration caractérisée par un angle $\Phi_{1,2}{}^f$ (avec $\Phi_{1,2}{}^i < \Phi_{1,2}{}^f$ et $\neq 0^\circ$).

(III.2)
$$MC^* = \frac{I_c(\Phi_{1,2}^i) - I_c(\Phi_{1,2}^f)}{I_c(\Phi_{1,2}^f)}$$

A partir de l'équation (I .20) établie précédemment dans ce manuscrit nous pouvons réexprimer MC en fonction de l'angle $\Phi_{1,2}$ entre aimantations des deux électrodes :

(III.3)
$$MC(\Phi_{1,2}) = MC_{180^{\circ}} \sin^2(\frac{\Phi_{1,2}}{2}).$$

où $MC_{180^{\circ}}$ est la valeur maximale que prendra le magnétocourant lorsque $\Phi_{1,2}$ varie de 180 ° entre les deux états de la vanne de spin.

III - 1.2 - Etude du magnétotransport d'électrons chauds : méthodologie

La direction dans laquelle est appliqué le champ magnétique est définie par l'orientation de l'échantillon sur le porte-échantillon. Dans toute cette étude nous avons fait le choix d'appliquer le champ magnétique dans l'axe facile de l'analyseur Fe₁, soit la direction $[110]_{GaAs}$.

Les mesures de magnétotransport par microscopie balistique sont particulièrement délicates expérimentalement en raison du faible rapport signal sur bruit du courant d'électrons chauds mesuré. Les temps d'acquisitions sont donc longs : typiquement d'une vingtaine d'heures de mesures est nécessaire pour obtenir chaque courbe de spectroscopie I_C - U_{gap} . En pratique, on procède de la façon suivante. Après dépôt de la vanne de spin sous masque, on sélectionne les plots présentant le plus faible courant de fuite diffusif (jonctions Schottky les plus résistives). Après approche de la pointe STM, on fixe la tension tunnel à 1.4 V (définissant une énergie des électrons supérieure à la barrière Schottky), et on applique un champ magnétique sur l'échantillon. Si une variation soudaine du courant BEEM est observée de manière reproductible sous champ, le plot sélectionné est couplé antiferromagnétiquement et peut donc être retenu pour la suite de l'étude détaillée.

Afin d'étudier les propriétés de magnétotransport d'électrons chauds dans la structure Fe/Au/Fe/GaAs, deux types d'expériences ont été réalisées :

- Des cycles de magnétoconductance *I_C-B* permettant de démontrer le comportement magnétorésistif de cette structure.
- Des courbes de spectroscopies I_C - U_{gap} dans les deux états magnétiques de la vanne de spin, permettant d'étudier la dépendance du magnétocourant avec l'énergie des électrons chauds.

A titre d'illustration, la Figure III.1 présente un cycle de magnétoconductance typique réalisé d'électrons chauds sur une vanne de spin Au $(2.2 \text{ nm})/\text{Fe}(1 \text{ nm})/\text{Au}(2.6 \text{ nm})/\text{Fe}(1.2 \text{ nm})/\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}(001)$. Pour réaliser ce cycle, la position de la pointe est fixe, un courant tunnel de 20 nA est injecté en surface, la tension tunnel est fixée à 1.4V et un balayage en champ magnétique est effectué entre -3 mT et 3 mT (courbe noire) puis entre 3 mT et -3 mT (courbe rouge). La mesure du courant collecté à l'arrière de l'échantillon en fonction du champ magnétique permet alors de représenter le cycle I_C-B. Le cycle représenté ici est une moyenne de 5 cycles réalisés sur une même position (X Y) à la surface de l'échantillon.



<u>Figure III.1</u>: Cycle de magnétocourant obtenu sur une vanne spin de type Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/AlGaAs(001) - Ce cycle réalisé pour un courant tunnel de 20 nA et à une tension tunnel de 1.4 eV démontre 400 % de magnétocourant.

Cette courbe met en évidence les effets de magnétoconductance de l'hétérostructure. Il apparait deux niveaux de courant pour Ic: un état de fort courant $(Ic^{max}=5 pA)$ et un état de faible courant $(Ic^{min}=1 pA)$. Le magnétocourant observé sur cette structure est d'environ 400 % à une énergie de 1.4 eV. Considérant l'étude de GMR (cf. paragraphe II - 3.2.3) de ce type de structure, nous pouvons conclure que l'état de faible courant correspond à une configuration où les aimantations des deux électrodes de fer forment un angle de 180° et l'état de fort courant correspond à une configuration où les aimantations des deux électrodes de fer forment un angle de repérer les valeurs des champs de retournement des aimantations des deux couches. Il est donc ensuite possible de préparer la vanne de spin dans l'un ou l'autre de ses deux états magnétiques afin

d'enregistrer des courbes de spectroscopie BEEM I_C - U_{gap} dans chacun de ces deux états. La Figure III.2 présente ainsi un exemple des spectroscopies BEEM mesurées dans l'état antiparallèle magnétique parallèle (en rouge) et d'une vanne de spin Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) (structure 2). Le courant tunnel est fixé à 20 nA. Pour des énergies inférieures à la hauteur de barrière Schottky (0.75 eV) le courant d'électrons chauds est nul. Au-delà de 0.75 eV, un courant de quelques picoampères est mesuré au dos de l'échantillon. La transmission (I_C/I_T) à travers cette structure est faible, de l'ordre de quelques 10⁻⁴. On constate par ailleurs la forte variation de cette transmission entre l'état parallèle et antiparallèle de la vanne de spin, avec un magnétocourant atteignant 500 % au voisinage du seuil.



<u>Figure III.2</u>: Courbes de spectroscopie Ic- U_{gap} réalisées sur l'hétérostructure Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) dans une configuration parallèle de la vanne de spin (courbe rouge) et antiparallèle de la vanne de spin (courbe noire) – La consigne de courant tunnel est de 20 nA.

III - 2 – Etude du magnétocourant en fonction de l'épaisseur de Fe₂

Dans le paragraphe précédent, nous avons pu voir que les effets de magnétocourant d'électrons chauds atteignent des valeurs très importantes (500 % à 1 eV au-dessus du niveau de Fermi du métal pour les mesures présentées sur la Figure III.2).

Afin de comprendre l'origine de ces forts effets et d'évaluer les rôles respectifs du volume et des interfaces, une étude du magnétotransport d'électrons chauds a été réalisée pour différentes épaisseurs d'électrodes supérieures de fer (de 5 à 12 ML).

III - 2.1 – Résultats expérimentaux

L'étude a été menée sur les trois structures précédemment étudiées en GMR quatre pointes :

<u>Structure 1</u> : Au(2.2 nm)/Fe(1.7 nm – 12 ML)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) <u>Structure 2</u> : Au(2.2 nm)/Fe(1 nm – 7 ML)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) <u>Structure 3</u> : Au(2.2 nm)/Fe(0.75 nm – 5 ML)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)

La Figure III.3 présente les mesures de magnétocourant effectif MC^* réalisées sur ces trois échantillons. Les données représentées ici ont été prises à 1.3 eV au-dessus du niveau de Fermi. Le MC^* augmente très légèrement lorsque l'épaisseur de l'électrode Fe₂ passe de 5 ML à 7 ML puis diminue en augmentant l'épaisseur. Cette évolution ne peut s'expliquer par un effet de polarisation en spin dans le volume d'un métal ferromagnétique. En effet, si la polarisation en spin s'installe dans le volume de la couche Fe₂, du fait de l'atténuation préférentielle des électrons de spins minoritaires, nous devrions observer une augmentation du magnétocourant avec l'épaisseur du film ferromagnétique suivie d'un plateau atteint pour une épaisseur de fer de quelques libres parcours moyen électronique. Un tel comportement a déjà été observé dans divers travaux de la littérature [9, 102] (cf. Figure I.13 et Figure I.15).



<u>Figure III.3</u> : Evolution du magnétocourant effectif MC* en fonction de l'épaisseur de l'électrode supérieure de fer – les données sont prises pour une énergie de 1.3 eV au-dessus du niveau de Fermi – MC* augmente légèrement puis diminue fortement avec l'épaisseur de Fe₂.

Pour expliquer l'évolution de cette courbe, il faut tenir compte de l'évolution des propriétés magnétiques de ces hétérostructures en fonction de l'épaisseur de Fe₂ (chapitre II). En effet, la diminution de MC^* lorsque l'épaisseur de Fe₂ passe de 7 ML (structure 2) à 12 ML (structure 1) se comprend très bien par des variations d'anisotropies

magnétocristallines. Dans ces deux cas, l'électrode de fer en contact avec le GaAs présente une très forte anisotropie magnétocristaline uniaxiale avec un axe facile orienté dans l'axe $[110]_{GaAs}$. C'est dans cette direction qu'est appliqué le champ magnétique.

- Pour la structure 1, où l'épaisseur de Fe₂ est de 12 ML (soit 1.7 nm), la couche de Fe₂ présente des propriétés d'anisotropie magnétocristaline proche de celle d'une « couche épaisse » de fer (Figure II.10). A savoir, son anisotropie est biaxiale avec des axes de facile aimantation proches des directions de type $<100>_{Fe}$ (soit $<100>_{GaAs}$) (Figure III.4(a)). Pour cette structure, les mesures de magnétotransport en régime diffusif démontrent qu'à champ nul le désalignement relatif entre les deux électrodes est de 139.5 °. Le saut d'aimantation provoqué par l'application d'un faible champ amène la vanne de spin dans une configuration où le désalignement relatif entre les deux configurations magnétiques est alors d'environ $100 \circ^{-1}$. Le magnétocourant effectif mesuré en BEEM sur cette structure (220 % à 1.3 eV au-dessus du niveau de Fermi) correspond donc à la variation du courant BEEM lorsque le désalignement relatif entre les deux électrodes de fer, $\Phi_{1,2}$ passe de 39.5 ° à 139.5 °.
- Pour la structure 2, où l'épaisseur de Fe₂ est de 7 ML (soit 1 nm), la constante d'anisotropie magnétocristalline biaxiale est très faible (Figure II.10) et cette électrode de fer présente une anisotropie uniaxiale avec un axe de facile aimantation parallèle à celui de Fe₁ (Figure III.4(b)). Ainsi lorsqu'un faible champ magnétique est appliqué dans l'axe facile [110]_{GaAs}, la vanne de spin passe d'une configuration strictement antiparallèle (désalignement relatif entre les deux électrodes de 180 °) à une configuration strictement parallèle (désalignement relatif entre les deux électrodes de 0 °). $\Phi_{1,2}$ varie de 180 ° entre les deux états magnétiques. Le magnétocourant effectif *MC** mesuré en BEEM est donc égal à *MC*₁₈₀.
- Diminuant l'épaisseur de la couche Fe_2 de 7 à 5 ML, on constate que le magnétocourant diminue légèrement. Cette diminution ne peut s'expliquer par un changement des propriétés d'anisotropie magnétocristalline (Figure III.4(c)). En effet, dans la structure 3, où l'axe de facile aimantation de Fe_2 est confondu avec celui de l'analyseur (paragraphe II 3.2.3), l'angle parcouru entre les deux configurations magnétiques au cours d'un cycle est de 180°, comme cela est observé pour la structure 2. La légère diminution du magnétocourant dans cette gamme d'épaisseur peut être en partie attribuée à une diminution de la polarisation en spin dans le volume de l'électrode ferromagnétique. D'autres mécanismes peuvent expliquer cette diminution, en particulier, les fluctuations de l'aimantation à température ambiante dans la couche Fe_2 plus importantes à 5 ML qu'à 7 ML.

¹ L'application d'un champ magnétique plus important (45mT) provoque l'alignement progressif de l'aimantation avec de Fe₁ (Figure II.21). Compte tenu de la difficulté en BEEM pour appliquer des champs magnétiques aussi importants, cette seconde partie du cycle de GMR n'a pas été sondée.

Des travaux de la littérature [105] montrent que l'aimantation à saturation d'une couche de fer épitaxiée sur Au(001) a déjà très largement commencé à diminuer dans cette gamme d'épaisseur (à 300K, pour 12 ML, Ms=0.9 Ms^{bulk} et pour 6 ML de Fe/Au(001), Ms=0.85 Ms^{buk}). Une telle diminution du moment magnétique par atome de fer, est induite par de légères fluctuations de l'aimantation autour de son axe. Ceci contribue également à diminuer le magnétocourant dans ces structures. De tels effets sont difficilement quantifiables.



<u>Figure III.4</u> : Diagrammes polaires de la densité d'énergie magnétocristalline normalisée des structures 1 (a), 2 (b) et 3 (c).

III - 2.2 – Corrections angulaires

Dans cette partie, nous allons établir une relation entre le magnétocourant à 180 ° (MC_{180}) et le magnétocourant effectif (celui mesuré : MC^*). Nous comparerons ensuite les valeurs de MC_{180} pour les trois structures étudiées¹.

Considérons une vanne de spin passant suite à l'application d'un champ magnétique d'une configuration où le désalignement relatif des aimantations entre des électrodes vaut

¹ MC_{180} correspondant à la valeur du magnétocourant que nous devrions mesurer si nous étions capables d'obtenir des configurations parallèles et antiparallèles entre les deux électrodes ferromagnétiques.

 $\Phi_{I,2}^{i}$ (faible désalignement) à une configuration où le désalignement relatif entre les aimantations des deux électrodes vaut $\Phi_{I,2}^{f}$ (schéma de la Figure III.5).



<u>Figure III.5</u> : Schéma définissant les angles utilisés dans la démonstration permettant d'appliquer des corrections angulaires.

Reprenant notre définition du magnétocourant (paragraphe III - 1.1), nous tirons deux relations pour les deux configurations magnétiques de la vanne de spin:

(III.4)
$$MC(\Phi_{1,2}^{i}) = \frac{I_{c}^{p} - I_{c}(\Phi_{1,2}^{i})}{I_{c}(\Phi_{1,2}^{i})} = MC_{180}\sin^{2}(\frac{\Phi_{1,2}^{i}}{2})$$

(III.5)
$$MC(\Phi_{1,2}^{f}) = \frac{I_{c}^{p} - I_{c}(\Phi_{1,2}^{f})}{I_{c}(\Phi_{1,2}^{f})} = MC_{180}\sin^{2}(\frac{\Phi_{1,2}^{f}}{2})$$

Pour le magnétocourant effectif, MC* l'expression s'écrit :

(III.6)
$$MC^* = \frac{I_c(\Phi_{1,2}^i) - I_c(\Phi_{1,2}^f)}{I_c(\Phi_{1,2}^f)}.$$

A partir de ces trois équations on peut réexprimer MC_{180} en fonction de MC^* , $\Phi_{1,2}^{i}$ et $\Phi_{1,2}^{f}$:

(III.7)
$$MC_{180} = \frac{MC^*}{\sin^2(\frac{\Phi_{1,2}^f}{2}) - (MC^* + 1)\sin^2(\frac{\Phi_{1,2}^i}{2})}$$

La Figure III.6 donne l'évolution de MC_{180} en fonction de l'épaisseur de Fe₂ pour les trois structures étudiées. Le magnétocourant augmente avec l'épaisseur de l'électrode supérieure de fer. Nous allons maintenant analyser cette variation :



<u>Figure III.6</u> : Evolution de MC₁₈₀ (magnétocourant corrigé des effets de l'anisotropie) en fonction de l'épaisseur de l'électrode supérieure de fer – Les données sont prises à 1.3 eV au-dessus du niveau de Fermi.

III - 2.3 – Effets de volume ou effets d'interfaces ?

L'évolution du magnétocourant MC_{180} en fonction de l'épaisseur de Fe₂ (Figure III.6) nous permet de discuter qualitativement l'importance relative des effets de volume et d'interfaces. Les points remarquables que nous pouvons relever ici sont les suivants :

- Le magnétocourant ne varie pas de façon drastique dans la gamme d'épaisseur sondée : la variation relative du magnétocourant lorsque Fe₂ diminue de 12 à 5 monocouches est d'environ 25% seulement;
- Dès 5 plans atomiques de fer le magnétocourant est déjà extrêmement important, et ne peut s'expliquer uniquement par une polarisation en spin du courant d'électrons chauds en volume de Fe₂.

L'évolution du magnétocourant MC_{180} en fonction de l'épaisseur de Fe₂ dans la limite ultra-mince démontre donc qualitativement le rôle important joué par les interfaces dans les effets magnétorésistifs observés sur ces vannes de spin épitaxiées. Si la gamme d'épaisseur étudiée ici est évidemment trop réduite pour tenter une analyse quantitative réaliste de nos données à l'aide du modèle présenté dans le chapitre I¹, quelques indications intéressantes peuvent être tirées d'une modélisation de nos données à partir de l'équation (I .29). En particulier, si l'on exclut totalement les effets d'interfaces en imposant à l'ajustement de passer par le point (0,0) (magnétourant nul à épaisseur de Fe₂ nulle), la modélisation conduit à une

¹ Il faudrait compléter cette étude dans la gamme des fortes épaisseurs et réaliser les mesures à basse température afin de s'affranchir des fluctuations thermiques d'aimantation pour les films les plus minces.

valeur de λ_{\downarrow} dénuée de sens physique, de l'ordre d'une distance interatomique. L'évolution expérimentale du magnétocourant MC_{180} avec l'épaisseur de fer est donc incompatible avec un scénario impliquant uniquement des effets volumiques. A fortiori, la persistance d'une amplitude de magnétocourant de 330 % (à 1.3 eV) à 5 monocouches de fer laisse supposer que le filtrage en spin aux interfaces est non seulement bien réel, mais d'une efficacité remarquable. Reste à expliquer l'origine de ces effets de filtrage en spin aux interfaces.

III - 3 – Origine du filtrage en spin aux interfaces

Dans ces structures totalement épitaxiées, le raccord des structures de bandes aux différentes interfaces peut largement influer sur les propriétés de magnétotransport. Dans cette partie III - 3 du manuscrit nous nous intéresserons dans un premier temps au rôle que joue l'interface Fe/Au dans ces effets de filtrage en spin. Puis nous démontrerons la possibilité de moduler le magnétocourant d'électrons chauds dans ces structures en jouant sur la nature du semiconducteur utilisé.

III - 3.1 – Rôle de l'interface Fe/Au

III - 3.1.1 – Structure de bandes du semiconducteur

La Figure III.7 rappelle à gauche la structure de bandes du GaAs. La bande de conduction de ce semiconducteur présente trois minima aux points Γ , L et X de sa première zone de Brillouin. Ces trois minima sont repérés par des cercles oranges, gris et jaunes. Ainsi, lors d'une expérience BEEM, à faible énergie (proche de la hauteur de barrière Schottky) les électrons ont accès dans un premier temps à la vallée Γ du GaAs. Pour des énergies un peu plus importantes, ils pourront éventuellement pénétrer dans les vallées L puis X du semiconducteur¹.

¹ Notons qu'au cours de la thèse de Sophie Guézo, il avait été démontré que dans le cas d'un contact Schottky Fe/GaAs(001), la transmission du courant d'électrons chauds dans la vallée L est très faible (paragraphe I - 1.3.2) [18]



<u>Figure III.7</u> : Structure de bandes de GaAs (à gauche) et positionnement des trois vallées dans la zone de Brillouin projetée dans la direction (001) (à droite).

Pour simplifier l'analyse en termes de structure de bande, nous nous intéresserons à des énergies proches de la hauteur de barrière Schottky (200 à 300 meV au-dessus de Φ_{SB}) et ce pour deux raisons :

- A basse énergie, les électrons traversant la structure n'auront accès qu'à la vallée Γ du GaAs se projetant au centre de zone de Brillouin ⁻/_Γ (schéma présenté à droite de la Figure III.7). Compte tenu de la condition de conservation de la composante transverse du vecteur d'onde aux différentes interfaces, le faisceau d'électrons collecté sera donc comme extrêmement collimaté autour de k_{||}=0.
- A basse énergie, le faisceau d'électrons pourra être considéré comme monocinétique. En effet, la majorité des électrons diffusés par des interactions électrons-électrons¹ auront perdus suffisamment d'énergie pour ne pas accéder à la bande de conduction du semiconducteur.

III - 3.1.2 – Structure de bandes de la vanne de spin

L'analyse que va suivre repose sur deux hypothèses fondamentales : la conservation de la composante transverse du vecteur d'onde et de la symétrie de la fonction d'onde électronique.

¹ Cela a été expliqué précédemment (paragraphe I - 2.2.1), les interactions électrons-électrons sont les interactions les plus probables dans le cas de nos expériences.

Conservation de la composante transverse du vecteur d'onde

Dans le cas d'une structure épitaxiée présentant des interfaces abruptes, il a déjà été démontré [17, 18, 46] que la continuité structurale imposait la conservation de la composante transverse du vecteur d'onde associé à l'électron (paragraphe I - 1.3) au passage de chaque interface. Pour des énergies proches de la hauteur de barrière Schottky, le semiconducteur filtre les électrons autour de $k_{\parallel}=0$. Ainsi, seuls les électrons se propageant dans la base métallique autour de cette direction $k_{\parallel}=0$ nous intéressent dans le cadre de cette analyse.

Conservation de symétrie de la fonction d'onde associée à l'électron

Pour des structures de type cubique centrée (Fe) et cubique faces centrées (Au et GaAs) orientées (001), la direction $k_{\parallel}=0$ correspond dans la première zone de Brillouin respectivement à des axes ΓH et ΓX . Ces axes sont également appelés Δ et constituent une direction de haute symétrie pour chacun des trois cristaux:

- Pour le fer dont le groupe d'espace est $C_{4\nu}$ (en notation Schoenflies), l'axe Δ présente une symétrie d'ordre 4.
- Pour l'or, le groupe d'espace est également C_{4v} et l'axe Δ présente une symétrie d'ordre 4.
- Pour le GaAs, le groupe d'espace est C_{2ν} et l'axe Δ présente une symétrie d'ordre 2¹.

Chaque état de Bloch se propageant dans cette direction Δ , a conventionnellement une dénomination particulière définie par son appartenance à un groupe de symétrie : Δ_1 , Δ_5 , Δ_2 , et Δ_2 , [106]. Ces états Δ_i sont des combinaisons linéaires de plusieurs orbitales atomiques de type s, p et d représentées dans le tableau III.1.

¹ Bien que cubique faces centrées, la structure zinc-blende du GaAs induit une brisure de symétrie, son groupe d'espace est $C_{2\nu}$.

Symétrie	Caractère orbital	Représentation schématique	
Δ_1	s, p_z, d_{z^2}		
Δ_5	p_x, p_y, d_{xz}, d_{yz}		
Δ_2	$d_{x^2-y^2}$		
Δ_{2} .	$d_{_{xy}}$	×	

<u>Table III.1</u> : Etats de Bloch dans la direction Δ du réseau réciproque – les représentations schématiques des orbitales atomiques sont tirées de [107].

Considérons dans un premier temps l'interface Fe/Au(001). Dans la direction Δ de haute symétrie, la transmission des fonctions d'ondes électroniques à l'interface doit se faire par conservation de la symétrie. La plus haute symétrie commune aux deux structures est de type C_{4v}. Les éléments de symétrie sont :

- L'identité E
- La symétrie d'ordre 4 de l'axe parallèle à la direction [001]_{GaAs}: C₄
- La symétrie d'ordre 2 de l'axe parallèle à la direction [001]_{GaAs}: C₂
- Les deux plans miroirs que forment l'axe $[010]_{GaAs}$ avec $[001]_{GaAs}$ et l'axe $[100]_{GaAs}$ avec $[001]_{GaAs}$: $\sigma_{\nu}^{\ y}$ et $\sigma_{\nu}^{\ x}$
- Les deux plans miroirs que forment l'axe $[110]_{GaAs}$ avec $[001]_{GaAs}$ et l'axe $[1-10]_{GaAs}$ avec $[001]_{GaAs}$: σ_{ν}^{xy} et σ_{ν}^{x-y}

Compte tenu de la relation d'épitaxie Fe/Au (maille d'or tournée de 45° par rapport à celle de fer) seuls les canaux $\Delta_1 \rightarrow \Delta_1$ et $\Delta_5 \rightarrow \Delta_5$ sont ouverts à la transmission des fonctions d'ondes à l'interface¹. Les états de Bloch présentant une symétrie de type Δ_2 et Δ_2 , se propageant dans le fer seront totalement réfléchis à l'interface Fe/Au (Schéma de la Figure III.8). Dans la mesure où l'or et le fer présentent à une énergie donnée des états disponibles de types Δ_1 et Δ_5 , ceux-ci pourront en revanche être transmis à l'interface.

¹ Les canaux $\Delta_2 \rightarrow \Delta_2$ et $\Delta_2 \rightarrow \Delta_2$, sont fermés à la transmission des fonctions d'ondes à l'interface Fe/Au(001). En effet, les orbitales $d_x^{2-y^2}(\Delta_2)$ et $d_{xy}(\Delta_2)$ sont tournées de 45° dans l'or par rapport au fer. Les opérations de symétries $\sigma_{\nu}^{y}, \sigma_{\nu}^{x}, \sigma_{\nu}^{xy}, \sigma_{\nu}^{x-y}$ ne sont pas conservées au passage de l'interface.



<u>Figure III.8</u>: Schéma présentant les canaux de conduction potentiellement ouverts à la transmission des fonctions d'ondes à l'interface Fe/Au(001) et Fe/GaAs(001) dans la direction Δ .

Considérons maintenant l'interface Fe/GaAs(001). A l'interface, la plus haute symétrie commune aux deux structures est de type $C_{2\nu}$. Les éléments de symétrie sont :

- L'identité E
- La symétrie d'ordre 2 de l'axe parallèle à la direction [001]_{GaAs}: C₂
- Les deux plans miroirs que forment l'axe $[010]_{GaAs}$ avec $[001]_{GaAs}$ et l'axe $[100]_{GaAs}$ avec $[001]_{GaAs}$: $\sigma_{\nu}^{\ y}$ et $\sigma_{\nu}^{\ x}$

Les canaux de conduction ouverts à la transmission des fonctions d'ondes électroniques à l'interface sont donc: $\Delta_1 \rightarrow \Delta_1$, $\Delta_5 \rightarrow \Delta_5$, $\Delta_2 \rightarrow \Delta_1$, $\Delta_{2'} \rightarrow \Delta_{2'}$. Les états de Bloch de symétrie Δ_2 et $\Delta_{2'}$ ayant été précédemment tués au passage de l'interface Fe/Au, finalement, seules les fonctions d'ondes de type Δ_1 et Δ_5 pourront être collectées à l'arrière de l'échantillon (Figure III.8).

Structure de bandes des métaux constituant la vanne de spin : le fer et l'or

Au paragraphe précédent nous avons établi les règles de filtrage en symétrie des fonctions d'ondes aux différentes interfaces de l'hétérostructure Fe/Au/Fe/GaAs(001) pour les électrons se propageant dans la direction $k_{\parallel}=0$. Suite à une sélection drastique à l'interface Fe/Au(001), seuls les états de Bloch de symétrie Δ_1 et Δ_5 sont autorisés à se propager dans la totalité de la structure. La Figure III.9 présente les structures de bandes prises dans la direction $k_{\parallel}=0$ du fer (spins majoritaires à gauche, spins minoritaires au milieu) et de l'or (à droite). La ligne en pointillés noirs apparaissant sur cette figure repère l'énergie de la hauteur de barrière Schottky Fe/GaAs(001) (0.75 eV). La gamme d'énergie à laquelle nous nous intéressons lors d'une expérience BEEM est située au-delà de cette énergie. Une analyse détaillée des états électroniques disponibles dans le fer et l'or pourra permettre de déterminer les règles de filtrage en symétrie qui peuvent être à l'origine de la polarisation en spin prenant place aux interfaces dans cette structure.



<u>Figure III.9</u> : Structure de bandes du fer et de l'or dans la direction Δ – Ces structures de bandes ont été calculées par une méthode de liaisons fortes en introduisant les paramètres de Papaconstanpopulos [108].

- <u>Dans le fer, pour les spins majoritaires</u> : les états pouvant se propager dans la gamme d'énergie d'intérêt présentent une symétrie de type Δ_1 .
- <u>Dans le fer, pour les spins minoritaires</u> : proches du seuil de la barrière Schottky sont présents des états de symétrie Δ_2 , Δ_2 , et Δ_5 . A partir de 1.1 eV au-dessus du niveau de Fermi apparaissent les états de symétrie Δ_1^{1} .
- <u>Dans l'or</u> : Les états disponibles entre la hauteur de barrière Schottky et 1.1 eV présentent une symétrie Δ_1 . Au-delà de 1.1 eV un pseudogap apparait.

Pour des énergies proches de la hauteur de barrière Schottky (entre 0.75 eV et 1.1 eV), seuls les états de symétrie Δ_1 du fer sont autorisés à franchir l'interface Fe/Au dans cette direction k_{||}=0. Les autres états de symétrie Δ_2 , Δ_2 , et Δ_5 seront totalement réfléchis à cette interface. Or le fer présente un caractère demi-métallique pour ces fonctions d'ondes de symétrie Δ_1 dans la gamme d'énergie d'intérêt. Les électrons franchissant cette interface Fe/Au sont donc totalement polarisés en spin.

A l'interface Fe/GaAs, les états disponibles dans le GaAs dans la direction $k_{\parallel}=0$ présentent également un caractère Δ_1 . Les fonctions d'ondes Δ_1^{\uparrow} ayant franchi l'interface Fe/Au puis Au/Fe, pourront entrer dans la vallée Γ du semiconducteur.

¹ Notons que d'après les calculs que nous avons effectués (approche liaison forte en introduisant les paramètres de Papaconstanpopulos [108]) la bande Δ_1^{\downarrow} apparait à partir de 1.1 eV. D'autres types d'approche par DFT (wien2K) font apparaitre cette bande à une énergie un peu plus importante : 1.6 eV [63].

Finalement, dans la configuration parallèle de la vanne de spin (Figure III.10, à gauche) :

- A l'interface Fe/Au, les états Δ_1^{\uparrow} seront transmis aux états Δ_1 de l'or. Les fonctions d'ondes de symétrie Δ_2^{\downarrow} , Δ_2^{\downarrow} et Δ_5^{\downarrow} seront totalement réfléchies.
- A l'interface Au/Fe, les états Δ_1^{\uparrow} se propageant dans l'or seront transmis dans le fer puis entreront dans le bande de conduction du GaAs.

Dans cette configuration magnétique de la vanne de spin une forte transmission du courant d'électrons majoritaires est attendue.

Dans la configuration antiparallèle de la vanne de spin (Figure III.10, à droite) :

- De même, seules les fonctions d'ondes Δ_1^{\uparrow} franchiront l'interface Fe/Au.
- Puisque la vanne de spin est dans une configuration antiparallèle, les états majoritaires dans Fe_2 deviennent minoritaires dans Fe_1 . Aucun état de symétrie Δ_1 minoritaire n'est disponible dans cette électrode de fer. Ceux-ci sont donc réfléchis.

Dans cette configuration magnétique de la vanne de spin une faible transmission du courant d'électrons chauds est attendue.



<u>Figure III.10</u> : Schémas des effets de filtrage en spin aux interfaces dans la direction Δ - Dans la configuration parallèle de la vanne de spin (à gauche), seuls les états Δ_1 totalement polarisés en spin sont autorisés à franchir l'interface Fe/Au, les états minoritaires Δ_2 , Δ_2 , et Δ_5 seront réfléchis – Dans la configuration antiparallèle de la vanne de spin (à droite), les spins majoritaires de la première électrode deviennent minoritaires dans la seconde électrode, les états Δ_1^{\uparrow} seront réfléchis à l'interface Au/Fe.

Ainsi, à faible énergie, les effets de filtrage en symétrie de la fonction d'onde aux interfaces de l'hétérostructure permettent d'expliquer l'existence de forts effets de magnétoconductance dans la limite ultramince.

III - 3.1.3 – Evolution du magnétocourant en fonction de l'énergie

La Figure III.11 montre à gauche les mesures de spectroscopie BEEM réalisées dans la configuration parallèle (en rouge) et antiparallèle (courbe noire) de la vanne de spin Au(2.2 nm)/Fe(1 nm – 7 ML)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) (structure 2). A droite, est présentée l'évolution du magnétocourant en fonction de l'énergie des électrons pour cette même structure. Dans la gamme [1 eV ; 1.35 eV] le magnétocourant diminue légèrement quand l'énergie des électrons augmente. En revanche, au voisinage de la hauteur de barrière Schottky (pour des énergies comprises entre 0.75 eV et 1 eV), le magnétocourant semble augmenter asymptotiquement. Si le rapport signal sur bruit de nos expériences¹ ne permet pas de quantifier ou d'extrapoler l'amplitude du magnétocourant au voisinage immédiat de Φ_{SB} , cette tendance à l'augmentation du magnétocourant au voisinage du seuil est cohérente avec l'analyse théorique précédente.



<u>Figure III.11</u>: (a) Courbes de spectroscopie BEEM réalisées dans la configuration parallèle (rouge) et antiparallèle (noire) de la structure 2 – (b) Courbe du magnétocourant d'électrons chauds en fonction de l'énergie correspondante.

Lorsque l'énergie des électrons est située au seuil de la barrière Schottky (0.75 eV), les seuls états disponibles dans la bande conduction du GaAs sont situés au point $\overline{\Gamma}$. Seuls les états se propageant dans la base métallique avec une composante transverse du vecteur d'ondes nulle (k_{||}=0) auront accès aux états disponibles du semiconducteur. Le GaAs joue donc le rôle d'un collimateur et filtre les électrons se propageant strictement dans la direction k_{||}=0. Augmentant l'énergie des électrons au-delà de la hauteur de barrière Schottky, la dispersion de la bande de conduction du GaAs va ouvrir à des états présentant une faible composante transverse k_{||}=0.

¹ A 0.8 eV et pour 20h d'acquisition : $I_c^{p} = 105 fA - I_c^{AP} = 10 fA$ pour une amplitude du bruit de 30 fA.



<u>Figure III.12</u>: Représentation schématique de la dispersion du faisceau d'électrons ayant accès aux états disponibles du GaAs lorsque l'énergie des électrons augmente : à la hauteur de barrière Schottky, le GaAs joue le rôle d'un collimateur et filtre les électrons se propageant dans la direction k_{||}=0. Augmentant l'énergie des électrons, la bande de conduction du GaAs disperse, ouvrant ainsi l'accès à des états avec une composante transverse croissante.

La Figure III.12 est une représentation schématique de l'influence de l'augmentation de l'énergie des électrons sur le filtrage en k_{||} du faisceau d'électrons collecté. A gauche est dessinée la projection de la zone du Brillouin du GaAs dans la direction (001). Le rond rouge représenté au centre de la zone de Brillouin fait référence aux états disponibles de la vallée Γ du semiconducteur pour différentes énergies au-delà du seuil de la barrière Schottky (de haut en bas : Φ_{SB} , Φ_{SB} +0.1 eV, Φ_{SB} +0.2 eV, Φ_{SB} +0.3 eV). A gauche est représentée la dispersion de la bande de conduction du GaAs dans la direction ΓX^1 . Les flèches rouges repèrent l'énergie considérée pour chacune des représentations.

- A la hauteur de barrière Schottky, seuls les états se propageant dans la direction k_∥=0 seront sélectionnés à l'interface métal-semiconducteur.
- A 0.1 eV au-dessus de la hauteur de barrière de Schottky, 7.5 % de la distance ΓX de la zone de Brillouin du GaAs pourra être sondée.
- A 0.2 eV au-dessus de la hauteur de barrière de Schottky, 10 % de la distance ΓX de la zone de Brillouin du GaAs pourra être sondée.
- A 0.3 eV au-dessus de la hauteur de barrière de Schottky, 13 % de la distance ΓX de la zone de Brillouin du GaAs pourra être sondée.

Le semiconducteur peut donc être vu comme un collimateur filtrant les électrons autour de la direction $k_{\parallel}=0$. Augmentant l'énergie des électrons, le rayon de ce collimateur s'étend dans l'espace des k.

S'éloignant de la direction $k \parallel = 0$, les fonctions d'ondes perdent progressivement leur caractère Δ et donc leur symétrie. Les règles de sélections énoncées précédemment (paragraphe III - 3.1.2) ne s'appliquent plus. Rappelons que dans la direction $k_{\parallel}=0$, le filtrage en symétrie des fonctions d'ondes implique une sélection à l'interface Fe/Au des états de spin majoritaires de symétrie Δ_1 . Il en résulte donc une polarisation en spin dans cette direction de 100%. Stipulant que nous ne collectons que ces états, le magnétocourant devrait être infini. L'énergie à partir de laquelle nous sommes capables de mesurer de façon correcte un magnétocourant d'électrons chauds dans nos structures est 0.2 eV au-dessus de la barrière Schottky: MC≈500 %. A cette énergie le faisceau d'électrons collecté est situé dans une gamme de vecteur d'ondes transverses k_{ll} partant de 0 (centre de zone de Brillouin du GaAs) et allant jusqu'à 10 % de la distance ГХ (Figure III.12). Les électrons présentant un vecteur d'ondes transverse non nul ont perdu en partie leur caractère Δ . A cette énergie, $\Phi_{SB}+0.2 \ eV$ le filtrage en spin par les règles de symétrie est donc sensiblement moins efficace qu'à l'énergie seuil Φ_{SB} . L'ouverture du collimateur que constitue la vallée Γ du GaAs lorsque l'énergie augmente doit donc engendrer une diminution du magnétocourant. Il est donc raisonnable de stipuler que le magnétocourant devrait être encore plus important si l'on était capable de le mesurer à des énergies plus proches de Φ_{SB} . Ceci serait possible en utilisant un

¹ La dispersion de la structure de bande du GaAs dans la direction ΓX a été paramétrée en bas de bande dans une hypothèse électrons libres : $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}$ avec $m^*=0.06$ 7 m_0 [42].

injecteur tout solide plutôt qu'une pointe STM. Les courant injectés peuvent atteindre le mA et les courants collectés le μ A (10⁶ fois plus important que dans le cas de nos expériences). Ceci permettrait donc d'avoir une bien meilleure sensibilité au seuil de la barrière Schottky. Ces expériences sont planifiées dans l'équipe.

III - 3.2 - Rôle de l'interface métal/semiconducteur : Effet de collimation

Pour la raison expliquée au paragraphe précédent, la mise en évidence expérimentale du rôle de collimation que joue le semiconducteur ne peut pas passer par une analyse du magnétotransport d'électrons chauds en fonction de l'énergie. Une stratégie plus pertinente permettant de mener une telle discussion consiste à jouer sur la masse effective du semiconducteur. Ainsi dans cette dernière partie du Chapitre III une étude du magnétotransport d'électrons chauds dans des structures Fe/Au/Fe(001) déposées sur différents substrats semiconducteurs d'AlGaAs sera présentée.

III - 3.2.1 – Description de la structure de bandes de l'alliage AlGaAs

Description de la structure de bandes d'un alliage ternaire semiconducteur

La détermination de la structure de bandes d'un alliage ternaire semiconducteur de composition xA et (1-x)B (dans notre cas xAlAs et (1-x)GaAs) n'est pas triviale et nécessite une approximation. En effet, la structure cristalline d'un tel alliage est organisée de façon aléatoire : la probabilité que le site voisin d'un atome de type A soit occupé par un atome de type A est x et par un atome de type B est (1-x). Il n'y a donc pas de périodicité dans la structure cristalline, le potentiel vu par les électrons est aléatoire. Pour décrire la structure de bandes d'un tel composé, il est nécessaire de placer dans le cadre de l'approximation du cristal virtuel où le potentiel aléatoire vu par les électrons est approché par un potentiel périodique moyen pouvant s'exprimer sous la forme suivante [42, 109] :

(III.8)
$$U_{av}(r) = xU_A(r) + (1-x)U_B(r)$$
.

Dans cette approximation, la position en énergie du minimum de la bande de conduction de l'alliage s'exprime comme la moyenne pondérée des minima des bandes de conduction des composés purs A et B :

(III.9)
$$E_{BC}^{Alliage} = x E_{BC}^{A} + (1-x) E_{BC}^{B}$$
.

Cette expression ne permet de décrire que de façon très grossière la position énergétique d'un minimum de bande de conduction dans un tel alliage. La structure de bandes de ce type de composé ternaire s'avère en réalité être mieux décrite par l'ajout dans l'équation (III .9) d'un terme d'ordre supérieur appelé terme de courbure (bowing) et noté C. L'équation (III .9) devient :

(III.10)
$$E_{BC}^{Alliage} = xE_{BC}^{A} + (1-x)E_{BC}^{B} + x(1-x)C$$
.

Pour les alliages de semiconducteurs de type III-V, les paramètres permettant une description réaliste de leur structure de bandes sont tabulés dans la revue [42].

Description de la structure de bandes d'Al_xGa_{1-x}As

Rappelons que dans le GaAs (tout comme dans AlGaAs), trois minima de bandes de conduction apparaissent à différentes énergies et dans différentes directions de l'espace réciproque : dans la direction ΓX , on trouve les vallées Γ et X et dans la direction transverse ΓL apparait la vallée L. Dans le cadre de l'analyse qui va suivre nous allons nous intéresser uniquement aux vallées Γ et X du semiconducteur se projetant dans la direction k \parallel =0.



<u>Figure III.13</u>: Position en énergie des vallées Γ et X dans $Al_xGa_{1-x}As$ en fonction de la concentration x d'aluminium [42].

Les positions énergétiques des minima de bandes de conduction Γ et X dans les structures GaAs et AlAs sont : $E_{\Gamma}^{GaAs} = 1.519eV$, $E_{X}^{GaAs} = 1.981eV$, $E_{\Gamma}^{AlAs} = 3.099eV$, $E_{X}^{AlAs} = 2.24eV$. Les paramètres de courbure *C* pour les vallées Γ et X de l'alliage ternaire sont: $C_{\Gamma} = -0.127 + 1.310x$ et $C_{X} = -0.055$ [42]. Ces paramètres ont été injectés dans l'équation (III .10). La Figure III.13 représente la position en énergie des vallées Γ (en noire) et X (en rouge) dans l'alliage Al_xGa_{1-x}As en fonction de la concentration *x* en aluminium. Pour des concentrations en aluminium inférieures à 40 %, le premier minimum de la bande de conduction de l'alliage ternaire correspond à la vallée Γ . Pour des concentrations en aluminium supérieures à 40 %, la vallée Γ se situe au-dessus de la vallée X et le premier minimum de la bande de conduction du semiconducteur devient la vallée X.

Les propriétés de dispersion énergétique des vallées Γ et X dans un semiconducteur III-V sont extrêmement différentes. En effet, la masse effective d'une vallée X est presque quatre fois supérieure à celle d'une vallée Γ . Lors d'une expérience BEEM, à une énergie donnée au-dessus de Φ_{SB} la zone de l'espace réciproque sondée par le faisceau d'électrons collecté sera donc bien plus importante pour des substrats d'Al_xGa_{1-x}As présentant une forte concentration d'aluminium que pour un substrat de GaAs. Si le semiconducteur joue le rôle d'un collimateur filtrant plus ou moins les états autour de la direction k_{||}=0, des effets sur le

magnétocourant d'électrons chauds sont attendus en faisant varier le taux d'aluminium dans le semiconducteur.

III - 3.2.2 - Préparation des substrats d'AlGaAs

Les substrats d'AlGaAs utilisés au cours de cette thèse ont été préparés dans le bâti d'épitaxie par jets moléculaires. Sur un substrat de GaAs(001) préparé par le protocole décrit au paragraphe au chapitre II, un film mince de 25 nm d'AlGaAs est déposé à 580°C.

Avant le dépôt de la couche protectrice d'arsenic amorphe, quatre monocouches de GaAs sont épitaxiées. Ceci permet d'assurer l'équivalence chimique à l'interface métal semiconducteur entre les structures vanne de spin/GaAs(001) et vanne de spin/AlGaAs(001).

III - 3.2.3 – Mesures de magnétotransport d'électrons chauds

Dans cette partie nous allons comparer les résultats expérimentaux obtenus sur les trois structures suivantes, dérivées de la structure 2 de référence précédemment étudiée :

Structure 2 :

Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)

Structure 2.1 :

Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(4 ML)/Al_{0.4}Ga_{0.6}As(25 nm)/GaAs(001)

Structure 2.2 :

Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(2.6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(4 ML)/Al_{0.2}Ga_{0.8}As(25 nm)/GaAs(001)

Dans toutes ces structures, la vanne de spin est inchangée. L'épaisseur de la couche de Fe₂ a été choisie de manière à ce que l'angle des aimantations des deux électrodes parcourt 180 ° au cours d'un cycle de magnétoconductance. Les mesures de magnétotransport d'électrons chauds sur ces trois structures sont donc directement comparables les unes aux autres.

Etude de la structure 2.1 : Al_{0.4}Ga_{0.6}As

Sur la Figure III.14 est représentée sur la colonne de droite l'étude du magnétotransport d'électrons chauds dans la structure 2.1, soit pour un semiconducteur de type Al_{0.4}Ga_{0.6}As. En haut apparaissent les deux courbes de spectroscopie BEEM obtenues dans les configurations parallèles et antiparallèles de la vanne de spin. Ces spectres montrent une hauteur de barrière Schottky de 1.05 eV en accord avec les mesures de transport diffusifs réalisées sur cette même structure. Le graphique présenté juste en dessous montre l'évolution du magnétocourant d'électrons chauds dans cette structure en fonction de l'énergie des électrons. L'échelle des abscisses commence à 0.2 eV au-dessus de Φ_{SB} . A cette énergie, le magnétocourant mesuré est de 300 %. Rappelons que dans le cas de la structure 2 étudiée précédemment dans ce chapitre (pour un substrat de GaAs), à une énergie de 0.2 eV au-dessus de Φ_{SB} , le magnétocourant d'électrons chauds vaut 500 % (second graphique de la colonne de

gauche de la Figure III.14)¹. Ainsi, en remplaçant GaAs (structure 2) par Al_{0.4}Ga_{0.6}As (structure 2.1), à l'énergie Φ_{SB} +0.2 eV, le magnétocourant diminue de 500 % à 300 %. Nous pouvons donc discuter l'influence de la structure du semiconducteur sur le magnétotransport d'électrons chauds.

Rappelons que dans le cas du GaAs, à cette énergie, les électrons chauds ont uniquement accès à la vallée Γ du semiconducteur. Au contraire, dans le composé ternaire Al_xGa_{1-x}As, pour une concentration de 40 % en aluminium, les deux minima de bande de conduction Γ et X se projetant dans la direction k_{||}=0 apparaissent à la même énergie. A $\Phi_{SB}+0.2 \ eV$, les électrons chauds se propageant dans la base métallique ont accès à la fois aux vallées Γ et X du semiconducteur. Au regard des paramètres de masses effectives des vallées accessibles pour les électrons dans chacun de ces deux semiconducteurs nous pouvons qualitativement expliquer la diminution du magnétocourant observée entre les deux structures :

- Dans GaAs, la masse effective de la vallée Γ vaut : $m_{\Gamma}^* = 0.067 m_0$ [42].
- Dans Al_{0.4}Ga_{0.6}As, les masses effectives des vallées Γ et X valent respectivement : $m_{\Gamma}^* = 0.086 m_0$ et $m_X^* = 0.226 m_0$ [42].

A partir de ces valeurs des masses effectives, la structure de bandes – pour des énergies proche des minima de bandes de conduction – dans la direction ΓX a été paramétrée. Ce calcul a été effectué dans une hypothèse électrons libres : $E(k_{\parallel}) = (\hbar^2 k_{\parallel}^2)/(2m^*)$. Il est ainsi possible à une énergie donnée de connaitre l'ouverture maximum en k_{\parallel} autour du centre de zone de Brillouin dans chacun des semiconducteurs (graphiques présentés sur la troisième ligne de la Figure III.14). En bas de la Figure III.14 sont présentés les projections des zones de Brillouin de chacun des semiconducteurs étudiés. Les cercles dessinés en centre de zone (rouge pour le GaAs, à gauche de la figure et vert pour Al_{0.4}Ga_{0.6}As, à droite de la figure) permettent de visualiser la zone de l'espace de k accessible pour les électrons chauds à 0.2 eV au-dessus de Φ_{SB} .

- Pour Al_{0.4}Ga_{0.6}As, à 0.2 eV au-dessus de la barrière Schottky, les électrons ont accès aux vallées Γ et X. Dans ce seminconducteur, la masse effective de la vallée X est beaucoup plus importante de celle de la vallée Γ (il y a presque un facteur 3 entre les deux). Les électrons accédant à la vallée X du semiconducteur pourront posséder un vecteur d'onde transverse beaucoup plus important que ceux accédant à la vallée Γ. Les électrons rentrant dans le semiconducteur auront une composante transverse du vecteur d'onde comprise entre k_{||}=0 et k_{||}=20 % de la distance ΓX.
- Pour GaAs, à 0.2 eV au-dessus de la barrière Schottky, les électrons ont uniquement accès à la vallée Γ du semiconducteur. Sa masse effective étant

¹ Nous avons fait le choix de comparer les mesures expérimentales entre ces deux structures à une énergie de 0.2 eV au-dessus Φ_{SB} . En effet, à cette énergie les électrons diffusés inélastiquement ont une très faible probabilité de passer la barrière Schottky. Les valeurs du magnétocourant d'électrons chauds peuvent donc être directement comparées.

presque 3.5 fois plus faible que celle de la vallée X de $Al_{0.4}Ga_{0.6}As$, la zone de l'espace des k accessible pour le faisceau d'électrons est beaucoup plus resserrée autour de k_{||}=0 : 10 % de la distance ΓX .

Finalement, dans la structure 2 (GaAs), à cette énergie de 0.2 eV au-dessus de la barrière Schottky, le faisceau d'électrons collecté est fortement collimaté autour de la direction $k_{\parallel}=0$ comparé à la structure 2.1 (Al_{0.4}Ga_{0.6}As). L'effet de filtrage en symétrie des états Δ_1 est par conséquent beaucoup moins efficace lorsque GaAs est remplacé par Al_{0.4}Ga_{0.6}As. Cette analyse permet donc d'expliquer la forte diminution de magnétocourant d'électrons chauds lorsque Al_{0.4}Ga_{0.6}As est substitué à GaAs.

Etude de la structure 2.2 : Al_{0.2}Ga_{0.8}As

La colonne du milieu de la Figure III.14 présente l'étude du magnétotransport d'électrons chauds dans la structure 2.2, soit pour un semiconducteur de type Al_{0.2}Ga_{0.8}As. La hauteur de barrière Schottky mesurée en BEEM et en transport diffusif sur cette structure est de 0.92 eV. Le second graphique en partant du haut représente l'évolution du magnétocourant d'électrons chauds en fonction de l'énergie des électrons. Tout comme dans le cas de la structure 2.1, l'échelle des abscisses utilisée pour présenter ce graphique commence à 0.2 eV au-dessus de la hauteur de barrière Schottky. A cette énergie, le magnétocourant prend une valeur intermédiaire entre les structures 2 et 2.1, il vaut 400 %. En effet, pour une fraction d'aluminium de 20 % dans le composé ternaire $Al_xGa_{1-x}As$ le premier minimum de la bande de conduction correspond à la vallée Γ , la vallée X apparait 0.2 eV plus haut en énergie. Les masses effectives de ces deux vallées accessibles par le courant d'électrons chauds sont : $m_{\Gamma}^{*}=0.075 m_{0}$ et $m_{X}^{*}=0.229 m_{0}$. A 0.2 eV au-dessus de la barrière Schottky, la vallée Γ est beaucoup plus ouverte en k \parallel que la vallée X. La masse effective de la vallée Γ de Al_{0.2}Ga_{0.8}As est très légèrement supérieure à celle de la vallée Γ du GaAs. Les électrons rentrant dans le semiconducteur pourront avoir une composante transverse comprise entre k $\parallel=0$ et k $\parallel=12$ % de la distance ΓX . A cette énergie, le k_{max} autorisé dans la structure 2.2 (Al_{0.2}Ga_{0.8}As) est donc légèrement supérieur à celui autorisé dans la structure 2 (GaAs) mais reste très inférieur à celui autorisé dans la structure 2.1 (Al_{0.4}Ga_{0.6}As). Cette collimation intermédiaire conduit à un effet de filtrage en symétrie des états Δ_1 médian entre GaAs et Al_{0.4}Ga_{0.6}As.



<u>Figure III.14</u>: De gauche à droite sont présentées les études du magnétotransport d'électrons chauds pour différentes concentrations d'aluminium dans les substrats d'Al_xGa_{1-x}As : x=0, x=20 %, x=40 %. De haut en bas sont présentées : Les courbes de spectroscopie BEEM obtenues dans la configuration parallèle (rouge) et antiparallèle (noire) de chacune des structures - L'évolution du magnétocourant d'électrons chauds en fonction de l'énergie des électrons (l'échelle des abscisses de chacune de ces courbes commence à 0.2 eV au-dessus de Φ_{SB}) - La dispersion de la bande de conduction du semiconducteur dans la direction ΓX - La partie de la zone de Brillouin du semiconducteur sondée par le faisceau d'électrons collecté à 0.2 eV au-dessus de la barrière Schottky.

	GaAs	Al _{0.2} Ga _{0.8} As	Al _{0.4} Ga _{0.6} As
MC à 0.2 eV au-dessus de Φ_{SB}	500 %	400 %	300 %
Vallée accessible à 0.2 eV au-dessus de Φ_{SB}	Γ	Γ	Γ et X
m* de la vallée permettant le plus important $k_{\parallel max}$	0.067 m ₀	0.075 m ₀	0.226 m ₀
Δk_{\parallel} à 0.2 eV au-dessus de Φ_{SB} dans la direction ΓX	10 %	12 %	20 %

<u>Tableau III.2</u>: Tableau résumant les résultats importants de l'étude du magnétotransport d'électrons
chauds pour différents substrats d'Al_xGa_{1-x}As – Le magnétocourant tend clairement à diminuer
lorsque la masse effective du semiconducteur et donc la zone de l'espace réciproque sondée par le
faisceau d'électrons augmente autour de kµ=0.

Bilan sur l'analyse des structures 2, 2.1 et 2.2

Les résultats importants concernant les propriétés de magnétransport d'électrons chauds dans les structures 2, 2.1 et 2.2 sont synthétisés dans le tableau III.2. L'analyse de ces données expérimentales permet de mettre clairement en évidence le rôle de collimation que joue le semiconducteur. En effet celui-ci filtre les électrons autour de la direction $k_{\parallel}=0$. Plus la masse effective de la vallée accessible est faible, plus le faisceau d'électrons collecté subit une collimation importante autour du centre de zone de Brillouin. L'effet de filtrage en symétrie des fonctions d'ondes de type Δ_1 totalement polarisées en spin prend place dans la direction $k_{\parallel}=0$ (paragraphe III - 3.1). En augmentant le rayon du collimateur, la polarisation en spin et donc le magnétocourant chutent.

Evolution du magnétocourant avec k_{llmax}

La Figure III.15(a) représente le magnétocourant mesuré dans les structures 2, 2.1 et 2.2 à 0.2 eV au-dessus de la barrière Schottky en fonction de l'ouverture maximale du collimateur. Nous pouvons constater que la décroissance du magnétocourant avec le rayon du collimateur n'est pas linéaire. En effet, pour les faibles $k_{\parallel max}$ (passage de GaAs à Al_{0.2}Ga_{0.8}As), une rapide diminution du magnétocourant est observée. Lorsque $k_{\parallel max}$ devient beaucoup plus important (passage de Al_{0.2}Ga_{0.8}As à Al_{0.4}Ga_{0.6}As) la diminution est plus lente. Augmentant l'énergie au-delà de la barrière Schottky, nous retrouvons ce même type d'évolution (Figure III.15(b)). Cette forte décroissance non linéaire du magnétocourant d'électrons chauds est en accord qualitatif avec les travaux théoriques traitant de ces effets de collimation sur les propriétés de filtrage en spin aux interfaces (que ce soit dans une structure de type vanne spin ou jonction tunnel magnétique) [16, 110].

La description quantitative de ces courbes expérimentales nécessite le calcul de tous les états propres pouvant se propager dans la structure et donc une étude théorique beaucoup plus approfondie. Ceci est en cours et fait l'objet d'une collaboration avec Andrey Umerski (Open University of Milton Keynes) et de la thèse de Yann Claveau (Institut de Physique de Rennes).



<u>Figure III.15</u>: Magnétocourant mesuré dans les structures 2, 2.1 et 2.2 en fonction de l'ouverture maximale du collimateur autour de la direction $k_{\parallel}=0-(a)$ à 0.2 eV au-dessus de $\Phi_{SB}-(b)$ à différentes énergies au-dessus de la hauteur de barrière Schottky

III - 4 – Bilan et conclusion

A travers cette étude du magnétotransport d'électrons chauds dans l'hétérostructure épitaxiée Fe/Au/Fe/GaAs(001) nous avons mis en évidence de forts effets de magnétoconductance atteignant 500 % à température ambiante. Ce magnétocourant d'électrons chauds ne dépend que faiblement de l'épaisseur de Fe₂ dans la gamme 5 à 12 ML et ne peut s'expliquer uniquement par une polarisation en spin dans le volume des films minces de fer. L'origine de celui-ci a été établie comme prenant place aux interfaces de l'hétérostructure.

En effet, au-dessus de la barrière Schottky, le GaAs filtre les états de Bloch autour du point $\overline{\Gamma}$, soit le courant d'électrons chauds se propageant dans la direction $k\parallel=0$. Cette direction $k\parallel=0$ (nommée également Δ) est une direction de haute symétrie pour l'hétérostructure, impliquant l'existence de règles de sélections en symétrie des fonctions d'ondes aux interfaces. Nous avons en particulier établi que l'interface Fe/Au, filtre uniquement les états de symétrie Δ_1 . Pour des énergies proches de la hauteur de barrière Schottky Fe/GaAs, le fer est demi métallique au regard de ces états de symétrie Δ_1 . Le courant d'électrons chauds autorisé à franchir l'interface Fe/Au est donc totalement polarisé en spin dans la direction Δ . Ces états Δ_1^{\uparrow} pourront par la suite rentrer dans la vallée Γ du GaAs. Ce filtrage en spin aux interfaces permet donc d'expliquer les forts magnétocourants d'électrons chauds démontrés dans ces structures.

S'éloignant de la direction $k_{\parallel}=0$, les fonctions d'ondes perdent leur caractère Δ et donc leur symétrie. Les règles de sélections énoncées précédemment ne s'appliquent plus. C'est le semiconducteur qui permet de filtrer plus ou moins le faisceau d'électrons autour de la direction $k_{\parallel}=0$. Il joue le rôle d'un collimateur. Remplaçant GaAs par Al_xGa_{1-x}As, la masse effective de la vallée filtrant les électrons autour de la direction $k_{\parallel}=0$ a été modulée de façon contrôlée. Augmentant sa masse effective, le rayon du collimateur augmente, le filtrage des états de symétrie Δ_1 devient de moins en moins efficace et le magnétocourant d'électrons chauds diminue.

Chapitre IV : Imagerie magnétique

Les mesures de magnétotransport d'électrons chauds présentées au chapitre précédent ont permis de démontrer la possibilité d'obtenir des valeurs de magnétocourant de 500 % à température ambiante dans les structures épitaxiées Fe/Au/Fe/GaAs(001). Tirant profit de la résolution latérale du microscope, nous avons exploité ces effets de magnétoconductance pour réaliser des images magnétiques de microstructures de fer. La stratégie adoptée pour microstructurer l'une des deux électrodes ferromagnétiques est une méthode « nanostencil ». L'une des couches de fer est évaporée à travers un masque présentant des motifs de dimension sub-micrométrique.

Dans ce chapitre nous présenterons tout d'abord la méthode expérimentale mise en œuvre pour réaliser ces images magnétiques, puis la stratégie pour microstructurer l'une des électrodes de fer. Finalement nous discuterons les résultats expérimentaux en s'appuyant sur des simulations micromagnétiques.

IV - 1 – Imagerie magnétique : mise en œuvre expérimentale

La microscopie magnétique à électrons balistiques a été beaucoup utilisée dans son mode spectroscopie pour étudier le magnétotransport d'électrons chauds. Peu de travaux dans la littérature reportent des résultats d'imageries magnétiques [21, 22, 111-113]. Le BEMM présente pourtant un fort potentiel dans ce mode imagerie et peut s'avérer complémentaire aux autres techniques couramment utilisées. Les principaux intérêts du BEMM pour l'imagerie magnétique sont les suivants:

- Sa résolution qui *a priori* est sub-nanométrique. Celle-ci n'a encore jamais été mesurée expérimentalement. En effet, il n'existe que peu d'objets magnétiques présentant une variation de l'orientation de l'aimantation aussi locale permettant de tester cette résolution. Sur ce point, l'imagerie magnétique au sein d'un cœur de vortex pourrait présenter un intérêt.
- La pointe utilisée pour réaliser les images n'est pas magnétique. Elle n'interagira donc pas magnétiquement avec la structure que l'on souhaite étudier.
- Les magnétocontrastes démontrés sont très importants même pour des épaisseurs d'électrodes ferromagnétiques de quelques plans atomiques (MC=450 % à 1 eV pour une épaisseur de Fe₂ de 5 monocouches). Ceux-ci pourront donc être utilisés pour sonder les configurations magnétiques d'une structure dans la limite ultramince.
- La structure à imager peut être enterrée sub-surface.

Au laboratoire, le développement du mode imagerie magnétique du microscope avait débuté lors de la thèse de Sophie Guézo [17] sur des hétérostructures planaires. Des domaines magnétiques (Figure I.12 – paragraphe I - 2.1) et des parois de domaines avaient été observées sur des vannes de spin de type Fe/Au/Fe/GaAs. La Figure IV.1 présente au milieu une image magnétique réalisée sur la structure Au(2 nm)/Fe(1 nm)/Au(3 nm)/Fe(1 nm)/GaAs(001). Pour

réaliser cette image, la pointe balaye la surface à courant tunnel constant, la topographie STM (à gauche) et la cartographie du courant BEEM (au milieu) sont enregistrées simultanément. Afin de s'affranchir des variations locales du courant tunnel lorsque la pointe rencontre les terrasses atomiques sous-jacentes du GaAs, la pointe est arrêtée tous les 3 pixels. La tension tunnel est balayée (typiquement de 1.9 à 2 V). La temporisation de la mesure permet alors de garder le courant tunnel constant (image à droite de la Figure IV.1). Le temps d'acquisition de ce type d'images spectroscopiques est d'environ 60 min. Sur cette zone de $800 \times 600 \text{ nm}^2$, apparaît en bas à droite de la cartographie en courant BEEM une bande sombre (faible courant BEEM) révélant la présence d'une paroi de Néel à 360° .



<u>Figure IV.1</u> : Imagerie magnétique réalisée sur la structure planaire Au(2 nm)/Fe(1 nm)/Au(3 nm)/Fe(1 nm)/GaAs(001) – De gauche à droite sont présentées la topographie STM (800×600 nm²), les images spectroscopiques du courant BEEM et du courant tunnel pour une tension tunnel $U_{gap}=2 V - tirée de$ [17].

Quelques images de ce type avaient été réalisées sur des films minces magnétiques au cours de la thèse de Sophie Guézo mais difficilement reproductibles. En effet, dans un film mince de fer épitaxié, la taille d'un domaine magnétique est de quelques centaines de micromètres carrés. La taille maximale des images autorisée par le scanner du STM est de $1.4 \times 1.4 \ \mu m^2$. La probabilité de trouver dans ces échantillons une paroi de domaine est donc faible et rendue compliquée par le temps d'acquisition d'une telle image. Afin d'utiliser le mode imagerie magnétique du BEMM tout en tirant partie de la résolution latérale du microscope, nous avons donc fait le choix de nous intéresser à des structures magnétiques présentant des dimensions réduites.

IV - 2 – Croissance de plots de fer de dimension submicrométrique

Toujours dans l'optique de travailler sur des surfaces n'ayant jamais vu l'air, la croissance des structures de fer présentant des dimensions réduites a été réalisée *in situ* par évaporation à travers un masque au motif sub-micronique (« nanostencil »). Ce masque en Si_3N_4 (matériau compatible avec l'ultra-vide) microstructuré par faisceau d'ions focalisés (FIB) est positionné sur la surface de l'échantillon. L'un des films de fer est évaporé à travers ce masque formant ainsi une structure ferromagnétique de dimension latérale sub-micrométrique. Le reste de la vanne de spin est ensuite déposé comme précédemment à travers le masque « macroscopique » de diamètre 450 µm.
IV - 2.1 – Caractéristiques géométriques des masques

Les caractéristiques géométriques des masques commerciaux utilisés dans le cadre de cette étude sont présentées sur la Figure IV.2. Ils sont constitués d'une membrane en Si₃N₄ de 900nm d'épaisseur microstructurée par FIB (représentée en noir sur le schéma de droite). La finesse de cette membrane permettra par la suite de s'affranchir d'une éventuelle collimation du faisceau d'atomes au cours des dépôts. Les orifices du masque peuvent être de formes circulaires (450 nm de diamètre) ou allongées (« gélules » de 450 nm×1600 nm). Le masque alterne des bandes ajourées et des zones non amincies permettant le soutien mécanique de la membrane (représentées en violet sur le schéma de droite).

Dans chacune des deux membranes utilisées, les ouvertures sont organisées en réseau hexagonal de paramètre 800 nm pour les trous circulaires et en réseau rectangulaire de pas 1200 et 2400 nm pour les trous en forme de gélules.



Support de membrane Si_3N_4

<u>Figure IV.2</u> : Caractéristiques géométriques des masques utilisés – A gauche, photos du masque réalisées au microscope optique – A droite, schéma présentant une vue de profil du masque : en noir apparaît la membrane de 900 nm d'épaisseur présentant des orifices de quelques centaines de nanomètres de diamètre à travers lesquels l'une des électrodes de fer sera évaporée. En violet est représenté le support de la membrane.

IV - 2.2 – Problématique liée aux effets d'ombrages

Définir un motif de quelques centaines de nanomètres par cette technique d'évaporation à travers un masque n'est pas une chose triviale. Quelques travaux existants dans la littérature ont démontré par des stratégies « nanostencil » la possibilité de nanostructurer une surface avec des motifs de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres [114-118]. Il est en particulier essentiel de maîtriser l'effet d'ombrage. Ceci passe par le contrôle de la distance masque-échantillon. La Figure IV.3 est une représentation schématique de la géométrie dans laquelle se trouve l'échantillon au cours des dépôts. En rouge est représentée la source de largeur w_s à partir de laquelle sont évaporées les électrodes ferromagnétiques. Le masque est positionné à une distance d de l'échantillon et à une distance L de la source. L'orifice du masque à travers lequel est évaporé le fer présente une taille que l'on note w_a . La largeur du motif reporté sur l'échantillon (effets d'ombrages compris) est w_f .



<u>Figure IV.3</u>: Schéma présentant la géométrie dans laquelle se trouve l'échantillon au cours d'un dépôt sous masque.

Dans cette géométrie, la largeur du motif reporté à la surface de l'échantillon w_f est définie par la formule suivante :

(IV.1)
$$w_f = w_a + \frac{d}{L}(w_s + w_a)$$
.

Dans le dispositif expérimental utilisé au cours de ces travaux de thèse, la largeur de la source de fer vaut $w_s=7 mm$, la distance source-masque est d'environ L=120 mm et pour le

masque à orifice circulaire, $w_a = 450 \text{ nm}$. Dans cette configuration la bonne définition d'un motif de 450nm sera très sensible à la distance masque-échantillon d:

- Si $d=1 \mu m$, $w_f=508 nm$, les bords du plot s'étendront sur 30 nm,
- Si $d=2 \mu m$, $w_f=567 nm$, les bords du plot s'étendront sur 60 nm,
- Si $d=10 \ \mu m$, $w_f=1033 \ nm$, les bords du plot s'étendront sur 300 nm,
- Si $d=50 \ \mu m$, $w_f=3366 \ nm$, les bords du plot s'étendront sur 1450 nm. Avec une telle distance masque-échantillon, la microstructuration de la surface devient rédhibitoire : pour le masque à motif circulaire, la distance bord à bord des plots est de 450 nm. Les structures déposées sur la surface seront donc interconnectées les unes aux autres.

Dans le but de définir précisément les motifs à la surface de l'échantillon, il est donc important que le masque soit en contact direct avec le substrat. Une pelle porte masque transférable a donc été développée au laboratoire. Cette pelle est positionnée sur le porte échantillon *in-situ* dans l'enceinte ultra-vide avant le dépôt de l'électrode de fer microstructurée. Les cotes de cette pelle ont été choisies de manière à ce que la surface de la membrane forme un contact plan à plan avec la surface de l'échantillon. Les dépôts sont ensuite réalisés en incidence normale.

IV - 2.3 – Caractérisation des plots de fer déposés à travers les masques

Afin de caractériser la morphologie d'une électrode de fer microstructurée par la méthode du nanostencil, des plots de fer circulaires de 450 nm de diamètre ont été déposés sur un substrat de GaAs(001). La Figure IV.4 présente une étude STM à grande échelle $(1.4 \times 1.4 \ \mu\text{m}^2)$ de la croissance de ces structures. En haut est montrée la topographie STM réalisée sur la structure Fe(4 nm – Plots)/GaAs(001). Un réseau hexagonal de plots circulaires de fer d'environ 600 nm de diamètre apparaît sur cette image. Nous pouvons distinguer sur le GaAs, des terrasses atomiques d'une centaine de nanomètres de large orientées perpendiculairement à la direction des lignes de dimères d'arsenic, $[1-10]_{GaAs}$. En bas à gauche de cette figure est présentée une topographie STM réalisée sur cette même structure après le dépôt pleine plaque de 4 nm d'or. A droite apparaît un profil de la topographie réalisé sur cette image le long d'un plot de fer (flèche noire sur la topographie STM). Ce profil révèle un gradient d'épaisseur en bord de plot s'étendant sur 70nm de large pour ce dépôt.



<u>Figure IV.4</u>: Croissance d'une électrode de fer microstructurée évaporée à travers un masque – En haut, topographie STM réalisée sur l'hétérostructure Fe(4nm – plot circulaire)/GaAs(001)
(1.4×1.4 μm² – I_i=2.8 nA – U_{gap}=-2.3 V) – En bas à gauche, topographie STM réalisée sur la même structure après dépôt d'un film mince d'or (1.4×1.4 μm² – I_i=0.9 nA – U_{gap}=0.548 V) – En bas à droite, profil obtenu sur un plot de fer repéré par la flèche noire sur l'image STM

La Figure IV.5 présente un second exemple de dépôt typique de 1nm de Fe sur GaAs(001) conduisant à une meilleure définition du motif déposé. Dans le coin inférieur droit de cette image, on distingue la surface nue du substrat de GaAs, caractérisée par les lignes de dimères d'arsenic orientées dans la direction $[1-10]_{GaAs}$. Les premiers îlots monoatomiques de fer apparaissent en bord du plot, nucléant préférentiellement entre les lignes de dimères. L'épaisseur de fer varie de 0 à 1 nm, soit l'épaisseur nominale déposée, sur une bande de 30 nm de large. Ceci correspond à la meilleure définition des plots obtenue dans cette étude.



<u>Figure IV.5</u>: Topographie STM réalisée au bord d'un plot de 1 nm de fer déposé sur GaAs (150 nm×100 nm – I_t =0.02 nA – U_{gap} =-3.15 V).

Finalement, cette méthode de microstructuration peu coûteuse (un masque coûte de l'ordre de 50 € et peut être utilisé pour réaliser jusqu'à 10 dépôts) permet de définir de manière routinière des motifs sub-micrométriques présentant des bords allant de 30 à 70 nm. Notons qu'une partie de ce bord n'est pas ferromagnétique. En-dessous de 3 ML, le fer est superparamagnétique à température ambiante, ainsi, considérant une structure de 1nm d'épaisseur :

- Si la largeur du bord est de 30 nm, la partie superparamagnétique de la structure s'étendra sur 13 nm.
- Si la largeur du bord est de 50 nm, la partie superparamagnétique de la structure s'étendra sur 21.5 nm.
- Si la largeur du bord est de 80 nm, la partie superparamagnétique de la structure s'étendra sur 34.5 nm.

Dans la suite de ce chapitre, les configurations magnétiques de ces plots de fer seront étudiées par microscopie magnétique par émission d'électrons balistiques. Deux cas seront distingués, tout d'abord la microstructuration de l'électrode inférieure Fe₁, puis la microstructuration de l'électrode supérieure Fe₂.

IV - 3 – Microstructuration de l'électrode inférieure Fe₁

Afin d'étudier les configurations magnétiques d'une électrode inférieure de fer microstructurée, des plots circulaires de fer de 1 nm d'épaisseur ont été déposés à la surface d'un substrat de GaAs. Afin d'assurer la même relation d'épitaxie pour l'espaceur d'or sur les plots de fer et sur le GaAs en dehors des plots, 1.5 ML de fer a ensuite été déposée en film

mince. Dans la mesure où pour une aussi fine épaisseur, le fer est superparamagnétique, les plots de fer circulaires ne seront pas couplés magnétiquement entre eux. Finalement, le reste de la structure : 6 nm d'or, 1 nm de fer puis 2.2 nm d'or ont été évaporés. L'épaisseur de l'espaceur d'or a volontairement été augmentée par rapport à l'étude présentée au Chapitre III. Ceci permet d'assurer un découplage magnétique entre les deux électrodes de fer. La structure étudiée est donc la suivante :

Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(6 nm)/Fe(1.5 ML)/Fe(1 nm - Plots)/GaAs(001)

Rappelons que dans cette structure, les axes de faciles aimantations des deux électrodes ferromagnétiques coïncident, ils sont orientés parallèlement à la direction $[110]_{GaAs}$ (paragraphe II - 3.2.3).

La Figure IV.6 présente en haut la topographie STM réalisée sur cette structure. Cette image sur laquelle nous pouvons repérer 4 plots de fer sous-jacents mesure $1.4 \times 1.2 \ \mu m^2$. Ces microstructures présentent des bords de 30 nm de large. En dessous, à gauche est présentée la cartographie du courant BEEM réalisée simultanément avec la topographie STM pour une tension tunnel de 1.6 V et un champ magnétique nul. Cette cartographie est une image spectroscopique, la pointe a été arrêtée tous les 5 pixels, soit tous les 17.5 nm pour enregistrer une courbe de spectroscopie de 1.5 à 1.6 V. Le contraste du courant BEEM observé sur cette image permet de repérer les quatre plots de fer présents sur cette zone de l'échantillon. Les deux plots du bas présentent un contraste clair, soit un état de fort courant BEEM. Leur aimantation est parallèle à l'aimantation de l'électrode supérieure. Les deux plots du haut présentent un contraste sombre, soit un état de faible courant BEEM, leur aimantation est antiparallèle à l'aimantation de l'électrode supérieure (schémas présentés en dessous de la cartographie du courant BEEM).

A la suite de l'acquisition de cette image, un faible champ magnétique (~0.1 mT) a été appliqué dans la direction [110]_{GaAs}, soit l'axe de facile aimantation pour les deux électrodes ferromagnétiques. L'image présentée à droite sur la ligne du milieu a alors été enregistrée sous champ sur la même zone de l'échantillon. Celle-ci révèle une inversion du contraste magnétique par rapport à la cartographie précédente. Les deux plots du bas qui étaient parallèles sont maintenant antiparallèles à l'aimantation de l'électrode supérieure (contraste sombre). Inversement, les deux plots du haut qui étaient antiparallèles, sont maintenant parallèles à l'aimantation de l'électrode supérieure (contraste clair). Le faible champ magnétique appliqué dans l'axe [110]_{GaAs} a donc permis le renversement de l'aimantation de l'électrode supérieure.



Cartographies du courant BEEM à U_{gap} = 1.6 V



Les cartographies du courant BEEM réalisées sur cette structure révèlent une configuration magnétique monodomaine des plots de fer circulaires. En effet, la très forte anisotropie magnétocristalline uniaxiale présente à l'interface Fe/GaAs (K_u^{eff} =107.1 kJ.m⁻³ – Paragraphe II - 2.1) favorise cette configuration magnétique. Les simulations micromagnétiques confirment cet état monodomaine. L'étude du processus de renversement de l'aimantation dans ces microstrustructures n'est pas envisageable dans cette structure. En effet, rappelons que le champ d'anisotropie de cette couche de fer en contact avec le GaAs est très important : 150 mT. Les champs coercitifs de ces plots de fer monodomaines sont donc également très importants si bien qu'avec les champs magnétiques disponibles dans notre dispositif expérimental nous sommes dans l'incapacité de renverser leur aimantation.

IV - 4 – Microstructuration de l'électrode supérieure Fe₂

Comme on s'y attend, la très forte anisotropie magnétocristalline uniaxiale à l'interface Fe/GaAs rend les microstructures monodomaines. Cette uniaxialité de Fe₁ peut être utilisée pour fixer la direction de l'aimantation de l'analyseur. Ainsi nous avons choisi dans cette partie de déposer un film mince de fer de 1.2nm d'épaisseur pour l'électrode inférieure. Son axe de facile aimantation est orienté parallèlement à l'axe $[110]_{GaAs}$. La microstructuration se fera sur l'électrode supérieure Fe₂, laquelle sera susceptible de présenter des domaines magnétiques. Nous traiterons le cas de structures magnétiques présentant une anisotropie de forme avec un rapport d'aspect 3.5 (forme de « gélules »).

L'étude des trois hétérostructures suivantes sera présentée :

Structure A

 $Au(2 nm)/Fe(1 nm - g\acute{e}lule//[110]_{GaAs})/Au(6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)$

Structure B

Au(2 nm)/Fe(1 nm - gélule//[1-10]_{GaAs})/Au(6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)

Structure C

Fe(1 nm - gélule//[1-10]_{GaAs})/Au(6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)

IV - 4.1 – Plots en forme de « gélules » déposés avec un grand axe parallèle à la direction [110]_{GaAs}: Structure A.

La structure suivante (nommée structure A) a été étudiée en microscopie magnétique par émission d'électrons balistiques :

 $Au(2.2 \text{ nm})/Fe(1 \text{ nm} - gélule//[110]_{GaAs})/Au(6 \text{ nm})/Fe(1.2 \text{ nm})/GaAs(001).$

Les plots déposés présentent une forme de « gélules » avec un grand axe de 1.6 μ m et un petit axe de 450 nm. Ces microstructures ont été déposées avec un grand axe orienté dans la direction [110]_{GaAs} de facile aimantation de l'analyseur.

Les images magnétiques réalisées sur cette structure révèlent une configuration monodomaine des microstructures. L'anisotropie de forme de ces plots de fer aura tendance à orienter l'aimantation parallèlement à l'axe $[110]_{GaAs}$. Cette direction est également un axe de facile aimantation pour Fe₂ du point de vue de l'anisotropie magnétocristalline (paragraphe II - 3.2.3). L'aimantation dans ces plots de fer est donc orientée selon l'axe $[110]_{GaAs}$.

La Figure IV.7 présente en haut la topographie STM (à gauche) et la cartographie du courant BEEM (à droite) réalisées simultanément. Ces images font $1.4 \times 1.2 \ \mu m^2$ et ont été réalisées pour une tension tunnel de 1.5 V. Sur cette zone de l'échantillon, deux plots de fer apparaissent. Celui de gauche présente un contraste clair, soit un état de fort courant BEEM, son aimantation est parallèle à l'aimantation de l'électrode inférieure. Le plot à droite de l'image présente un contraste sombre, soit un état de faible courant BEEM, son aimantation est antiparallèle à l'aimantation de Fe₁¹. Afin d'évaluer précisément le magnétocontraste observé sur cette image, des courbes de spectroscopies BEEM ont été réalisées sur le plot dans l'état parallèle (courbe rouge sur le graphique en bas à gauche de la figure) et sur le plot dans l'état antiparallèle (courbe noire). Le graphique en bas à droite présente l'évolution du magnétocourant vaut 315 %, en accord avec des mesures réalisées sur une vanne de spin identique non microstructurée. Celui-ci est légèrement inférieur à celui mesuré sur la structure planaire étudiée au Chapitre III (structure 2) à la même énergie. La diminution du magnétocourant est due à l'augmentation de l'épaisseur de l'espaceur d'or.

¹ Les magnétocontrastes relevés sur cette cartographie semblent moins prononcés que ceux observés sur les images de la Figure IV.6. Ceci est purement un effet d'échelle de couleur. En effet, dans la structure où l'électrode supérieure est microstructurée, la hauteur de barrière Schottky est définie par le contact Fe/GaAs et est donc homogène sur la totalité de l'image. Lorsque c'est l'électrode inférieure qui est microstructurée, le contact Schottky est défini par l'interface Fe/GaAs sur les plots et par l'interface Au/GaAs en dehors des plots. La hauteur de barrière Schottky Au/GaAs étant légèrement supérieure à la hauteur de barrière du contact Fe/GaAs, le courant BEEM collecté entre les plots pour une microstructuration de Fe₂ est donc plus important que pour une microstructuration de Fe₁. Le magnétocontraste observé sur la Figure IV.7 semble donc moins prononcé que celui observé sur la Figure IV.6.



<u>Figure IV.7</u>: En haut, topographie STM (à gauche) et cartographie du courant BEEM (à droite) réalisées sur la structure Au(2.2 nm)/Fe(1 nm – Plots)/Au(6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) ($1.4 \times 1.2 \mu m^2$ – $I_i=20$ nA – $U_{gap}=1.5$ V). Sur la cartographie du courant BEEM, le plot de gauche présente un état de fort courant BEEM, son aimantation est parallèle à l'aimantation de Fe₁. Le plot de droite présente un état de faible courant BEEM, son aimantation est antiparallèle à l'aimantation de Fe₁ – En bas, courbes de spectroscopies BEEM réalisées sur les deux types de plots (à gauche) et évolution du magnétocourant en fonction de l'énergie associée à ces deux courbes (à droite).

IV - 4.2 – Plots en forme de « gélules » déposés avec un grand axe parallèle à la direction [1-10]_{GaAs}.

Dans un second temps, nous avons déposé ces plots avec un grand axe orienté perpendiculairement à la direction $[110]_{GaAs}$, introduisant une compétition entre l'anisotropie magnétocristalline et l'anisotropie de forme et favorisant l'existence éventuelle d'une configuration en domaines magnétiques au sein des microstructures de fer.

IV - 4.2.1 – Résultats expérimentaux obtenus sur la structure B

Dans la structure B les plots de fer de 1 nm d'épaisseur sont déposés comme électrode supérieure avec un grand axe parallèle à la direction $[1-10]_{GaAs}$. Il sont recouvert d'une couche

d'or. Une compétition entre l'anisotropie magnétocristalline et l'anisotropie de forme est attendue, les expériences d'imageries magnétiques ont démontré une nouvelle fois une configuration magnétique monodomaine. Pour interpréter ces observations expérimentales nous avons mené une analyse à partir de simulations micromagnétiques. Utilisant le code libre Framework) OOMMF (Object Oriented Micromagnetic [119], des simulations micromagnétiques ont été effectuées. Pour des détails sur le principe des simulations micromagnétiques et les paramètres utilisés, le lecteur pourra se référer à l'annexe. Les simulations montrent que la configuration magnétique la plus stable est monodomaine avec l'aimantation qui s'oriente parallèlement au grand axe du plot, à savoir, la direction difficile pour Fe₂, [1-10]_{GaAs}. Ces simulations sont en bon accord avec les observations expérimentales. Dans cette microstructure, l'anisotropie de forme (E_d) l'emporte sur l'anisotropie magnétocristalline (E_{MC}). Une analyse des principaux termes énergétiques rentrant en compte dans la stabilisation de cette configuration magnétique permet de comprendre cette prédominance de l'anisotropie de forme sur l'anisotropie magnétocristalline.



<u>Tableau IV.1</u>: Valeurs des énergies démagnétisante et magnétocristalline calculées dans les configurations monodomaines avec l'aimantation parallèle à l'axe $[110]_{GaAs}$ ou parallèle à l'axe $[1-10]_{GaAs}$.

Le tableau IV.1 présente les valeurs des énergies démagnétisante E_d et magnétocristalline E_{MC} calculées dans des configurations monodomaines où l'aimantation est orientée parallèlement à l'axe [110]_{GaAs} (soit selon la direction facile) ou parallèlement à l'axe [1-10]_{GaAs} (soit selon le grand axe du plot)¹.

- Dans le premier cas (colonne de gauche du tableau IV.1), l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est minimisée et l'énergie démagnétisante est maximisée.
- Dans le second cas (colonne de droite du tableau IV.1), l'énergie démagnétisante est minimisée et l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est maximisée.

¹ Ces deux configurations magnétiques ont été figées et permettent de s'intéresser aux ordres de grandeurs des énergies.

Nous pouvons effectuer une comparaison de chacun de ces deux termes énergétiques dans ces deux configurations magnétiques extrêmes. La minimisation de E_d amène un abaissement important de l'énergie totale : de 6 kJ.m⁻³, alors qu'une minimisation de E_{MC} , engendre une faible diminution de l'énergie totale. Dans cette structure l'anisotropie magnétocristalline est extrêmement faible (K_1^{eff} =-2 kJ.m⁻³ et K_u^{eff} =2.73 kJ.m⁻³), il est donc tout à fait prévisible d'observer une configuration monodomaine où l'aimantation s'oriente parallèlement au grand axe du plot.

IV - 4.2.2 - Résultats expérimentaux obtenus sur la structure C

Sur un même échantillon réalisé dans l'enceinte STM-BEEM, il est possible de préparer des zones capées or (structure B) et non capées or (structure C). Les mesures expérimentales réalisées sur ces plots de fer non capés or révèlent une structure en domaines magnétiques. La Figure IV.8 présente la topographie STM (à gauche) et la cartographie du courant BEEM (à droite) enregistrées simultanément à 2.1 eV sur cette structure C. Sur la cartographie du courant BEEM apparaissent au sein de la microstructure différents contrastes. Les zones sombres (faible courant) révèlent un fort désalignement entre les deux électrodes ferromagnétiques. Les zones claires (fort courant BEEM) mettent en évidence un faible désalignement relatif entre les deux électrodes ferromagnétiques. Cette cartographie du courant BEEM démontre la présence de quatre domaines magnétiques et trois parois de domaines au sein de la microstructure de fer.



<u>Figure IV.8</u>: Topographie STM (a) et cartographie du courant BEEM (b) enregistrées simultanément sur un plot de fer de la structure C ($U_{gap}=2.1 V - I_t=20 nA - 1.4 \times 1.4 \mu m^2$) – La cartographie du courant BEEM révèle une structure en domaines magnétiques au sein de ce plot de fer.

Influence de la couche protectrice d'or sur l'anisotropie magnétocristalline de Fe2

L'observation d'une structure en domaines magnétiques semble donc conditionnée par la suppression de la couche protectrice d'or. En effet, l'épaisseur de fer de Fe₂ avec laquelle nous avons fait le choix de travailler est très proche de l'épaisseur critique où la constante d'anisotropie magnétocristalline effective biaxiale est nulle (Figure II.10 – paragraphe II - 2.2). La présence ou non d'une couche protectrice d'or peut significativement influencer la valeur de K_1^{eff} , modifiant son signe et les directions de facile aimantation de l'électrode supérieure. Des mesures de magnétotransport d'électrons chauds ont été effectuées sur la structure planaire (non microstructurée) suivante :

Fe(1 nm)/Au(2.5 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001)

Ces expériences ont permis la mise en évidence d'une importante diminution du magnétocourant d'électrons chauds par rapport aux mesures effectuées sur la même structure recouverte d'une couche protectrice d'or. En particulier, passant de l'hétérostructure planaire capée or à non capée or, le magnétocourant d'électrons diminue de 370 % à 240 % à 1.3 eV au-dessus du niveau de Fermi.

	Structure planaire capée or	Structure planaire non capée or
MC à 1.3 eV	370 % (MC ₁₈₀)	240 % (MC*)
$arPhi_{l,2}$	0 °	33 °
$K_{I}^{e\!f\!f}$	-2 kJ.m ⁻³	8±2 kJ.m ⁻³
Axes faciles	[110] _{GaAs}	à 33 ° de [110] _{GaAs}

Tableau IV.2: Mesures de magnétotransport d'électrons chauds dans la structureFe(1 nm)/Au(2.5 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) capée or et non capée or – Ces valeurs ont étéréinjectées dans l'équation (III .7) pour en déduire le désalignement $\Phi_{1,2}$ entre les deux électrodes defer – A partir de la mesure expérimentale de $\Phi_{1,2}$, la constante d'anisotropie magnétocristallinebiaxiale K_1^{eff} a été évaluée.

Le tableau IV.2 résume les mesures expérimentales de magnétotransport d'électrons chauds réalisées sur les deux structures capées et non capées or :

- <u>Structure capée or</u>: La constante d'anisotropie magnétocristalline biaxiale de l'électrode supérieure vaut -2 kJ.m⁻³ (paragraphe II 2.2) [88], son axe de facile aimantation est confondue avec l'axe facile de l'analyseur : [110]_{GaAs}. Le magnétocourant mesuré vaut 370 % à 1.3 eV et correspond à une variation de l'angle entre aimantations de 180 ° entre les deux états magnétiques.
- <u>Structure non capée or</u>: Le magnétocourant d'électrons chauds mesuré sur cette structure est de 240 %. Cette large diminution des effets de magnétoconductance est associée à des variations d'anisotropie magnétique de l'électrode supérieure en supprimant le cap d'or. Connaissant *MC*₁₈₀ (mesuré sur la structure A capée or),

nous avons déterminé l'angle $\Phi_{1,2}$ entre les aimantations des deux électrodes de fer à champ nul à partir de l'expression (III .7)¹: $\Phi_{1,2}$ vaut 33°, les axes de facile aimantation de cette électrode supérieure de fer sont donc orientés à 33° de l'axe [110]_{GaAs}. Le magnétocourant de 240 % mesuré correspond donc à une variation de 114° du désalignement entre Fe₁ et Fe₂ d'un état magnétique à l'autre. A partir de cette mesure, la constante d'anisotropie magnétocristalline biaxiale K_1^{eff} associée à ce film de fer non capé or a été évaluée entre 6 et 10 kJ.m⁻³.

Ce que l'on peut conclure ici, c'est que le cap d'or tend à réduire la constante d'anisotropie K_I^{eff} . Pour interpréter ces résultats, rappelons que la constante d'anisotropie magnétocristalline effective biaxiale s'exprime en fonction d'une constante associée au volume et aux interfaces (surfaces) (paragraphe II - 2.1) :

(IV .2)
$$K_1^{eff} = K_1^v + \frac{K_1^i + K_1^s}{d}$$
.

La constante K_I^{ν} est positive alors que les composantes K_I^{i} et K_I^{s} sont négatives et peu sensibles avec les atomes d'or [87, 120]. Ainsi, si le dépôt d'or introduit des modifications importantes de l'anisotropie, cela implique que l'épaisseur effective de matière magnétique diminue, lorsque l'or est déposé sur le fer. En d'autres termes, ceci suggère qu'un phénomène d'interdiffusion entre l'or et le fer pourrait prendre place. Des études STM de la croissance de Au/Fe(001) montrent que des phénomènes d'interdiffusion peuvent prendre place dans ce système [121]. Une analyse quantitative montre qu'il faut une variation relative de l'épaisseur de 15 à 20 % pour expliquer nos résultats. Cela correspond à une variation d'environ un plan atomique.

$$MC_{180} = \frac{MC^*}{\sin^2(\frac{\Phi_{1,2}^f}{2}) - (MC^* + 1)\sin^2(\frac{\Phi_{1,2}^i}{2})}, \text{ dans le cas où les angles } \Phi_{1,2}^i \text{ et } \Phi_{1,2}^{i}$$

¹Rappelons l'expression (III .7) :

sont complémentaires, celle-ci se simplifie de la manière suivante : $MC_{180} = \frac{MC*}{\sin^2(\frac{\pi - \Phi_{1,2}}{2}) - (MC*+1)\sin^2(\frac{\Phi_{1,2}}{2})}$



<u>Figure IV.9</u>: Compétition entre l'anisotropie de forme et l'anisotropie magnétocristalline dans le cas de plots de fer non capés or déposés avec un grand axe perpendiculaire à la direction [110]_{GaAs} – La densité d'énergie magnétocristalline a été calculée pour les valeurs suivantes des constantes d'anisotropie : K₁^{eff}=8 kJ.m⁻³ et K_u^{eff}=2.73 kJ.m⁻³, l'axe facile de Fe₂ est orienté à 33 ° de la direction [110]_{GaAs} (axe de l'analyseur).

Analyse quantitative du magnétocontraste

Dans ces microstructures de fer, la compétition entre l'anisotropie de forme et l'anisotropie magnétocristalline conduit à une orientation de l'aimantation dans un axe intermédiaire entre les directions minimisant les énergies démagnétisante et magnétocristalline (respectivement à 90 ° et 33 ° de $[110]_{GaAs}$ (Figure IV.9)). Afin de déterminer l'orientation de l'aimantation dans les domaines magnétiques apparaissant en clair et en sombre sur l'image BEEM, nous avons analysé quantitativement le magnétocourant entre ces deux types de domaines.

(i) <u>Orientation de l'aimantation au sein des microstructures de fer</u>

La Figure IV.10 présente des mesures de spectroscopies BEEM (à gauche) réalisées dans une zone sombre (spectre noir) et claire (spectre rouge) de l'image magnétique présentée en insert. A droite de cette figure, apparaît l'évolution du magnétocontraste en fonction de l'énergie des électrons. A 1.6 eV au-dessus du niveau de Fermi, le magnétocourant vaut 140 %. A cette même énergie, le magnétocourant MC_{180} entre deux plots strictement parallèles et antiparallèles vaut 280 % sur la structure A. L'expression (III .7) permet de déduire de ces résultats que l'aimantation dans les domaines observés est orientée à 45 ° de la

direction de l'analyseur. On a donc deux axes de facile aimantation dans la gélule à 45 ° de l'axe [110]_{GaAs} soit dans des directions de type $<100>_{Fe}$. Au final, l'introduction de l'anisotropie de forme par microstructuration a provoqué une rotation de 12 ° des axes faciles de Fe₂ vers le grand axe de la gélule.



<u>Figure IV.10</u>: A gauche, courbes de spectroscopies BEEM réalisées sur un plot de fer, dans une zone claire (en rouge) et dans une zone sombre (en noir) – A droite, évolution du magnétocontraste en fonction de l'énergie des électrons – A 1.6 eV au-dessus du niveau de Fermi, le magnétocourant vaut 140 %.

(ii) <u>Analyse quantitative du profil de paroi</u>

La Figure IV.11(b) présente en noir un profil du courant BEEM mesuré le long de la paroi de domaine repérée par la flèche blanche sur l'image magnétique (Figure IV.11(a)). Dans les zones de fort désalignement, le courant BEEM vaut 8 pA. Dans les zones de faible désalignement, il vaut 16 pA. Le magnétocontraste entre les domaines magnétiques est de 100 % à 2.1 eV et la paroi de Néel les séparant s'étend sur 130 nm. Ce profil en courant BEEM peut, comme précédemment, être converti en profil angulaire de l'orientation de l'aimantation (référencé à la direction [110]_{GaAs} de l'analyseur) en inversant la relation (III .7):

(IV.3)
$$\Phi_{1,2} = 2 \arcsin\left[\sqrt{\frac{1}{MC_{180}}\left[\frac{I_c^p}{I_c(\Phi_{1,2})} - 1\right]}\right].$$

Ce profil angulaire expérimental $\Phi_{1,2}(x)$ est représenté par les symboles ronds violets sur le graphique de la Figure IV.11(b) et révèle une paroi de Néel à 90 °.



<u>Figure IV.11</u>: (a) Cartographie du courant BEEM obtenue à 2.1 eV sur le plot d'intérêt – (b) En noir est représenté le profil du courant BEEM (échelle des ordonnées à droite) mesuré à travers la paroi de domaines repérée par la flèche blanche sur l'image – En violet est représenté le profil déduit des mesures expérimentales (symboles ronds) et des simulations micromagnétiques (trait plein) de l'angle $\Phi_{1,2}$ que fait l'aimantation de Fe₂ relativement à Fe₁ à travers cette paroi de domaines (échelle des ordonnées à gauche) – (c) – (d) Configuration magnétique et cartographie du courant BEEM simulées correspondantes à l'image expérimentale.

Simulations micromagnétiques et analyse des configurations magnétiques

(i) <u>Microstructure à quatre domaines magnétiques</u>

Des simulations micromagnétiques ont été effectuées sur cette microstructure en forme de « gélule ». La configuration magnétique a été initialisée avec quatre domaines orientés à 90 ° les uns des autres. Le résultat de cette simulation est présenté sur la Figure IV.11(c). Celle-ci révèle une configuration de l'aimantation en zig-zag. Un profil de l'orientation de l'aimantation relativement à la direction $[1-10]_{GaAs}$ (direction de l'analyseur) le long d'une paroi de domaines a été extrait de cette simulation. Celui-ci est représenté en trait plein violet sur le graphique de la Figure IV.11(b). Il se superpose remarquablement au profil déduit des mesures expérimentales sans l'utilisation de paramètres ajustables. Cette technique d'imagerie magnétique apparait donc comme une méthode quantitative. A partir de l'analyse d'un

magnétocontraste sur une image magnétique nous sommes en mesure de connaître l'orientation de l'aimantation dans une microstructure.

Inversement, il est possible, à partir d'une simulation micromagnétique (Figure IV.11(c)) de calculer un courant BEEM et donc obtenir une cartographie du courant BEEM simulée (Figure IV.11(d)). Celle-ci reproduit de façon conforme l'image expérimentale, excepté pour le contraste observé sur les bords de la microstructure ou d'autres effets liés au gradient d'épaisseur non pris en considération dans les simulations micromagnétiques vont rentrer en jeu.

(ii) <u>Analyse du contraste BEEM observé sur les bords des microstructures</u>

Sur la cartographie expérimentale présentée Figure IV.11(a), le contraste BEEM est homogène à l'intérieur de chaque domaine magnétique. En revanche, en bord de plot, sur environ 80nm, des différences notables apparaissent. Celles-ci sont clairement mises en évidence sur la cartographie du courant BEEM présentée sur la Figure IV.12. Divers arguments permettent d'expliquer cette variation du contraste en bordure de plot. De manière générale le courant BEEM doit augmenter lorsque l'épaisseur de fer traversée diminue en bord de plot. Cet argument permet d'expliquer une partie du contraste BEEM relevé sur les bords de la microstructure mais ne suffit pas à la compréhension globale des observations expérimentales. En particulier, s'appuyant sur la cartographie présentée sur la Figure IV.12, deux points sont à noter :

- En bord de structure, nous observons une première couronne extérieure. Celle-ci s'étend sur une vingtaine de nanomètres. Dans cette couronne le courant BEEM est homogène sur tout le contour du plot. Ce contraste n'est donc *a priori* pas d'origine magnétorésistif. Dans cette première couronne d'une vingtaine de nanomètres de large, l'épaisseur de Fe₂ est typiquement inférieure ou égale à trois monocouches et le fer est superparamagnétique.
- Une seconde couronne interne, entre les lignes pointillées blanches de la Figure IV.12 s'étend sur environ cinquante nanomètres. Le contraste en courant BEEM qu'elle révèle n'est pas homogène sur la totalité du contour du plot. Autour des domaines magnétiques apparaissant en sombre sur l'image, le courant BEEM est presque aussi faible qu'à l'intérieur des domaines. Autour des domaines apparaissant en clair sur l'image, le courant est plus important qu'à l'intérieur du domaine. L'origine de ce contraste est donc magnétique et peut s'expliquer d'une part, par un changement de signe de la constante d'anisotropie magnétocristalline biaxiale et donc une rotation des axes de facile aimantation lorsque l'épaisseur de fer diminue. D'autre part, du fait du gradient d'épaisseur, il est possible qu'en bord de structure apparaisse une contribution magnétocristalline uniaxiale additionnelle [122]. Ces deux effets pourraient avoir tendance à faire sortir (ou rentrer) l'aimantation du grand axe du plot et donc à l'aligner soit parallèlement, soit antiparallèlement à l'axe de l'analyseur. Cet argument peut expliquer l'augmentation du magnétocontraste dans cette zone.



<u>Figure IV.12</u> : Cartographie du courant BEEM réalisée en bas à gauche de la microstructure présentée sur la Figure IV.8 – Cette image permet de révéler le contraste observé en bordure de plot $(800 \times 800 \text{ nm}^2 - I_i = 20nA - U_{gap} = 2.1eV).$

(iii) Autres configurations magnétiques observées

Sur ce même échantillon, sur un échantillonnage d'une trentaine de microstructures imagées, en plus de la configuration quadri-domaines, des états mono-, bi- et tri-domaines ont été observés (images présentées en haut de la Figure IV.13). Dans ces images, les contrastes clairs / sombres sont identiques à ceux observés précédemment sur la structure quadridomaines. L'aimantation dans ces domaines est donc une nouvelle fois selon des axes de type <100>Fe. Les simulations micromagnétiques ont permis de démontrer que ces quatre configurations magnétiques sont les plus stables énergétiquement pour ce système. Le graphique présenté en bas de la Figure IV.13 montre l'évolution de l'énergie totale associée à chacune de ces configurations en fonction du nombre de parois de domaines. Il apparaît que ces divers états magnétiques dans ces microstructures sont proches énergétiquement. Le minimum absolu est observé pour la configuration bi-domaines. Seul 0.05 kJ.m⁻³ (soit 540 meV pour le volume de la gélule) sépare l'état bi-domaines de l'état quadri-domaines (configuration magnétique la moins stable énergétiquement parmis les quatre observées). Notons par ailleurs que cette configuration à quatre domaines magnétiques n'a été imagée que sur une seule microstructure. Les états mono-, bi- et tri-domaines de moindre énergie d'après les simulations ont été observés de façon beaucoup plus fréquente sur la trentaine de plots échantillonnés.



<u>Figure IV.13</u> : En haut, quatre types de configurations magnétiques observées pour ces microstructures de fer (mono, bi, tri, et quadri-domaines) – En bas, évolution de l'énergie totale associée à ces quatre configurations en fonction du nombre de parois de domaines.

IV - 5 – Bilan : Imagerie magnétique

Cette étude BEMM des configurations magnétiques de microstructures de fer épitaxiées, a mis en avant les capacités expérimentales de ce microscope en termes d'imagerie magnétique. La très forte sensibilité du courant BEEM à l'orientation relative de l'aimantation entre les deux électrodes relevée au chapitre précédent a été utilisée pour imager des domaines magnétiques dans des plots de fer en forme de gélules. Dans ces microstructures, des domaines magnétiques séparés par des parois de Néel à 90 ° ont été imagés. L'analyse du magnétocontraste relevé sur les images magnétiques a permis de déterminer l'orientation de l'aimantation au travers d'une paroi de domaines. Ce profil déduit des mesures expérimentales est en très bon accord avec les simulations micromagnétiques et permet de démontrer le caractère quantitatif de cette technique d'imagerie. A partir de l'analyse du

contraste magnétique dans une cartographie du courant BEEM, nous sommes en mesure de connaître l'orientation de l'aimantation au sein de la structure avec une haute résolution spatiale.

IV - 6 – Perspectives de l'étude

L'étude présentée dans ce chapitre ouvre la voie à une technique d'imagerie magnétique quantitative et de haute résolution. Divers travaux sont en cours dans la continuité de cette étude.

IV - 6.1 – Détermination de la résolution du microscope : le vortex

Des travaux de microscopie par émission d'électrons balistiques réalisée sur objets non magnétiques ont déjà permis de démontrer la résolution sub-nanométrique de la technique en révélant la périodicité atomique d'une interface de CoSi₂/Si reconstruite [123]. Dans le cas de l'étude de structures magnétiques (BEMM), la mise en évidence expérimentale d'une telle résolution n'est pas une chose triviale et doit passer par l'étude d'un système où la variation spatiale de l'orientation de l'aimantation est très rapide. Les travaux présentés dans le chapitre IV de ce manuscrit ont permis l'observation de parois de domaines de 130 nm de large sans élargissement expérimental. Pour ce système, nous ne sommes pas encore limités par la résolution de microscope. L'objet magnétique qui pourrait présenter un réel intérêt afin de tester la résolution du BEMM serait le vortex. En effet, des images magnétiques réalisées au cœur d'un vortex où l'orientation de l'aimantation varie très rapidement sur moins d'une dizaine de nanomètres permettraient l'évaluation de la résolution de l'appareil. L'une des difficultés majeure pour cette expérience est la stabilisation d'un état vortex tout en gardant une épaisseur pour l'électrode microstructurée raisonnablement faible.

La Figure IV.14 tirée de [124] présente le diagramme de phase définissant la frontière entre les configurations magnétiques monodomaines et vortex dans une structure de forme circulaire. Cette frontière est définie pour différentes valeurs de constante d'anisotropie magnétocristalline uniaxiale. Le diamètre et l'épaisseur du disque sont exprimés en unité de longueur d'échange. Celle-ci est comprise entre 2.5 et 3.3 nm dans le fer. Pour une hétérostructure Au(2.2 nm)/Fe(1 nm)/Au(6 nm)/Fe(1.2 nm)/GaAs(001) dans laquelle l'électrode supérieure est microstructurée par des plots circulaires de 450 nm de diamètre, l'anisotropie magnétocristalline de Fe₂ sera purement uniaxiale avec $K_{\mu}^{eff}=2.73 \ kJ.m^{-3}$. Ces disques de fer ont été placés sur le diagramme de phase de la Figure IV.14 et sont représentés par un point rouge. La frontière définissant la limite monodomaine - vortex sera positionnée entre la courbe rouge ($K_{\mu}^{eff}=0 kJ.m^{-3}$) et la courbe verte ($K_{\mu}^{eff}=10 kJ.m^{-3}$). Une configuration vortex est alors attendue (fait confirmé par nos simulations micromagnétiques). Notons tout de même que la marge de manœuvre est assez resserrée puisque d'une part la valeur de K_u^{eff} a été évaluée de façon approximative par des mesures MOKE. Si celle-ci était légèrement plus importante que notre estimation, la frontière monodomaine - vortex se retrouverait alors fortement décalée vers les épaisseurs et diamètres plus importants. D'autre part, la gamme d'épaisseur permettant l'observation d'un vortex est également très serrée autour de 1nm. En effet, augmentant l'épaisseur de Fe_2 , l'anisotropie magnétocristalline sera augmentée, la frontière définissant la limite monodomaine – vortex sera déplacée vers la droite du diagramme de phase.



<u>Figure IV.14</u> : Diagramme de phase définissant la frontière entre les configurations magnétiques monodomaine – vortex dans une structure circulaire (figure tirée de [124]) – Cette frontière est définie pour différentes valeurs de la constante d'anisotropie magnétocristalline uniaxiale – Le diamètre et l'épaisseur du disque sont exprimés en unité de longueur d'échange – Le point rouge représenté sur le diagramme repère un plot de fer de 450 nm de diamètre et de 1 nm d'épaisseur intégré dans une vanne de spin Au/Fe(Plot)/Au/Fe/GaAs(001).

Des mesures expérimentales préliminaires ont donc été réalisées sur une structure de ce type. Elles ont révélé une configuration magnétique monodomaine des plots de fer (que ce soit en analysant la zone de l'échantillon capé et non capé or). La marge de manœuvre pour l'observation de vortex dans cette structure étant probablement trop restreinte, par la suite, une étude sur des disques de fer présentant un diamètre plus important (1.2 μ m) est envisagée.

IV - 6.2 – Etude des processus de renversement d'aimantation sous champ magnétique ou sous impulsion de courant

Le second point que nous souhaiterions aborder à la suite de ces travaux de thèse est l'étude dans ces microstructures, des processus de renversement d'aimantation sous l'action d'un champ magnétique et d'impulsions de courant tunnel. Sur ce second point, des observations expérimentales assez étonnantes mais très encourageantes pour la suite ont été faites. En effet, lorsque la pointe STM utilisée pour réaliser les images magnétiques présente des instabilités, elle peut pendant un bref instant (typiquement entre 1µs et 1ms) injecter de très forts courants tunnels (de l'ordre de la centaine de nanoampères), générant ainsi localement des densités de courant de l'ordre de 10¹¹ A.m⁻². Nous avons observé lorsque ces événements se produisaient des déplacements de parois de domaines et/ou des retournements de l'aimantation dans les microstructures étudiées. La Figure IV.15 montre six cartographies du courant BEEM réalisées dans des conditions d'instabilités du contact tunnel. Dans ces images, le balayage est effectué de gauche à droite et de bas en haut. Nous pouvons

clairement identifier qu'au pixel suivant ces événements (marqués par une flèche noire), le contraste peut passer de clair à sombre ou bien de sombre à clair. L'aimantation dans le plot passe alors de l'état de fort désalignement à l'état de faible désalignement ou inversement.



<u>Figure IV.15</u> : Diverses cartographies révélant au cours d'un balayage, des déplacements de parois de domaines et/ou des retournements d'aimantation suite à l'injection (non contrôlée) d'impulsions de courant tunnel d'une centaine de nanoampères (10¹¹ A.m⁻²) lors d'une instabilité de pointe.

Notons que ces changements de contrastes n'ont jamais été observés lorsque l'impulsion de courant se produisait en dehors des microstructures. Divers phénomènes physiques prenant place lors de l'injection de ces fortes impulsions de courant peuvent expliquer l'origine de ces observations expérimentales. En particulier, l'injection locale d'une forte densité de courant génère du champ d'Oersted. Celui-ci a été évalué et est de quelques dizaines de µT sur un rayon de 1nm autour de la position de la pointe, soit du même ordre de grandeur que le champ magnétique terrestre. L'influence seule du champ d'Oersted ne peut donc expliquer ces observations expérimentales. La seconde origine potentielle est le chauffage par effet Joule. En effet, de telles impulsions de courant peuvent localement fournir une énergie thermique provoquant le dépiégeage de parois de domaines initialement bloquées sur des défauts structuraux. De récentes expériences de microcopie à effet tunnel polarisée en spin réalisées à 40 K [125] ont démontré que le chauffage par effet Joule induit par une injection de courant tunnel dans des nanostructures monoatomiques de Fe/W(110) pouvait mener à des élévations typiques de température de 17 K. μ W⁻¹ sur des ilôts mesurant 4×4 nm². Ces travaux permettent de fixer une borne supérieure de l'augmentation locale de la température dans nos microstructures de fer. Ainsi, considérant une zone de dissipation thermique de 10×10 nm², l'élévation locale de la température, lorsque la pointe STM injecte un courant tunnel de 100 nA à 2 V n'est *a priori* pas plus importante que 1 K. Un tel excès de température est négligeable devant l'activation thermique à température ambiante et ne peut expliquer seul les observations expérimentales. La dernière explication plausible, est le transfert de spin. En effet, lorsqu'un courant polarisé en spin traverse un film mince magnétique, si sa densité est suffisamment importante, celui-ci pourra influer sur l'orientation de l'aimantation de la couche en lui transférant un moment [126-129]. Dans la géométrie d'injection du courant que nous utilisons lors de nos expériences, les électrons vont de la couche magnétique libre (microstructures) vers la couche magnétique fixe (analyseur). Le moment transféré par le courant polarisé en spin à la couche libre sera opposé à la direction de l'aimantation de l'analyseur et favorisera la configuration magnétique de fort désalignement entre les deux électrodes. Or nos expériences démontrent que l'on peut à la fois observer le passage d'une configuration de faible désalignement à fort désalignement ou le passage d'une configuration de faible désalignement.

Cette analyse préliminaire ne permet donc pas d'attribuer ces observations expérimentales à une simple et unique origine physique. Vraisemblablement, une explication plus complexe résultant d'une combinaison des trois phénomènes cités précédemment est à l'origine de ces retournements d'aimantation observés dans les microstructures étudiées. Par la suite une étude complémentaire sera menée. En particulier, nous souhaitons reproduire de manière contrôlée des impulsions de courant comparables en durée et intensité afin d'étudier statistiquement ces retournements d'aimantation et d'en déterminer plus précisément l'origine.

Conclusion générale et perspectives

Le travail présenté dans ce manuscrit avait pour objectif la mise en œuvre expérimentale de mesures de magnétotransport d'électrons chauds par microscopie magnétique à électrons balistiques. Une étude préliminaire par des mesures intégrées spatialement (MOKE et GMR quatre pointes) a dans un premier temps permis la compréhension des propriétés magnétiques (anisotropie magnétocristalline et couplage) de l'hétérostructure Fe/Au/Fe/GaAs(001) sur laquelle nous avons fait le choix de travailler.

Dans un second temps, les mesures BEEM sous champ magnétique réalisées sur ces structures épitaxiées ont démontré des magnétocourants d'électrons chauds de 500 % à température ambiante. Ces forts effets s'expliquent par un filtrage en spin établi par des règles de sélections électroniques à l'interface Fe/Au. Cette interface sélectionne dans la direction [001] les états de Bloch de symétrie Δ_1 totalement polarisés en spin pour des énergies proches de la hauteur de barrière Schottky. Cette étude qui constitue le cœur de ce travail de thèse a permis de confirmer et généraliser des prédictions théoriques récemment établies par Autès *et al.* pour des électrons balistiques à l'énergie de Fermi [16].

Par la suite, des études complémentaires visant à accroître les valeurs de magnétocourant d'électrons chauds en améliorant la cohérence du transport dans ces hétérostructures seront menées. En particulier, la mise au point d'une procédure de dépôt permettant d'améliorer la morphologie des films minces de fer est envisagée. La rugosité observée sur les électrodes de fer se caractérise par une courte longueur d'onde (de l'ordre de la longueur de cohérence de l'électron) et peut potentiellement affecter la conservation de la composante transverse du vecteur d'onde électronique k_{ll} aux interfaces et donc la cohérence du transport des électrons dans l'hétérostructure. Des processus de recuit post croissance et de dépôt à température modérée (<150 °C afin de ne pas activer de mécanismes d'interdiffusion à l'interface Fe/GaAs) seront testés afin d'augmenter la taille des terrasses atomiques de fer. Par ailleurs l'enceinte STM/BEEM a très récemment été équipée d'un nouveau manipulateur permettant de refroidir les échantillons à 80 K au cours des dépôts. Dans cette gamme de température, la morphologie du front de croissance Fe/GaAs(001) n'est à notre connaissance pas documentée dans la littérature et sera donc également étudiée.

De plus, du point de vue technique, un projet de développement d'un nouveau microscope à basse température est envisagé à moyen terme. Cela permettra d'une part une nette amélioration du rapport signal sur bruit en tuant le bruit de fond diffusif sur les jonctions Schottky étudiées. Nous pourrons alors sonder le magnétotransport d'électrons chauds pour des énergies très proches de la hauteur de barrière Schottky, énergies pour lesquelles les règles de sélection en symétrie sont les plus efficaces. Par ailleurs le gel du processus de diffusion électronique quasi-élastique par les phonons permettra d'augmenter fortement l'amplitude du magnétocourant en améliorant la cohérence du transport. L'emploi de basses températures permettra par ailleurs d'augmenter la stabilité du microscope en mode imagerie à l'échelle des temps longs nécessaires pour les acquisitions en s'affranchissant des dérives thermiques. Parallèlement au développement de ce nouveau microscope, l'implémentation d'une chaîne de mesure par détection synchrone du courant BEEM est prévue en modulant soit la tension tunnel, soit le courant tunnel injecté.

Une des limitations importantes du BEEM vient du fait qu'à une énergie d'injection donnée (définie par la tension tunnel Ugap), le courant BEEM mesuré n'est pas strictement monocinétique, mais a priori intégré en énergie entre Φ_{SB} et eU_{gap}. La distribution en énergie du faisceau d'électrons traversant l'interface est donc mal connue et dépend de l'épaisseur métallique traversée. Il a été démontré [130] qu'il est possible de définir un monochromateur pour les électrons chauds présentant une faible largeur spectrale en plaçant à proximité de l'interface métal/semiconducteur une diode tunnel résonnante. Ce principe a notamment été validé hétérostructures par des mesures BEEM sur des de type Au/GaAs/AlAs(1 nm)/GaAs(x nm)/AlAs(1 nm)/GaAs. Pour cet échantillon, le puits quantique de GaAs confiné entre deux barrières tunnel d'AlAs constitue une diode tunnel résonnante à double barrière (DBRTRD) au regard des vallées Γ et L du semiconducteur. Les états électroniques confinés dans cette DBRTRD sont observés sur les spectres BEEM par un excès de courant aux énergies correspondant aux états propres du puits. La transmission tunnel de la diode augmente en effet sensiblement à la résonance, lorsque l'énergie des électrons est accordée avec les niveaux des états confinés dans le puits. La croissance de la vanne de spin Fe/Au/Fe sur une diode tunnel résonnante à base de barrières d'Al_xGa_(1-x)As est ainsi envisagée avec différentes épaisseurs de puits de GaAs pour varier la position en énergie du monochromateur. Ces mesures seront testées dans un premier temps à température ambiante sur le montage actuel, mais nécessiteront des basses températures afin de filtrer efficacement en énergie les électrons chauds collectés.

La seconde partie des travaux effectués au cours de cette thèse a consisté à la mise en œuvre expérimentale du mode imagerie magnétique du microscope. Des domaines magnétiques au sein de microstructures de fer ont été révélés par cette étude. Ces contrastes ont pu être analysés quantitativement et comparés à des images BEMM simulées à partir de calculs micromagnétiques. Cette analyse quantitative des expériences BEMM est relativement simple à mettre en œuvre par application de la loi en $sin^2(\Phi_{1,2}/2)$. Par cette étude nous avons pu voir que nous sommes encore loin d'être limités par la résolution latérale du microscope qu'il reste à déterminer. Cette résolution sera prochainement mesurée sur des structures magnétiques de type vortex susceptibles d'être observées pour des plots de fer de 1200 nm de diamètre et 1 nm d'épaisseur microstructurés dans l'électrode supérieure de la vanne de spin.

Les travaux réalisés au cours de cette thèse apportent au laboratoire de nouvelles compétences expérimentales dans la caractérisation locale d'hétérostructures pertinentes pour l'électronique de spin. Ce travail servira par la suite d'un point de départ pour l'étude future de structures intégrant des électrodes ferroélectriques ou multiferroïques. Récemment, le laboratoire a fait l'acquisition d'un bâti d'ablation laser par faisceau pulsé (PLD) sous ultravide dédié à la croissance d'hétérostructures d'oxydes complexes. Une étude débute sur la croissance et l'étude des propriétés électroniques de contacts métal/BaTiO₃. BaTiO₃ est un modèle. Son vecteur oxvde ferroélectrique polarisation électrique est orienté perpendiculairement au plan de croissance (001), laissant ainsi apparaître en surface des domaines de polarisation électrique positive ou négative. La courbure de bandes à l'interface métal/BaTiO₃ étant influencée par le dipôle d'interface, des différences de hauteur de barrières Schottky mesurables sont attendues pour les différents domaines de polarisation

125

[131]. La forte sensibilité du courant BEEM à de faibles variations de hauteur de barrière Schottky pourra donc être utilisée pour imager avec un fort contraste des domaines ferroélectriques avec une haute résolution spatiale et leur évolution sous champ électrique. La microscopie balistique n'ayant jamais été appliquée à des matériaux ferroélectriques, un champ de recherche important existe ici. A terme, cette étude sera étendue à des contacts multiferroïques Fe/BaTiO₃ [132]. Pour ces systèmes, la polarisation électrique dans BaTiO₃ influence l'anisotropie magnétique par couplage magnéto-électrique à l'interface [133]. Il est donc envisageable de retourner l'aimantation du ferromagnétique sans champ magnétique, en appliquant un champ électrique sur le ferroélectrique [134]. Ces propriétés originales ouvrent la voie au développement de dispositifs magnétorésistifs pilotables par champ électrique permettant l'écriture de l'information à faible coût énergétique. La microscopie balistique, en permettant d'imager simultanément les domaines ferromagnétiques et ferroélectriques, nous parait être un outil de choix pour l'étude fine de ce type d'hétérostructures. L'application du BEEM à ces systèmes est envisagée à court et moyen termes dans le groupe.

Annexe : Principe des simulations micromagnétiques

Dans le cadre de cette étude, des simulations micromagnétiques ont été effectuées. Nous allons expliciter brièvement les hypothèses de la théorie du micromagnétisme.

Dans un matériau ferromagnétique, la configuration dans laquelle s'oriente l'aimantation est établie par la minimisation de l'énergie libre du système considéré. Les différents termes énergétiques rentrant en compte sont les suivants :

- 1- <u>L'énergie d'échange, E_{ex} </u>: Dans un métal ferromagnétique, l'interaction d'échange (ou interaction d'Heisenberg) a tendance à aligner les moments magnétiques parallèlement les uns aux autres. Cette interaction est de courte portée et est caractérisée par une constante d'échange notée A. Cette grandeur est intrinsèque au matériau considéré et vaut 1.13×10^{-11} J.m⁻¹ dans le fer [135].
- 2- <u>L'énergie d'anisotropie magnétocristalline</u>, E_{MC} : L'origine de ce terme a déjà largement été détaillée précédemment dans ce manuscrit (paragraphe II 2).
- 3- <u>L'énergie Zeeman, E_z </u>: Dans la mesure où les structures étudiées dans ce travail l'ont été en champ nul, ce terme sera nul.
- 4- <u>L'énergie démagnétisante, E_d </u>: La présence d'une aimantation au sein d'un matériau ferromagnétique fait apparaître des charges magnétostatiques de volume et de surface générant un champ démagnétisant. Cette interaction est de longue portée contrairement à l'énergie d'échange. Dans une structure présentant une anisotropie de forme, elle sera minimale lorsque l'aimantation s'orientera parallèlement au grand axe de celle-ci.

Dans le cadre de la théorie du micromagnétisme, il est pertinent de définir une grandeur nommée longueur d'échange. Cette grandeur caractérise la compétitivité entre l'énergie d'échange (de courte portée) et l'énergie démagnétisante (de longue portée). Celle-ci s'exprime de la façon suivante :

(a)
$$\Lambda = \sqrt{\frac{A}{\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2}}$$

Pour le fer massif, l'aimantation à saturation M_s vaut 1720 kA.m⁻¹, la constante d'échange A vaut 1.13×10^{-11} J.m⁻¹. La longueur d'échange, Λ est donc d'environ 2.5 nm¹. Sur des distances inférieures à Λ , l'interaction d'échange est prédominante et l'aimantation au sein d'une structure peut être considérée comme invariante.

L'énergie magnétique totale associée à une configuration de l'aimantation s'exprime comme la somme des quatre termes cités précédemment :

(b)
$$E_{tot} = E_{ex} + E_{MC} + E_Z + E_d$$

¹ Dans la littérature, la valeur de la constante d'échange du fer est donnée entre 1×10^{-11} J.m⁻¹ et 2×10^{-11} J.m⁻¹. La longueur d'échange est donc comprise entre 2.5 et 3.3 nm.

Dans les structures magnétiques étudiées dans le cadre de cette thèse, l'énergie démagnétisante E_d ne peut s'exprimer de façon analytique. Afin de simuler les configurations magnétiques stables des plots de fer considérés, nous avons eu recours à des simulations micromagnétiques réalisées par une méthode de différence finie. Le code libre OOMMF (Object Oriented Micromagnetic Framework) a été utilisé [119]. Un maillage de l'espace par des parallélépipèdes rectangles est effectué. Celui-ci permet de définir la forme des microstructures de fer. Le paramètre de maille des cellules utilisé ne devant pas dépasser la longueur d'échange pour laquelle l'aimantation est considérée comme invariante dans l'espace, nous avons fait le choix de définir des parallélépipèdes de $2.5 \times 2.5 \times 1$ nm³. Le calcul de la configuration magnétique stable se fait alors soit par minimisation de l'énergie totale, soit par résolution de l'équation de *Landau-Lifshitz-Gilbert* [136]:

(c)
$$\frac{\partial M}{\partial t} = -\gamma M \times H_{eff} + \frac{\alpha}{M_s} M \times \frac{\partial M}{\partial t}$$

Où *M* est l'aimantation, H_{eff} , le champ effectif, γ le rapport gyromagnétique et α le terme d'amortissement (fixé à 0.5 dans nos simulations).

Pour réaliser ces simulations, la structure considérée est initialisée dans différentes configurations magnétiques (pertinentes). La configuration relaxe vers l'état magnétique le plus proche présentant un minimum local de l'énergie. La structure présentant le minimum absolu de l'énergie totale est ensuite retenue comme la plus probable.

Pour plus de détails sur la théorie du micromagnétisme, le lecteur pourra se reporter aux références suivantes [119, 137, 138].

Bibliographie

[1] M. N. Baibich, J. M. Broto, *et al.*, Physical Review Letters **61**, 2472-2475 (**1988**), *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*

[2] G. Binasch, P. Grünberg, et al., Physical Review B **39**, 4828-4830 (**1989**), Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange

[3] J. S. Moodera, L. R. Kinder, *et al.*, Physical Review Letters **74**, 3273-3276 (**1995**), *Large Magnetoresistance at Room Temperature in Ferromagnetic Thin Film Tunnel Junctions*

[4] M. Julliere, Physics Letters A 54, 225-226 (1975), Tunneling between ferromagnetic films

[5] D. J. Monsma, J. C. Lodder, *et al.*, Physical Review Letters **74**, 5260-5263 (**1995**), *Perpendicular Hot Electron Spin-Valve Effect in a New Magnetic Field Sensor: The Spin-Valve Transistor*

[6] P. S. Anil Kumar, R. Jansen, *et al.*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **214**, 1-6 (**2000**), *Low-field magnetocurrent above 200% in a spin-valve transistor at room temperature*

[7] K. Mizushima, T. Kinno, *et al.*, Magnetics, IEEE Transactions on **33**, 3500-3504 (**1997**), *Energy-dependent hot electron transport across a spin-valve*

[8] S. van Dijken, X. Jiang, et al., Applied Physics Letters **80**, 3364-3366 (**2002**), Room temperature operation of a high output current magnetic tunnel transistor

[9] S. van Dijken, X. Jiang, et al., Physical Review B **66**, 094417 (**2002**), Spin-dependent hot electron transport in $Ni_{81}Fe_{19}$ and $Co_{84}Fe_{16}$ films on GaAs(001)

[10] S. van Dijken, X. Jiang, et al., Physical Review Letters **90**, 197203 (**2003**), Nonmonotonic Bias Voltage Dependence of the Magnetocurrent in GaAs-Based Magnetic Tunnel Transistors

[11] S. van Dijken, X. Jiang, et al., Applied Physics Letters 83, 951-953 (2003), Giant magnetocurrent exceeding 3400% in magnetic tunnel transistors with spin-valve base layers

[12] S. van Dijken, X. Jiang, et al., Applied Physics Letters 82, 775-777 (2003), Comparison of magnetocurrent and transfer ratio in magnetic tunnel transistors with spin-valve bases containing Cu and Au spacer layers

[13] R. Jansen, Journal of Physics D: Applied Physics 36, R289 (2003), *The spin-valve transistor: a review and outlook*

[14] R. Jansen, P. S. Anil Kumar, *et al.*, Physical Review Letters **85**, 3277-3280 (**2000**), *Thermal Spin-Wave Scattering in Hot-Electron Magnetotransport Across a Spin Valve*

[15] X. Jiang, S. van Dijken, et al., Physical Review B 69, 014413 (2004), Bias voltage dependence of magnetocurrent in magnetic tunnel transistors

[16] G. Autès, J. Mathon, *et al.*, Physical Review B **83**, 052403 (**2011**), *Theory of ultrahigh magnetoresistance achieved by k-space filtering without a tunnel barrier*

[17] S. Guézo, Institut de Physique de Rennes, Université de Rennes1, 2009, Thèse

[18] S. Guézo, P. Turban, et al., Physical Review B **81**, 085319 (**2010**), Transversemomentum selection rules for ballistic electrons at epitaxial metal/GaAs(001) interfaces

[19] P. Schieffer, A. Guivarc'h, et al., Applied Physics Letters **89**, 161923-3 (**2006**), *Formation of a body-centered-cubic Fe-based alloy at the Fe/GaAs(001) interface*

[20] C. Lallaizon, PALMS, Université de Rennes I, 2000, Thèse

[21] W. H. Rippard and R. A. Buhrman, Applied Physics Letters **75**, 1001-1003 (**1999**), Ballistic electron magnetic microscopy: Imaging magnetic domains with nanometer resolution

[22] W. H. Rippard and R. A. Buhrman, Physical Review Letters **84**, 971-974 (**2000**), *Spin-Dependent Hot Electron Transport in Co/Cu Thin Films*

[23] L. D. Bell and W. J. Kaiser, Physical Review Letters **61**, 2368-2371 (**1988**), Observation of Interface Band Structure by Ballistic-Electron-Emission Microscopy

[24] W. J. Kaiser and L. D. Bell, Physical Review Letters **60**, 1406-1409 (**1988**), Direct investigation of subsurface interface electronic structure by ballistic-electron-emission microscopy

[25] A. Bauer, M. T. Cuberes, *et al.*, Physical Review Letters **71**, 149-152 (**1993**), *Quantitative study of electron transport in ballistic-electron-emission microscopy*

[26] L. D. Bell and W. J. Kaiser, Annual Review of Materials Science 26, 189 (1996), Ballistic-Electron-Emission Microscopy: A Nanometer-Scale Probe of Interfaces and Carrier Transport

[27] K. Reuter, F. J. Garcia-Vidal, *et al.*, Physical Review Letters **81**, 4963-4966 (**1998**), Ballistic Electron Emission Microscopy on CoSi₂/Si(111) Interfaces: Band Structure Induced Atomic-Scale Resolution and Role of Localized Surface States

[28] S. Guezo, P. Turban, et al., Applied Physics Letters 93, 172116-3 (2008), Spatially resolved electronic properties of MgO/GaAs(001) tunnel barrier studied by ballistic electron emission microscopy

[29] R. Ludeke, H. J. Wen, *et al.*, Applied Physics Letters **73**, 1221-1223 (**1998**), *Quantum interference in SiO*₂: A conduction-band mass reappraisal

[30] B. Kaczer, Z. Meng, et al., Physical Review Letters 77, 91-94 (1996), Nanometer-Scale Creation and Characterization of Trapped Charge in SiO₂ Films Using Ballistic Electron Emission Microscopy

[31] R. Ludeke, IBM Journal of Research and Development 44, 517 (2000), *Hit-electron* effects and oxide degradation in MOS structures studied with ballistic electron emission microscopy

[32] W. Li, K. L. Kavanagh, *et al.*, The Journal of Physical Chemistry B **109**, 6252-6256 (**2005**), *Ballistic Electron Emission Microscopy Studies of Au/Molecule/n-GaAs Diodes*

[33] W. Yi, A. J. Stollenwerk, et al., Surface Science Reports 64, 169-190 (2009), Ballistic electron microscopy and spectroscopy of metal and semiconductor nanostructures

[34] S. M. Sze and K. K. Ng, *Physics of Semiconductor Devices*, John Wiley & Sons (2007)

[35] E. H. Rhoderick, *Metal-Semiconductor Contacts*, Oxford University Press (**1980**)

[36] M. Prietsch and R. Ludeke, Surface Science **251–252**, 413-417 (**1991**), *BEEM* spectroscopy at interfaces of Au, Ag, Cu, Mg and Ni films with n-GaP(110)

[37] R. Ludeke, M. Prietsch, *et al.*, Journal of Vacuum Science & Technology B **9**, 2342-2348 (**1991**), *Ballistic electron emission spectroscopy of metals on GaP*(*110*)

[38] M. Prietsch, Physics Reports **253**, 163-233 (**1995**), Ballistic-electron emission microscopy (BEEM): studies of metal/semiconductor interfaces with nanometer resolution
[39] P. L. de Andres, F. J. Garcia-Vidal, *et al.*, Progress in Surface Science **66**, 3-51 (**2001**), *Theory of ballistic electron emission microscopy*

[40] F. J. Garcia-Vidal, P. L. de Andres, *et al.*, Physical Review Letters **76**, 807 (**1996**), *Elastic Scattering and the Lateral Resolution of Ballistic Electron Emission Microscopy: Focusing Effects on the Au/Si Interface*

[41] C. R. Crowell and S. M. Sze, Physical Review Letters **15**, 659-661 (**1965**), *Ballistic Mean Free Path Measurements of Hot Electrons in Au Films*

[42] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, *et al.*, Journal of Applied Physics **89**, 5815-5875 (**2001**), *Band parameters for III--V compound semiconductors and their alloys*

[43] M. H. Hecht, L. D. Bell, et al., Applied Physics Letters 55, 780-782 (1989), Ballisticelectron-emission microscopy investigation of Schottky barrier interface formation

[44] E. Y. Lee and L. J. Schowalter, Physical Review B **45**, 6325-6328 (**1992**), *Electron-hole pair creation and metal/semiconductor interface scattering observed by ballistic-electron-emission microscopy*

[45] L. J. Schowalter and E. Y. Lee, Physical Review B **43**, 9308-9311 (**1991**), *Role of elastic scattering in ballistic-electron-emission microscopy of Au/Si(001) and Au/Si(111) interfaces*

[46] C. A. Bobisch, A. Bannani, *et al.*, Physical Review Letters **102**, 136807 (**2009**), *Conservation of the Lateral Electron Momentum at a Metal-Semiconductor Interface Studied by Ballistic Electron Emission Microscopy*

[47] K. Reuter, P. L. de Andres, *et al.*, Physical Review B **58**, 14036 (**1998**), *Quantummechanical analysis of the elastic propagation of electrons in the Au/Si system: Application to ballistic-electron-emission microscopy*

[48] K. Reuter, P. L. de Andres, *et al.*, Physical Review B **63**, 205325 (**2001**), Surface and bulk band-structure effects on CoSi₂/Si(111) ballistic-electron emission experiments

[49] M. K. Weilmeier, W. H. Rippard, *et al.*, Physical Review B **59**, R2521-R2524 (**1999**), *Ballistic electron transport through Au*(111)/Si(111) and Au(111)/Si(100) interfaces

[50] J. J. Garramone, J. R. Abel, *et al.*, Applied Physics Letters **100**, 252102-4 (**2012**), Signatures of the semiconductor crystallographic orientation on the charge transport across non-epitaxial diodes

[51] S. Urazhdin, R. Loloee, et al., Physical Review B 71, 100401 (2005), Noncollinear spin transport in magnetic multilayers

[52] A. Brataas, G. E. W. Bauer, *et al.*, Physics Reports **427**, 157-255 (**2006**), *Non-collinear magnetoelectronics*

[53] T. Qu and R. H. Victora, Journal of Applied Physics **111**, 07C516-3 (**2012**), Angular dependence of current perpendicular to plane giant magnetoresistance in multilayer nanowire

[54] E. Y. Tsymbal and D. G. Pettifor, Solid State Physics Volume 56, 113-237 (2001), *Perspectives of giant magnetoresistance*

[55] E. Chulkov, A. Borisov, et al., Chemical Reviews-Columbus 106, 4160-4206 (2006), *Electronic excitations in metals and at metal surfaces*

[56] J. Stöhr and H. C. Siegmann, *From Fundamentals to Nanoscale Dynamics*, Springer (2006)

[57] E. Heindl, department of Physics, university of Regensburg, 2010, thèse

[58] N. F. Mott, Advances in Physics 13, 325-422 (1964), *Electrons in transition metals*

[59] M. Bowen, V. Cros, *et al.*, Applied Physics Letters **79**, 1655-1657 (**2001**), *Large magnetoresistance in Fe/MgO/FeCo(001) epitaxial tunnel junctions on GaAs(001)*

[60] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, *et al.*, Applied Physics Letters **82**, 4507-4509 (**2003**), *High tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions*

[61] S. Yuasa, T. Nagahama, et al., Nature Materials **3**, 868 (**2004**), Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions

[62] S. Yuasa, A. Fukushima, *et al.*, The Japan Society of Applied Physics **43**, L588 (**2004**), *High tunnel magnetoresistance at room temperature in fully epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions due to coherent spin-polarized Tunneling*

[63] C. Tiusan, M. Sicot, et al., Journal of Physics: Condensed Matter 18, 941 (2006), Static and dynamic aspects of spin tunnelling in crystalline magnetic tunnel junctions

[64] C. Tiusan, F. Greullet, *et al.*, Journal of Physics: Condensed Matter **19**, 165201 (**2007**), *Spin tunnelling phenomena in single-crystal magnetic tunnel junction systems*

[65] S. G. Wang, R. C. C. Ward, et al., Physical Review B **78**, 180411 (**2008**), Temperature dependence of giant tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions

[66] J. Mathon and A. Umerski, Physical Review B 63, 220403 (2001), *Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction*

[67] W. H. Butler, X. G. Zhang, et al., Physical Review B 63, 054416 (2001), Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches

[68] W. H. Butler, Science and Technology of Advanced Materials 9, 014106 (2008), *Tunneling magnetoresistance from a symmetry filtering effect*

[69] F. Greullet, C. Tiusan, et al., Physical Review Letters **99**, 187202 (**2007**), Evidence of a Symmetry-Dependent Metallic Barrier in Fully Epitaxial MgO Based Magnetic Tunnel Junctions

[70] J. C. Le Breton, Institut de Physique de Rennes, Université de Rennes I, 2007, Thèse

[71] V. P. LaBella, H. Yang, et al., Physical Review Letters 83, 2989-2992 (1999), Atomic Structure of the GaAs(001)-(2×4) Surface Resolved Using Scanning Tunneling Microscopy and First-Principles Theory

[72] J. E. Northrup and S. Froyen, Physical Review Letters **71**, 2276-2279 (**1993**), *Energetics* of GaAs(100)- (2×4) and $-(4 \times 2)$ reconstructions

[73] J. E. Northrup and S. Froyen, Physical Review B 50, 2015-2018 (1994), Structure of GaAs(001) surfaces: The role of electrostatic interactions

[74] T. Ohno, Physical Review Letters 70, 631-634 (1993), Energetics of As dimers on GaAs(001) As-rich surfaces

[75] P. Schieffer, PALMS, Université de Rennes1, 2006, HDR

[76] P. M. Thibado, E. Kneedler, *et al.*, Physical Review B **53**, R10481-R10484 (**1996**), *Nucleation and growth of Fe on GaAs(001)-(2×4) studied by scanning tunneling microscopy*

[77] J. Herfort, W. Braun, *et al.*, Applied Surface Science **237**, 181-188 (**2004**), *Atomically engineered interfaces for spin injection: ultrathin epitaxial Fe films grown on As- and Ga*-terminated GaAs(001) substrates

[78] T. L. Monchesky, A. Enders, et al., Physical Review B 71, 214440 (2005), Spindependent transport in Fe and Fe/Au multilayers

[79] S. D. Bader and E. R. Moog, Journal of Applied Physics **61**, 3729-3734 (**1987**), *Magnetic properties of novel epitaxial films (invited)*

[80] A. M. Begley, S. K. Kim, et al., Physical Review B 48, 1779-1785 (1993), Growth of ultrathin films of Fe on Au{001}

[81] N. Tournerie, PALMS, Université de Rennes1, 2005, Thèse

[82] M. Zölfl, M. Brockmann, et al., Journal of Magnetism and Magnetic Materials 175, 16-22 (1997), Magnetic films epitaxially grown on semiconductors

[83] M. Gester, C. Daboo, et al., Thin Solid Films **275**, 91-94 (**1996**), Thickness-dependent inplane magnetic anisotropy in epitaxial Fe films on GaAs substrates

[84] M. Brockmann, M. Zölfl, *et al.*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **198–199**, 384-386 (**1999**), *In-plane volume and interface magnetic anisotropies in epitaxial Fe films on GaAs(001)*

[85] O. Thomas, Q. Shen, et al., Physical Review Letters **90**, 017205 (**2003**), Interplay between Anisotropic Strain Relaxation and Uniaxial Interface Magnetic Anisotropy in Epitaxial Fe Films on (001) GaAs

[86] R. Moosbuhler, F. Bensch, *et al.*, Journal of Applied Physics **91**, 8757-8759 (**2002**), *Epitaxial Fe films on GaAs(001): Does the substrate surface reconstruction affect the uniaxial magnetic anisotropy?*

[87] G. Bayreuther, M. Dumm, et al., Journal of Applied Physics 93, 8230-8235 (2003), Magnetocrystalline volume and interface anisotropies in epitaxial films: Universal relation and Néel's model (invited)

[88] M. Brockmann, S. Miethaner, *et al.*, Journal of Applied Physics **81**, 5047-5049 (**1997**), *In-plane spin reorientation transition in ultrathin epitaxial Fe(001) films*

[89] K. Wetzig and C. M. Schneider, Metal Based Thin Films for Electronics, wiley (2005)

[90] M. A. Ruderman and C. Kittel, Physical Review **96**, 99-102 (**1954**), *Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons*

[91] K. Yosida, Physical Review 106, 893-898 (1957), Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys

[92] Ashcroft, Solid State Physics, Holt Rinehart & Winston (1976)

[93] J. J. D. Vries, Physics department, Eindhoven University of technology, 1996, Thèse

[94] A. Fuß, S. Demokritov, *et al.*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **103**, L221-L227 (**1992**), *Short- and long period oscillations in the exchange coupling of Fe across epitaxially grown Al- and Au-interlayers*

[95] J. Unguris, R. J. Celotta, et al., Physical Review Letters **79**, 2734-2737 (**1997**), Determination of the Exchange Coupling Strengths for Fe/Au/Fe

[96] P. Bruno and C. Chappert, Physical Review Letters **67**, 1602-1605 (**1991**), Oscillatory coupling between ferromagnetic layers separated by a nonmagnetic metal spacer

[97] P. Bruno and C. Chappert, Physical Review B **46**, 261-270 (**1992**), *Ruderman-Kittel theory of oscillatory interlayer exchange coupling*

[98] S. M. Rezende, C. Chesman, *et al.*, Journal of Applied Physics **84**, 958-972 (**1998**), *Studies of coupled metallic magnetic thin-film trilayers*

[99] J. Barnaś, O. Baksalary, et al., Physical Review B 56, 6079-6085 (1997), Angular dependence of giant magnetoresistance in magnetic multilayers

[100] J. C. Slonczewski, Journal of Applied Physics **73**, 5957-5962 (**1993**), Origin of biquadratic exchange in magnetic multilayers (invited)

[101] U. Rucker, S. Demokritov, et al., Journal of Applied Physics **78**, 387-391 (**1995**), Biquadratic coupling in Fe/Au/Fe trilayers: Experimental evidence for the magnetic-dipole mechanism

[102] E. Heindl, C. Kefes, *et al.*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **321**, 3693-3697 (**2009**), *Hot electron spin attenuation lengths of bcc* —*Room temperature Magnetocurrent of 1200%*

[103] E. Heindl, J. Vancea, et al., Physical Review B 75, 073307 (2007), Ballistic electron magnetic microscopy on epitaxial spin valves

[104] E. Heindl, J. Vancea, et al., Physical Review B 76, 104435 (2007), Hot-electron transport and magnetic anisotropy in epitaxial spin valves

[105] W. Kipferl, M. Sperl, *et al.*, Journal of Applied Physics **97**, 10B313-3 (**2005**), *Stabilization of ferromagnetic order in epitaxial ultrathin Fe films*

[106] J. Sólyom, Fundamentals of the Physics of Solids: Electronic properties, Springer (2009)

[107] G. Autès, CEA Saclay, Université de Paris VI, 2008,

[108] D. A. Papaconstantopoulos, *Handbook of the Band Structure of Elemental Solids*, Plenum Press (**1986**)

[109] J. Singh, *Electronic and optoelectronic properties of semiconductor structures*, Cambridge University Press (**2003**)

[110] G. Autès, J. Mathon, et al., Physical Review Letters **104**, 217202 (**2010**), Strong Enhancement of the Tunneling Magnetoresistance by Electron Filtering in an Fe/MgO/Fe/GaAs(001) Junction

[111] W. H. Rippard, A. C. Perrella, *et al.*, Applied Physics Letters **77**, 1357-1359 (**2000**), *Observation of magnetization reversal of thin-film permalloy nanostructures using ballistic electron magnetic microscopy*

[112] A. Bellec, S. Rohart, *et al.*, EPL (Europhysics Letters) **91**, 17009 (**2010**), *Domain wall structure in magnetic bilayers with perpendicular anisotropy*

[113] A. Kaidatzis, S. Rohart, et al., Physical Review B 78, 174426 (2008), Hot electron transport and a quantitative study of ballistic electron magnetic imaging on Co/Cu multilayers

[114] A. Linklater and J. Nogami, Nanotechnology **19**, 285302 (**2008**), *Defining nanoscale metal features on an atomically clean silicon surface with a stencil*

[115] M. M. Deshmukh, D. C. Ralph, *et al.*, Applied Physics Letters **75**, 1631-1633 (**1999**), *Nanofabrication using a stencil mask*

[116] L. Gross, R. R. Schlittler, *et al.*, Applied Physics Letters **90**, 093121-3 (**2007**), *Fabrication of ultrathin magnetic structures by nanostencil lithography in dynamic mode*

[117] C. Gartner, R. Hoffman, *et al.*, Review of Scientific Instruments **77**, 026101-3 (**2006**), *Fully ultrahigh-vacuum-compatible fabrication of submicrometer-spaced electrical contacts*

[118] H.-J. Shin, J. H. Choi, et al., Applied Physics Letters 87, 113114-3 (2005), Patterning of ferroelectric nanodot arrays using a silicon nitride shadow mask

[119] M. J. Donahue and D. G. Porter, *Object Oriented Micromagnetic Framework*, National Institute of Standards and Technology (**1999**)

[120] N. Tournerie, P. Schieffer, *et al.*, Physical Review B **78**, 134401 (**2008**), *In-plane magnetic anisotropies in epitaxial Fe(001) thin films*

[121] M. M. J. Bischoff, T. Yamada, *et al.*, Physical Review Letters **87**, 246102 (**2001**), *Direct Observation of Surface Alloying and Interface Roughening: Growth of Au on Fe(001)*

[122] T. Leeb, M. Brockmann, et al., Journal of Applied Physics 85, 4964-4966 (1999), Inplane magnetic anisotropies in Fe films on vicinal Ag(001) and Au(001) surfaces

[123] H. Sirringhaus, E. Y. Lee, *et al.*, Physical Review Letters **74**, 3999-4002 (**1995**), *Atomic-Scale Variations of the Tunneling Distribution in a Scanning Tunneling Microscope Observed by Ballistic-Electron-Emission Microscopy*

[124] P. O. Jubert and R. Allenspach, Physical Review B **70**, 144402 (**2004**), Analytical approach to the single-domain-to-vortex transition in small magnetic disks

[125] A. Schlenhoff, S. Krause, *et al.*, Physical Review Letters **109**, 097602 (**2012**), *Individual Atomic-Scale Magnets Interacting with Spin-Polarized Field-Emitted Electrons*

[126] J. C. Slonczewski, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **159**, L1-L7 (**1996**), *Current-driven excitation of magnetic multilayers*

[127] J. Z. Sun, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **202**, 157-162 (**1999**), *Currentdriven magnetic switching in manganite trilayer junctions*

[128] E. B. Myers, D. C. Ralph, et al., Science **285**, 867-870 (**1999**), Current-Induced Switching of Domains in Magnetic Multilayer Devices

[129] M. D. Stiles and J. Miltat, Spin-transfer torque and dynamics, Springer (2006)

[130] D. Rakoczy, G. Strasser, et al., Physical Review B 66, 033309 (2002), L-valley electron transport in GaAs-AlAs double-barrier resonant tunneling structures studied by ballistic electron emission microscopy

[131] G. Kim, D. Mazumdar, *et al.*, Applied Physics Letters **102**, 052908-4 (**2013**), *Nanoscale electroresistance properties of all-oxide magneto-electric tunnel junction with ultra-thin barium titanate barrier*

[132] H. L. Meyerheim, F. Klimenta, et al., Physical Review Letters **106**, 087203 (**2011**), Structural Secrets of Multiferroic Interfaces

[133] T. H. E. Lahtinen, Y. Shirahata, *et al.*, Applied Physics Letters **101**, 262405-4 (**2012**), Alternating domains with uniaxial and biaxial magnetic anisotropy in epitaxial Fe films on $BaTiO_3$

[134] M. Fechner, P. Zahn, et al., Physical Review Letters **108**, 197206 (**2012**), Switching Magnetization by 180° with an Electric Field

[135] J. L. Palma, C. Morales-Concha, *et al.*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **324**, 637-641 (**2012**), *Micromagnetic simulation of Fe asymmetric nanorings*

[136] L. D. Landau and E. Lifschitz, Physikalische Zeitschrift der Sowjetunion **8**, 153 (**1935**), *On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies*

[137] E. d. T. d. Lacheisserie, Magnétisme I - Fondements, Grenoble (2000)

[138] A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic domains: the analysis of magnetic microstructures*, Springer (**2008**)